
Содержание

Глава 1. Природа гамма-излучения	1
1.1 Гамма-излучение и спектр электромагнитного излучения	1
1.2 Характеристики ядерного распада	3
1.2.1 Процессы ядерного распада. Общие сведения.	3
1.2.2 Альфа-распад	4
1.2.3 Бета-распад	6
1.3 Образование рентгеновского излучения.	7
1.3.1 Модель атома Бора	7
1.3.2 Процессы образования рентгеновского излучения.	8
1.3.3 Спектры характеристического рентгеновского излучения.	9
1.4 Основные линии гамма-излучения ядерных материалов	10
1.4.1 Типичные спектры	10
1.4.2 Основные характеристики гамма-излучения, используемые для анализа ядерных материалов.	10
1.4.3 Гамма-излучение продуктов деления	18
1.4.4 Радиационный фон.	20
1.5 Дополнительные реакции образования гамма-излучения	22
1.5.1 Тормозное излучение	22
1.5.2 Реакции взаимодействия с частицами.	22
Литература	23
Глава 2. Взаимодействие гамма-излучения с веществом	25
2.1 Введение	25
2.2 Экспоненциальное ослабление	25
2.2.1 Основной закон ослабления гамма-излучения	25
2.2.2 Массовый коэффициент ослабления	27
2.3 Процессы взаимодействия.	29
2.3.1 Фотоэлектрическое поглощение	29
2.3.2 Комптоновское рассеяние	31
2.3.3 Образование пар	34
2.3.4 Полный массовый коэффициент ослабления	35
2.4 Фильтры	36
2.5 Защита	38
Литература	39
Глава 3. Детекторы гамма-излучения	41
3.1 Введение	41
3.2 Типы детекторов	41

3.2.1 Газонаполненные детекторы	41
3.2.2 Сцинтилляционные детекторы	43
3.2.3 Твердотельные детекторы	44
3.3 Характеристики регистрируемых спектров	49
3.3.1 Общий отклик детектора	49
3.3.2 Спектральные характеристики	51
3.3.3 Разрешение детектора	53
3.3.4 Эффективность детектора	56
3.4 Выбор детектора	60
Литература	61

Глава 4. Аппаратура для гамма-спектрометрии. 63

4.1 Введение	63
4.2 Выбор детектора	65
4.3 Высоковольтные источники напряжения смещения	66
4.4 Предусилитель	67
4.5 Усилитель	71
4.5.1 Схема "полюс-ноль"	74
4.5.2 Цепь восстановления базового уровня	75
4.5.3 Цепь режекции наложений	76
4.5.4 Усовершенствование схемы усилителей	78
4.6 Одноканальный анализатор	79
4.7 Счетчики, пересчетные устройства, таймеры и измерители скорости счета	81
4.8 Многоканальный анализатор	83
4.8.1 Аналого-цифровой преобразователь	83
4.8.2 Стабилизаторы спектра	86
4.8.3 Память многоканального анализатора, дисплей и анализ данных	88
4.9 Вспомогательное электронное оборудование	90
4.10 Заключительные замечания	91
Литература	92

Глава 5. Основные вопросы пассивного анализа гамма-излучения 95

5.1 Энергетическая градуировка и определение положения пика	95
5.1.1 Введение	95
5.1.2 Линейная энергетическая градуировка	100
5.1.3 Определение положения пика (центроиды)	101
5.1.4 Визуальное определение положения пика	102
5.1.5 Графическое определение положения пика	102
5.1.6 Определение положения пика методом первых моментов	104
5.1.7 Определение положения пика с помощью метода пяти каналов	105
5.1.8 Определение положения пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса	106
5.1.9 Определение положения пика с использованием подгонки параболизированной функцией Гаусса	108
5.1.10 Определение положения пика с помощью сложных программ подгонки спектра	111

5.2 Измерения разрешения детектора	112
5.2.1 Введение	112
5.2.2 Определение ширины пика с помощью визуальной оценки изображения на дисплее МКА	113
5.2.3 Графическое определение ширины пика	115
5.2.4 Определение ширины пика с помощью аналитической интерполяции	115
5.2.5 Определение ширины пика с помощью метода вторых моментов	117
5.2.6 Определение ширины пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса	118
5.2.7 Определение ширины пика с помощью подгонки параболизированной функцией Гаусса	118
5.3 Определение площади пика полного поглощения	118
5.3.1 Введение	118
5.3.2 Выбор рассматриваемых областей	119
5.3.3 Вычитание линейного комптоновского фона	119
5.3.4 Вычитание сглаженной ступеньки комптоновского фона	122
5.3.5 Вычитание комптоновского фона при использовании единственной рассматриваемой области фона	122
5.3.6 Вычитание комптоновского фона с помощью процедуры двух стандартных образцов	124
5.3.7 Использование сумм числа отсчетов в рассматриваемых областях для измерения площадей пиков	124
5.3.8 Использование простых подгонок функцией Гаусса для измерения площади пика	127
5.3.9 Использование известных параметров формы для измерения площадей пиков в мультиплетах	127
5.3.10 Использование сложных вычислительных программ для измерения площади пика	129
5.4 Поправки на наложение импульсов и просчеты	130
5.4.1 Введение	130
5.4.2 Зависимость просчетов от входной загрузки	132
5.4.3 Пропускная способность спектрометрических систем	133
5.4.4 Методы введения поправок. Общие замечания	138
5.4.5 Методы введения поправки на наложения. Электроника	139
5.4.6 Введение поправок на мертвое время и наложения импульсов с помощью генератора импульсов	139
5.4.7 Метод образцового источника для введения поправок на мертвое время и наложения	143
5.5 Эффекты закона обратного квадрата	146
5.6 Измерения эффективности детектора	149
5.6.1 Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения	149
5.6.2 Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения энергии	150
5.6.3 Относительная эффективность	151
5.6.4 Эффективность по отношению к детектору NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см	152
5.6.5 Эффективность в зависимости от энергии и положения	153
Литература	153

Глава 6. Процедуры учета ослабления	155
6.1 Введение	155
6.2 Процедуры	156
6.2.1 Предварительные замечания	156
6.2.2 Общее описание процедуры анализа	156
6.2.3 Необходимые требования при определении коэффициента поправки на самоослабление	157
6.2.4 Методы определения линейного коэффициента ослабления образца	160
6.3 Формальное определение коэффициента поправки на самоослабление	162
6.3.1 Общее определение.	162
6.3.2 Удобные типовые формы образцов	162
6.4 Основные параметры коэффициента поправки на самоослабление	163
6.5 Аналитические зависимости для коэффициента поправки на самоослабление в дальней геометрии.	165
6.5.1 Образцы в форме пластины	166
6.5.2 Цилиндрические образцы.	167
6.5.3 Образцы сферической формы	168
6.6 Численные расчеты для ближней геометрии	168
6.6.1 Общие положения	168
6.6.2 Одномерная модель	169
6.6.3 Двухмерная модель.	172
6.6.4 Трехмерная модель	173
6.6.5 Приближенные формулы и интерполяция	174
6.6.6 Влияние абсолютной и относительной погрешностей при расчете коэффициента поправки на самоослабление	177
6.6.7 Точность определения коэффициента поправки на самоослабление и полной скорректированной скорости счета	179
6.7 Факторы, определяющие требуемое количество стандартных образцов	180
6.8 Методы, использующие отношения интенсивностей гамма-излучений	182
6.9 Примеры анализа.	183
6.9.1 Удобные сочетания гамма-излучений для анализа, пропускания и опорных пиков	183
6.9.2 Интерполяция и экстраполяция коэффициента пропускания излучения.	183
6.9.3 Анализ урана-235 в дальней геометрии	185
6.9.4 Анализ раствора плутония-239 в ближней геометрии	186
6.9.5 Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения.	188
Литература	190
Глава 7. Измерение обогащения урана.	193
7.1 Введение	193
7.2 Излучение образцов урана	194
7.3 Методика гамма-измерений бесконечных образцов	194

7.3.1 Однокомпонентная задача (металлический уран)	197
7.3.2 Двухкомпонентная задача (уран и материал матрицы)	198
7.3.3 Аппаратура и методика для бесконечных образцов. Применения	199
7.4 Методики анализа по отношению пиков	203
7.4.1 Теория	203
7.4.2 Применения	203
7.4.3 Выводы по методикам отношения пиков	204
7.5 Методики измерения обогащения урана в газовой фазе	205
7.6 Измерения обогащения по нейтронному излучению	207
7.7 Поправки на ослабление в стенках контейнера	208
7.7.1 Прямое измерение толщины стенки	208
7.7.2 Методика измерения отношения собственных гамма-линий	209
7.7.3 Измерения баллонов с UF_6	210
7.8 Распространение приемов измерения обогащения урана на другие области применения	212
7.8.1 Измерение концентрации	212
7.8.2 Соотношение компонентов в смешанном оксидном топливе	212
Литература	213

Глава 8. Гамма-спектрометрия изотопного состава

плутония	217
8.1 Введение	217
8.2 Основные сведения	217
8.2.1. Характеристики распада изотопов плутония	217
8.2.2 Характеристики распада изотопа ^{241}Pu	218
8.2.3. Определение концентрации изотопа ^{242}Pu	219
8.2.4 Спектральная интерференция	219
8.2.5 Практическое применение измерений изотопного состава плутония	219
8.3 Спектральные области, используемые для изотопных измерений	221
8.3.1. Область энергии 40 кэВ	221
8.3.2. Область энергии 100 кэВ	226
8.3.3 Область энергии 125 кэВ	228
8.3.4 Область энергии 148 кэВ	230
8.3.5 Область энергии 160 кэВ	232
8.3.6 Область энергии 208 кэВ	234
8.3.7 Область энергии 332 кэВ	235
8.3.8 Область энергии 375 кэВ	237
8.3.9 Область энергии 640 кэВ	237
8.4 Основы измерений	239
8.4.1 Измерение изотопных отношений	239
8.4.2 Измерение абсолютной массы изотопа	243
8.4.3 Изотопная корреляция ^{242}Pu	243
8.5 Получение данных	244
8.5.1 Электроника	244
8.5.2 Детекторы	244
8.5.3 Фильтры	245

8.5.4 Скорость счета и геометрия образец/детектор	245
8.5.5 Время измерения	246
8.6 Спектральный анализ	246
8.6.1 Суммирование по рассматриваемой области	246
8.6.2 Подгонка пика	247
8.6.3 Анализ по функции соответствия	249
8.7 Приборное оснащение	250
8.7.1 Компания Рокуэлл-Хэнфорд	250
8.7.2 Лос-Аламосская национальная лаборатория	252
8.7.3 Установка Маундской лаборатории	256
8.7.4 Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса	259
8.7.5 Обзор погрешностей измерений	262
Литература	262

Глава 9. Плотнометрия 267

9.1 Введение	267
9.2 Моноэнергетическая плотнометрия	268
9.2.1 Измерение концентрации и толщины	268
9.2.2 Точность измерений	269
9.3 Многоэнергетическая плотнометрия	271
9.3.1 Анализ двухэнергетического случая	271
9.3.2 Точность измерения	272
9.3.3 Распространение на случай большего числа значений энергий	272
9.4 Плотнометрия по краю поглощения	272
9.4.1 Описание методики измерений	274
9.4.2 Точность измерения	276
9.4.3 Чувствительность измерения	277
9.4.4 Эффекты матрицы	279
9.4.5 Выбор методики измерений	282
9.4.6 Источники излучения	282
9.5 Моноэнергетические плотнометры	283
9.6 Двухэнергетические плотнометры	284
9.7 Плотнометры по краю поглощения	285
9.7.1 Плотнометры по К-краю поглощения	286
9.7.2 Плотнометры по L _{III} -краю поглощения	294
Литература	300

Глава 10. Рентгенофлуоресцентный анализ 305

10.1 Введение	305
10.2 Теория	306
10.2.1 Образование рентгеновского излучения	306
10.2.2 Выход флуоресценции	307
10.2.3 Пропускание фотонов	308
10.2.4 Геометрия измерений	312
10.3 Типы источников	313
10.4 Поправка на ослабление в образце	317
10.4.1 Эффекты ослабления в образце	317
10.4.2 Основное уравнение анализа	318

10.4.3 Методы поправки на ослабление	320
10.5 Области применения и аппаратура	322
Литература	326
Глава 11. Природа нейтронного излучения	329
11.1 Введение	329
11.2 Спонтанное и вынужденное деление ядер	329
11.3 Нейтроны и гамма-кванты деления	332
11.4 Нейтроны, испускаемые в реакциях (α, n)	336
11.5 Нейтроны других ядерных реакций	343
11.6 Изотопные нейтронные источники.	345
11.7 Выводы	348
Литература	349
Глава 12. Взаимодействие нейтронов с веществом	353
12.1 Введение	353
12.2 Микроскопические взаимодействия	353
12.2.1 Понятие сечения взаимодействия	353
12.2.2 Соотношение энергия-скорость для нейтронов	354
12.2.3 Типы взаимодействий	355
12.2.4 Зависимость сечения взаимодействия от энергии	358
12.3 Макроскопические взаимодействия	361
12.3.1 Макроскопические сечения	361
12.3.2 Длина свободного пробега и скорость реакции.	364
12.4 Эффекты замедления в большом объеме вещества	365
12.5 Эффекты размножения в массивных образцах вещества	369
12.6 Защита от нейтронов.	372
12.7 Методы расчета переноса нейтронов.	374
12.7.1 Метод Монте-Карло	374
12.7.2 Метод дискретных ординат	375
Литература	376
Глава 13. Детекторы нейтронов.	377
13.1 Механизмы регистрации нейтронов	377
13.2 Основные свойства газонаполненных детекторов.	378
13.3 Чувствительность детекторов нейтронов к гамма-излучению	382
13.4 Газонаполненные детекторы	386
13.4.1 Детекторы тепловых нейтронов на основе ^3He и BF_3	386
13.4.2 Детекторы быстрых нейтронов, наполненные ^4He и CH_4	392
13.4.3 Камеры деления	394
13.4.4 Детекторы с покрытием из ^{10}B	396
13.5 Пластмассовые и жидкие сцинтилляторы	397
13.5.1 Введение.	397
13.5.2 Механизмы взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалом детектора	398

13.5.3 Дискриминация по форме импульса	401
13.6 Другие типы детекторов нейтронов	404
13.7 Измерение энергетических спектров нейтронов	406
13.7.1 Введение.	406
13.7.2 Методы измерений	406
Литература	407

Глава 14. Основы регистрации полного потока нейтронов . . 409

14.1 Введение	409
14.1.1 Теория регистрации полного потока нейтронов	410
14.1.2 Сравнение методов регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений.	410
14.2 Источники образования первичных нейтронов	412
14.2.1 Соединения плутония	412
14.2.2 Соединения урана	415
14.2.3 Примеси	419
14.2.4 Эффекты влияния энергетического спектра нейтронов	422
14.2.5 Эффекты тонкой мишени	424
14.3 Перенос нейтронов в образце	425
14.3.1 Умножение нейтронов утечки	426
14.3.2 Спектр нейтронов утечки	429
14.4 Эффективность регистрации нейтронов	431
14.4.1 Расположение гелиевых счетчиков в замедлителе.	431
14.4.2 Конструкция замедлителя.	432
14.4.3 Влияние энергетического спектра нейтронов.	433
Литература	436

Глава 1

Природа гамма-излучения

Дуглас Райлли
(Переводчик Л. Г. Савосин)

1.1 ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ И СПЕКТР ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Гамма-излучение представляет собой высокоэнергетическое электромагнитное излучение, испускаемое при переходе ядра атома из возбужденного состояния в стабильное или менее возбужденное. Электромагнитное излучение, как таковое, охватывает такие различные явления, как радиоволны, телевидение, микроволны, инфракрасное излучение, свет, ультрафиолетовое излучение, рентгеновские лучи и гамма-излучение. Эти излучения распространяются в вакууме со скоростью света. Они могут быть описаны как волновые процессы в виде колебаний электрического и магнитного полей, аналогичных таким механическим колебаниям, как волны на воде или звуковые волны. Они отличаются друг от друга только по частоте колебаний. Несмотря на различные названия, электромагнитное излучение в действительности образует непрерывный спектр, простирающийся от низкочастотных радиоволн с частотой колебаний несколько герц до гамма-излучения с частотой колебаний 10^{18} Гц и более (см. рис. 1.1). Для описания электромагнитных колебаний используются такие параметры, как частота колебаний, длина волны и энергия. Эти параметры связаны между собой и взаимозаменяемы. На практике для описания радиоволн обычно используют частоту колебаний или длину волны, для световых волн — цвет или длину волны (вклю-



Рис. 1.1. Спектр электромагнитного излучения, отражающий соотношение между параметрами гамма-излучения, рентгеновского излучения, световых волн и радиоволн

чая инфракрасный и ультрафиолетовый свет), а для рентгеновских лучей и гамма-излучения — энергию.

Видимый свет испускается при изменении химического состояния элементов и соединений. Такие изменения происходят с внешними и наименее связанными с ядром электронами атома. Испускаемый свет является характеристикой излучающих элементов и соединений и имеет энергию около 1 эВ (электрон-вольт — единица измерения энергии, равная кинетической энергии электрона, получившего ускорение при прохождении разности потенциалов в 1 В. 1 электрон-вольт равен $1,602 \times 10^{-19}$ джоулей. Для описания атомных и молекулярных процессов также используются кратные электронвольту единицы — кэВ (10^3 эВ) и МэВ (10^6 эВ)). Рентгеновское и гамма-излучения обладают очень высокой энергией, охватывающей диапазон от 10 кэВ и более. Рентгеновское излучение испускается при изменениях в состоянии внутренних и более сильно связанных электронов атома, тогда как гамма-излучение испускается при изменении в состоянии ядра атома. При этом энергия испускаемого излучения является характеристикой излучающих элементов и ядер.

Это высокоэнергетическое электромагнитное излучение получило известность в 1895 г. в Германии после открытия Вильгельмом Рентгеном излучения, названного им X-лучами (теперь эти лучи называются рентгеновским излучением — прим. пер.). Наблюдая свечение экрана из сульфида цинка, расположенного около разрядной электронно-лучевой трубки, Рентген обнаружил, что вызывающее свечение излучение зависит от материала анода и напряжения на трубке, и что это излучение не отклоняется ни электрическим, ни магнитным полем и легко проникает сквозь плотное вещество. В следующем году во Франции Анри Беккерелем была открыта естественная радиоактивность, когда он обнаружил, что соли урана своим излучением воздействуют на фотопластинку и затемняют ее. Изучая эти явления Мария и Пьер Кюри выделили и идентифицировали радиоактивные элементы полоний и радий. Они установили, что эти явления радиоактивности характеризуют элемент, а не его химическое состояние.

Обнаруженные "радиоактивные лучи" интенсивно изучались во многих лабораториях.

В 1899 г. в Англии Эрнест Резерфорд открыл, что 95 % излучения эффективно поглощается 0,02 мм алюминия, а 50 % оставшегося излучения поглощается 5 мм алюминия или 1,5 мм меди. Резерфорд назвал первую составляющую излучения "альфа", а вторую, обладающую большей проникающей способностью, — "бета"-излучением. Оба излучения отклоняются электрическим и магнитным полями, но в противоположные направления. Это означало, что излучения несут электрический заряд. В 1900 г. Пол Уиллард и Анри Беккерель заметили, что фотграфическая пластинка подвергается воздействию радиоактивного вещества даже когда она экранирована 20 см железа или 2-3 см свинца. Они также обнаружили, что это проникающее излучение не отклоняется магнитным полем. В 1903 г. Резерфорд назвал эту составляющую излучения "гамма" и заявил, что "гамма-излучение, вероятно, подобно рентгеновским лучам". Таким образом, эти три излучения были выделены и названы тремя первыми буквами греческого алфавита: α , β и γ .

Как следует из краткого описания открытия, гамма-излучение часто сопровождается самопроизвольные альфа- и бета-распады нестабильных ядер. Рентгеновское излучение идентично гамма-излучению, за исключением того, что оно

испускается при перестройке электронных структур атома, а не при изменениях структуры ядра атома. Значение энергии рентгеновского излучения является уникальной характеристикой каждого элемента, но одинаково для различных изотопов одного элемента. Рентгеновское излучение часто сопровождает процессы ядерного распада, при которых происходит разрушение электронной оболочки атома.

Интенсивность и энергетический спектр гамма-излучения, испускаемого при самопроизвольном распаде ядра, являются уникальными характеристиками этого ядра. Эти характеристики лежат в основе большинства методов анализа с помощью гамма-излучения: путем подсчета гамма-квантов с определенной энергией оказывается возможным определить число ядер, которые испускают данное излучение.

1.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ ЯДЕРНОГО РАСПАДА

1.2.1 Процессы ядерного распада. Общие сведения

Предполагается, что атомное ядро представляет собой связанную структуру, состоящую из протонов и нейтронов, имеющих примерно одинаковые массы и отличающихся только зарядом: протоны имеют положительный, равный единице, заряд, нейтроны — электрически нейтральны. Разные элементы имеют ядра с различным числом нейтронов и протонов. Число протонов в ядре называется атомным номером и обозначается символом Z . В нейтральном атоме число протонов равно числу электронов. Число нейтронов в ядре атома обозначается символом N . Общее число нуклонов (протонов и нейтронов) в ядре называется массовым числом атома и обозначается символом A ($A=Z+N$).

При всех процессах ядерного распада число нестабильных ядер данного элемента уменьшается со временем по экспоненциальному закону:

$$n = n_0 e^{-\lambda t}, \quad (1.1)$$

где n — число ядер данного элемента в момент времени t ;

n_0 — число ядер при $t=0$;

λ — постоянная распада, параметр, характеризующий экспоненциальный процесс распада.

Каждый вид атомного ядра имеет определенную постоянную распада. Радиоактивный распад обычно описывается с помощью понятия периода ядерного полураспада $T_{1/2}$, который связан с постоянной распада λ соотношением

$$T_{1/2} = (\ln 2) / \lambda. \quad (1.2)$$

Период полураспада — это время, необходимое для того, чтобы число нестабильных ядер данного элемента уменьшилось наполовину (период полураспада обычно приводится в таблицах ядерных данных). Скорость распада, или удельную активность, можно получить из периода полураспада следующим образом:

$$R = \frac{1,32 \times 10^{16}}{A \times T_{1/2}}, \quad (1.3)$$

где R — скорость, выраженная числом распадов в секунду на грамм;

A — массовое число атома;

$T_{1/2}$ — период полураспада в годах.

Уравнение (1.3) часто используется для оценки удельной активности на грамм образца.

Альфа- и бета-распады ядер данного элемента не всегда сопровождаются испусканием гамма-излучения. Доля распадов, сопровождающихся испусканием гамма-лучей определенной энергии, называется интенсивностью ветвления. Например, наиболее интенсивное гамма-излучение, испускаемое ^{235}U , имеет энергию 185,7 кэВ и интенсивность ветвления 54 %. Уран-235 распадается с испусканием альфа-частицы с периодом полураспада $7,038 \times 10^8$ года. Уравнение (1.3), таким образом, дает скорость испускания альфа-частиц, равную $7,98 \times 10^4 \alpha/\text{г}\cdot\text{с}$. Только 54 % испусканий альфа-частиц сопровождается излучением гамма-квантов с энергией 185,7 кэВ. Следовательно, удельный выход гамма-излучения составляет $4,3 \times 10^4 \gamma/\text{г}\cdot\text{с}$.

Для неразрушающего анализа ядерных материалов в балк-форме из всех видов излучений, сопровождающих естественный распад, интерес представляет только гамма-излучение, поскольку альфа- и бета-частицы имеют очень короткую длину пробега в плотных материалах. Например, в металлической меди длины пробега следующие:

Альфа-частицы с энергией 5 МэВ: 0,01 мм или $0,008 \text{ г}/\text{см}^2$,

Бета-частицы с энергией 1 МэВ: 0,7 мм или $0,6 \text{ г}/\text{см}^2$,

Гамма-кванты с энергией 0,4 МэВ: 12 мм или $10,9 \text{ г}/\text{см}^2$ (средняя длина свободного пробега).

1.2.2 Альфа-распад

Альфа-частица — это дважды ионизированное ядро гелия, которое представляет собой очень стабильную и плотно связанную ядерную структуру. При распаде ядра с испусканием альфа-частицы появляющееся в результате ядро называется дочерним, оно имеет заряд на две единицы меньше и атомную массу на четыре единицы меньше исходного материнского ядра. В общем виде эта реакция может быть представлена следующим образом:



Такой распад возможен только, если масса нейтрального материнского атома больше, чем сумма масс дочернего ядра и нейтрального атома ${}^4_2\text{He}$. Разность масс между материнским ядром и продуктами реакции распада называется энергией реакции Q и равняется кинетической энергии продуктов распада:

$$Q = (M_p - M_d - M_{\text{He}})c^2, \quad (1.5)$$

где $M_{p,d,\text{He}}$ — массы нейтральных атомов материнского, дочернего ядер и атома ${}^4_2\text{He}$;

c — скорость света.

При распаде материнского ядра большую часть энергии реакции Q получает альфа-частица из-за ее малой массы:

$$E_\alpha = Q(A - 4) / A . \quad (1.6)$$

Оставшаяся часть энергии затрачивается на отдачу дочернего ядра.

Из 160 известных альфа-излучателей большинство являются тяжелыми ядрами с атомными номерами более 82. Энергия испускаемой альфа-частицы бывает от 4 до 10 МэВ и период полураспада — от 10^{-6} с до 10^{10} лет. Альфа-частицы высокой энергии испускаются при распаде короткоживущих ядер.

Дочернее ядро непосредственно после распада материнского ядра может находиться либо в основном, либо в возбужденном состоянии. В последнем случае ядро может изменять свое возбуждение (релаксировать) по одному из двух механизмов: испусканием гамма-квантов или путем внутренней конверсии. Снятие возбуждения по первому механизму приводит к испусканию одного или более гамма-квантов (обычно, через 10^{-14} с после испускания альфа-частицы) с дискретными значениями энергии, сумма которых равна начальной энергии возбуждения. В процессе внутренней конверсии ядро передает энергию возбуждения непосредственно одному из наиболее сильно связанных электронов атома, обычно электрону К-оболочки. Электрон покидает атом с энергией, равной разности между энергией перехода и энергией связи электрона в атоме. Возникающая при этом вакансия приводит к эмиссии рентгеновского излучения или электронов (называемых Оже-электронами) с характеристическим спектром энергии, соответствующим дочернему элементу. Вероятность внутренней конверсии сильно увеличивается с ростом атомного номера Z и с уменьшением энергии возбуждения.

Альфа-распад в некоторых случаях приводит к возбужденному состоянию дочернего ядра, которое сохраняется значительно дольше, чем 10^{-14} с. Если время жизни этого состояния больше, чем 10^{-6} с, оно называется изомером основного состояния ядра. Примером изомера является ядро $^{235\text{m}}\text{U}$, возникающее при альфа-распаде ^{239}Pu :



Обычный вид распада ^{239}Pu ведет сначала к образованию изомера $^{235\text{m}}\text{U}$, который имеет период полураспада 26 мин. Вероятность прямого распада с образованием ^{235}U составляет только 0,04 % на акт распада. Одним из наиболее долгоживущих изомеров является $^{91\text{m}}_{41}\text{Nb}$ с периодом полураспада 60 сут.

Все альфа-частицы, гамма-кванты и электроны внутренней конверсии, испускаемые в процессе распада, имеют характерные дискретные спектры энергии. Наблюдение этих характерных спектров показало, что ядра имеют дискретные разрешенные состояния или энергетические уровни аналогично разрешенным состояниям электронов атома. Информация, получаемая в результате различных спектрометрических исследований, позволила разработать схемы ядерных уровней, приводимые в справочниках, например, в "Таблице Изотопов" [1]. Пример на рис. 1.2 представляет нижние энергетические уровни ^{235}U , заполняемые в процессе альфа-распада ^{239}Pu . Эти уровни обуславливают характерный спектр гамма-излучения ^{239}Pu . Следует отметить, что характерный спектр гамма-излучения обычно связывается с материнским или распадающимся ядром, даже если энергии определяются энергетическими уровнями дочерних ядер. Хотя такая практика может показаться запутанной, она является общепринятой для анализа гамма-излучения. Такое смешивание усложняется еще и тем, что обычно используется система обозначений, принятая для рентгеновского излучения, которая связывает характеристическое рентгеновское излучение с дочерним элементом. Вследствие этого, альфа-распад ^{239}Pu приводит к образованию ^{235}U и сопровождается эмиссией гамма-излучения ^{239}Pu и рентгеновского излучения урана.

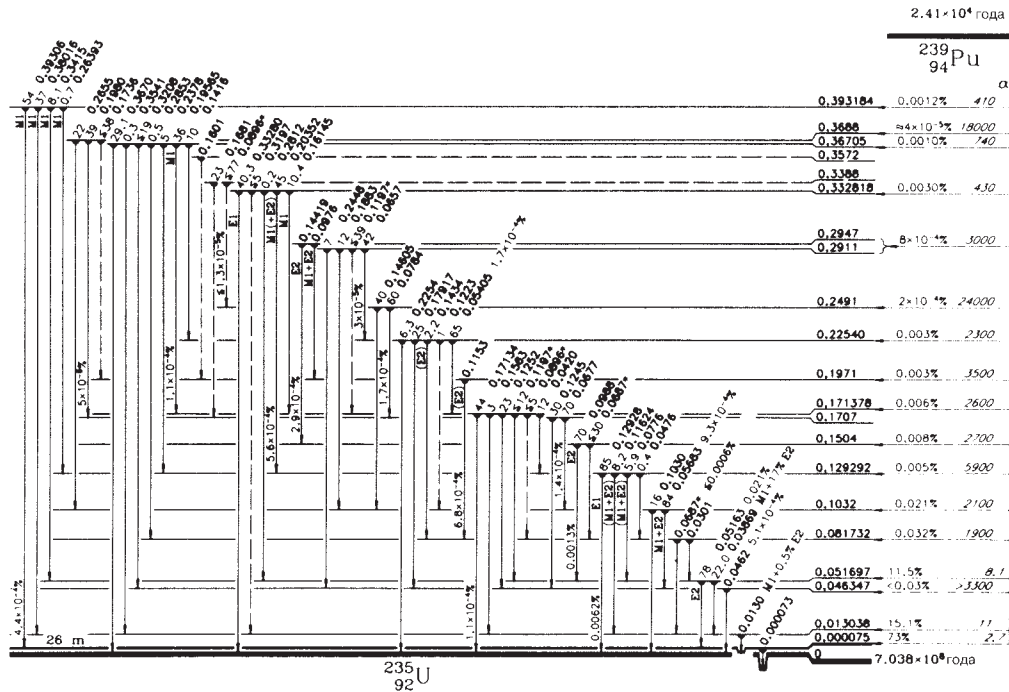


Рис. 1.2. Диаграмма некоторых ядерных энергетических уровней ^{235}U . Эти уровни заполняются при распаде ^{239}Pu и определяют характерный спектр гамма-излучения ^{239}Pu . [1]

1.2.3 Бета-распад

В процессе бета-распада атомный номер Z увеличивается или уменьшается на одну единицу, а массовое число атома A остается постоянным. В результате распада изменяется состояние нейтронов и протонов. Существует три типа бета-распада: β^- , β^+ и электронный захват.

Первым был обнаружен β^- -распад, частица бета-минус оказалась обычным электроном. В процессе бета-распада ядра элементов меняют состояния по следующей схеме:



Процесс β^- -распада можно рассматривать как распад нейтрона на протон, электрон и антинейтрино. Распад энергетически возможен для свободного нейтрона и происходит с периодом полураспада 12,8 мин. Это обычный процесс бета-распада ядер с большим атомным номером и ядер продуктов деления, в которых, как правило, содержится значительно больше нейтронов, чем протонов.

При β^+ -распаде ядро изменяет свое состояние по следующей схеме:



С процессом β^+ -распада конкурирует процесс электронного захвата. Ядро взаимодействует с электроном внутренней оболочки атома и, фактически, захва-

тывает его, преобразуя протон в нейтрон с испусканием нейтрино. Схема этого процесса следующая:



Все нестабильные ядра с атомным номером менее 82 распадаются по крайней мере по одному из этих трех процессов, а иногда и по всем трем (см. рис. 1.3). Бета-распад происходит всегда, когда он возможен энергетически, т.е. если выполняются для масс нейтральных материнских атомов (p) и возможных дочерних атомов (d) следующие условия:

$$\begin{aligned} \beta^- \text{-распад: } M_p &> M_d; \\ \beta^+ \text{-распад: } M_p &> M_d + 2m_e; \\ \text{электронный захват: } M_p &> M_d. \end{aligned} \quad (1.11)$$

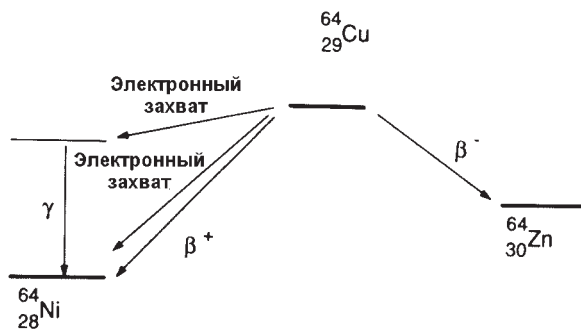


Рис. 1.3. Схема распада ядра ${}^{64}\text{Cu}$, представляющая три возможных типа бета-распада

При бета-распаде дочернее ядро может возникать либо в основном, либо в возбужденном состояниях. В последнем случае возбужденное ядро распадается с испусканием гамма-квантов или снимает возбуждение в процессе внутренней конверсии.

1.3 ОБРАЗОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

1.3.1 Модель атома Бора

В упрощенной атомной модели Бора положительно заряженное ядро содержит протоны и нейтроны и имеет радиус порядка $1,4 \times 10^{-15} (\text{Å}^{1/3})$ м и плотность порядка $2 \times 10^{14} \text{ г/см}^3$. Ядро окружено облаком отрицательно заряженных электронов, расположенных на дискретных, строго определенных энергетических уровнях или орбитах. Радиусы этих орбит находятся в диапазоне от 10^{-9} до 10^{-8} м. Первоначальная модель атома Бора имела строго определенные орбиты и сводилась к знакомой схеме планетарной системы атома. Несмотря на то, что она в настоящее время не является общепринятой, такая конкретная модель полезна для объяснения происхождения рентгеновского излучения.

Различные энергетические уровни обозначаются как K, L_1 , L_2 , L_3 , M_1 , ..., M_5 и так далее. В качестве примера рассмотрим представленные на рис. 1.4 энергетические уровни электронов атома урана. Сила электрического взаимодействия между электроном и положительно заряженным ядром изменяется обратно пропорционально квадрату расстояния до ядра, поэтому более близкие к ядру электроны



Рис. 1.4. Электронные энергетические уровни урана. Показан переход между уровнями с испусканием рентгеновских квантов K-серии

имеют более высокую энергию связи электрона E_b . Энергия связи — это энергия, необходимая для удаления электрона из атома. Электроны K-оболочки всегда более сильно связаны с ядром. Хорошее описание энергий каждого энергетического уровня и порядок заполнения уровней для различных элементов дает квантовая механика. Химические свойства элементов определяются пространственным распределением электронов элемента.

В нормальном основном состоянии атом стабилен и не излучает. При перемещении электрона с более высокого на более низкий энергетический уровень происходит испускание характеристического рентгеновского излучения.

1.3.2 Процессы образования рентгеновского излучения

В результате ряда взаимодействий происходит ионизация или удаление электрона из атома. Любые заряженные частицы с высокой энергией при прохождении через вещество взаимодействуют с электронами. С электронами атомов также взаимодействуют фотоны рентгеновского и гамма-излучения. Такие ядерные взаимодействия, как внутренняя конверсия или захват электрона, также могут привести к ионизации атома.

Когда электрон покидает атом, атом переходит в возбужденное состояние с энергией E_{bi} , соответствующей вакансии на i -ом электронном уровне. Эта вакансия может быть заполнена электроном с более слабой связью с внешней орбиты j -го уровня. Такое изменение энергетического уровня сопровождается испусканием рентгеновского кванта — кванта с энергией $E_{bi} - E_{bj}$ или испусканием Оже-электрона с энергией $E_{bi} - 2E_{bj}$. В последнем случае атом передает энергию возбуждения непосредственно электрону внешней орбиты. Доля вакансий на i -ом уровне, вызывающих испускание рентгеновских квантов, называется выходом флюоресценции ω_i . На рис. 1.5 представлено изменение выхода флюоресценции K-оболочки в зависимости от атомного номера элемента. Испускание рентгеновских квантов более вероятно для элементов с высоким Z (для $Z > 70$, $\omega_K > 95\%$).

Вещества с большим значением Z имеют высокий коэффициент внутренней конверсии. Это означает, что при основных видах распада образуются вакансии на внутренних оболочках электронных уровней (обычно K или L) и испускается характеристическое рентгеновское излучение. Так как эти вакансии образуются в дочернем атоме, энергии квантов рентгеновского излучения являются характеристиками дочернего элемента. В веществах с высокой плотностью заряженные частицы (α и β) и гамма-кванты ядерного распада тормозятся исходным (материнским) веществом при взаимодействии с электронами атомов; это приводит к образованию рентгеновского излучения, которое является характеристикой мате-

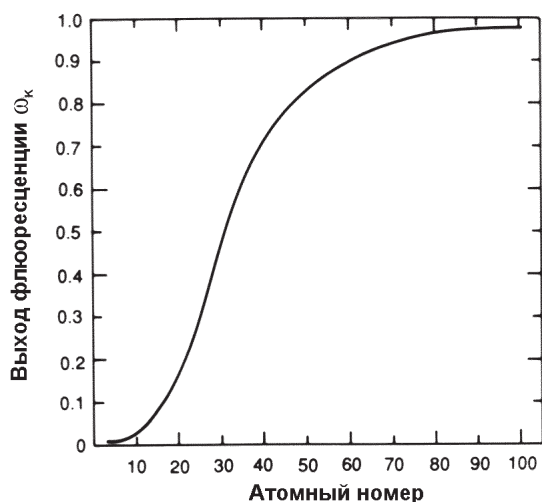


Рис. 1.5. Изменение выхода флуоресценции K-оболочки ω_K с увеличением атомного номера

ринского атома. Металлический плутоний испускает рентгеновское излучение урана вследствие процесса внутренней конверсии, происходящего после альфа-распада. Кроме того, он также испускает рентгеновское излучение плутония в результате флуоресценции, возбуждаемой альфа-частицами.

1.3.3 Спектры характеристического рентгеновского излучения

Каждый элемент испускает спектр характеристического рентгеновского излучения. Все элементы имеют одинаковую структуру спектра излучения, но распределения энергии излучения элементов различны. На рис. 1.6 показаны спектры характеристического рентгеновского излучения урана и свинца.

Первые исследователи явления создали ныне общепринятую систему обозначения рентгеновского излучения. Буква латинского алфавита обозначает конечный уровень, на который переходит электрон; греческая буква с номером показывает начальный энергетический уровень электрона. В табл. 1.1 представлены основные K-линии в спектре рентгеновского излучения урана и плутония. L- и M-линии спектра имеют более низкую энергию и приводятся обычно в справочной литературе.

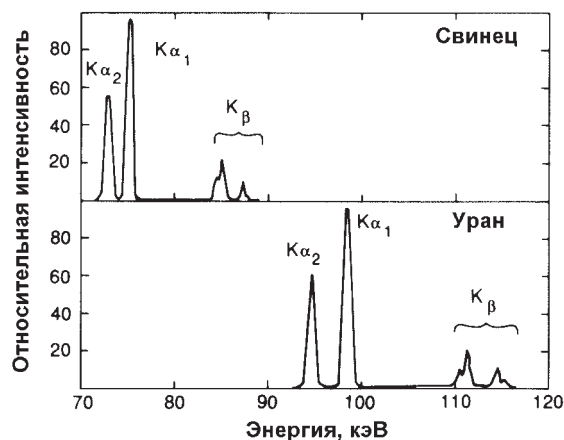


Рис. 1.6. Характеристические рентгеновские спектры свинца и урана. Обратите внимание на подобие кривых и смещение в энергии

Таблица 1.1 – Основные рентгеновские К-линии урана и плутония*

Линия рентгеновско- го излучения	Уровни (конечн. — начальн.)	Энергия, кэВ		Интенсивность**	
		уран	плутоний	уран	плутоний
K _{α2}	K — L ₂	94,67	99,55	61,9	62,5
K _{α1}	K — L ₃	98,44	103,76	100	100
K _{β1}	K — M ₃	111,30	117,26	22,0	22,2
K _{β2}	K — N ₂₋₅	114,5	120,6	12,3	12,5
K _{β3}	K — M ₂	110,41	116,27	11,6	11,7

* Другие линии К-серии слабее приведенных здесь. Энергии и интенсивности взяты из работы [1].

** Относительная интенсивность (100 — максимум).

1.4 ОСНОВНЫЕ ЛИНИИ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

1.4.1 Типичные спектры

На рис. 1.7–1.12 представлены типичные спектры гамма-излучения урана, плутония и тория. Спектры были получены с помощью спектрометрических систем с германиевыми детекторами высокого разрешения. На рис. 1.7 представлен спектр гамма-излучения высокообогащенного урана в диапазоне от 0 до 3 МэВ с характерными гамма-линиями от ²³⁵U и от ^{234m}Pa, дочернего ядра ²³⁸U. Интенсивные гамма-линии с энергией в диапазоне между 140 и 210 кэВ часто используются для анализа ²³⁵U (на рис. 1.8 этот диапазон представлен более подробно). Для сравнения на рис. 1.9 представлен спектр обедненного урана, в котором проявляется излучение дочерних ядер ²³⁸U, часто используемое для анализа ²³⁸U. На рис. 1.10 и 1.11 представлены спектры гамма-излучения плутония с концентрациями ²⁴⁰Pu 14 и 6 %, соответственно. Обратите внимание на различия в относительной высоте пиков двух спектров, это различие обычно используется для определения изотопного состава плутония (см. главу 8). На рис. 1.12 представлен спектр характерного гамма-излучения ²³²Th; все основные гамма-кванты тория происходят от дочерних ядер.

1.4.2 Основные характеристики гамма-излучения, используемые для анализа ядерных материалов

В принципе любое гамма-излучение ядерного материала можно использовать для определения массы испускающего его изотопа. На практике одни линии гамма-излучения используются более часто, чем другие, вследствие их интенсивности, проникающей способности и отсутствия интерференции соседних линий. Идеальным было бы интенсивное (>10⁴ квант/г·с) гамма-излучение с энергией в несколько мегаэлектронвольт. Массовые коэффициенты ослабления всех материалов имеют широкий минимум между 1 и 5 МэВ, и существует очень мало естественных линий гамма-излучения с энергией выше 1 МэВ, которые могли бы вызвать интерференцию. К сожалению, для урана и плутония таких гамма-квантов нет.

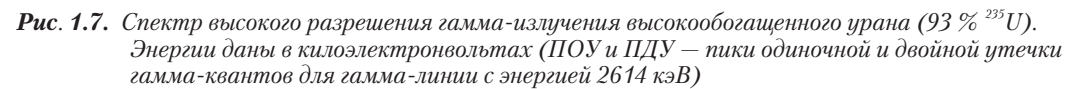


Рис. 1.7. Спектр высокого разрешения гамма-излучения высокообогащенного урана (93 % ^{235}U). Энергии даны в килоэлектронвольтах (ПОУ и ПДУ — пики одиночной и двойной утечки гамма-квантов для гамма-линии с энергией 2614 кэВ)

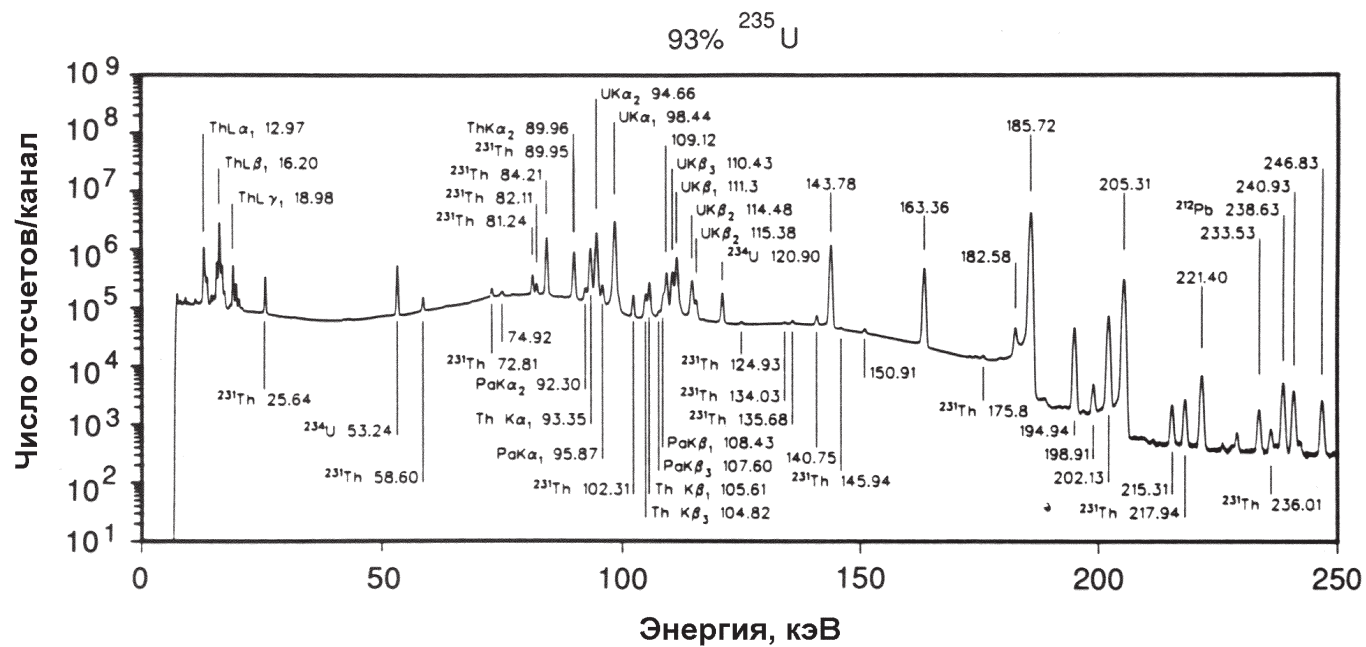


Рис. 1.8. Спектр гамма-излучения высокообогащенного урана, показывающий интенсивные линии гамма-излучения, часто используемые для анализа ^{235}U

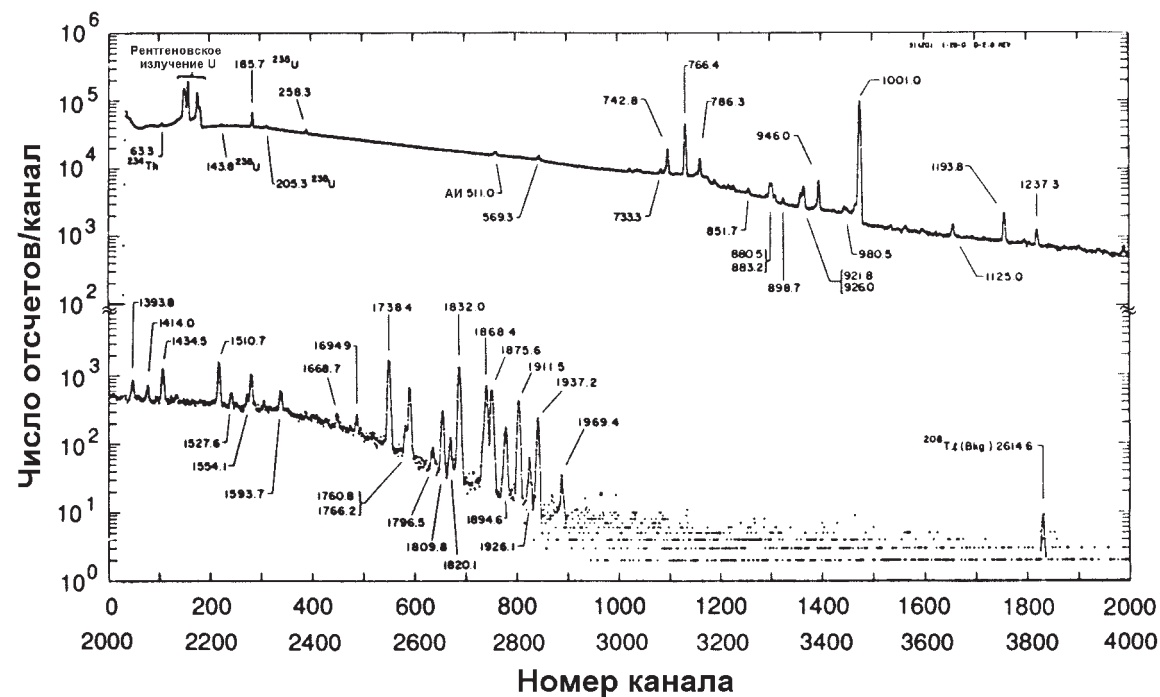


Рис. 1.9. Спектр гамма-излучения обедненного урана (0,2% ^{235}U). Интенсивные линии гамма-излучения при 766 и 1001 кэВ принадлежат дочернему от ^{238}U ядру $^{234\text{m}}\text{Pa}$ и часто используются для анализа ^{238}U . Большая часть слабого гамма-излучения с энергией выше 1001 кэВ также испускается $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (АИ — аннигиляционное излучение; небольшой пик при 511 кэВ — от аннигиляции позитрона)

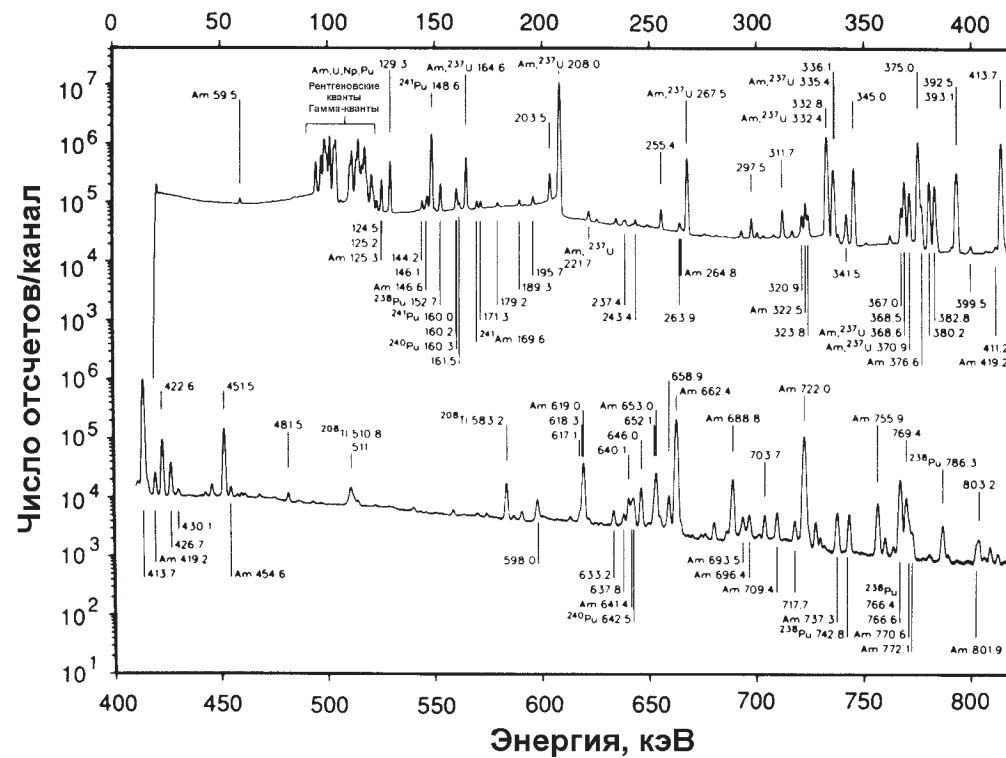


Рис. 1.10. Спектр гамма-излучения плутония с содержанием 14 % ²⁴⁰Pu и 1,2 % ²⁴¹Am. Сравните этот спектр с изображенным на рис. 1.11, обратите внимание на различие в относительных интенсивностях. Сравните интенсивности излучения при 203,5 кэВ (²³⁹Pu) и 208,0 кэВ (²³⁷U, дочерний от ²⁴¹Pu)

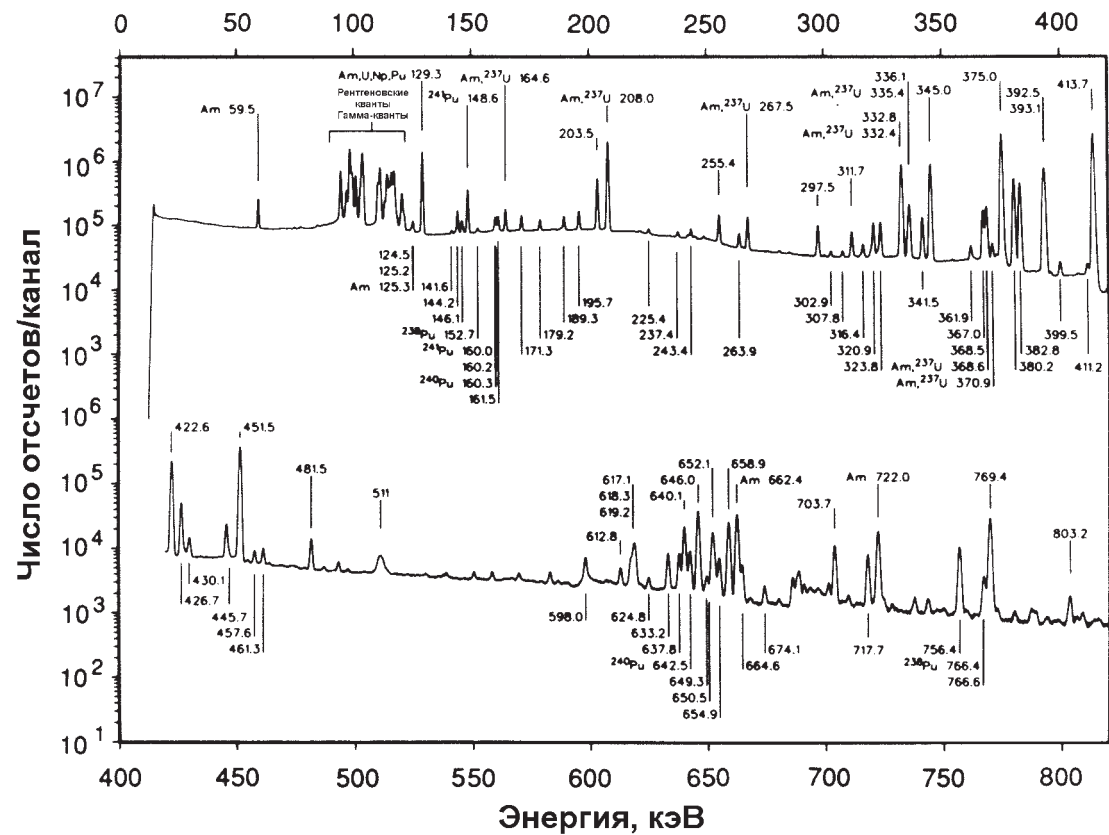


Рис. 1.11. Спектр гамма-излучения плутония низкого выгорания с содержанием ^{240}Pu приблизительно 6 %

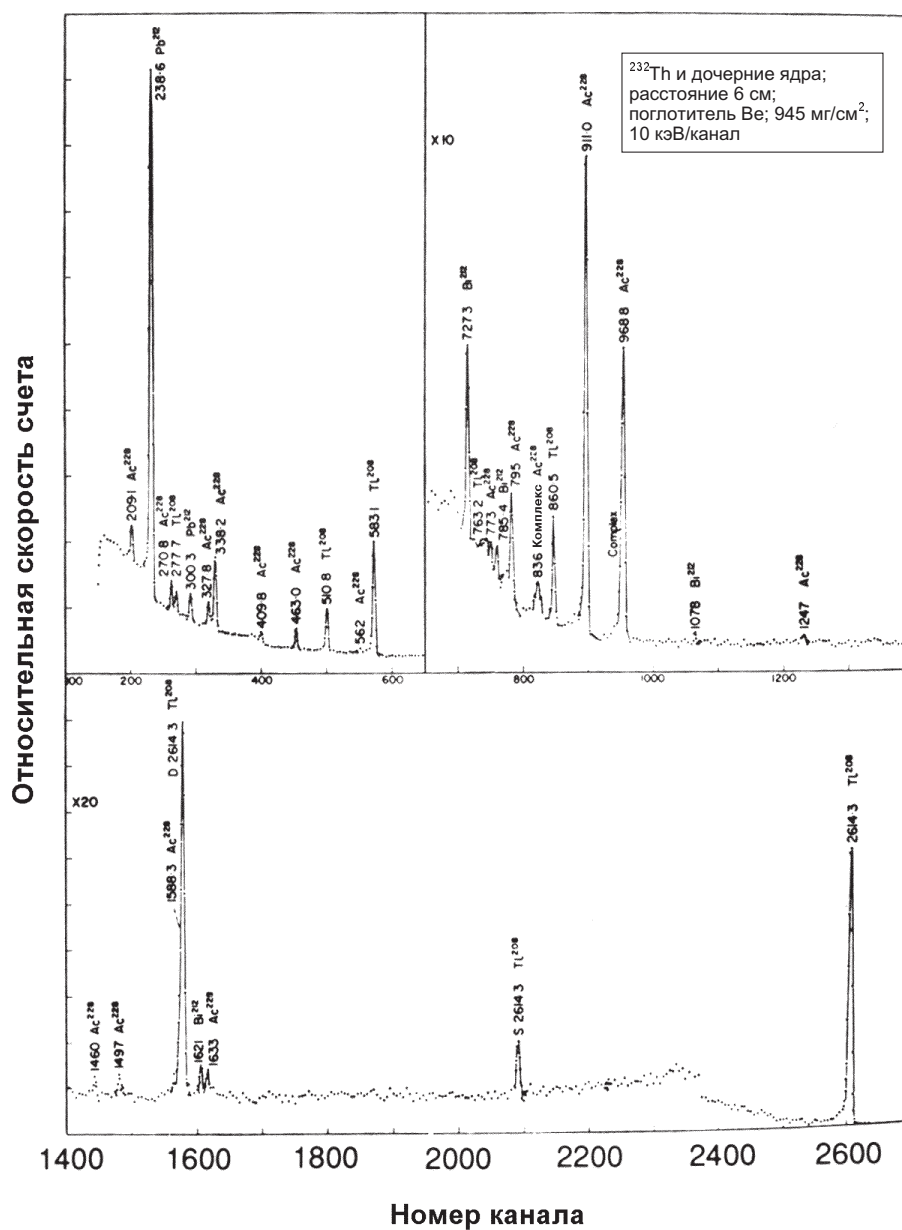


Рис. 1.12. Спектр гамма-излучения ^{232}Th и его дочерних ядер. Сам ^{232}Th не имеет интенсивных линий гамма-излучения. Дочерние ядра приходят в равновесное состояние с ^{232}Th за период около 35 лет [6]

В табл. 1.2 приводятся характеристики гамма-излучения, наиболее часто используемые для неразрушающего анализа основных изотопов урана и плутония.

Таблица 1.2 – Основные характеристики гамма-излучения, используемые при неразрушающем анализе

Изотоп	Энергия*, кэВ	Интенсивность*, $\gamma/\text{г}\cdot\text{с}$	Средняя длина свободного пробега**, мм	
			большие Z, ρ	малые Z, ρ
^{234}U	120,9	$9,35 \times 10^4$	0,23	69
^{235}U	143,8	$8,40 \times 10^3$	0,36	73
	185,7	$4,32 \times 10^4$	0,69	80
^{238}U	766,4***	$2,57 \times 10^1$	10,0	139
	1001,0***	$7,34 \times 10^1$	13,3	159
^{238}Pu	152,7	$5,90 \times 10^6$	0,40	75
	766,4	$1,387 \times 10^5$	9,5	139
^{239}Pu	129,3	$1,436 \times 10^5$	0,27	71
	413,7	$3,416 \times 10^4$	3,7	106
^{240}Pu	45,2	$3,80 \times 10^6$	0,07	25
	160,3	$3,37 \times 10^4$	0,45	76
	642,5	$1,044 \times 10^3$	7,4	127
^{241}Pu	148,6	$7,15 \times 10^6$	0,37	74
	208,0****	$2,041 \times 10^7$	0,86	83
^{241}Am	59,5	$4,54 \times 10^{10}$	0,14	38
	125,3	$5,16 \times 10^6$	0,26	70

* Данные по изотопам урана взяты из [1], данные по изотопам плутония: энергия и интенсивность ветвления — из [2], период полураспада — из [3].

** Средняя длина свободного пробега — это толщина поглотителя, снижающая интенсивность гамма-излучения в "е" раз. Средняя длина свободного пробега в оксиде урана или плутония ($\rho=10 \text{ г/см}^3$) дана в графе высокоплотных материалов с высоким атомным номером (большие Z, ρ). Средняя длина свободного пробега в оксиде алюминия ($\rho=1 \text{ г/см}^3$) дана в графе материалов с низкой плотностью, малым атомным номером (малые Z, ρ). Данные по поглощению взяты из [4].

*** Из дочернего ядра $^{234\text{m}}\text{Pa}$ в равновесии с материнским ^{238}U .

**** Из дочернего ядра ^{237}U в равновесии с материнским ^{241}Pu .

1.4.3 Гамма-излучение продуктов деления

Значительный интерес представляет измерение характеристик облученного топлива ядерных реакторов. Облученное топливо имеет большую денежную стоимость и обращение с ним требует гарантии нераспространения, т.к. в процессе эксплуатации ядерных реакторов получают плутоний. Для измерения и анализа облученного топлива нельзя использовать гамма-излучение от естественного распада урана и плутония, так как оно подавляется очень интенсивным гамма-излучением продуктов деления, образующихся в топливе в процессе облучения. Полная интенсивность гамма-излучения продуктов деления топлива из легководного реактора, облученного до уровня 33 000 МВт·сут/т U (мегаватт-сутки на тонну урана), составляет примерно 2×10^{10} квант/г·с (г — грамм урана) через год после удаления топлива из реактора, в то время как основное гамма-излучение урана и плутония обладает интенсивностью в диапазоне от 10^3 до 10^4 квант/г·с. В некоторых случаях интенсивность гамма-излучения одного или более продуктов деления можно измерить и соотнести с массой содержащегося ядерного материала.

Тяжелые ядра с высоким атомным номером Z могут делиться на два или три дочерних ядра с меньшим Z . Процесс деления может происходить спонтанно или может быть вызван поглощением нейтрона тяжелым ядром. Спонтанное деление более вероятно в ядрах с четным массовым числом A . Деление под действием нейтронов (вынужденное деление) возможно после поглощения либо тепловых, либо быстрых нейтронов ядрами с нечетными массовыми числами; оно возможно также после поглощения быстрых нейтронов ядрами с четным A . Процесс деления впервые был открыт в 1939 г. Отто Ганом и Фридрихом Штрассманом и объяснен теоретически в этом же году Лизой Мейтнер и Отто Фришем.

Деление ядра по сравнению с процессами альфа- и бета-распадов, описанными в разделах 1.2.2 и 1.2.3, представляет собой микровзрыв. Высвобождающаяся при делении энергия составляет около 200 МэВ. Большая часть этой энергии переходит в кинетическую энергию двух (реже трех) дочерних ядер, называемых продуктами деления или осколками деления. Делящиеся ядра, кроме того, испускают в среднем два быстрых нейтрона и шесть гамма-квантов сразу после расщепления. Типичная схема реакции деления представлена ниже:



Эта схема иллюстрирует только одну из множества возможных реакций деления ядра. Продукты деления сами являются нестабильными. Они содержат избыток нейтронов и распадаются с испусканием нейтрона или β^- -частицы (часто одновременно с гамма-излучением); излучения продуктов деления называются запаздывающими нейтронами и гамма-квантами. Период полураспада продуктов деления составляет от нескольких секунд до нескольких лет. Гамма-кванты продуктов деления можно использовать для анализа облученных топливных материалов.

Типичные спектры облученного топлива даны на рис. 1.13 и 1.14. На рис. 1.13 представлен спектр высокообогащенного урана — топлива, используемого в материаловедческих реакторах. На рис. 1.14 представлен спектр облученного топлива для легководного реактора. Наиболее часто измеряют гамма-излучение продукта деления ${}^{137}\text{Cs}$ с энергией 661,6 кэВ. Этот продукт деления имеет большой выход и большой период полураспада (30,2 года), так что его концентрация пропорциональна полному числу делений, произошедших в топливе (см. главу 18 с более подробным описанием реакции деления и измерения облученного топлива).

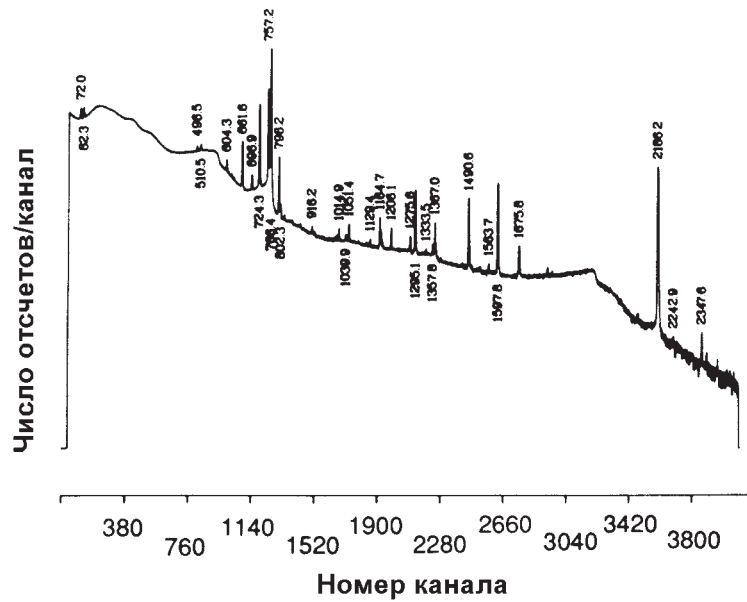


Рис. 1.13. Гамма-спектр высокообогащенного уранового топлива, облученного в материало-ведческом реакторе. Образец имеет среднее выгорание, равное 36,9 % и время выдержки 1,59 года

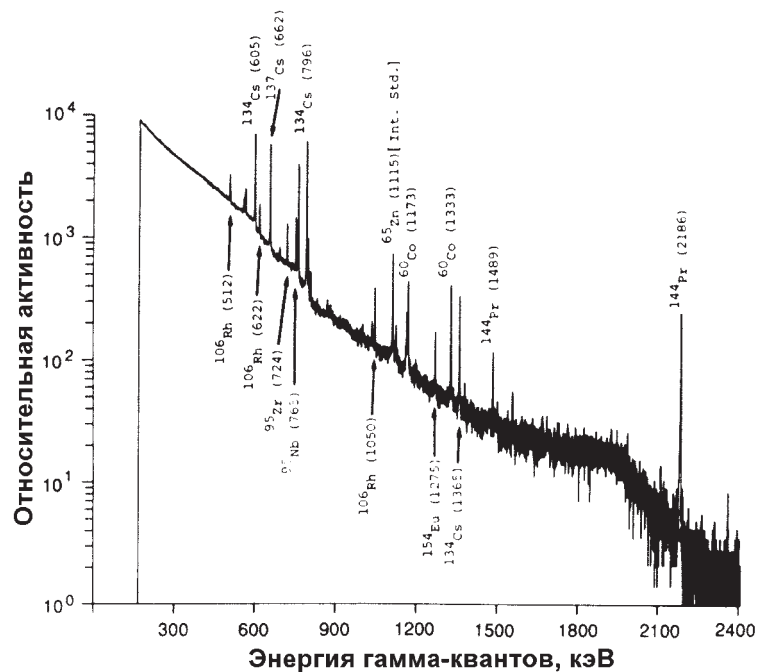


Рис. 1.14. Спектр гамма-излучения облученного топлива реактора с водой под давлением, имеющего выгорание 32000 МВт-сут/т U (мегаватт-сутки на тонну урана) и время выдержки 9 месяцев

1.4.4 Радиационный фон

Все детекторы гамма-излучения покажут какой-то результат измерения даже в отсутствие контролируемого образца. Этот результат — следствие измерения фона вблизи детектора. Фон обусловлен излучением ядерных материалов, расположенных в близлежащих зонах хранения, космическим излучением и естественной радиоактивностью окружающей среды.

Излучение от хранящихся поблизости ядерных материалов имеет то же происхождение, что и излучение от контролируемых образцов. Фоновый спектр аналогичен спектрам, показанным на рис. 1.7–1.12. Значительную долю этого спектра часто составляет непрерывное комптоновское распределение, образующееся в результате рассеяния в материалах, разделяющих детектор и зону хранения. Фоновое излучение ядерных материалов может быть снижено правильным размещением детектора и его экранированием.

На поверхности земли космические лучи состоят прежде всего из высокоэнергетических гамма-квантов и заряженных частиц. Хотя нейтронная компонента и существует, она оказывает небольшое влияние на детекторы гамма-излучения. Заряженные частицы — это в основном мюоны, но включают также электроны и протоны. Мюонный поток на уровне моря составляет примерно $0,038 \text{ 1/см}^2\cdot\text{с}$; на высоте 2000 м мюонный поток увеличивается примерно до $0,055 \text{ 1/см}^2\cdot\text{с}$. Мюон взаимодействует с веществом как тяжелый электрон и скорость потери энергии у него при прохождении через типичные твердые или жидкие материалы детектора составляет примерно 8,6 МэВ/см. Обычно проникающий мюон оставляет энергию примерно 34 МэВ в детекторе толщиной 40 мм. Из-за того, что эта энергия значительно превышает энергию, теряемую в детекторе гамма-квантами урана или плутония, мюонные взаимодействия часто приводят к перегрузкам или насыщению регистрирующей электроники. Для детектора с площадью поверхности 20 см^2 типичная скорость мюонных взаимодействий на уровне моря составляет 0,75 частиц/с.

Все материалы обладают естественной радиоактивностью в различной степени. Например: тело человека и даже материалы детекторов имеют заметную естественную радиоактивность; особенно радиоактивны строительные материалы, такие как бетон. Основными радиоактивными элементами в природных материалах являются ^{40}K , ^{232}Th и их дочерние элементы, а также ^{235}U и ^{238}U и их дочерние элементы. Калий-40 по распространенности составляет 0,0117 % и распадается путем электронного захвата (10,67 %) и β -распада (89,33 %) с периодом полураспада $1,277 \times 10^9$ года. Электронный захват сопровождается испусканием гамма-кванта с энергией 1,461 МэВ, который регистрируется во всех фоновых гамма-спектрах. Калий присутствует в большинстве органических веществ, а ^{40}K является основным источником радиоактивности.

Следы тория присутствуют в большинстве земных пород. ^{232}Th является природным материнским ядром радиоактивного семейства тория, заканчивающегося стабильным изотопом ^{208}Pb . Период полураспада ^{232}Th составляет $1,41 \times 10^{10}$ года. Его основное гамма-излучение обусловлено ^{208}Tl , ^{212}Bi и ^{228}Ac .

Следы урана также находят в большинстве пород, хотя он менее распространен, чем торий. Гамма-спектр необработанной урановой руды сильно отличается от спектра гамма-излучения урана, используемого в качестве ядерного топлива. Из-за большого периода полураспада дочернего ^{230}Th (8×10^4 лет), этот изотоп и

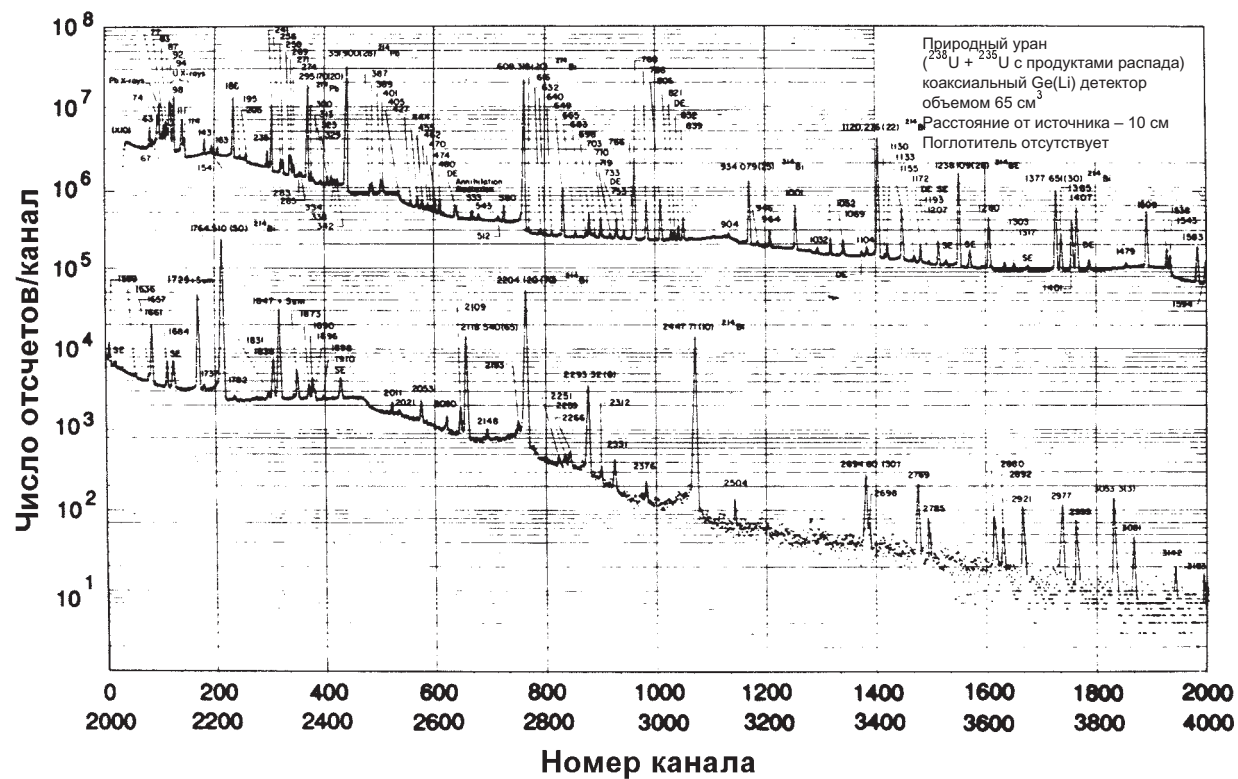


Рис. 1.15. Спектр гамма-излучения урановой руды. Основное излучение — от ^{214}Pb и ^{214}Bi . Сравните со спектром переработанного уранового топлива на рис. 1.9; большинство дочерних продуктов удаляется при переработке [7]

продукты его распада отсутствуют в топливе после химического разделения их от природного урана, поскольку им необходимо длительное время для возврата к состоянию равновесия. На рис. 1.15 представлен типичный спектр урановой руды (сравните с рис. 1.9). Естественные химические процессы в различных породах часто приводят к выщелачиванию некоторых дочерних нуклидов, что влияет на спектр гамма-излучения различных руд.

Рассмотренные выше природные источники широко распространены и вносят вклад в фоновый гамма-спектр в большинстве мест измерения. Другими изредка встречающимися источниками фона являются материалы, загрязненные радиоактивными элементами. В некоторых случаях в качестве составляющих бетона используется шлак доменной печи, имеющий заметный уровень радиоактивного загрязнения ^{60}Co , и отходы урановой руды. Использование таких материалов при строительстве объектов может способствовать увеличению радиационного фона.

1.5 ДОПОЛНИТЕЛЬНЫЕ РЕАКЦИИ ОБРАЗОВАНИЯ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ

В разделе 1.4 обсуждались характеристики гамма-излучения только от естественного распада радиоактивных изотопов. Такое гамма-излучение содержит значительное число характерных гамма-линий, полезных для неразрушающего анализа. В этой главе рассматривается гамма-излучение, образуемое в других ядерных реакциях. Некоторые из этих излучений могут оказаться помехой при неразрушающем анализе.

1.5.1 Тормозное излучение

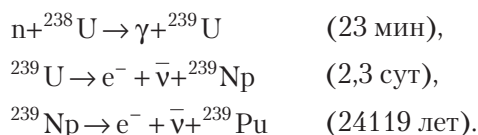
Заряженные частицы непрерывно замедляются, проходя через плотные вещества. При торможении они испускают фотоны с непрерывным энергетическим спектром, называемые тормозным излучением; эти фотоны представляют интерес, так как их энергии часто близки к энергиям гамма-квантов, используемым при неразрушающем анализе.

Бета-частицы ядерного распада при торможении часто испускают фотоны тормозного излучения. Хотя бета-частицы имеют очень короткий пробег в плотном веществе и редко покидают границы материала, фотоны тормозного излучения часто вылетают за границы вещества и регистрируются одновременно с гамма-излучением, используемым при неразрушающем анализе. Электроны внутренней конверсии также могут вносить вклад в тормозное излучение. Дискретные гамма-кванты, испускаемые распадающимися ядрами, могут накладываться на непрерывный спектр тормозного излучения. Линейные ускорители электронов используют реакции торможения с целью получения высокоэнергетических фотонов для ядерных исследований, ядерной медицины, активного неразрушающего анализа материалов [5].

1.5.2 Реакции взаимодействия с частицами

При взаимодействии ядер с другими частицами, заряженными или нейтральными, часто испускаются гамма-кванты. Классическим примером такой реакции является реакция захвата нейтрона (n, γ). Обычно новые ядра радиоактивны или образуются в возбужденном состоянии, после чего может происходить распад с

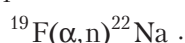
испусканием гамма-излучения. Представленные ниже схемы иллюстрируют процесс захвата нейтрона, приводящий к образованию плутония в реакторах:



Гамма-кванты в реакциях захвата имеют дискретные значения энергии, являющиеся характеристиками энергетических уровней дочерних ядер. Для ядер с высоким атомным номером их энергии обычно составляют от 8 до 9 МэВ.

Неупругое рассеяние нейтронов ($n, n'\gamma$) также сопровождается испусканием гамма-излучения, которое характеризует энергетические уровни ядер мишени и как правило не представляет интереса для неразрушающего анализа.

Основным источником нейтронов из плутониевых соединений и UF_6 является взаимодействие альфа-частиц, образующихся в результате распада тяжелых ядер, с ядрами легких элементов, присутствующими в составе соединений или в материалах окружающей матрицы. Реакции типа (α, n) часто сопровождаются испусканием гамма-квантов возбужденных ядер продуктов реакции. Реакцию на фторе можно записать следующим образом:



Такая реакция на фторе обычно приводит к образованию ${}^{22}\text{Na}$ в основном состоянии без испускания гамма-излучения. Однако последующий β^+ - (позитронный) распад ${}^{22}\text{Na}$ приводит к испусканию гамма-квантов с энергиями 511 и 1275 кэВ. Эти гамма-линии проявляются в спектрах от образцов PuF_4 и ${}^{238}\text{PuO}_2$ со следами примесей фтора. Они не используются для неразрушающего анализа, но могут быть источником помех.

ЛИТЕРАТУРА

1. C.M. Lederer and V.S. Shirley, Eds., *Tables of Isotopes*, 7th ed. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
2. R. Gunnink, J.E. Evans, and A.L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energies and Absolute Branching Intensities of ${}^{237}\text{U}$, ${}^{238,239,240,241}\text{Pu}$, and ${}^{241}\text{Am}$," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (1976).
3. "Calibration Techniques for the Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids Applied to Nuclear Materials Control," ANSI N15.22-1975 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1975) and 1986 revision.
4. J.H. Hubbell, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV," National Bureau of Standards report NSRDS-NBS-29 (August 1969).
5. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Material, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
6. F. Adams and R. Dams, "Applied Gamma-Ray Spectroscopy", 3rd ed. (Pergamon Press, Oxford, 1970)
7. R.L. Heath, "Gamma-Ray Spectrum Catalogue," Aerojet Nuclear Corporation report ANCR-1000-2 (March 1974)

Глава 2

Взаимодействие гамма-излучения с веществом

Г. Нельсон и Д. Райлли
(Переводчик Н. В. Мошкина)

2.1 ВВЕДЕНИЕ

Знание природы взаимодействия гамма-излучения с веществом важно для аналитика, использующего в своей работе неразрушающие методы, для понимания процессов регистрации и ослабления гамма-излучения. Чтобы быть "увиденным", гамма-излучение должно провзаимодействовать с детектором. Хотя основные изотопы урана и плутония испускают гамма-кванты с определенными энергиями и интенсивностями, интенсивность гамма-излучения, измеренная за пределами образца, всегда ослаблена вследствие взаимодействия гамма-квантов с образцом. Это ослабление должно тщательно учитываться при использовании приборов неразрушающего анализа (НРА) по гамма-излучению.

В этой главе кратко рассматривается экспоненциальное ослабление гамма-излучения в материалах в балк-форме и описываются основные виды взаимодействий гамма-излучения с веществом, защита от гамма-излучения, фильтрация и коллимация гамма-излучения. Более подробно об этом можно узнать из работ [1] и [2].

2.2 ЭКСПОНЕНЦИАЛЬНОЕ ОСЛАБЛЕНИЕ

Гамма-кванты впервые были открыты в 1900 г. Беккерелем и Уиллардом как часть излучения урана и радия, обладающая гораздо большей проникающей способностью, чем альфа- и бета-частицы. В 1909 г. Содди и Рассел обнаружили, что ослабление гамма-излучения подчиняется экспоненциальному закону и, что отношение коэффициента ослабления к плотности ослабляющего материала приблизительно постоянно для всех материалов.

2.2.1 Основной закон ослабления гамма-излучения

На рис. 2.1 представлена простая схема эксперимента по ослаблению. Когда гамма-излучение с интенсивностью I_0 падает на поглотитель толщины L , интенсивность I излучения, прошедшего через поглотитель, описывается экспоненциальным выражением:

$$I = I_0 e^{-\mu_e L}, \quad (2.1)$$

где μ_e — коэффициент ослабления, выраженный в см^{-1} .

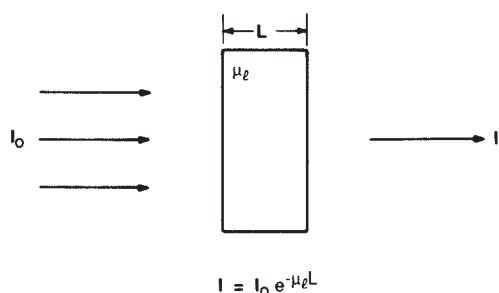


Рис. 2.1. Основной закон ослабления гамма-излучения. Интенсивность прошедшего излучения I является функцией энергии гамма-излучения, состава и толщины поглотителя

Отношение I/I_0 называется коэффициентом пропускания гамма-излучения. На рис. 2.2 показано экспоненциальное ослабление для трех различных энергий гамма-излучений. Из рисунка видно, что коэффициент пропускания возрастает с увеличением энергии гамма-излучения и снижается с увеличением толщины поглотителя. Измерения с использованием различных источников и поглотителей показали, что коэффициент ослабления μ_L зависит от энергии гамма-излучения, атомного номера Z и плотности ρ поглотителя. Например, свинец обладает высокой плотностью и большим атомным номером и пропускает гораздо меньшую долю падающего гамма-излучения, чем алюминий или сталь такой же толщины. Коэффициент ослабления в уравнении (2.1) называется линейным коэффициентом ослабления. На рис. 2.3 показано линейное ослабление твердого йодида натрия, типичного материала, широко используемого в детекторах гамма-излучения.

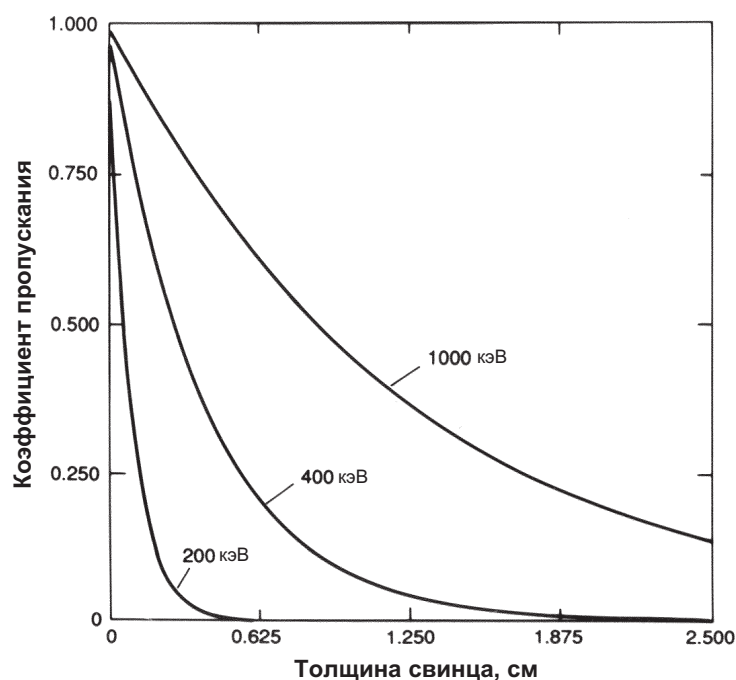


Рис. 2.2. Зависимость коэффициента пропускания гамма-квантов от толщины свинцового поглотителя

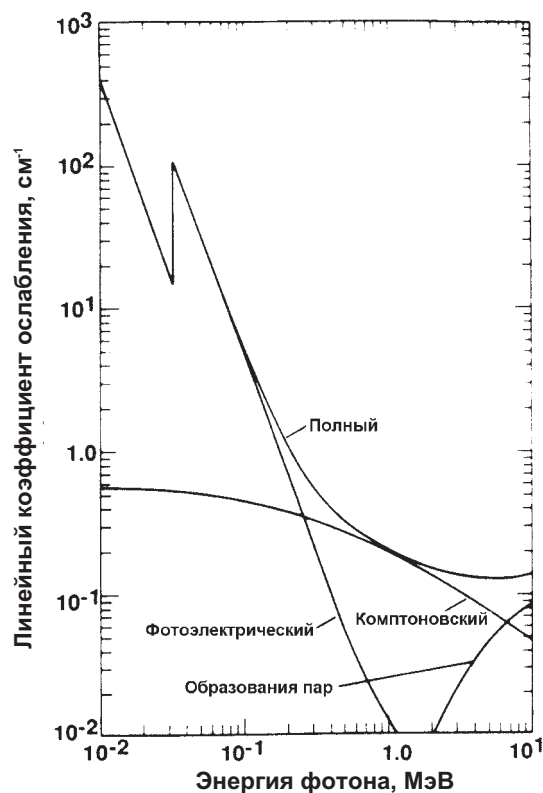


Рис. 2.3. График линейного коэффициента ослабления NaI, показывающий вклад процессов фотоэлектрического поглощения, комптоновского рассеяния и образования пар

Альфа- и бета-частицы имеют хорошо определенную длину пробега или тормозной путь. Гамма-кванты, как показано на рис. 2.2, не имеют определенной длины пробега. Величина обратная коэффициенту ослабления $1/\mu_c$ имеет единицу измерения длины и часто называется средней длиной свободного пробега. Средняя длина свободного пробега представляет собой расстояние, которое проходит гамма-квант в поглотителе до взаимодействия, она также равна толщине поглотителя, при которой коэффициент пропускания равен $1/e$ или 0,37.

2.2.2 Массовый коэффициент ослабления

Линейный коэффициент ослабления представляет собой простейший коэффициент ослабления, который можно измерить экспериментально, но он обычно не приводится в справочных таблицах ввиду зависимости от плотности поглощающего материала. Например, вода, лед и пар имеют различные линейные коэффициенты ослабления для одной и той же энергии, хотя они состоят из одного и того же вещества.

Гамма-кванты взаимодействуют, в основном, с атомными электронами, следовательно, коэффициент ослабления должен быть пропорционален плотности электронов P , которая пропорциональна объемной плотности поглощающего материала. Тем не менее, для данного вещества отношение плотности электронов к

объемной плотности вещества является константой Z/A , независимой от объемной плотности. Отношение Z/A является почти постоянным для всех элементов, кроме самых тяжелых элементов и водорода:

$$P = Z\rho / A, \quad (2.2)$$

где P — плотность электронов;

Z — атомный номер;

ρ — массовая плотность;

A — массовое число.

Отношение линейного коэффициента ослабления к плотности μ_e/ρ называется массовым коэффициентом ослабления μ и имеет размерность площади на единицу массы ($\text{см}^2/\text{г}$). Судя по единице измерения этого коэффициента, можно рассматривать его как эффективное сечение взаимодействия электронов на единицу массы поглотителя. Массовый коэффициент ослабления может быть записан через сечение реакции σ (см^2):

$$\mu = \frac{N_0 \sigma}{A}, \quad (2.3)$$

где N_0 — число Авогадро ($6,02 \times 10^{23}$);

A — массовое число поглощающего элемента.

Сечение взаимодействия представляет собой вероятность взаимодействия гамма-квантов с отдельным атомом. В главе 12 дано более полное определение понятия сечения взаимодействия. Используя массовый коэффициент ослабления, уравнение (2.1) можно представить следующим образом:

$$I = I_0 e^{-\mu \rho L} = I_0 e^{-\mu x}, \quad (2.4)$$

где $x = \rho L$.

Массовый коэффициент ослабления не зависит от плотности; например, как было упомянуто выше, вода, лед и пар имеют одно и то же значение μ . Этот коэффициент чаще приводится в таблицах, чем линейный коэффициент ослабления, поскольку он количественно определяет вероятность взаимодействия гамма-квантов с конкретным элементом. В работах [3] и [4] содержатся широко используемые таблицы массовых коэффициентов ослабления элементов. Для вычисления массового коэффициента ослабления в материалах со сложным химическим составом используется уравнение (2.5):

$$\mu = \sum \mu_i w_i, \quad (2.5)$$

где μ_i — массовый коэффициент ослабления i -го элемента,

w_i — массовая доля i -го элемента.

Использование уравнения (2.5) можно проиллюстрировать на примере взаимодействия гамма-излучения с энергией 200 кэВ с твердым гексафторидом урана UF_6 :

μ_U — массовый коэффициент ослабления U для 200 кэВ = $1,23 \text{ см}^2/\text{г}$;

μ_F — массовый коэффициент ослабления F для 200 кэВ = $0,123 \text{ см}^2/\text{г}$;

w_U — массовая доля U в UF_6 = 0,68;

w_F — массовая доля F в UF_6 = 0,32;

ρ — плотность твердого UF_6 = $5,1 \text{ г}/\text{см}^3$;

$\mu = \mu_U w_U + \mu_F w_F = 1,23 \times 0,68 + 0,123 \times 0,32 = 0,88 \text{ см}^2/\text{г}$;

$\mu_e = \mu \rho = 0,88 \times 5,1 = 4,5 \text{ см}^{-1}$.

2.3 ПРОЦЕССЫ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Представляющее интерес для задач неразрушающего анализа гамма-излучение находится в энергетическом диапазоне от 10 до 2000 кэВ и взаимодействует с детекторами и поглотителями посредством трех основных процессов: фотоэлектрическое поглощение, комптоновское рассеяние и образование пар. В процессе фотоэлектрического поглощения гамма-квант теряет всю свою энергию в одном взаимодействии. Вероятность этого процесса очень сильно зависит от энергии гамма-кванта E_γ и атомного номера Z . При комптоновском рассеянии гамма-квант теряет в одном взаимодействии только часть своей энергии. Вероятность этого процесса слабо зависит от E_γ и Z . Гамма-квант может потерять всю свою энергию в процессе взаимодействия с образованием пары электрон-позитрон. Однако этот процесс не является существенно значимым для анализа делящихся материалов, поскольку его порог превышает 1 МэВ. Более подробное физическое описание процессов взаимодействия можно найти в работе [3].

2.3.1 Фотоэлектрическое поглощение

Гамма-квант может взаимодействовать со связанным электроном атома таким образом, что он теряет всю свою энергию и перестает существовать как гамма-квант (см. рис. 2.4). Некоторая часть энергии гамма-кванта используется на преодоление энергии связи электрона, а большая часть оставшейся энергии передается высвобожденному электрону в качестве кинетической энергии. Очень малая часть энергии отдачи остается в атоме для сохранения импульса. Этот процесс называется фотоэлектрическим поглощением, поскольку представляет собой аналог процесса, открытого Герцем в 1887 г., посредством которого фотоны видимого света освобождают электроны с поверхности металла. Фотоэлектрическое поглощение является важным процессом для регистрации гамма-излучения, потому что гамма-квант отдает всю свою энергию, и результирующий импульс попадает в пик полного поглощения.

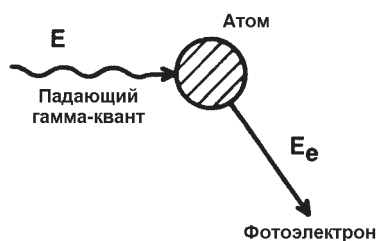


Рис. 2.4. Схема процесса фотоэлектрического поглощения

Вероятность фотоэлектрического поглощения зависит от энергии гамма-кванта, энергии связи электрона и атомного номера атома. Эта вероятность тем больше, чем больше связь электрона с атомом. Следовательно, больше всего фотоэффекту подвержены К-электроны (свыше 80 % взаимодействий происходит с участием электронов К-оболочки) при условии, что энергия гамма-кванта превышает энергию связи К-электрона. Приближенное значение вероятности дается уравнением (2.6), которое показывает, что фотоэлектрическое взаимодейст-

вие более значимо для тяжелых атомов типа свинца и урана и гамма-квантов низких энергий:

$$\tau \propto Z^4 / E^3, \quad (2.6)$$

где τ — фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления.

Эта пропорциональность является лишь приблизительной, поскольку показатель степени Z изменяется в диапазоне от 4,0 до 4,8. С уменьшением энергии гамма-кванта вероятность фотоэлектрического поглощения быстро растет (см. рис. 2.5). Фотоэлектрическое поглощение является преобладающим процессом взаимодействия для гамма-квантов низких энергий, рентгеновских квантов и тормозного излучения.

Энергия фотоэлектрона E_e , освобождаемого в процессе взаимодействия, представляет собой разность между энергией гамма-кванта E_γ и энергией связи электрона E_b :

$$E_e = E_\gamma - E_b. \quad (2.7)$$

В большинстве детекторов фотоэлектрон быстро останавливается в активном объеме детектора, который выдает небольшой выходной импульс с амплитудой, пропорциональной энергии, потерянной фотоэлектроном. Энергия связи электрона не теряется, а проявляется в виде характеристического рентгеновского излучения, испускаемого одновременно с фотоэлектроном. В большинстве случаев эти рентгеновские кванты поглощаются в детекторе одновременно с фотоэлектроном, и результирующий выходной импульс пропорционален полной энергии падающего гамма-кванта. При регистрации гамма-квантов низких энергий небольшими детекторами значительное число рентгеновских квантов К-серии могут покинуть детектор, что обуславливает наличие пиков утечки в наблюдаемом

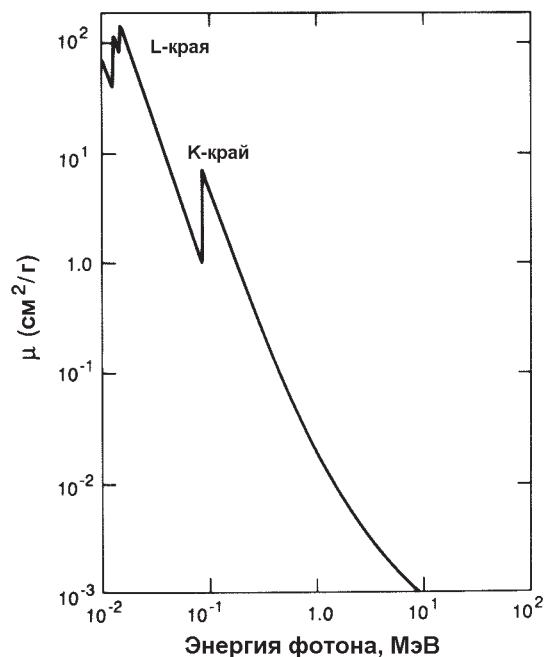


Рис. 2.5. Фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления для свинца

спектре. Энергия пиков утечки меньше энергии пика полного поглощения на величину, равную энергии рентгеновского кванта.

На рис. 2.5 представлен фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления для свинца. Вероятность взаимодействия быстро возрастает с уменьшением энергии, но затем резко снижается при энергии гамма-кванта чуть ниже энергии связи К-электрона. Этот скачок называется К-краем. Ниже этой энергии гамма-квант не имеет достаточно энергии, чтобы выбить К-электрон. Ниже К-края вероятность взаимодействия снова возрастает до тех пор, пока энергия становится ниже энергий связи L-электронов. Такие скачки называются L_I -, L_{II} - и L_{III} -краями. Наличие этих краев поглощения играет важную роль для измерений методами плотнометрии и рентгеновской флуоресценции (см. главы 9 и 10).

2.3.2 Комптоновское рассеяние

Комптоновское рассеяние представляет собой процесс упругого столкновения, в котором гамма-квант взаимодействует со свободным или слабо связанным электроном ($E_\gamma \gg E_b$) и передает часть своей энергии электрону (см. рис. 2.6). В соответствии с законами сохранения энергии и импульса слабо связанный с атомом электрон может получить только часть энергии гамма-кванта, и гамма-квант не исчезает в комптоновском взаимодействии, в котором участвуют внешние, наименее связанные электроны рассеивающего атома. Электрон становится свободным электроном с кинетической энергией, равной разности энергии, потерянной гамма-квантом, и энергии связи электрона. Поскольку энергия связи электрона очень мала по сравнению с энергией гамма-кванта, кинетическая энергия электрона очень близка к энергии, потерянной гамма-квантом:

$$E_e = E_\gamma - E', \quad (2.8)$$

где E_e — энергия рассеянного электрона;

E_γ — энергия падающего гамма-кванта;

E' — энергия рассеянного гамма-кванта.

Место взаимодействия покидают две частицы: освобожденный электрон и рассеянный гамма-квант. Направления вылета электрона и рассеянного гамма-кванта зависят от количества энергии, переданной электрону во время взаимодействия. Уравнение (2.9) дает выражение для энергии рассеянного гамма-кванта, а на рис. 2.7 показана зависимость энергии рассеянного электрона от угла рассеяния и энергии падающего гамма-кванта.

$$E' = m_0 c^2 / (1 - \cos \phi + m_0 c^2 / E), \quad (2.9)$$

где $m_0 c^2$ — энергия покоя электрона = 511 кэВ;

ϕ — угол между падающим и рассеянным гамма-квантами (см. рис. 2.6).

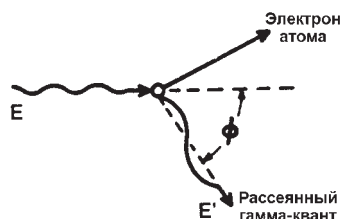


Рис. 2.6. Схема комптоновского рассеяния

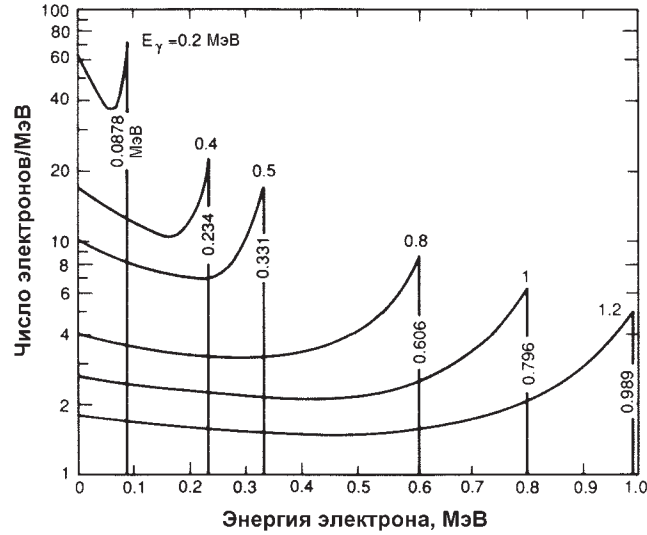


Рис. 2.7. Зависимость энергии электронов комптоновского рассеяния от угла рассеяния и энергии E_γ падающего гамма-кванта. Резкий скачок соответствует максимальной энергии, которая может быть передана при однократном рассеянии

Эта энергия является минимальной для лобового столкновения, при котором гамма-квант рассеивается на 180° , а электрон движется вперед в направлении падающего гамма-кванта. Для этого случая энергия рассеянного гамма-кванта определяется уравнением (2.10), а энергия рассеянного электрона определяется уравнением (2.11):

$$E'(\text{мин}) = m_0 c^2 / (2 + m_0 c^2 / E) \cong m_0 c^2 / 2 = 256 \text{ кэВ}, \quad (2.10)$$

если $E \gg m_0 c^2 / 2$.

$$E_e(\text{макс}) = E / [1 + m_0 c^2 / (2E)] \cong E - m_0 c^2 / 2 = E - 256 \text{ кэВ}, \quad (2.11)$$

если $E \gg m_0 c^2 / 2$.

Для малых углов рассеяния ($\phi \cong 0^\circ$) энергия рассеянного гамма-кванта не намного меньше, чем энергия падающего гамма-кванта, а рассеянный электрон получает от взаимодействия очень небольшую энергию. Энергия, переданная рассеянному электрону, изменяется в диапазоне почти от нуля до максимального значения, определяемого уравнением (2.11).

Когда комптоновское рассеяние происходит в детекторе, рассеянный электрон обычно останавливается в детектирующей среде, и детектор производит выходной импульс, пропорциональный энергии, потерянной падающим гамма-квантом. Комптоновское рассеяние в детекторе приводит к образованию спектра выходных импульсов, простирающегося от нуля до максимальной энергии, определяемой уравнением (2.11). Трудно соотнести спектр комптоновского рассеяния с энергией падающего гамма-кванта. На рис. 2.8 показан измеренный спектр гамма-квантов от моноэнергетического источника гамма-излучения (^{137}Cs). Пик полного поглощения при 662 кэВ образован взаимодействиями, в которых гамма-квант теряет всю свою энергию в детекторе либо в результате одно-

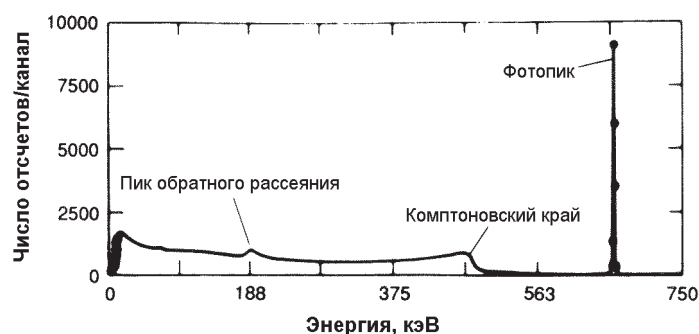


Рис. 2.8. Спектр высокого разрешения ^{137}Cs , на котором показаны пик полного поглощения (фотопик), комптоновский край и пик обратного рассеяния для гамма-кванта с энергией 662 кэВ. События ниже фотопика обусловлены комптоновским рассеянием в детекторе и окружающих его материалах

кратного фотоэлектрического поглощения, либо в результате серии комптоновских рассеяний, за которыми следует фотоэлектрическое поглощение. Спектр зарегистрированных событий, находящихся ниже пика полного поглощения, обусловлен событиями комптоновского рассеяния, в которых гамма-квант теряет в детекторе только часть своей энергии. Ступенька в области 470 кэВ соответствует максимальной энергии, которая может быть передана электрону гамма-квантом с энергией 662 кэВ в результате единичного комптоновского рассеяния. Эта ступенька называется комптоновским краем, энергия которого описывается уравнением (2.11) и показана на рис. 2.9. Небольшой пик в области 188 кэВ на рис. 2.8 называется пиком обратного рассеяния. Пик обратного рассеяния образуется, когда гамма-квант претерпевает рассеяние на большой угол ($\cong 180^\circ$) в материале, окру-

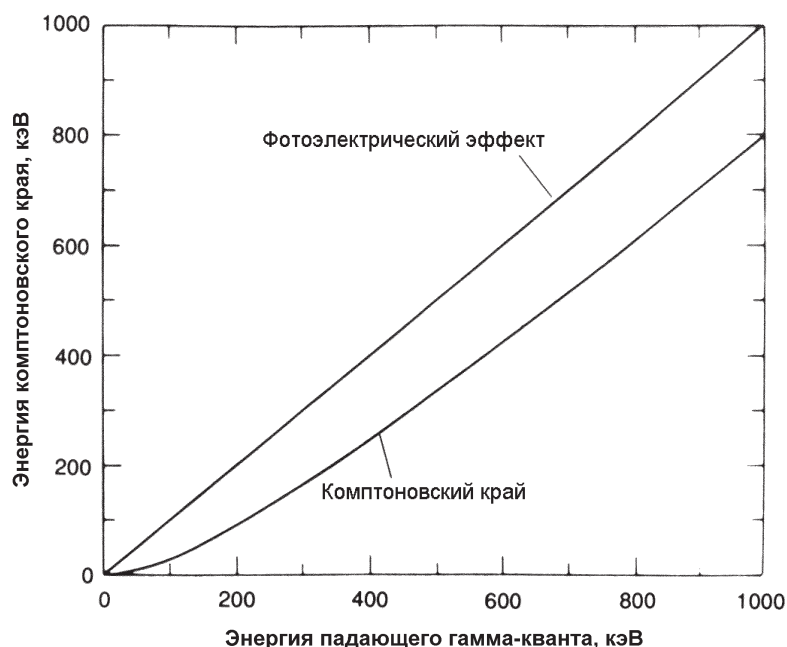


Рис. 2.9. Зависимость энергии комптоновского края от энергии падающего гамма-кванта

жающем детектор, и затем поглощается в детекторе. Энергия пика обратного рассеяния определяется уравнением (2.10), которое показывает, что максимальная энергия равна 256 кэВ. Сумма энергий пика обратного рассеяния и комптоновского края равна энергии падающего гамма-кванта. Обе характеристики появляются в результате комптоновского рассеяния падающего гамма-кванта на большой угол. Это событие дает вклад в пик обратного рассеяния, когда в детекторе теряет свою энергию только рассеянный гамма-квант и, соответственно, дает вклад в комптоновский край, если в детекторе теряет свою энергию только рассеянный электрон.

Поскольку в комптоновском рассеянии участвуют наименее связанные электроны, ядро оказывает незначительное влияние, и вероятность взаимодействия почти не зависит от его атомного номера. Вероятность взаимодействия зависит от плотности электронов, которая пропорциональна Z/A и почти постоянна для всех материалов. Вероятность комптоновского рассеяния представляет собой функцию, медленно изменяющуюся с энергией гамма-кванта (см. рис. 2.3).

2.3.3 Образование пар

Гамма-квант с энергией не менее 1,022 МэВ, находясь под влиянием сильного электромагнитного поля вблизи ядра, может образовать электрон-позитронную пару (см. рис. 2.10). При этом взаимодействии ядро приобретает небольшое количество энергии отдачи для сохранения импульса, но само ядро не изменяется, а гамма-квант исчезает. Такое взаимодействие имеет порог 1,022 МэВ, поскольку это минимальная энергия, которая необходима для образования электрона и позитрона. Если энергия гамма-кванта превышает 1,022 МэВ, избыточная энергия делится между электроном и позитроном в виде их кинетической энергии. Этот процесс взаимодействия не является существенным для анализа ядерных материалов, поскольку значения наиболее важных характерных энергий гамма-излучения находятся ниже 1,022 МэВ.

Электрон и позитрон, полученные в процессе образования пары, быстро замедляются в поглотителе. После потери кинетической энергии позитрон соединяется с электроном в аннигиляционном процессе, в результате которого высвобождаются два гамма-кванта с энергиями 0,511 МэВ. Эти гамма-кванты более низкой энергии далее могут провзаимодействовать с поглощающим материалом или покинуть его. Взаимодействие гамма-кванта высокой энергии в детекторе приводит к образованию трех пиков (см. рис. 2.11). Кинетическая энергия электрона и позитрона поглощается в детекторе. Один или оба аннигиляционных гамма-кванта могут покинуть детектор, либо оба гамма-кванта могут быть поглощены. Если в детекторе поглощаются оба аннигиляционных гамма-кванта, это взаимодействие дает вклад в пик полного поглощения измеряемого спектра. Если

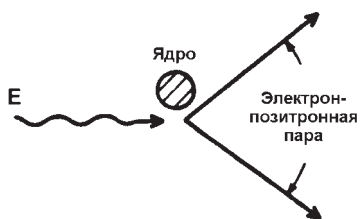


Рис. 2.10. Схема образования пары

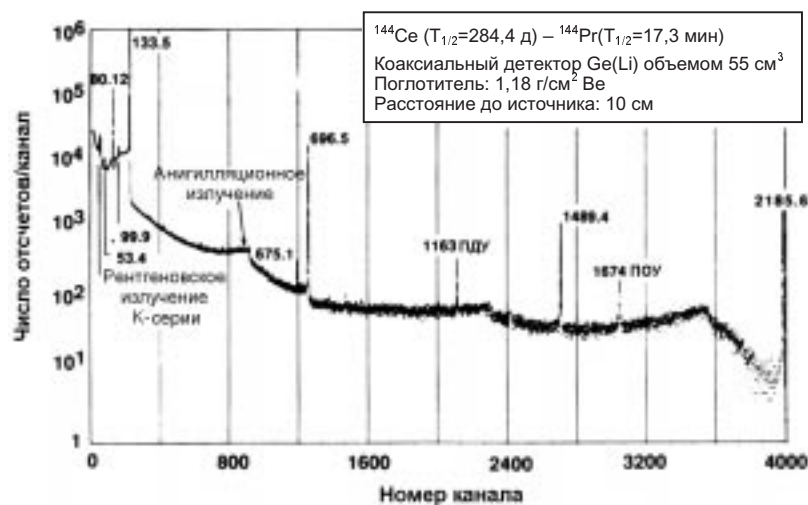


Рис. 2.11. Спектр гамма-излучения продукта деления ^{144}Pr , на котором показаны пики одиночной утечки (ПОУ) и пики двойной утечки (ПДУ) с энергиями 1674 и 1163 кэВ, соответственно, возникающие в результате взаимодействия в германиевом детекторе гамма-квантов с энергиями 2186 кэВ с образованием пар

один из аннигиляционных гамма-квантов покидает детектор, взаимодействие дает вклад в пик одиночной утечки, расположенный на 0,511 МэВ ниже пика полного поглощения. Если оба гамма-кванта покидают детектор, взаимодействие дает вклад в пик двойной утечки, расположенный на 1,022 МэВ ниже пика полного поглощения. Относительные высоты трех пиков зависят от энергии падающего гамма-кванта и размера детектора. Пики утечки могут возникать при измерении образцов облученного топлива, тория и ^{232}U , поскольку основные гамма-кванты этих материалов обладают энергиями выше порога образования пар. Облученное топливо иногда измеряют с использованием гамма-квантов с энергией 2186 кэВ продукта деления ^{144}Pr . Спектр гамма-излучения ^{144}Pr (см. рис. 2.11) содержит пики одиночной и двойной утечек, которые возникают в результате процесса образования пар в германиевом детекторе гамма-квантом с энергией 2186 кэВ.

Процесс образования пар невозможен для гамма-квантов с энергией ниже 1,022 МэВ. Выше этого порога вероятность взаимодействия быстро возрастает с энергией (см. рис. 2.3). Вероятность образования пар изменяется приблизительно как квадрат атомного номера Z и становится существенной для элементов с высоким Z , таких как свинец или уран. В свинце приблизительно 20 % взаимодействий гамма-квантов с энергией 1,5 МэВ проходят через процесс образования пар, и эта доля возрастает до 50 % при энергии 2,0 МэВ. Для углерода соответствующие доли взаимодействий составляют 2 и 4 %.

2.3.4 Полный массовый коэффициент ослабления

Все три процесса взаимодействия, описанные выше, вносят вклад в полный массовый коэффициент ослабления. Относительный вклад трех процессов взаимодействия зависит от энергии гамма-кванта и атомного номера поглотителя. На рис. 2.12 показан набор кривых массового ослабления, охватывающий широкий

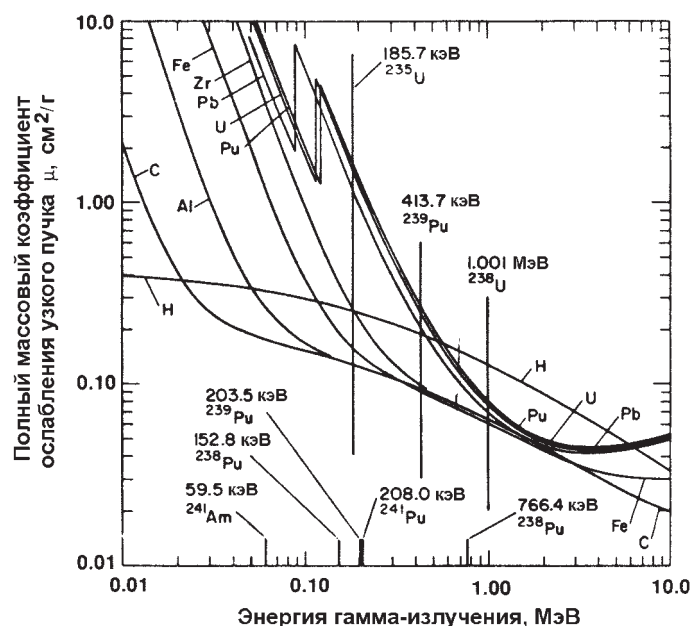


Рис. 2.12. Массовые коэффициенты ослабления некоторых элементов. Показаны энергии гамма-квантов, используемые обычно при НРА урана и плутония

диапазон энергий и атомных номеров. На нем ярко показано взаимное соотношение трех процессов. Коэффициент ослабления для всех элементов, за исключением водорода, имеет резкий подъем в области низких энергий, который указывает, что в этой области преобладающим процессом взаимодействия является фотоэлектрическое поглощение. Расположение этого подъема сильно зависит от атомного номера. Выше подъема в области низких энергий значение массового коэффициента ослабления постепенно снижается, определяя область, в которой преобладающим взаимодействием является комптоновское рассеяние. Массовые коэффициенты ослабления для всех элементов с атомным номером меньше, чем 25 (железо), практически идентичны в энергетическом диапазоне от 200 до 2000 кэВ. В диапазоне от 1 до 2 МэВ кривые ослабления сходятся для всех элементов. Форма кривой массового ослабления водорода показывает, что взаимодействие гамма-квантов с энергией больше 10 кэВ проходит почти исключительно путем комптоновского рассеяния. При энергиях выше 2 МэВ для элементов с высоким Z важным становится процесс взаимодействия с образованием пар, и массовый коэффициент ослабления снова начинает расти. Понимание основных закономерностей (см. рис. 2.12) очень полезно для понимания методик НРА.

2.4 ФИЛЬТРЫ

Во многих видах анализа измерение легче провести, если гамма-кванты более низких энергий будут поглощены до того, как они достигнут детектора. Эти низкоэнергетические гамма-кванты, если их не вывести из пучка, могут вызвать зна-

чительный рост числа просчетов, обусловленных большой загрузкой детектора, и искажение спектра. Процесс выведения гамма-квантов определенной энергии из пучка часто называется фильтрацией. Идеальный материал фильтра должен иметь коэффициент пропускания, равный нулю для гамма-квантов с энергией ниже рассматриваемого порога, и коэффициент пропускания, равный бесконечности для энергий выше этого порога. Как видно из рис. 2.12, такого материала не существует. Тем не менее, приемлемые фильтры могут быть получены путем выбора поглотителей с таким атомным номером, чтобы резкий рост сечения фотоэлектрического эффекта находился вблизи энергии гамма-квантов, которые должны быть ослаблены, но значительно ниже энергии анализируемых гамма-квантов.

Обычно фильтрация применяется для измерений спектров гамма-излучения плутония. Все плутониевые образцы, кроме только что прошедших процесс химического разделения от америция, имеют значительное количество ^{241}Am , который испускает очень интенсивное гамма-излучение с энергией 60 кэВ. В большинстве образцов это гамма-излучение является преобладающим в спектре и должно быть ослаблено для проведения точных измерений гамма-квантов плутония. Обычно для ослабления излучения ^{241}Am используется тонкий лист кадмия. В табл. 2.1 показано влияние кадмиевого фильтра на спектр излучения от диска из металлического плутония весом 2 г. В отсутствие фильтра в спектре преобладают гамма-кванты с энергией 60 кэВ, которые могут даже парализовать работу детектора. Кадмиевый фильтр толщиной от 1 до 2 мм существенно ослабляет линию 60 кэВ и лишь незначительно ослабляет линии плутония более высоких энергий. Спектр плутония в области энергий ниже 250 кэВ обычно измеряется с кадмиевым фильтром. Когда рассматриваются только гамма-кванты ^{239}Pu с энергией 414 кэВ, в качестве материала фильтра может быть использован свинец, поскольку он ослабит гамма-кванты с энергией в диапазоне от 100 до 200 кэВ и поглотит большинство гамма-квантов с энергией 60 кэВ. Интересно отметить, что при энергии 60 кэВ массовые коэффициенты ослабления свинца и кадмия практически равны, несмотря на высокий атомный номер свинца 82 по сравнению с атомным номером кадмия 48. Это обусловлено тем, что К-край свинца появляется при 88 кэВ, как было показано на рис. 2.5 в разделе 2.3.1.

Таблица 2.1 – Влияние кадмиевого фильтра на спектр плутония

Толщина поглотителя, см	Сигнал от плутония, имп./с*			
	60 кэВ	129 кэВ	208 кэВ	414 кэВ
0	$3,57 \times 10^6$	$1,29 \times 10^4$	$8,50 \times 10^4$	$2,02 \times 10^4$
0,1	$2,40 \times 10^4$	$0,67 \times 10^4$	$6,76 \times 10^4$	$1,85 \times 10^4$
0,2	$1,86 \times 10^2$	$0,34 \times 10^4$	$5,37 \times 10^4$	$1,69 \times 10^4$

* $^{241}\text{Am} = 0,135\%$; $^{239}\text{Pu} = 81,9\%$; $^{241}\text{Pu} = 1,3\%$. Сигнал от диска металлического плутония весом 2 г, диаметром 1 см, толщиной 0,13 см.

При измерении ^{235}U часто используется кадмиевый фильтр, поскольку он ослабляет гамма-кванты и рентгеновские кванты с энергией в диапазоне от 9 до

120 кэВ и не оказывает значительного влияния на гамма-кванты с энергией 186 кэВ от ^{235}U . Фильтры также могут использоваться в измерениях с облученным топливом. Гамма-кванты продуктов деления ^{144}Ce - ^{144}Pr с энергией 2186 кэВ измеряются в некоторых случаях в качестве индикаторов остатков топливного материала в выщелоченных отходах (шелухе), полученных на перерабатывающей установке (см. главу 18). Основная активность гамма-квантов продуктов деления находится в области от 500 до 900 кэВ и может быть выборочно снижена для гамма-квантов с энергией 2186 кэВ при использовании свинцового фильтра толщиной от 10 до 15 см.

Для ослабления характеристических рентгеновских квантов от основного материала фильтра перед тем как они провзаимодействуют с детектором иногда используют комбинированные фильтры из двух и более материалов. Когда гамма-кванты поглощаются в основном материале фильтра, в результате взаимодействия образуется большое количество рентгеновских квантов. Например, когда гамма-кванты ^{241}Am с энергией 60 кэВ поглощаются в тонком кадмиевом фильтре, может образоваться значительный поток рентгеновских квантов с энергией 23 кэВ. Если эти рентгеновские кванты перегружают детектор, их можно легко ослабить с использованием очень тонкого листа меди. Поскольку энергия рентгеновских квантов К-серии меди равная 8 кэВ, как правило, достаточно низка, они не мешают проведению измерений. Если материалом основного фильтра является свинец, для поглощения характеристических рентгеновских квантов К-серии свинца с энергиями 73 и 75 кэВ используется кадмий, а для поглощения характеристических рентгеновских квантов К-серии кадмия с энергией 23 кэВ используется медь. В комбинированных фильтрах материал с самым низким Z всегда располагается ближе к детектору.

2.5 ЗАЩИТА

В приборах НРА для ограничения отклика детектора от гамма-квантов фона и для защиты оператора и детектора от источников излучения пропускания и активации требуются защита и коллиматоры. Материалы защиты от гамма-излучения должны иметь высокую плотность и высокий атомный номер, так чтобы они имели высокий полный линейный коэффициент ослабления и высокую вероятность фотоэлектрического поглощения. Наиболее распространенным материалом защиты является свинец, поскольку он легко доступен, имеет плотность $11,35 \text{ г/см}^3$, атомный номер 82 и относительно недорог. Свинец может быть запрессован во множество форм; однако, вследствие высокой пластичности, он с трудом подвергается механической обработке или не держит заданную форму без фиксации более жестким материалом.

В некоторых случаях вместо свинца используется сплав вольфрама (атомный номер 74), потому что он имеет значительно более высокую плотность (17 г/см^3), легче подвергается механической обработке и хорошо сохраняет форму. В табл. 2.2 показаны некоторые ослабляющие свойства этих двух материалов. Для повышения возможности механической обработки, вольфрам сплавляется с никелем и медью. В табл. 2.2 показано, что при энергиях свыше 500 кэВ благодаря более высокой плотности сплав вольфрама имеет значительно более высокий линейный коэффициент ослабления, чем свинец. Таким образом, тот же защитный

эффект может быть достигнут, используя более тонкую защиту. При энергиях ниже 500 кэВ разность между ослабляющими свойствами двух материалов является менее значительной; более высокая плотность вольфрамового сплава нейтрализуется более низким атомным номером. Вольфрамовый сплав используется, когда объем защиты строго ограничен, или когда важны возможность механической обработки и механическая прочность. Однако вольфрам более чем в три раза дороже свинца, поэтому его расходуют экономно и практически никогда не используют для массивных защит. Сплав часто применяют для конструкционной поддержки интенсивных источников гамма-излучения, предназначенных для измерения коэффициентов пропускания, или для коллимации детекторов гамма-излучения.

Таблица 2.2 – Ослабляющие свойства свинца и вольфрама

энергия, кэВ	Коэффициент ослабления, см ⁻¹		Толщина, см*	
	свинец	вольфрам**	свинец	вольфрам**
1000	0,77	1,08	2,98	2,14
500	1,70	2,14	1,35	1,08
200	10,6	11,5	0,22	0,20
100	60,4	64,8	0,038	0,036

* Толщина поглотителя с 10 %-ным пропусканием.

** Сплав: 90 % вольфрама, 6 % никеля, 4 % меди.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1995).
2. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, New York, 1979).
3. E. Storm and H. Israel, "Photon Cross Sections from 0,001 to 100 MeV for Elements 1 through 100", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-3753 (1967).
4. J.H. Hubbel, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV", National Bureau of Standards report NSRDS-NSB 29 (August 1969).

Глава 3

Детекторы гамма-излучения

*Хэйстингс А. Смит, мл. и Марша Лукас
(Переводчик Н.В. Мошкина)*

3.1 ВВЕДЕНИЕ

Для того чтобы гамма-квант был обнаружен, он должен провзаимодействовать с веществом и это взаимодействие должно быть зарегистрировано. К счастью, электромагнитная природа фотонов гамма-излучения позволяет им взаимодействовать с заряженными электронами атомов всех веществ. Ключевым процессом, посредством которого обнаруживается гамма-квант, является ионизация, в процессе которой он отдает часть или всю свою энергию электрону. Ионизационные электроны сталкиваются с другими атомами и высвобождают еще больше электронов. Освобожденный заряд собирается либо непосредственно (как в пропорциональном счетчике или твердотельном полупроводниковом детекторе), либо косвенным образом (как в сцинтилляционном детекторе), чтобы зарегистрировать гамма-квант и измерить его энергию. Окончательный результат этого процесса представляет собой электрический импульс, амплитуда которого пропорциональна энергии, потерянной гамма-квантом в детектирующей среде.

В этой главе мы представим общую информацию о типах детекторов гамма-излучения, которые используются в неразрушающем анализе (НРА) ядерных материалов. Электронное оборудование, связанное с регистрацией гамма-излучения, рассматривается в главе 4. Более углубленное рассмотрение конструкции и работы детекторов гамма-излучения можно найти в работах [1 и 2].

3.2 ТИПЫ ДЕТЕКТОРОВ

Для регистрации гамма-квантов и их энергий используется множество различных типов детекторов. В НРА обычно необходимо измерять не только количество излучения, выходящего из образца, но также его энергетический спектр. Таким образом, наиболее применяемыми детекторами для целей НРА являются детекторы, выходной сигнал которых пропорционален энергии, потерянной гамма-квантом в чувствительном объеме детектора.

3.2.1 Газонаполненные детекторы

Газонаполненные детекторы (газовые счетчики) состоят из чувствительного объема газа между двумя электродами (см. рис. 3.1). В большинстве конструкций внешний электрод представляет собой цилиндрическую стенку сосуда, наполненного газом под давлением, а внутренний (положительный) электрод — тонкий провод, расположенный в центре по оси цилиндра. В некоторых конструкциях

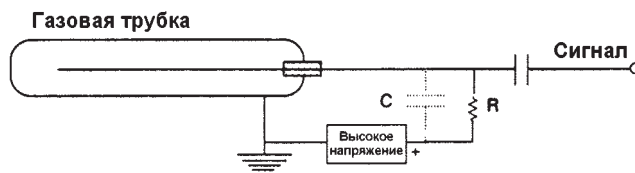


Рис. 3.1. Эквивалентная схема газонаполненного детектора. Газ составляет чувствительный (детектирующий) объем. Разность потенциалов между корпусом трубки и центральным электродом создает сильное электрическое поле в объеме газа. Электроны, образованные в результате газовой ионизации, перемещаются к центральному электроду под действием электрического поля, образуя на электроде зарядовое перенапряжение для каждого события регистрации

(особенно ионизационных камер) оба электрода могут быть погружены в газ и электрически изолированы от корпуса камеры.

Ионизационная камера представляет собой газонаполненный счетчик, у которого напряжение между электродами достаточно низкое, так что собирается только заряд первичной ионизации. Выходной электрический сигнал пропорционален энергии, потерянной в объеме газа.

Если напряжение между электродами увеличить, ионизационные электроны приобретут достаточно кинетической энергии, чтобы вызвать последующую ионизацию. Таким образом можно получить *пропорциональный счетчик*, который может быть приспособлен для конкретного применения путем изменения давления газа и/или рабочего напряжения. Выходной сигнал все еще пропорционален энергии, потерянной в объеме газа гамма-квантом, а энергетическое разрешение является промежуточным между разрешением сцинтилляционных счетчиков NaI и германиевых (Ge) полупроводниковых детекторов. Пропорциональные счетчики используются для спектрометрии гамма- и рентгеновских квантов, энергии которых достаточно низки (несколько десятков кэВ) для эффективного взаимодействия с газом счетчика.

Если рабочее напряжение увеличивать дальше, умножение заряда в объеме газа лавинообразно возрастает до тех пор, пока пространственный заряд, образованный остаточными ионами, не воспрепятствует дальнейшей ионизации. В результате, количество ионизации достигает максимума (происходит насыщение) и становится независимым от первоначальной энергии, потерянной фотоном в газе. Этот тип детектора известен как счетчик Гейгера-Мюллера. Газоразрядный счетчик Гейгера-Мюллера не различает разные типы частиц, которые он регистрирует, или их энергии; он считает только количество частиц, попавших в детектор. Этот тип детектора является основой традиционных дозиметров β и γ -излучения, используемых в технике безопасности.

В неразрушающем гамма-анализе ядерных материалов газонаполненные счетчики не находят широкого применения. Сцинтилляционные и твердотельные детекторы более предпочтительны для получения тонких спектральных характеристик в энергетическом диапазоне, типичном для излучения урана и плутония (приблизительно 100-1000 кэВ). Газонаполненные счетчики более подробно описаны в главе 13, поскольку они в основном используются для регистрации нейтронов.

3.2.2 Сцинтилляционные детекторы

Чувствительный объем сцинтилляционного детектора представляет собой люминесцентный материал (твердый, жидкий или газообразный), который "осматривается" прибором, регистрирующим вспышки света, вызванные гамма-квантами; обычно это фотоэлектрический умножитель (фотоумножитель, ФЭУ). Сцинтиллирующий материал может быть органическим или неорганическим; более распространен последний. Примерами органических сцинтилляторов являются антрацен, пластмассы и жидкости. Два последних являются менее эффективными, чем антрацен (эталон, с которым сравниваются все другие сцинтилляторы). Некоторыми из общепринятых неорганических сцинтилляционных материалов являются йодид натрия (NaI), йодид цезия (CsI), сульфид цинка (ZnS) и йодид лития (LiI). Наиболее традиционными сцинтилляционными детекторами являются твердые, а наиболее популярными — неорганические кристаллы NaI и CsI. Новый сцинтиллирующий материал германат висмута ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), обычно обозначаемый как BGO, стал популярным в случаях, когда его высокая эффективность гамма-счета и/или его более низкая чувствительность к нейтронам перевешивают требования к энергетическому разрешению [3 и 4]. Всестороннее рассмотрение сцинтилляционных детекторов можно найти в работах [1, 2 и 5].

Когда гамма-кванты взаимодействуют с материалом сцинтиллятора, возникают ионизированные (возбужденные) атомы в материале сцинтиллятора, которые затем переходят в состояние с более низкой энергией и испускают фотоны света. В чистом неорганическом кристалле сцинтиллятора возвращение атома в состояние с более низкой энергией с испусканием фотона является малоэффективным процессом. Кроме того, испускаемые фотоны обычно обладают слишком высокой энергией по отношению к диапазону длин волн, к которым чувствителен ФЭУ. С целью увеличения испускания видимых фотонов ко всем сцинтилляторам добавляются небольшие количества примесей (называемых активаторами). Фотоны, возникающие при снятии возбуждения, проходя сквозь эти примеси добавляются к фотонам, которые могут активировать ФЭУ. Одним из важных следствий люминесценции через примеси активатора является то, что объем кристалла сцинтиллятора становится прозрачен для сцинтилляционного света. Типичным примером активированного сцинтиллятора, встречающимся в гамма-измерениях, является легированный таллием йодид натрия NaI(Tl).

Сцинтилляционный свет испускается изотропно, поэтому для минимизации потерь света сцинтиллятор обычно окружается отражающим материалом (таким, как MgO) и затем оптически соединяется с фотокатодом ФЭУ (см. рис. 3.2). Фотоны сцинтилляции попадают на фотокатод и высвобождают электроны посредством фотоэлектрического эффекта. Эти фотоэлектроны затем ускоряются сильным электрическим полем в ФЭУ. По мере того как фотоэлектроны ускоряются, они сталкиваются с электродами в трубке (называемыми динодами), высвобождая дополнительные электроны. Затем этот возросший поток электронов снова ускоряется до столкновения с последующими электродами, вызывая сильное умножение (с коэффициентом 10^4 и более) электронного потока от его первоначального значения на поверхности фотокатода. Наконец, усиленный зарядовый импульс прибывает на выходной электрод (анод) трубки. Амплитуда этого импульса пропорциональна первоначальному количеству заряда, освобожденного на фо-

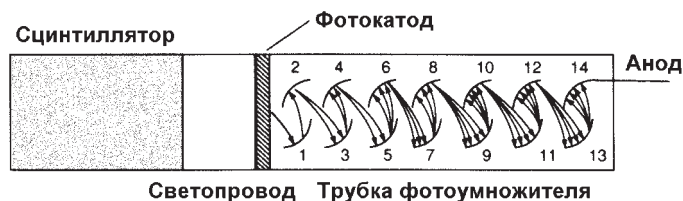


Рис. 3.2. Типичное расположение компонентов в сцинтилляционном детекторе. Часто оптический контакт сцинтиллятора с трубкой фотоумножителя осуществляется через светопровод. Расположение динодов (обозначения 1-13 на рис.) образует последовательные каскады электронов через объем трубки. Окончательный зарядовый импульс собирается на аноде и обычно передается на предусилитель для преобразования в импульс напряжения

токатоде ФЭУ; постоянная пропорциональности представляет собой коэффициент усиления ФЭУ. Кроме того, согласно природе фотоэлектрического эффекта, первоначальное число фотоэлектронов, освобожденных на фотокатоде, пропорционально количеству света, падающего на трубку фотоумножителя, которое, в свою очередь, пропорционально количеству энергии, потерянной в сцинтилляторе гамма-квантом (в предположении отсутствия потерь в объеме сцинтиллятора). Таким образом образуется выходной сигнал, пропорциональный энергии, потерянной гамма-квантом в сцинтиллирующей среде. Однако, как обсуждалось выше, измеренный энергетический спектр (даже для моноэнергетического потока фотонов) изменяется вследствие влияния на него фотоэлектрического эффекта, комптоновского эффекта и различных явлений рассеяния в сцинтиллирующей среде, а также в результате статистических флуктуаций, связанных со всеми этими процессами. Более подробно это обсуждается в разделе 3.3.

3.2.3 Твердотельные детекторы

В твердотельных детекторах заряд, образованный при взаимодействии фотонов, собирается непосредственно в детекторе. Разрешение по энергии гамма-излучения этих детекторов существенно лучше, чем сцинтилляционных детекторов, что позволяет измерять более тонкие спектральные характеристики и использовать их для оценок специальных ядерных материалов (СЯМ). Типовая схема твердотельных детекторов показана на рис. 3.3. Чувствительный объем представляет собой электронно-кондиционированную область (известную как обедненная

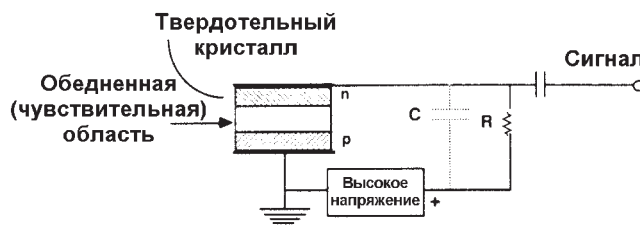


Рис. 3.3. Типичное расположение компонентов в твердотельном детекторе. Кристалл представляет собой обратнo-смещенный p-n переход, который проводит заряд при образовании ионизации в чувствительной области. Обычно сигнал подается на зарядо-чувствительный предусилитель для преобразования в импульс напряжения (см. главу 4)

область) в полупроводниковом материале, в которой свободно перемещаются электроны и дырки. Германий обладает наиболее идеальными электронными характеристиками в этом отношении и является наиболее широко используемым полупроводниковым материалом в твердотельных детекторах. Как видно из рис. 3.3, детектор действует как твердотельный пропорциональный счетчик, в котором ионизационный заряд перемещается в направлении электродов под действием электрического поля, образованного внешним источником высоковольтного питания. Предусилитель преобразует собранный заряд в импульс напряжения. В наиболее популярных ранних конструкциях в качестве детектирующей среды использовался литий-дрейфовый германий Ge(Li). Литий служит для подавления захвата заряда на примесях в кристаллической решетке в течение процесса сбора заряда. В последние годы производители детекторов создали кристаллы особо чистого германия (ОЧГ), что устранило необходимость в литии и упростило работу с детектором, при хранении которого не нужен жидкий азот.

Твердотельные детекторы производятся, в основном, в двух конфигурациях: планарной и коаксиальной. Эти термины относятся к форме кристалла детектора и способу его включения. Наиболее часто встречающиеся конфигурации детекторов представлены на рис. 3.4. *Коаксиальные детекторы* производятся либо с кристаллами с открытым концом (так называемые истинные коаксиальные) или с кристаллами с закрытым концом (см. рис. 3.4 (а,б)). В обоих случаях электрическое поле для сбора заряда является, в основном, радиальным, с некоторой осевой составляющей, присутствующей в конфигурациях с закрытым концом. Коаксиальные детекторы могут быть изготовлены с большими чувствительными объемами и, следовательно, с большими эффективностями регистрации при высоких энергиях гамма-квантов. Кроме того, радиальная геометрия электрического поля делает коаксиальные (особенно коаксиальные с открытым концом) твердотельные детекторы лучшими по быстродействию. *Планарные детекторы* состоят из кристалла либо с прямоугольным, либо с круглым поперечным сечением и толщиной чувствительного слоя от 1 до 20 мм (например, рис. 3.4 (в)). Электрическое поле перпендикулярно плоскости поперечного сечения кристалла. Толщина кристалла выбирается с учетом рассматриваемой области энергии гамма-излучения для измерений низких энергий (например, в L-области рентгеновского спек-

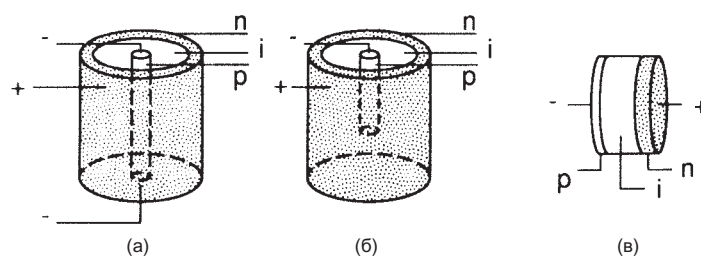


Рис. 3.4. Иллюстрация различных конфигураций кристаллов твердотельных детекторов: (а) цилиндрическая с открытым концом или истинно коаксиальная, (б) цилиндрическая с закрытым концом и (в) планарная. Соответствующими буквами отмечены полупроводниковые материалы p-типа и n-типа. Области, помеченные буквой i, представляют собой обедненные области, служащие чувствительными объемами детекторов. В терминах полупроводниковой техники, эта область рассматривается как область с собственной проводимостью или p-i-n переход

ра для специальных ядерных материалов). Наиболее оптимальна небольшая толщина. Планарные детекторы обычно обладают наилучшим энергетическим разрешением, благодаря их низкой емкости; они более предпочтительны для детальной спектрометрии, например, для анализа сложных спектров низкоэнергетических гамма- и рентгеновских квантов урана и плутония.

Из-за своего высокого разрешения полупроводниковые детекторы достаточно чувствительны к деградации рабочих характеристик вследствие радиационных повреждений. Количество повреждений, произведенных в кристалле детектора на единицу падающего потока, наибольшее для нейтронного излучения. Таким образом, в среде, в которой уровень нейтронного излучения высок (такой, как ускорители, реакторы или установки с интенсивными нейтронными источниками), будут наблюдаться самые значительные эффекты радиационных повреждений. Кроме того, эффекты радиационного повреждения могут иметь место в применениях НРА, в которых непрерывно измеряются большие количества ядерных материалов с использованием гамма-спектрометрического оборудования высокого разрешения, например, при измерении изотопов плутония в режиме с высокой пропускной способностью.

Основной эффект радиационного повреждения заключается в образовании смещенных атомов в кристалле детектора. Это увеличивает количество ловушек заряда, приводя к снижению амплитуды части импульсов в пике полного поглощения, и образованию низкоэнергетических хвостов у фотопиков спектра. В результате разрешение ухудшается, и детали спектра теряются. Пример такого вида эффекта показан на рис. 3.5 [6]. Обычно наблюдается, что значительное ухудшение рабочих характеристик детектора начинается с флюенса нейтронов приблизительно 10^9 н/см², и детекторы становятся непригодными к использованию при флюенсе приблизительно 10^{10} н/см² [7]. Однако новые ОЧГ кристаллы n-типа значительно менее подвержены повреждению нейтронами. Были описаны процедуры, при которых эффекты радиационного повреждения могут быть устранены посредством нагревания (отжига) кристалла детектора [8].

Дальнейшие подробности о конструкции и использовании твердотельных детекторов для гамма-спектрометрии можно найти в работах [1, 2 и 9].

В статическом состоянии конфигурация германиевого твердотельного детектора с обратно-смещенным диодом дает очень низкие токи утечки (обычно в диапазоне от пикоампер до наноампер). Этот ток можно еще уменьшить путем криогенного охлаждения кристалла от комнатной температуры до температуры жидкого азота (77 К). Такое охлаждение уменьшает естественный тепловой электрический шум в кристалле, но определяет основной недостаток таких детекторов: корпус детектора должен включать емкость для охлаждения, которая обычно представляет собой сосуд Дьюара, содержащий жидкий охладитель. В последние годы были сделаны попытки охлаждать материал детектора электрическим способом [10], но эти разработки все еще находятся в экспериментальной стадии и в самом начале коммерческого использования.

Другим популярным материалом твердотельных детекторов для спектрометрии фотонов является литий-дрейфовый кремний Si(Li). Более низкий атомный номер кремния по сравнению с германием снижает фотоэлектрическую эффективность примерно в 50 раз (см. главу 2), но этот тип детектора широко используется в измерениях рентгеновских спектров в области энергий от 1 до 50 кэВ и находит некоторое применение в рентгенофлуоресцентном анализе (РФА) (см.

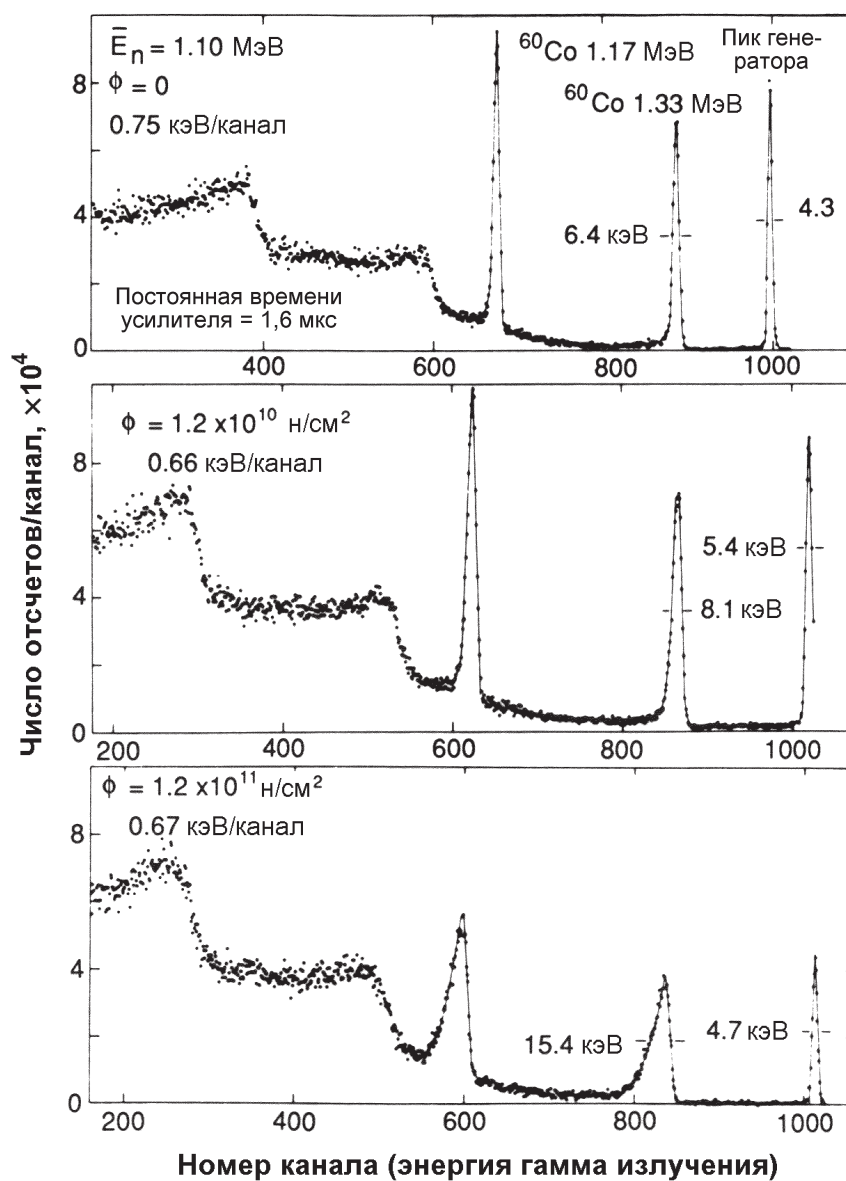


Рис. 3.5. Ухудшение гамма-спектра твердотельного детектора высокого разрешения с ростом флюенса нейтронов (Φ). Ширина фотопика ^{60}Co при энергии 1,33 МэВ указана на каждом спектре. Показана только высокоэнергетическая часть спектра. Также отмечена ширина пика электронного генератора (переделано из работы [6])

главу 10). Низкая фотоэлектрическая эффективность кремния при энергиях выше 50 кэВ является преимуществом таких детекторов при измерении гамма- и рентгеновских квантов низких энергий, поскольку это означает, что чувствительность к гамма-квантам высоких энергий значительно снижается. Наиболее интенсивно кремниевые детекторы используются в спектрометрии заряженных частиц, а также для спектрометрии комптоновской отдачи гамма-квантов высокой энергии.

Помимо германия и кремния в гамма-спектрометрии применялись и другие твердотельные детектирующие среды. Для измерений в НРА, а также для многих других применений гамма-спектрометрии, было бы выгодно иметь детекторы высокого разрешения, работающие при комнатной температуре, тем самым исключая необходимость в громоздком оборудовании для охлаждения кристалла детектора. Работа при комнатной температуре таких полупроводниковых материалов, как CdTe, HgI₂ и GaAs была всесторонне исследована [11]. Их более высокие средние атомные номера обеспечивают большую фотоэлектрическую эффективность на единицу объема материала. Некоторые из их эксплуатационных характеристик представлены в табл. 3.1. Однако в настоящее время эти материалы для детекторов находят ограниченное применение в задачах НРА, главным образом вследствие невозможности изготовления достаточно больших кристаллов для обеспечения высокой эффективности регистрации, необходимой для НРА. С улучшением технологии выращивания кристаллов эти детекторы могут стать более привлекательными в качестве удобных детекторов высокого разрешения, работающих при комнатной температуре.

Таблица 3.1 – Сравнение нескольких материалов полупроводниковых детекторов

Материал детектора	Атомные номера	Энергия на образование пары электрон-дырка (δ)*	Наилучшее энергетическое разрешение при 122 кэВ**, кэВ
Ge (77 K)	32	2,96	0,46
CdTe (300 K)	48, 52	4,43	3,80
HgI ₂ (300 K)	80, 53	6,50	3,50
GaAs (300 K)	31, 33	4,2	2,60
NaI (300 K)***	11, 53		14,2

* Эта величина определяет число несущих зарядов, образованных в одном взаимодействии (см. раздел 3.3.3).

** Представительные данные по разрешению, взятые из таблиц в работе [12]. Энергетическое разрешение обсуждается дальше в разделе 3.3.3 и главе 5.

*** Будучи не полупроводниковым материалом, NaI включен в таблицу для удобства сравнения.

3.3 ХАРАКТЕРИСТИКИ РЕГИСТРИРУЕМЫХ СПЕКТРОВ

В гамма-спектрометрии детекторы образуют выходные импульсы, амплитуды которых пропорциональны энергии, потерянной в детектирующей среде падающими фотонами. Измерительная система включает метод анализа всех входных импульсов по амплитудам и представления их спектра. Основным инструментом для выполнения этой задачи является многоканальный анализатор (МКА), работа которого рассматривается в главе 4. Конечным результатом многоканального анализа является гистограмма (спектр) зарегистрированных выходных импульсов, отсортированных по амплитуде. Спектр амплитуд импульсов представляет собой непосредственное отражение энергетического спектра взаимодействий гамма-квантов в детектирующей среде и составляет спектрометрическую информацию, используемую в НРА.

3.3.1 Общий отклик детектора

Независимо от типа используемого детектора, измеренные спектры имеют много общих черт. Рассмотрим спектр моноэнергетического источника гамма-излучения с энергией E_0 , представленный на рис. 3.6 (а). Гамма-кванты возникают в ядерных переходах, которые сопровождаются специфическими изменениями энергии. Эти значения энергии испытывают незначительные флуктуации в вследствие двух эффектов: 1 — квантовых неопределенностей в энергиях переходов (так называемая неопределенность Гейзенберга) и 2 — эффектов отдачи при испускании фотонов гамма-излучения. Эти неопределенности являются конечными, однако они незначительны по сравнению с другими эффектами энергетического расширения спектра, обсуждаемыми ниже, и поэтому не показаны на рисунке. Таким образом, "идеальный" спектр моноэнергетического гамма излучения от свободно распадающегося ядра, по существу, представляет собой острую линию при энергии E_0 .

Поскольку регистрируемые гамма-кванты обычно исходят не из свободного ядра, а испускаются ядерным материалом, часть из них подвергается рассеянию перед тем, как они покинут радиоактивный образец. В результате этого рассеяния подвергшиеся ему фотоны обретают энергию чуть меньшую, чем E_0 , а энергетический спектр фотонов, испущенных из образца материала, слегка расширен в энергетической области ниже E_0 , как показано на рис. 3.6 (б). Величина этого расширения совсем невелика по сравнению с другими эффектами, рассматриваемыми ниже, и преувеличена на рис. 3.6 (б), чтобы привлечь внимание к ее существованию. Следует также отметить, что некоторые гамма-кванты, покинув образец, будут рассеяны внешними материалами перед тем, как они попадут в детектор, и этот эффект может проявиться в окончательном энергетическом спектре (см. ниже).

Когда гамма-квант попадает в детектирующую среду, он передает часть или всю свою энергию атомному электрону, высвобождая электрон из его атомной оболочки. Обычно этот освобожденный электрон затем передает свою кинетическую энергию в серии столкновений в детектирующей среде другим атомным электронам.

Количество энергии, необходимой для образования пары электрон-ион в детектирующей среде, определяет полный заряд, который образует выходной им-

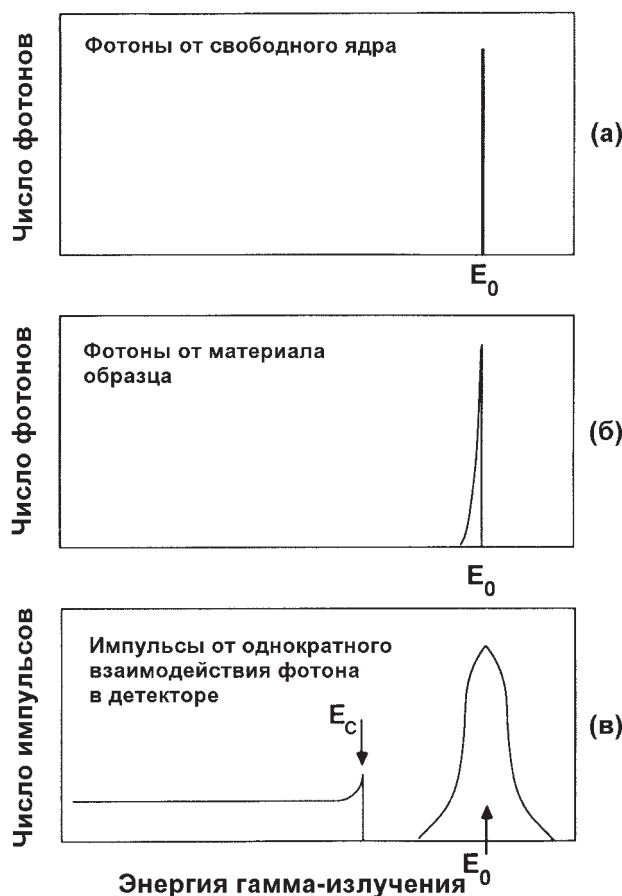


Рис. 3.6. Идеальный фотонный спектр:

а — образованный свободным ядром;

б — испущенный материалом образца;

в — образованный в результате взаимодействий в детектирующей среде

пульс (см. табл. 3.1). В фотоэлектрическом взаимодействии вся энергия падающего фотона передается фотоэлектрону, который впоследствии вызывает множественные ионизации до тех пор, пока его энергия не исчерпается. Следовательно, количество заряда, образованного в результате события этого типа, пропорционально фактической энергии фотона. В процессе комптоновского рассеяния падающий фотон передает ионизационному электрону только часть своей энергии. Впоследствии этот электрон вызывает ионизации до тех пор, пока его энергия тоже не израсходуется. Количество заряда, образованного в результате события этого типа, пропорционально доле энергии, первоначально потерянной падающим фотоном, но не содержит полезной информации о его фактической энергии. События многократного комптоновского рассеяния для одного фотона могут привести к образованию заряда, количество которого близко к значению полной энергии исходного фотона. Однако сигналы, образованные в результате комптоновского рассеяния, в основном, представляют одно взаимодействие рассеяния и

ниже по амплитуде, чем сигналы полной энергии. Идеализированный отклик детектора на фотоэлектрическое и комптоновское взаимодействия в детектирующей среде показан на рис. 3.6 (в). Максимальная энергия, которая может быть оставлена в детектирующей среде в результате комптоновского рассеяния, соответствует рассеиванию фотона на угол 180° . Таким образом, импульсы детектора, образованные от комптоновского рассеяния, распределены в области ниже этой максимальной энергии (E_c на рис. 3.6 (в)) и составляют источник "фоновых" импульсов, которые не содержат полезной информации об энергии фотона.

Пик полного поглощения (см. рис. 3.6 (в)) значительно расширен вследствие статистических флуктуаций количества пар электрон-ион, образованных фотоэлектроном. Такой эффект вносит основной вклад в ширину пика полного поглощения и, тем самым, является доминирующим фактором, определяющим энергетическое разрешение детектора (см. раздел 3.3.3).

3.3.2 Спектральные характеристики

Более реалистичное представление гамма-спектра, образованного детектором от потока моноэнергетических гамма-квантов, показано на рис. 3.7. Спектральные характеристики, отмеченные буквами от А до Ж, описаны ниже.

А. Пик полного поглощения (фотопик). Этот пик объединяет импульсы, возникающие в результате фотоэлектрических взаимодействий с полной потерей энергии в детектирующей среде. Некоторые отсчеты возникают также в результате единичных или многократных событий комптоновского рассеяния, за которыми следует фотоэлектрическое поглощение. Ширина этого пика определяется, в основном, статистическими флуктуациями величины заряда, образованного этими взаимодействиями, а также вкладом от электроники обработки импульсов (см. раздел 3.3.3 и главу 4). Центроида пика соответствует энергии фотона E_0 . Площадь пика за вычетом фона представляет полное число взаимодействий с

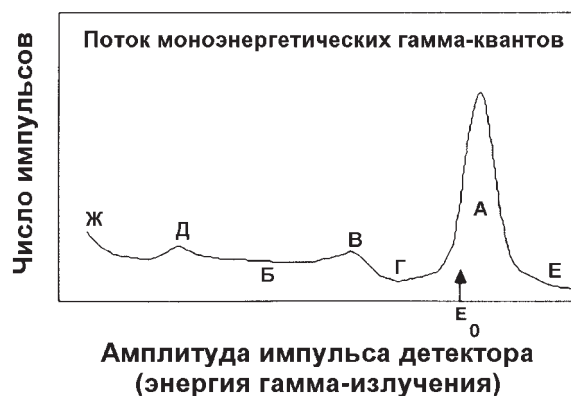


Рис. 3.7. Реалистичное представление спектра детектора гамма-излучения от моноэнергетического источника гамма-квантов. Отмеченные спектральные характеристики описаны в тексте

полной потерей энергии в детекторе и обычно пропорциональна массе излучающего изотопа.

Б. Континуум комптоновского фона. Эти импульсы, гладко распределенные до максимальной энергии E_c (см. рис. 3.6), образуются в результате взаимодействий, происходящих только с частичной потерей энергии фотона в детекторе. В более сложных спектрах комптоновское рассеяние является основным источником фоновых отсчетов под пиками полного поглощения.

В. Комптоновский край. Это часть спектра, которая соответствует максимальной потере энергии падающим фотоном в процессе комптоновского рассеяния. Она представляет собой широкий асимметричный пик, соответствующий максимальной энергии E_c , которую фотон гамма-излучения с энергией E_0 может передать свободному электрону в *однократном* событии рассеяния. Это соответствует "лобовому" столкновению между фотоном и электроном, в результате которого электрон движется вперед, а гамма-квант рассеивается назад на 180° (см. раздел 2.3.2). Энергия комптоновского края определяется уравнением (2.11).

Г. "Комптоновская долина". Для моноэнергетического источника импульсы в этой области возникают либо в результате многократного комптоновского рассеяния, либо в результате взаимодействий с полной потерей энергии фотонами, которые подверглись рассеянию на небольшие углы (в материале источника или в промежуточных материалах) перед тем, как попасть в детектор. Нерассеянные фотоны моноэнергетического источника не могут образовывать импульсы в этой области в результате *однократного* взаимодействия в детекторе. В более сложных спектрах эта часть спектра может содержать импульсы, образованные в результате комптоновского рассеяния фотонов более высоких энергий.

Д. Пик обратного рассеяния. Этот пик обусловлен гамма-квантами, которые подверглись комптоновскому рассеянию в одном из материалов, окружающих детектор. Гамма-кванты, рассеянные более чем на $110-120^\circ$, будут иметь почти одинаковые энергии в диапазоне от 200 до 250 кэВ. Следовательно, вклад от моноэнергетического источника будет представлять множество рассеянных гамма-квантов, энергии которых находятся вблизи этого минимального значения (см. [1] и раздел 2.3.2). Энергия пика обратного рассеяния дается уравнением (2.10).

Е. Область избыточной энергии. В случае моноэнергетического источника события в этой области обусловлены гамма-квантами высоких энергий и мюонами космического излучения, присутствующего в естественном фоне, и событиями наложения импульсов, если скорость счета достаточно высока (см. главу 4). В более сложных спектрах отсчеты выше данного фотопика в основном представляют собой события комптоновского рассеяния гамма-квантов более высоких энергий.

Ж. Подъем в области низких энергий. Эта характеристика спектра, очень близкая к области "нулевой амплитуды импульса", возникает, как правило, от низкоамплитудного электронного шума в детектирующей системе, который вос-

принимается аналогично низкоамплитудным импульсам детектора. Существует тенденция появления такого шума при довольно высокой частоте следования импульсов и, таким образом, проявляется как явление высокой скорости счета. Электронный шум обычно отфильтровывается электронным способом (см. главу 4), так что этот эффект обычно не подавляет показываемый спектр. В более сложных спектрах гамма-излучения, содержащих много разных энергий фотонов, черты комптоновского края и пика обратного рассеяния стремятся к “размыванию”, оставляя, в основном, пики полного поглощения на относительно гладком комптоновском фоне.

3.3.3 Разрешение детектора

Энергетическое разрешение детектора — это мера его способности различать (разрешать) два пика, которые близки друг к другу по энергии. Параметром, используемым для указания разрешения детектора, является полная ширина фотопика (пики полного поглощения) на половине его высоты FWHM (называемая полушириной пика — прим. пер.). Если предположить, что фотопик имеет стандартную форму распределения Гаусса, полуширина дается уравнением:

$$\text{FWHM} = 2\sigma\sqrt{\ln 2}, \quad (3.1)$$

где σ — параметр ширины распределения Гаусса.

Высокое разрешение (небольшая полуширина пика) не только облегчает индивидуальное определение близко лежащих пиков, но также снижает неопределенность вычитания комптоновского континуума, поскольку оно занимает меньшую часть спектра в области пика. Чем сложнее спектр гамма-излучения, тем желательней иметь наилучшее из возможных энергетическое разрешение.

Существуют как естественные, так и технологические ограничения того, насколько точно детектирующая система может зарегистрировать энергию события регистрации гамма-излучения. Естественное ограничение точности определения энергии возникает, в основном, из-за статистических флуктуаций, связанных с процессами образования заряда в детекторе. Положения пиков полного поглощения могут также быть искажены такими электронными эффектами, как шум, наложение импульсов, некорректная установка схемы “полюс-ноль” и т.п. Эти электронные эффекты стали менее важными с усовершенствованием технологии, но их возможное влияние на разрешение должно учитываться при установке измерительной системы. Влияние электронных эффектов и окружающей среды на разрешение детектора более подробно обсуждается в главе 4.

В применениях неразрушающего гамма-анализа наиболее широко используются два типа детекторов: сцинтилляционный детектор NaI(Tl) и германиевый твердотельный детектор. Пики полного поглощения, образованные детектором NaI, гораздо шире, чем образованные германиевым детектором. Это проиллюстрировано на рис. 3.8, где множество деталей, присутствующих в германиевом спектре гамма-излучения плутония, потеряно в соответствующем спектре от NaI.

Рассматривая статистический предел точности определения энергии, возможно понять источник различия энергетических разрешений, достижимых с различными типами детекторов. В идеале число электронных зарядов n , образованных основными событиями регистрации, зависит от полной потерянной энер-

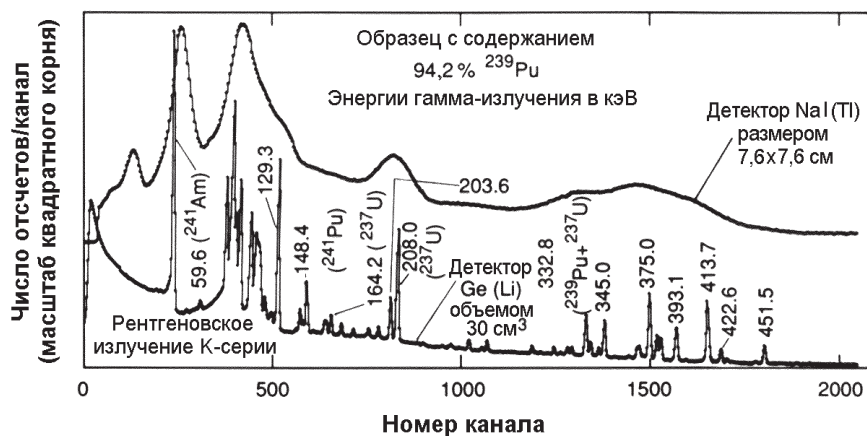


Рис. 3.8. Спектр гамма-излучения плутониевого образца с содержанием ^{239}Pu 94,2 %, полученный с использованием твердотельного детектора $\text{Ge}(\text{Li})$ высокого разрешения и сцинтилляционного детектора NaI

гии E и среднего количества энергии δ , необходимого для образования пары электрон-ион:

$$n = E / \delta. \quad (3.2)$$

Случайная статистическая дисперсия в числе n является основным источником флуктуаций в амплитуде импульса полной энергии. Однако для некоторых типов детекторов наблюдается, что эта статистическая дисперсия меньше (т.е. лучше) теоретического значения на коэффициент, известный как фактор Фано [13]:

$$\sigma^2(n) = Fn = FE / \delta. \quad (3.3)$$

Этот эффект обусловлен тем, что часть энергии, потерянной падающим фотоном, идет на формирование ионных пар, а часть — на нагревание структуры кристаллической решетки (тепловая энергия). Деление энергии между нагреванием и ионизацией носит статистический характер. В отсутствие конкурирующего процесса нагревания вся энергия падающего фотона пошла бы на образование ионной пары, и не существовало бы статистической флуктуации в числе n ($F=0$). И наоборот, если вероятность образования ионной пары мала, то статистические флуктуации были бы доминирующими ($F \approx 1$). Для сцинтилляторов коэффициент F приблизительно равен единице; для германия, кремния и газов он составляет приблизительно 0,15 [1 и 2]. Поскольку число носителей заряда n пропорционально потерянной энергии фотона (см. уравнение (3.2)), статистическая доля относительного энергетического разрешения дается выражением:

$$\Delta E_{\text{стат}} / E = 2,35\sigma(n) / n = 2,35[F\delta / E]^{1/2}. \quad (3.4)$$

В табл. 3.2 сравниваются статистические пределы разрешений для нескольких типов детекторов. Вклад электроники в флуктуации энергии ($\Delta E_{\text{электр}}$) по существу независим от энергии фотона и определяется, главным образом, емкостью детектора и предусилителем. Таким образом, полное энергетическое разрешение может быть выражено как комбинация электронных и статистических эффектов:

$$\Delta^2 E_{\text{полн}} = \Delta^2 E_{\text{электр}} + \Delta^2 E_{\text{стат}} = \alpha + \beta E. \quad (3.5)$$

На рис. 3.9 [14] сравниваются энергетические разрешения сцинтилляционного, газового и твердотельного детекторов в низкоэнергетическом рентгеновском диапазоне. Методики измерений разрешения описаны в разделе 5.2.

Представленный здесь довод предполагает, что эффективность сцинтилляции является основным фактором, влияющим на число электронов, образованных на фотокатоде сцинтилляционного детектора. Также важную роль играют и другие факторы, например, такие как прозрачность сцинтиллятора. Для эффективной работы в качестве детектора, сцинтиллирующий материал должен иметь высокую прозрачность для своего собственного света сцинтилляции. Аналогичным образом, такие факторы, как, например, подвижность носителей заряда, играют важную роль в определении разрешения твердотельного детектора. По необходимости данное обсуждение упрощено, но оно иллюстрирует основную причину, почему разрешение германиевых детекторов намного лучше, чем разрешение сцинтилляционных детекторов. Для более полного рассмотрения вопроса о разрешении детектора см. [1].

Таблица 3.2 – Теоретическое статистическое энергетическое разрешение при энергии 300 кэВ для различных типов детекторов гамма-излучения

Детекти- рующая среда	Средняя энергия δ^* , эВ	Число электронов n при 300 кэВ**	Относитель- ная погреш- ность в числе n***	Энергетичес- кое разреше- ние****, кэВ	Высокоэнергети- ческое разре- шение*****, кэВ
Ge	2,96	$1,0 \times 10^5$	0,0032	0,86	1,60
Газ	30,00	$1,0 \times 10^4$	0,010	2,73	—
NaI	—*****	$1,0 \times 10^3$	0,032	22,6	30,0
BGO	—*****	$8,0 \times 10^1$	0,11	77,6	100,0

* Средняя энергия, необходимая для образования одной пары электрон-ион в детектирующей среде.

** Отношение E/δ для $E=300$ кэВ (уравнение (3.2)).

*** Величина $\sigma(n)/n$ или $(1/n)^{1/2}$ без учета фактора Фано.

**** Статистическая доля энергетического разрешения $\Delta E_{\text{стат}}$ из уравнения (3.4). Используемые факторы Фано равнялись: 0,15 для германия и газа и 1,0 для сцинтилляторов. Это средние значения для целей иллюстрации.

***** Разрешение при энергии 1332 кэВ (^{60}Co) вычислено также, как в предыдущем столбце, но с использованием более высокой энергии. Значения для газонаполненных детекторов не показаны, поскольку они не эффективны для спектрометрии при таких высоких энергиях.

***** Поскольку измеренный заряд собирается в сцинтилляционных детекторах не прямым путем, эта величина к делу не относится; типичное число электронов, образованных на фотокатоде фотоумножителя на кэВ для NaI взято из [1], а число электронов для BGO получено на том основании, что его эффективность сцинтилляции составляет приблизительно 8 % от эффективности NaI [1].

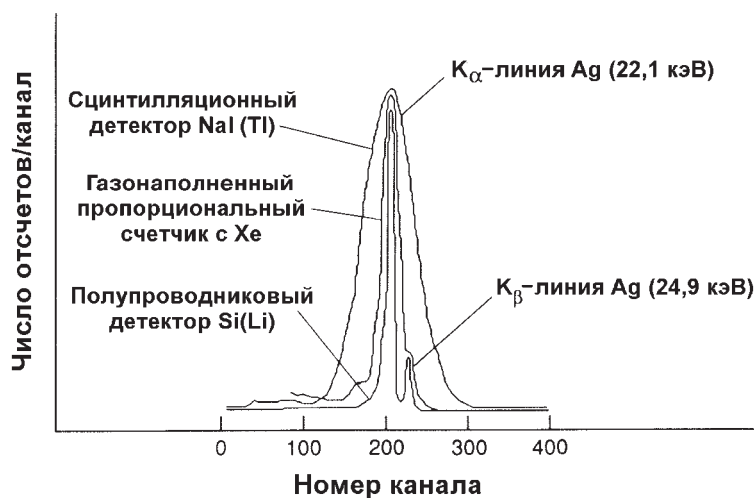


Рис. 3.9. Разрешение сцинтилляционного детектора NaI, газового пропорционального счетчика и полупроводникового детектора Si(Li) для первичного рентгеновского излучения серебра (переделано из [14])

3.3.4 Эффективность детектора

Основным определением абсолютной (полной) эффективности регистрации фотонов является

$$\epsilon_{\text{полн}} = \frac{\text{полное число зарегистрированных фотонов в пике полного поглощения}}{\text{полное число зарегистрированных фотонов, испущенных источником}}. \quad (3.6)$$

Для продолжения обсуждения мы будем рассматривать только события с полным поглощением энергии и, таким образом, только эффективность регистрации полной энергии. Полная эффективность может быть выражена в виде произведения четырех коэффициентов:

$$\epsilon_{\text{полн}} = \epsilon_{\text{геом}} \epsilon_{\text{погл}} \epsilon_{\text{обр}} \epsilon_{\text{собств}}. \quad (3.7)$$

Геометрическая эффективность $\epsilon_{\text{геом}}$ представляет собой долю испущенных фотонов, которые попадают в детектор. Для точечного источника она определяется выражением

$$\epsilon_{\text{геом}} = A / (4\pi r^2), \quad (3.8)$$

где A — площадь поперечного сечения детектора;

r — расстояние между источником и детектором (описывается в разделе 5.5).

Этот коэффициент по существу не зависит от энергии фотона. Он отражает хорошо известный закон обратных квадратов для скорости счета, как функции расстояния между источником и детектором.

Эффективность поглощения $\epsilon_{\text{погл}}$ учитывает влияние промежуточных материалов (таких как корпус детектора, специальные поглотители и т.п.), которые поглощают часть входящего излучения перед тем, как оно провзаимодействует с детектором. Этот коэффициент особенно важен (он должен быть $\ll 1$) для низко-

энергетических фотонов, для которых эффекты поглощения наиболее выражены. Математическая форма этого коэффициента имеет вид:

$$\epsilon_{\text{полн}} = \exp\left[-\sum \mu_i(E_\gamma) \rho_i x_i\right], \quad (3.9)$$

где μ_i — массовый коэффициент поглощения i -го промежуточного материала;

ρ_i — плотность i -го промежуточного материала;

x_i — толщина i -го промежуточного материала.

Суммирование проводится по всем типам промежуточных материалов.

Эффективность образца $\epsilon_{\text{обр}}$ представляет собой обратную величину поправки на самопоглощение в образце ($\text{CF}_{\text{ослабл}}$), рассматриваемой в главе 6. Эта величина представляет собой долю испущенных гамма-квантов, которые реально покидают материал образца. Например, в пластине толщиной x и с коэффициентом пропускания T , равным $\exp[-(\mu x)_s]$, эффективность образца равна

$$\epsilon_{\text{обр}} = \frac{1 - \exp[-(\mu x)_s]}{(\mu x)} = \frac{T - 1}{\ln T}. \quad (3.10)$$

Этот коэффициент зависит от состава каждого образца.

Собственная эффективность $\epsilon_{\text{собств}}$ представляет собой вероятность того, что гамма-квант, который попадает в детектор, взаимодействует и даст импульс в пик полного поглощения. Простейшим образом эту эффективность можно получить из стандартной формулы поглощения:

$$\epsilon_{\text{собств}} = 1 - \exp(-\mu x), \quad (3.11)$$

где μ — фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления;

ρ — плотность чувствительного материала детектора;

x — толщина чувствительного материала детектора.

Это простое выражение дает заниженную оценку собственной эффективности, поскольку пик полного поглощения может также содержать события от многократного комптоновского рассеяния. В общем, $\epsilon_{\text{собств}}$ является также слабой функцией γ , вследствие регистрации гамма-квантов, падающих не по оси. Эмпирически, $\epsilon_{\text{собств}}$ может быть выражена степенным законом следующей формы:

$$\epsilon_{\text{собств}} \propto a E_\gamma^{-b}. \quad (3.12)$$

Еще одним важным термином является *относительная эффективность*, которая имеет два значения:

- *Относительно NaI*: обычно на практике указывают эффективность германиевого детектора для энергии 1332 кэВ (^{60}Co) в процентах от эффективности детектора NaI размером 7,6×7,6 см на расстоянии между источником и детектором 25 см и при той же энергии гамма-излучения:

$$\epsilon_{\text{отн NaI}}(\text{Ge}) = 100 \epsilon_{\text{полн}}(\text{Ge}, 1332 \text{ кэВ}) / \epsilon_{\text{полн}}(\text{NaI}, 1332 \text{ кэВ}). \quad (3.13)$$

Теоретическое значение $\epsilon_{\text{полн}}(\text{NaI}, 1332 \text{ кэВ})$ на расстоянии 25 см равно $1,2 \times 10^{-3}$. Таким образом, например, германиевый детектор с относительной эффективностью 30 % имеет теоретическую полную эффективность для энергии 1332 кэВ на расстоянии 25 см, равную $3,6 \times 10^{-4}$.

- *Кривая относительной эффективности*: (также называется градуировкой по собственной эффективности). Это составная кривая зависимости отно-

шения зарегистрированной скорости счета к испущенной скорости счета от энергии представляется выражением:

$$\epsilon_{\text{отн}} = N \epsilon_{\text{погл}} \epsilon_{\text{обр}} \epsilon_{\text{собств}}. \quad (3.14)$$

Коэффициент N подчеркивает то, что в большинстве аналитических ситуаций абсолютное значение полной эффективности является не таким важным, как относительные значения при различных энергиях. Эта эффективность также включает энергетически зависимый эффект самопоглощения в образце $\epsilon_{\text{обр}}$ (см. главу 6 и уравнение (3.10)) и, таким образом, должна определяться для каждого измеряемого образца.

Полная относительная эффективность может быть вычислена полутеоретически или (что более благоразумно) измерена с использованием нескольких различных гамма-квантов от одного изотопа. Различные аспекты относительной эффективности и вопросы ее измерения более подробно рассматриваются в главе 8, а пример кривой относительной эффективности, включающий самопоглощение в образце, показан на рис. 8.14.

Обычно эффективности детектора измеряются и описываются, как полные эффективности фотопика для регистрации гамма-квантов от неослабляющих точечных источников. Следовательно, их зависимость от энергии определяется, в основном, $\epsilon_{\text{собств}}$ при высоких энергиях и $\epsilon_{\text{погл}}$ — при более низких энергиях; геометрический коэффициент $\epsilon_{\text{геом}}$ определяет предельную амплитуду эффективности. Собственная эффективность и эффективность поглощения сильно зависят от энергии падающего фотона, как показано на рис. 3.10 и 3.11 [15], где представлена типичная энергетическая зависимость эффективности детектора для планарного и коаксиального Ge(Li) детекторов, соответственно.

Эти рисунки приводят к трем основным выводам:

1. Сильная энергетическая зависимость полной эффективности регистрации приводит к тому, что зарегистрированные интенсивности фотонов значительно отличаются от интенсивностей испущенных фотонов. Для выполнения количественного анализа, включающего сравнение интенсивностей различных гамма-квантов, необходимо учитывать эту поправку энергетически зависимой эффективности.

2. При выполнении анализа низкоэнергетических гамма-квантов следует использовать тонкие объемы детектора. Это позволяет оптимизировать эффективность регистрации в области низких энергий и снизить эффективность регистрации нежелательных высокоэнергетических гамма-квантов.

3. При выполнении анализа гамма-квантов с высокими энергиями для обеспечения достаточной эффективности регистрации более проникающего излучения должны использоваться толстые детекторы. Кроме того, выбранные поглотители на входе детектора могут уменьшить вклад в скорость счета от нежелательного низкоэнергетического излучения.

Хотя на рис. 3.10 и 3.11 эти особенности проиллюстрированы для полупроводниковых детекторов, эти заключения применимы также и к детекторам NaI. Например, измерения обогащения урана по линии 186 кэВ обычно выполняются со сцинтилляционным кристаллом размером 5×1,27 см, в то время как анализ плутония по линии 414 кэВ обычно делается с увеличенными по оси сцинтилляторами размером 5×5 см.

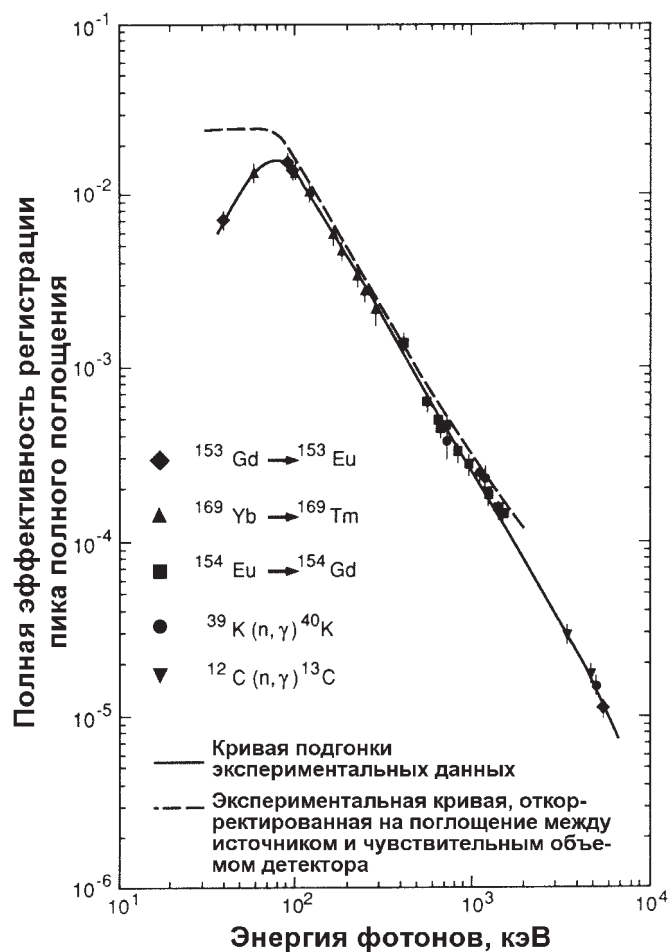


Рис. 3.10. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 54 мм от поверхности планарного детектора Ge(Li) диаметром 33 мм и толщиной 6,8 мм (переделано из [15]). Данные измерений получены от процессов спонтанного и вынужденного гамма-распада. Снижение эффективности в области низких энергий иллюстрирует возросшее поглощение падающего низкоэнергетического излучения корпусом детектора и поглотителями ($\epsilon_{\text{погл}}$); снижение эффективности в области высоких энергий иллюстрирует уменьшение скорости взаимодействий в кристалле детектора для гамма-квантов более высоких энергий ($\epsilon_{\text{сбств}}$)

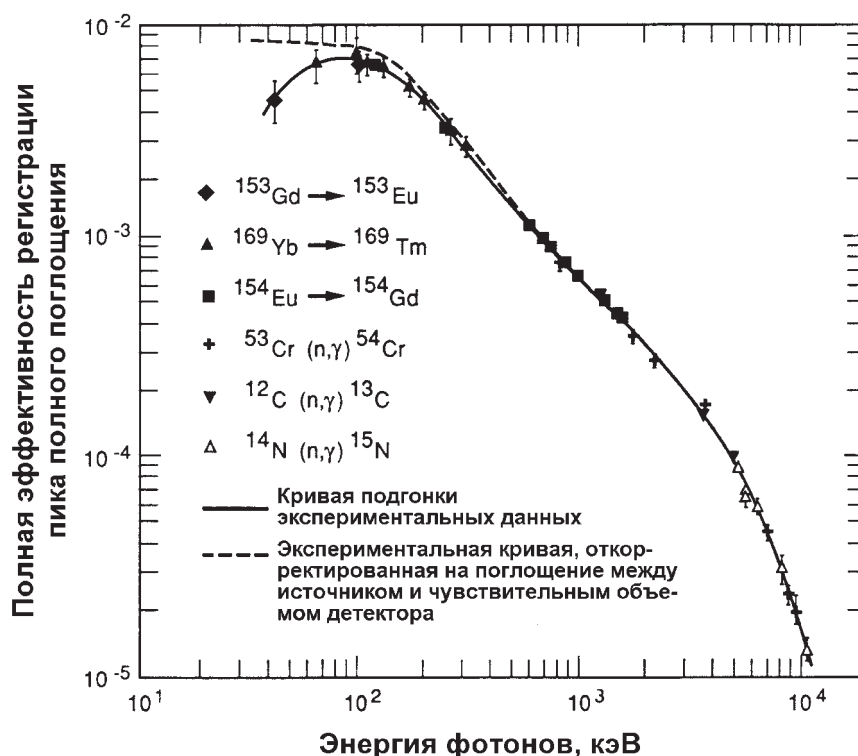


Рис. 3.11. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 83 мм от поверхности истинного коаксиального детектора Ge(Li) объемом 38 см³ (перделано из [15]). Интерпретация аналогична рис. 3.10

3.4 ВЫБОР ДЕТЕКТОРА

НРА имеет различные цели, которые могут диктовать выбор разных детекторов. Обсуждение выбора детекторов с точки зрения энергетического разрешения дано в главе 4. Дополнительным фактором выбора является рассматриваемый с точки зрения практического применения энергетический диапазон гамма-излучения (или рентгеновского излучения). Вообще, основные рассматриваемые энергии фотонов в НРА ядерных материалов находятся в диапазоне от низкой рентгеновской области (85-100 кэВ) до приблизительно 400 кэВ. Исключениями являются плотнометрия по L_{III}-краю в области энергий от 15 до 30 кэВ (см. главу 9), измерения изотопного состава плутония в области от 400 до 1000 кэВ (см. главу 8) и редкие измерения активности дочерних продуктов ²³⁸U в области от 600 до 1000 кэВ. Основные характеристики гамма-излучений ядерных материалов приведены в табл. 1.2. Как было показано выше, толстые (по оси) детекторы являются более эффективными для измерения высоких энергий, а для измерений низкоэнергетических квантов гамма- и рентгеновского излучения лучше подходят тонкие (по оси) детекторы, благодаря их оптимальной эффективности регистрации при низких и средних энергиях и относительной нечувствительности к излу-

чению с более высокой энергией. Другие факторы, такие как стоимость и портативность, могут диктовать использование менее дорогих и более миниатюрных сцинтилляционных детекторов NaI с сопутствующей потерей хорошего энергетического разрешения. В последние годы стали доступны детекторы высокого разрешения с небольшими сосудами Дьюара с жидким азотом, что позволяет уменьшить размеры детектирующей системы до размеров детекторов NaI. Однако стоимостные соображения все еще заставляют отдавать предпочтение сцинтилляционному детектору перед детектором высокого разрешения.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
2. F. Adams and R. Dams, *Applied Gamma-Ray Spectrometry* (Pergamon Press, New York, 1975).
3. C.E. Moss, E.J. Dowdy, and M.C. Lucas, "Bismuth Germanate Scintillators: Applications in Nuclear Safeguards and Health Physics", *Nuclear Instruments and Methods* A242, 480 (1986).
4. P.E. Koehler, S.A. Wender, and J.S. Kapustinsky, "Improvements in the Energy Resolution and High-Count-Rate Performance of Bismuth Germanate", *Nuclear Instruments and Methods* A242, 369 (1986).
5. J.B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting* (Pergamon Press, Oxford, 1964).
6. H.W. Cramer, C. Chasman, and K.W. Jones, "Effects Produced by Fast Neutron Bombardment of Ge(Li) Gamma-Ray Detectors", *Nuclear Instruments and Methods* 62, 173 (1968).
7. P.H. Stelson, J.K. Dickens, S. Raman, and R.C. Trammell, "Deterioration of Large Ge(Li) Diodes Caused by Fast Neutrons," *Nuclear Instruments and Methods* 98, 481 (1972).
8. R. Baader, W. Patzner, and H. Wohlfarth, "Regeneration of Neutron-Damaged Ge(Li) Detectors Inside the Cryostat," *Nuclear Instruments and Methods* 117, 609 (1974).
9. R.H. Pehl, "Germanium Gamma-Ray Detectors," *Physics Today* 30, 50 (Nov., 1977).
10. J.M. Marler and V.L. Gelezunas, "Operational Characteristics of High-Purity Germanium Photon Spectrometers Cooled by a Closed-Cycle Cryogenic Refrigerator," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS 20, 522 (1973).
11. E. Sakai, "Present Status of Room-Temperature Semiconductor Detectors," *Nuclear Instruments and Methods* 196, 121 (1982).
12. P. Siffert et al., "Cadmium Telluride Nuclear Radiation Detectors," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS 22, 211 (1975).
13. U. Fano, "On the Theory of Ionization Yield of Radiation in Different Substances," *Physics Review* 70, 44 (1946); "Ionization Yield of Radiation II: The Fluctuations in the Number of Ions," *Physics Review* 72, 26 (1947).

14. A.F. Muggleton, "Semiconductor X-Ray Spectrometers," *Nuclear Instruments and Methods* 101, 113 (1972).
15. H. Seyfarth, A.M. Hassan, B. Hrastnik, P. Goettel, and W. Delang, "Efficiency Determination for some Standard Type Ge(Li) Detectors for Gamma Rays in the Energy Range from 0,04 to 11 MeV," *Nuclear Instruments and Methods* 105, 301 (1972).

Глава 4

Аппаратура для гамма-спектрометрии

Джеск Л. Паркер
(Переводчик В. В. Свиридова)

4.1 ВВЕДЕНИЕ

Данная глава описывает назначение и работу отдельных составляющих гамма-спектрометрической системы. В главе 3 было показано, что амплитуда выходного импульса для большинства детекторов гамма-излучения пропорциональна энергии, которая потеряна в них гамма-излучением. Амплитудно-импульсный спектр для таких детекторов содержит серии пиков полного поглощения, расположенных на непрерывном комптоновском распределении. Хотя спектр может быть достаточно сложным (например, см. рис. 1.10 в главе 1) и поэтому трудным для анализа, он содержит много полезной информации о значениях энергии и относительной интенсивности гамма-квантов, испущенных источником. Информация, которая важна для количественного неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов, содержится в пиках полного поглощения. Назначением электронных устройств, которые следуют за детектором, является обеспечение точного представления амплитудно-импульсного спектра и выделение из этого спектра требуемой информации об энергии и интенсивности гамма-излучения.

В этой главе приводится краткое описание различной аппаратуры, используемой в гамма-спектрометрии ядерных материалов, описываются функции каждой составляющей аппаратуры и дается информация о наиболее важных аспектах ее работы. Более подробное описание работы приборов читатель может найти в инструкции по эксплуатации, которая поставляется с каждым прибором. Вследствие быстрой модернизации современного гамма-спектрометрического оборудования, наилучшим источником свежей информации об измерительных приборах являются их производители и пользователи. Хотя изготовители приборов — наилучшие источники информации об электронных возможностях своей аппаратуры, пользователи гамма-спектрометров для НРА обычно являются наилучшим источником информации по эффективным методикам анализа и выбору аппаратуры для конкретного применения. Книги и статьи по гамма-спектрометрической аппаратуре пользуются большим спросом и обычно исчезают из продажи вскоре после опубликования.

Гамма-спектрометрические системы могут быть разделены на два класса в соответствии с типом используемого анализатора: одноканального анализатора (ОКА) или многоканального анализатора (МКА). На рис. 4.1 и 4.2 показаны блок-схемы систем этих двух классов. Обе системы начинаются с детектора, в котором взаимодействие гамма-излучения с веществом приводит к образованию слабого электрического сигнала, пропорционального потерянной энергии. Раздел 4.2 посвящен процессу выбора соответствующего детектора для различных применений НРА. В разделах с 4.3 по 4.8 описываются основные составляющие



Рис. 4.1. Блок-схема гамма-спектрометрической системы, основанной на одноканальных анализаторах, для простых случаев НРА

гамма-спектрометрических систем; рассмотрение каждой составной части системы происходит в порядке, в котором электрический сигнал проходит через измерительную систему. В разделе 4.9 представлена вспомогательная электронная аппаратура. Чтобы скомпоновать работоспособную систему НРА, обычно необходимо добавить составляющие, отличные от тех, которые показаны на рис. 4.1 или рис. 4.2. В последующих главах, в которых представлены конкретные методики анализа и аппаратура, описаны защитные экраны, коллиматоры, держатели и манипуляторы образца, сканирующие механизмы и заслонки источника.

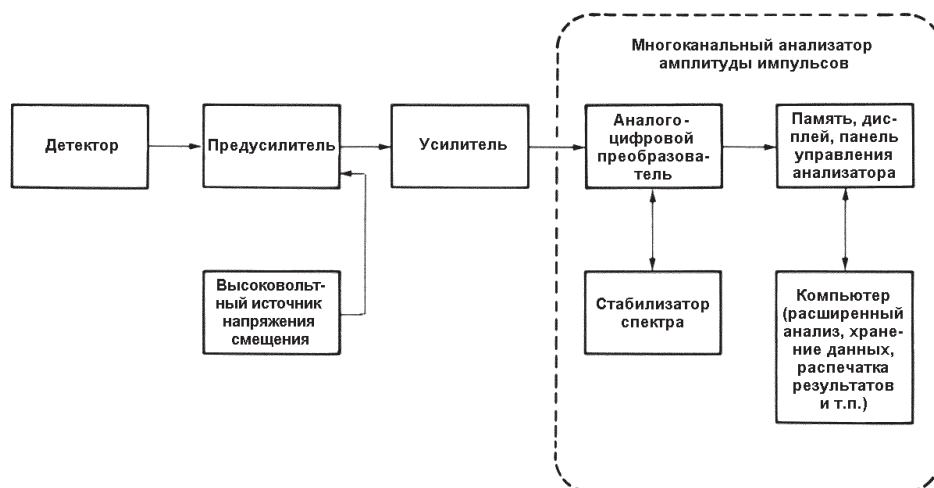


Рис. 4.2. Блок-схема гамма-спектрометрической системы на базе многоканального анализатора для сложных случаев НРА

4.2 ВЫБОР ДЕТЕКТОРА

В этом разделе даны некоторые основные рекомендации по осуществлению трудной операции выбора подходящего детектора для конкретного применения НРА. Для детектора существует несметное количество вариаций размеров, формы, конфигурации внешнего оформления, эксплуатационных характеристик и цены. Выбор детектора должен проводиться с учетом технических требований, которые определяются условиями применения, а также не технических, но часто решающих требований, определяемых бюджетными ограничениями.

Первым и самым важным параметром, который должен быть рассмотрен, является разрешение детектора. Детектор с высоким разрешением обычно дает более точные результаты анализа, чем детектор с низким разрешением. Разрешение германиевого детектора, как правило, находится в диапазоне от 0,5 до 2,0 кэВ для энергий, представляющих интерес для НРА, в то время как разрешение детекторов NaI находится в диапазоне от 20 до 60 кэВ. Легче точно определить площадь пика полного поглощения в сложном спектре, когда пики не перекрываются, а вероятность перекрытия меньше для более узких пиков. Непрерывный фон под пиком полного поглощения легче вычесть из спектра с высоким разрешением, поскольку фон в этом случае является меньшей частью от общей интенсивности в области пика. Площади пиков полного поглощения также легче вычислить в спектрах с высоким разрешением, поскольку уменьшается интерференция от комптоновского рассеяния на малые углы. Гамма-кванты, которые подверглись рассеянию на малые углы, теряют лишь небольшое количество энергии. Если эти рассеянные гамма-кванты все еще попадают в область пика полного поглощения, вычисленная площадь пика полного поглощения, вероятно, будет неправильной. Эту проблему можно минимизировать, используя детектор высокого разрешения, который дает узкие пики полного поглощения.

Сложность спектра оказывает влияние на выбор детектора; чем сложнее анализируемый спектр, тем более желательным становится высокое разрешение. Плутоний имеет намного более сложный спектр, чем уран, поэтому для анализа плутония значительно чаще используются германиевые или кремниевые детекторы, чем для анализа урана.

Вторым параметром, который следует учитывать при выборе детектора, является его эффективность, определяющая ожидаемую скорость счета, время измерения, необходимое для достижения заданной точности, и чувствительность, которая может быть достигнута. Стоимость конкретного типа детектора тем выше, чем выше его эффективность, но заданную эффективность в детекторе NaI низкого разрешения дешевле получить, чем в германиевом детекторе высокого разрешения. Существуют весоные причины использования менее дорогого детектора с меньшим разрешением, если он может обеспечить удовлетворительные результаты анализа.

Должны учитываться и другие требования, такие как размеры детектора, требования к его охлаждению и портативности, которые иногда бывают доминирующими. Выбор подходящего детектора часто затруднен и может привести к необходимости болезненного компромисса между противоречивыми требованиями. После того, как выбор сделан, следует уделить особое внимание подготовке для предполагаемого продавца полного перечня необходимых параметров, чтобы гарантировать получение нужного детектора.

4.3 ВЫСОКОВОЛЬТНЫЕ ИСТОЧНИКИ НАПРЯЖЕНИЯ СМЕЩЕНИЯ

Обычно все используемые детекторы гамма-излучения требуют высоковольтных источников напряжения смещения для создания электрического поля, в котором собирается заряд, образованный при взаимодействии гамма-излучения в детекторе. Источник напряжения смещения не является составляющей системы, через которую проходит сигнал, но необходим для работы детектора. Он обычно является самой надежной составляющей в спектрометрической системе и самой легкой в реализации.

Германиевые и кремниевые диодные детекторы требуют очень низких значений токов, обычно $< 10^{-9}$ А. Требуемое напряжение изменяется в диапазоне от сотен вольт для небольших кремниевых детекторов до нескольких тысяч вольт для больших коаксиальных германиевых детекторов. Источник напряжения смещения для германиевых и кремниевых детекторов обычно обеспечивает до 5 кВ и 100 мкА. Требования к напряжению и низкочастотному фильтрованию не жесткие, поскольку в детекторе отсутствует усиление заряда. Обычно напряжение можно непрерывно изменять в диапазоне от 0 до 5 кВ. Раньше при включении детектора или замене источника напряжения смещения необходимо было изменять напряжение очень медленно (< 100 В/с), поскольку полевой транзистор, используемый в первом каскаде предусилителя, легко повреждался при внезапном скачке напряжения. Однако сейчас защита, создаваемая фильтром, включенным во все высококачественные предусилители, настолько хороша, что полевой транзистор редко выходит из строя по этой причине. Иногда для создания напряжения смещения для германиевых и кремниевых детекторов используются портативные, не создающие шумов батареи. В качестве "источника питания" в течение нескольких часов может быть использован заряженный конденсатор в высоковольтном фильтре, помещенном в предусилитель, который может обеспечивать работоспособность детектора в течение одного или двух часов.

Требования к напряжению смещения для фотоумножителей (ФЭУ), используемых в сцинтилляционных детекторах, являются более строгими, чем для твердотельных диодных детекторов. Требуемое напряжение обычно составляет несколько тысяч вольт, а требуемый ток обычно находится в диапазоне от 1 до 10 мА. Поскольку коэффициент усиления фотоумножителя сильно зависит от приложенного напряжения, стабильность и фильтрация напряжения должны быть очень высокими. Ток питания, равный 100 мкА, который используется для германиевых детекторов, обычно не подходит для фотоумножителя.

Напряжение смещения обеспечивается различными способами. Наиболее часто используемыми являются модули в стандарте NIM (Nuclear Instrumentation Module), которые вставляют в каркас или "крейт" (NIM-"крейт"), питающий модуль необходимым напряжением постоянного тока. NIM-модули отвечают международным стандартам по размерам, напряжениям, электрической проводке и соединениям и широко используются в аппаратуре НРА. Другие источники напряжения смещения совместимы с NIM-"крейтами", но получают энергию от обычного источника переменного тока. Источники напряжения смещения с высокими значениями тока, используемые для питания цепей фотоумножителей, часто устанавливают в стандартных каркасах шириной 45,7 см.

Для генерации требуемого напряжения в NIM-источниках напряжения смещения часто используют электронный ключевой преобразователь. Он создает высокочастотную помеху, которая может проникнуть в предусилитель и вызвать значительное ухудшение качества спектра. Эта проблема может быть решена с помощью тщательного заземления и использования экранированного кабеля. Помеха, генерируемая источником питания, может также вызвать ложные сигналы в цепи режекции наложений импульсов детекторов. Источник напряжения смещения фотоумножителя, даже не NIM-типа, может быть источником высокочастотной помехи. Обычно самым полезным помощником для определения наличия мешающей электрической помехи от какого-либо источника является осциллограф.

Заметим, что источники напряжения смещения детектора могут быть смертельно опасными для человека. Необходимо быть внимательным, особенно при работе с источниками с высокими значениями тока, которые подают напряжение на ФЭУ. Сотрудникам, которым обычно приходится работать с низким напряжением, низкой мощностью и транзисторными цепями, необходимо осознавать опасность, связанную с использованием мощных источников питания.

4.4 ПРЕДУСИЛИТЕЛЬ

Для германиевых и кремниевых детекторов требуются предусилители, которые также нужны для улучшения характеристик сцинтилляционных детекторов NaI. Выходной сигнал детектора обычно является коротким по времени импульсом тока с низкой амплитудой; обычный импульс может иметь амплитуду, равную 10 мВ и длительность – 200 нс. Предусилитель преобразует этот импульс тока в импульс напряжения, амплитуда которого пропорциональна энергии, потерянной гамма-излучением в процессе взаимодействия с детектором. Для того чтобы получить максимальное отношение сигнал/шум и сохранить информацию относительно энергии гамма-излучения, предусилитель следует помещать как можно ближе к детектору. Близость предусилителя минимизирует емкость на входе предусилителя, уменьшая этим уровень выходного шума. Предусилитель также служит в качестве устройства, которое согласует высокий импеданс детектора и низкий импеданс коаксиального кабеля, который передает основному усилителю усиленный сигнал детектора. Усилитель и предусилитель могут быть разнесены друг от друга на расстояние в несколько сотен метров.

Так как детектор и предусилитель должны располагаться близко друг к другу, предусилитель часто находится в неудобном месте, окруженном защитой, и недоступен в процессе использования. Большинство предусилителей не имеют внешнего управления; регулировка коэффициента усиления и формы импульса производится основным усилителем, который обычно находится в более удобном месте, близко к другим электронным устройствам системы. Из-за отсутствия внешнего управления, объем предусилителя составляет лишь несколько сотен кубических сантиметров. Когда предусилитель должен быть расположен внутри защиты детектора, его небольшой объем является достоинством. Предусилитель обычно помещают в небольшую прямоугольную коробку. Для одиночных детекторов NaI предусилитель часто встраивают в цилиндрический корпус, который содержит ФЭУ и панель для его включения. В последние годы предусилители



Рис. 4.3. Детекторы, имеющие предусилители кольцевой, цилиндрической и прямоугольной формы

для германиевых и кремниевых детекторов упаковывали в кольцевую конфигурацию за крышкой криостата детектора. Такая конфигурация исключает использование неудобных коробок, которые выступают за криостат, и облегчает экранирование детекторов. На рис. 4.3 показаны основные конфигурации описываемых здесь предусилителей.

Хотя обычно предусилители почти не управляются, они имеют несколько разъемов. Обычно это один или два выходных разъема и один тестовый вход, через который могут подаваться импульсы от электронного генератора импульсов для моделирования гамма-излучения с целью проверки работы предусилителя и других устройств обработки сигнала системы. Смоделированный пик гамма-излучения может дать хорошую оценку электронных потерь в системе (см. главу 5). Часто через вмонтированный в блок предусилителя разъем к детектору прикладывают напряжение смещения. Обычно для обеспечения питания предусилителя используется многостырьковый разъем; питание часто поступает от основного усилителя. Некоторые предусилители для детектора NaI получают необходимое низкое напряжение от источника напряжения смещения детектора.

Выходной импульс предусилителя имеет форму быстро растущей положительной ступеньки, за которой следует медленный спад. Время нарастания импульса равно нескольким десяткам микросекунды, а время спада изменяется от 50 до 100 мкс. Амплитуда быстро растущей ступеньки пропорциональна заряду, переданному на вход предусилителя, и поэтому пропорциональна энергии, потерянной гамма-квантом в детекторе. Длительное время спада приводит к тому, что второй импульс часто поступает до того, как спадет хвост предыдущего импульса. Этот эффект можно увидеть на рис. 4.4, на котором показаны выходные импульсы предусилителя от большого коаксиального германиевого детектора. Амплитуда быстро растущей ступеньки содержит важную информацию об энергии взаимодействия гамма-излучения. Она искажается только при чрезмерно высокой скорости потери энергии в детекторе, когда средний уровень постоянного тока предусилителя возрастает до такого уровня, что некоторые последующие быстро растущие ступеньки выходят за линейный диапазон усилителя.

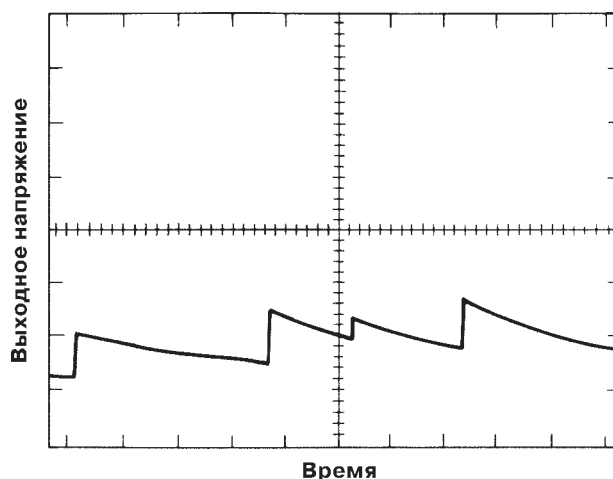


Рис. 4.4. Выходные импульсы типового предусилителя германиевого детектора. Важная энергетическая информация содержится в амплитуде быстро растущей ступеньки напряжения (0,5 мкс). Наложение импульсов на длинных хвостах (50 мкс) не искажает энергетическую информацию

Большинство производителей предлагают несколько моделей предусилителей, которые оптимизированы для различных типов детекторов. Такие параметры, как уровень шума, чувствительность, время нарастания импульса и пропускная способность (максимальная загрузка) могут отличаться для различных моделей. Максимальная загрузка обычно определяется как максимальный заряд в единицу времени (Кл/с), переданный от детектора на вход предусилителя. Для германиевых и кремниевых детекторов часто указывается эквивалентная энергия в единицу времени (МэВ/с). Если это число поделить на среднюю энергию гамма-излучения, получается максимальная скорость счета (или загрузка), с которой может справиться предусилитель.

Обычно можно выбрать всего несколько вариантов предусилителя для детектора NaI. Однако для германиевых детекторов существует несколько значительно отличающихся вариантов, выбор зависит от детектора и задачи измерения. Поскольку германиевые детекторы всегда продаются вместе с интегральным предусилителем, выбор должен быть сделан в момент покупки детектора.

В первом усилительном каскаде предусилителя германиевого детектора всегда применяется полевой транзистор из-за низкого шума. Когда появились первые германиевые детекторы, полевой транзистор работал при комнатной температуре, характерной для всего предусилителя. Однако, если полевой транзистор охлаждается вместе с кристаллом детектора, можно достичь лучшего разрешения. Существенное улучшение разрешения детектора достигается при энергиях ниже 200 кэВ. Сейчас имеются предусилители с полевыми транзисторами, работающими как при комнатной температуре, так и при охлаждении. Резистор обратной связи предусилителя и другие компоненты схемы могут быть расположены внутри криостата вместе с полевым транзистором и кристаллом детектора. Расплата за улучшение эксплуатационных характеристик состоит в том, что если полевой транзистор вышел из строя и должен быть заменен, необходимо вскрыть криостат, что обычно делается только производителем и обходится дорого для пользователя. Тем не менее, предусилители, которые используют охлаждаемые полевые транзисторы, сейчас настолько надежны и так хорошо защищены от высоковольтных помех, что транзисторы чрезвычайно редко выходят из строя. В результате, этот тип предусилителя сейчас является наиболее распространенным.

Большинство производителей предлагают также высоко- и низкоскоростные варианты предусилителей. Эти варианты необходимы, поскольку нельзя оптимизировать разрешение детектора для высокой и низкой скоростей счета одновременно. Большинство детекторно-предусилительных блоков оптимизируются для работы при низкой скорости счета (< 10000 имп./с), поскольку это обеспечивает наилучшее разрешение. Если предполагается, что скорости счета будут превышать 50000 имп./с, от производителей надо потребовать оптимизации детектора для высоких скоростей счета.

Кристаллы германиевого детектора выполняются в планарной и коаксиальной геометриях; обозначение указывает на форму кристалла и расположение контактов, собирающих заряд. Небольшие планарные детекторы ($< 10 \text{ см}^3$) благодаря своей очень низкой электрической емкости, имеют шум ниже и разрешение лучше, чем большие детекторы. Чтобы получить наилучшее разрешение от небольших планарных детекторов, из предусилителя иногда удаляют резистор обратной связи. Однако без него время спада выходного импульса очень велико, и уровень выходного напряжения растет с каждым последующим импульсом. На рис. 4.5 показан сигнал на выходе предусилителя, который не имеет резистора обратной связи. При достижении максимально возможного уровня постоянного тока, предусилитель должен быть восстановлен с использованием импульсно-оптического или транзисторного методов. Однако импульс переустановки может насытить основной усилитель на несколько сотен микросекунд, и в этом случае спектрометр должен быть отключен, чтобы не анализировать неправильные импульсы. Из-за этих сложностей импульсно-оптические предусилители выбираются только тогда, когда абсолютно необходимо небольшое улучшение в разрешении. Импульсно-оптические предусилители имеют низкую пропускную способность, чаще только на уровне 5000 МэВ/с и не больше уровня 50000 МэВ/с,

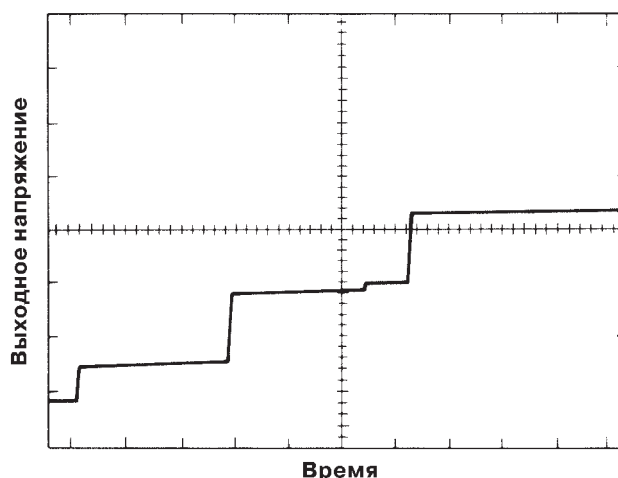


Рис. 4.5. Выходные импульсы от импульсно-оптического предусилителя германиевого детектора. Из-за отсутствия резистора обратной связи уровень шума ниже, чем у предусилителей с резистором, и выходной уровень постоянного тока растет ступеньками и должен переустанавливаться при достижении максимально возможного напряжения

который обычно обеспечивается другими типами предусилителей. Для гамма-излучения низких энергий (от < 100 до 200 кэВ) ограничение максимальной загрузки обычно не является проблемой.

В последние годы для работы при высоких скоростях счета были разработаны предусилители, которые используют модификации импульсно-оптического метода. В некоторых случаях оптическая связь заменяется транзисторной схемой. В других случаях восстановление осуществляется оптическими средствами, но предусилитель восстанавливается почти после каждого события, снижая тем самым время насыщения усилителя.

4.5 УСИЛИТЕЛЬ

После предусилителя импульсы от гамма-излучения усиливаются и формируются так, чтобы удовлетворить требованиям анализатора амплитуд импульсов, который располагается за основным усилителем. Большинство спектрометрических усилителей являются модулями NIM одинарной или двойной ширины. Портативные многоканальные анализаторы часто имеют встроенный усилитель, который может подойти для намеченных целей.

Основной усилитель получает импульс низкого напряжения от предусилителя и усиливает его в линейном диапазоне напряжений, который для большинства усилителей находится в диапазоне от 0 до 10 В. В линейном диапазоне все входные импульсы усиливаются с одним и тем же коэффициентом. Усилитель не лишен для выходных импульсов, амплитуда которых превышает 10 В. Максимальное выходное напряжение или напряжение насыщения большинства усилителей приблизительно равно 12 В. Коэффициент усиления может быть установлен в широком диапазоне, как правило, от 10 до 5000 . Усилитель обычно имеет два типа

управления усилением (грубое и тонкое), чтобы обеспечить непрерывную регулировку коэффициента усиления.

Функция формирования основного усилителя жизненно важна для получения высококачественных спектров. Усиленные импульсы преобразуются по форме, чтобы оптимизировать отношение сигнал/шум и удовлетворить требованиям амплитудно-импульсного анализатора. Поскольку одноканальные и многоканальные анализаторы измеряют амплитуду входного импульса по отношению к внутреннему эталонному напряжению, выход усилителя между импульсами гамма-излучения должен быстро возвращаться к стабильному уровню напряжения, обычно равному нулю. Стабильность базового уровня напряжения чрезвычайно важна, поскольку любое его отклонение искажает измерение амплитуды импульса гамма-излучения и вносит вклад в уширение пика полного поглощения.

Узкая форма импульса позволяет быстро вернуться к базовому уровню. Однако импульс должен быть достаточно широким, чтобы было достаточно времени для сбора всего заряда, освобожденного в результате взаимодействия гамма-излучения в детекторе. На рис. 4.4 показано, что интервал времени от 0,25 до 0,5 мкс может быть достаточен для полного сбора заряда. Форма импульса должна также обеспечивать такое отношение сигнал/шум, которое минимизирует отклонение амплитуды выходного импульса для данного количества заряда, поданного на вход предусилителя. К сожалению, ширина импульса, которая обеспечивает оптимальное отношение сигнал/шум, обычно больше требуемой для быстрого возврата на базовый уровень. При низкой скорости счета импульс может быть широким, поскольку мала вероятность того, что второй импульс поступит до того, как выход усилителя возвратится к базовому уровню. Однако, когда скорость счета увеличивается, возрастает вероятность того, что импульсы придут на возмущенный базовый уровень, и спектр исказится, несмотря на оптимальное отношение сигнал/шум. Более узкая ширина импульса, чем это требуется для оптимизации отношения сигнал/шум, дает обычно наилучшее разрешение при высоких скоростях счета; однако разрешение не так хорошо, как может быть получено при низких скоростях счета.

В усилителях, используемых с германиевыми и кремниевыми детекторами высокого разрешения, для получения требуемой формы импульса применяют операции электронного дифференцирования, интегрирования и активной фильтрации. Дифференцирование удаляет низкие частоты из сигнала, а интегрирование удаляет высокие частоты. Дифференцирование и интегрирование характеризуются постоянной времени, обычно составляющей единицы микросекунд, которая определяет степень ослабления сигнала как функцию частоты. Чем больше постоянная времени, тем сильнее ослабление низких частот дифференцированием и ослабление высоких частот интегрированием. Когда используются и дифференцирование, и интегрирование, низко- и высокочастотные составляющие сильно подавляются, и усиливается относительно узкая полоса средних частот. Большинство спектрометрических усилителей действуют наилучшим образом, когда постоянные времени дифференцирования и интегрирования равны. Поэтому выбирают постоянные времени в диапазоне от 0,25 до 12 мкс. Когда две постоянные времени равны, выходной импульс усилителя почти симметричен (см. рис. 4.6). Полная ширина импульса составляет приблизительно шесть постоянных времени. При низкой скорости счета большие коаксиальные германиевые детекторы обычно имеют оптимальное разрешение при использовании постоянных времени

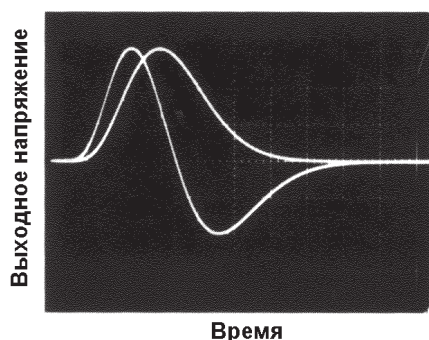


Рис. 4.6. Однополярный и биполярный выходные сигналы типового спектрометрического усилителя с дифференциальным и интегральным формированием импульса

от 3 до 4 мкс. Небольшие планарные германиевые детекторы имеют наилучшее разрешение при постоянных времени от 6 до 8 мкс, а небольшие планарные кремниевые детекторы действуют лучше всего при значениях постоянных времени от 8 до 12 мкс. Проблема наложения импульсов становится более серьезной, когда для получения лучшего разрешения для небольших детекторов используются большие постоянные времени. Постоянная времени, используемая в конкретной ситуации, выбирается в зависимости от типа детектора, ожидаемой скорости счета и от того, какое требование является наиболее важным: к разрешению или к скорости счета.

Германиевые и кремниевые детекторы высокого разрешения являются относительно медленными и требуют больших постоянных времени, чем другие типы детекторов. Сцинтилляционные детекторы NaI, которые имеют разрешение в 10–20 раз хуже чем разрешение германиевых детекторов, работают хорошо при постоянных времени от 0,25 до 1,0 мкс. Органические сцинтилляционные детекторы, которые практически не имеют энергетического разрешения, могут работать только при постоянных времени 0,01 мкс. Когда требования к энергетическому разрешению не существенны, но имеется высокая загрузка, такие детекторы очень полезны. К сожалению, в настоящее время нет детектора, который имеет одновременно очень высокое разрешение при очень высокой загрузке.

Спектрометрические усилители обычно дают две различные формы выходного импульса: однополярную и биполярную. Биполярный обычно получается при дифференцировании однополярного импульса. На рис. 4.6 показаны однополярный и биполярный выходные сигналы типового спектрометрического усилителя. Однополярный выходной сигнал имеет наилучшее отношение сигнал/шум и обычно используется для анализа энергии, в то время как биполярный выходной сигнал обеспечивает наилучшую временную информацию и способность к восстановлению от перегрузки. Форма биполярного импульса обычно лучше подходит для задач по отсчету времени, потому, что точка пересечения нуля (точка, где биполярный импульс изменяет знак) определяется достаточно легко и очень стабильна. Точка пересечения соответствует пику однополярного импульса и почти не зависит от амплитуды выходного импульса.

В схемах формирования импульса могут быть использованы линии задержки. Формирование с использованием линий задержки может давать однополярные или биполярные сигналы в зависимости от того, используются одна или две линии задержки. Усилители с линией задержки экономичны и обладают характеристиками, отвечающими всем требованиям при использовании детекторов низ-

кого разрешения; они редко используются с германиевыми и кремниевыми детекторами, поскольку уровень шума этих усилителей выше уровня шума в усилителях, использующих дифференцирование и интегрирование. Форма выходного импульса усилителя с линией задержки заметно отличается от формы импульса усилителей с дифференцированием и интегрированием. На рис. 4.7 показаны однополярный и биполярный выходные сигналы от типового усилителя с линией задержки.

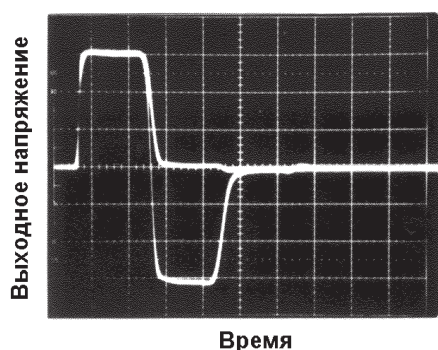


Рис. 4.7. Однополярный и биполярный выходные сигналы усилителя с формированием импульса с помощью линии задержки

4.5.1 Схема "полюс-ноль"

Чтобы обеспечить стабильность базового уровня, большинство усилителей содержит схему "полюс-ноль", которая была введена приблизительно в 1967 г. и являлась, после появления транзисторов, первым главным усовершенствованием в конструкции усилителей. Она существенно улучшает характеристики усилителя при высоких скоростях счета. Термин "полюс-ноль" происходит от терминологии методов преобразования Лапласа, используемых для решения простого дифференциального уравнения, описывающего поведение электрической схемы. Схема очень проста: она состоит из регулируемого резистора, подсоединяемого параллельно входному сопротивлению усилителя. Несмотря на простоту схемы, точность ее регулировки чрезвычайно важна для правильной работы большинства современных усилителей. Когда схема "полюс-ноль" отрегулирована должным образом, выход усилителя возвращается к базовому уровню за минимально возможное время. Когда схема настроена неправильно, получаются следующие результаты. За выходными импульсами следует длительный "недолет" или "перелет", которые искажают выходной базовый уровень и значительно ухудшают характеристики усилителя при высоких скоростях счета. Как следствие, пики полного поглощения расширяются и часто имеют низко- и высокоэнергетические хвосты, в зависимости от того, имеется "недолет" или "перелет". В этом случае точное определение площади пика полного поглощения затруднено. На рис. 4.8 показаны формы импульсов усилителя и пика полного поглощения, которые соответствуют правильной и неправильной регулировкам схемы "полюс-ноль".

Регулировка схемы "полюс-ноль" проста и наилучшим образом производится с помощью осциллографа, который используется для контроля формы выходного импульса усилителя и последующих процедур, приводимых в инструкции к

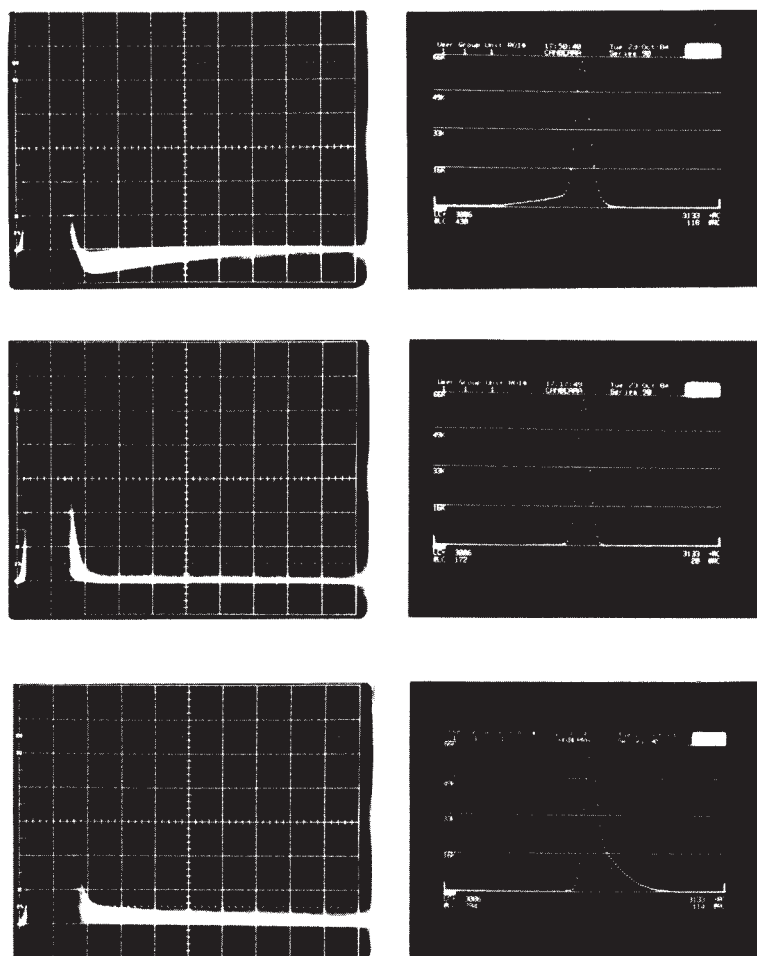


Рис. 4.8. Эффект регулировки схемы "полюс-ноль" на выходе усилителя (слева) и форма пика полного поглощения (справа). Верхние рисунки показывают недокомпенсацию схемы "полюс-ноль", которая вызывает "недолет" усилителя и затягивание "хвоста" на низкоэнергетической стороне пика МКА. Средние рисунки показывают правильную компенсацию схемы "полюс-ноль". Нижние рисунки показывают перекомпенсацию схемы "полюс-ноль", которая вызывает "перелет" усилителя и затягивание "хвоста" на высокоэнергетической стороне пика МКА

усилителю. Регулировку следует проверять всякий раз, когда изменяют постоянную времени усилителя.

4.5.2 Цепь восстановления базового уровня

Цепи восстановления базового уровня (ВБУ) были добавлены в спектрометрические усилители вскоре после введения схем "полюс-ноль". Подобно схеме "полюс-ноль", цепь ВБУ помогает поддерживать стабильный базовый уровень. Схема "полюс-ноль" расположена на входе усилителя и является очень простой;

цепь ВБУ расположена на выходе усилителя и часто довольно сложна. Схема "плюс-ноль" предохраняет от "недолета", обусловленного конечным временем спада выходного импульса предусилителя; цепь ВБУ подавляет дрейф базового уровня, вызванный сложением однополярных выходных импульсов переменного тока. Хотя в некоторых усилителях цепь ВБУ действует автоматически, другие усилители имеют цепь управления для оптимизации рабочих характеристик усилителя для различных скоростей счета и различных типов предусилителей. Оптимальная установка параметров цепи ВБУ часто определяется методом проб и ошибок.

4.5.3 Цепь режекции наложений

Цепи режекции наложений были добавлены во многие наиболее совершенные усилители для улучшения их характеристик при высоких скоростях счета. Режектор наложений использует временной цикл для обнаружения и отсеивания событий перекрытия двух или более импульсов от гамма-излучения. Такие события дают объединенную амплитуду импульса, которая не является характеристикой какого-либо одного гамма-кванта, а только увеличивает высоту уровня фона в полученном спектре. На рис. 4.9 показано, как перекрываются два импульса гамма-излучения, и образуется наложение импульсов. Для германиевых детекторов минимальное расстояние между импульсами, которое может быть разрешено режектором наложений, приблизительно равно 0,5 мкс. Режектор наложений обычно дает логический импульс, который может быть использован для режекции наложений. В случаях высоких скоростей счета режектор наложений может дать лучшее разрешение и более низкий уровень фона; в результате упрощается определение площадей пиков полного поглощения. На рис. 4.10 показано улучшение качества спектра, которое может быть достигнуто при использовании режектора наложений. На рисунке также показано, что режектор наложений может привести к обострению формы суммарных пиков таким образом, что они могут быть ошибочно приняты за реальные пики полного поглощения.

Режекция наложений достигается за счет усложнения работы и более жестких требований к выходному импульсу предусилителя, который должен быть свободен от высокочастотного сигнала, вызывающего ложные признаки наложения во временных цепях. Он также должен быть свободен от высокочастотных помех источников питания, пересчетных приборов, компьютеров и видеотерминалов. Такой высокочастотный сигнал обычно отфильтровывается в основном

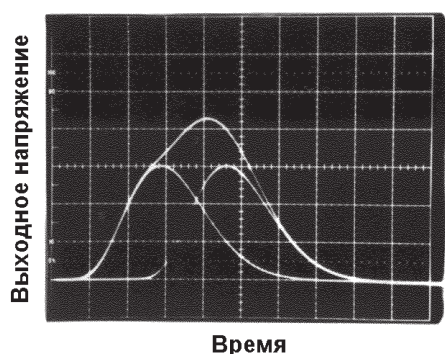


Рис. 4.9. Природа и эффект наложения импульсов на выходе усилителя спектрометра. Когда два импульса разделены друг от друга меньше, чем на время нарастания напряжения усилителя, амплитуда результирующего импульса не характеризует ни один из входных импульсов

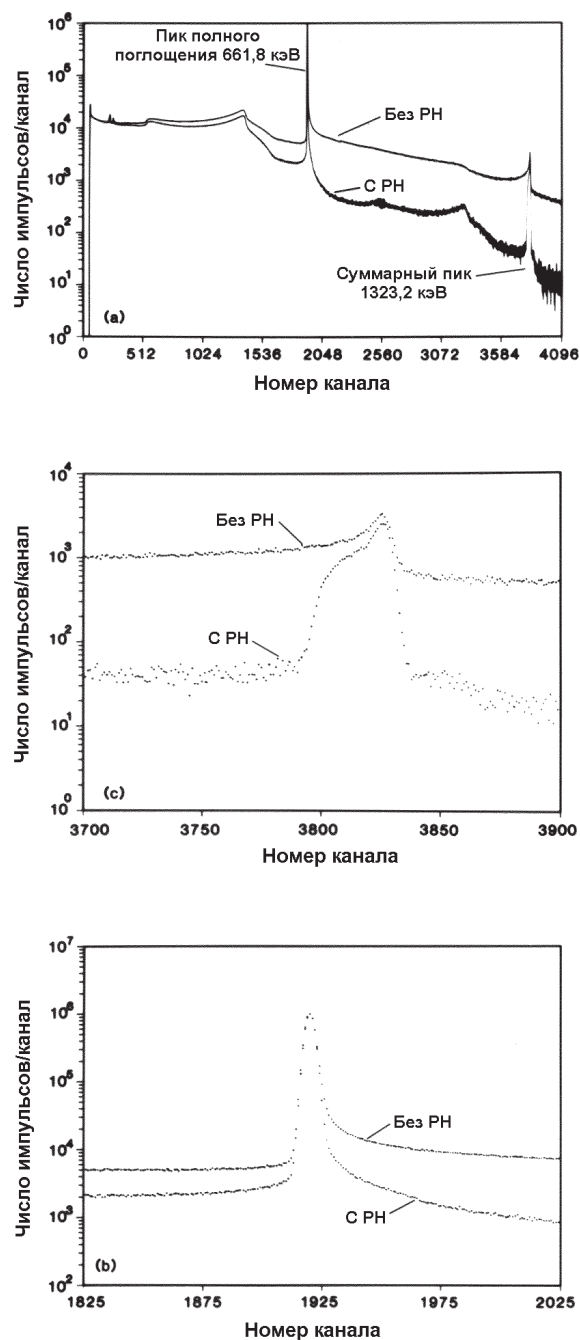


Рис. 4.10. Спектр изотопа ^{137}Cs , полученный при высокой скорости счета (50000 имп./с), демонстрирующий улучшенное качество спектра при использовании режекции наложений (РН). Сверху: весь спектр. Посередине: пик полного поглощения при 661,6 кэВ. Внизу: суммарный пик при 1323,2 кэВ; режекция наложения уменьшает континуум наложений в окрестности суммарного пика в 25 раз, но не приводит к значительному снижению амплитуды суммарного пика

усилителе, но может вызвать ложные признаки наложения в цепи режекции и привести к чрезмерной режекции импульсов гамма-излучения и искажениям спектра. Значительное внимание должно быть уделено настройке цепей режекции наложений.

Правильное использование схемы "полос-ноль", цепей восстановления базового уровня и режекции наложений может значительно улучшить качество измеренного спектра гамма-излучения. Так как осциллограф крайне необходим для установки оптимальных характеристик этих цепей, каждому пользователю гамма-спектрометрической системы следует иметь хороший осциллограф. Пользователям следует понимать работу осциллографа так же хорошо, как работу спектрометрической системы. Они скорее могут обнаружить и предотвратить различные проблемы путем правильного использования осциллографа, чем при применении какого-либо другого оборудования.

4.5.4 Усовершенствование схемы усилителей

Два последних усовершенствования схемы усилителей улучшают способность гамма-спектрометрических систем работать при высоких нагрузках без чрезмерного ухудшения спектра. Обе идеи используют узкую форму импульса для снижения потерь от наложений с одновременным сохранением хорошей формы пика, отношения сигнал/шум и разрешения.

В одной из схем на выходе стандартного высококачественного усилителя добавляется запирающий интегратор. Амплитуда выходного импульса интегратора пропорциональна интегралу выходных импульсов усилителя. Выходной сигнал интегратора преобразуется в цифровой код с помощью аналогово-цифрового преобразователя. Для конкретного типа взаимодействия гамма-излучения время сбора заряда зависит от напряжения электрического поля в детекторе и места взаимодействия. Носители заряда, которые образуются далеко от собирающих электродов или в областях, где электрическое поле слабее, достигают электродов позднее. Заряд, который собирается очень поздно, может не дать вклада в часть импульса предусилителя, несущую информацию; вероятно такой заряд вызывает баллистический дефицит. Если постоянные времени усилителя сравнимы со временем сбора заряда, интеграл выходных импульсов усилителя в большей степени пропорционален собранному заряду, чем амплитуда импульса. Если оценивать качественно, то интегратор позволяет увеличить период сбора заряда и уменьшает баллистический дефицит. С комбинацией усилитель-интегратор могут использоваться меньшие значения постоянных времени, чем в случае одного усилителя. Малые постоянные времени уменьшают потери при наложении импульсов и увеличивают пропускную способность. На рис. 4.11 показаны выходные импульсы усилителя и соответствующего интегратора.

Во второй схеме вместо обычных дифференциально-интегральных фильтров используются временные фильтры. Методика требует специальных предусилителей и аналогово-цифровых преобразователей, она действует при таких высоких нагрузках, как 10^6 имп./с, при номинальной пропускной способности 80000 имп./с. На рис. 4.12 показано, что форма выходного импульса этой системы существенно отличается от формы импульса привычной функции Гаусса.

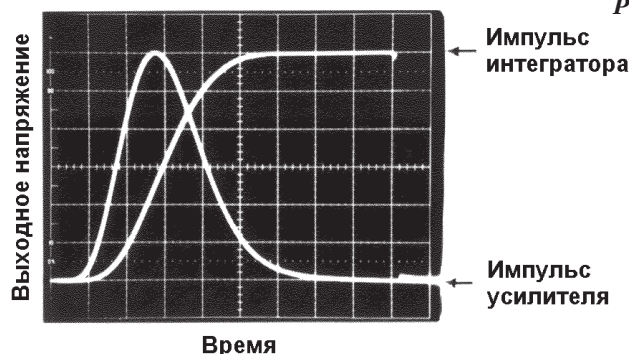


Рис. 4.11. Обычный выходной сигнал и выходной сигнал запирающего интегратора от усилителя, который использует запирающий интегратор для уменьшения баллистического дефицита при малых постоянных времени. Запирающий интегратор улучшает разрешение, снижает наложения импульсов и потери из-за мертвого времени при высоких скоростях счета на входе

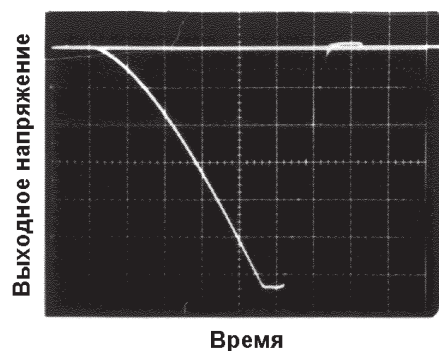


Рис. 4.12. Выходной сигнал импульсного процессора, использующего временные фильтры для формирования выходных импульсов предусилителя

Следует подчеркнуть, что выбор детектора с наилучшим сбором заряда является чрезвычайно важным для спектрометрии высокого разрешения при высоких нагрузках.

4.6 ОДНОКАНАЛЬНЫЙ АНАЛИЗАТОР

Одноканальный анализатор (ОКА) является прибором амплитудно-импульсного анализа. На рис. 4.1 он показан в составе простой спектрометрической системы. Исторически первый амплитудно-импульсный анализирующий прибор представлял собой дискриминатор с одним регулируемым порогом напряжения. Если напряжение выходного импульса усилителя превышает порог дискриминатора, дискриминатор выдает логический импульс, который используется для счета и осуществления функций контроля и имеет фиксированную амплитуду и ширину, в спектрометрической аппаратуре обычно равные 5 В и 1 мкс, соответственно. Пороговое напряжение калибруется на эквивалентную ему энергию гамма-излучения. Когда выход дискриминатора соединен с пересчетным устройством, то оно считает все гамма-кванты, которые обладают энергией, превышающей порог дискриминации.

ОКА обычно представляет собой два дискриминатора с независимыми порогами. Если амплитуда импульса усилителя превышает нижний порог и меньше верхнего порога, ОКА выдает логический импульс. Если выход ОКА присоединен к пересчетному устройству, то оно будет считать все гамма-кванты в выбран-

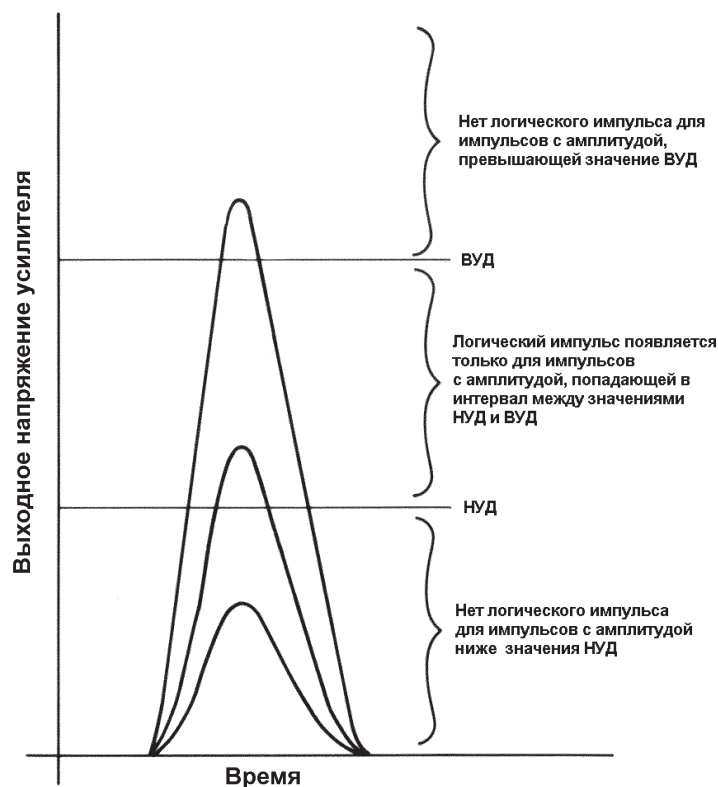


Рис. 4.13. Принципы действия одноканального анализатора (НУД — нижний уровень дискриминации, ВУД — верхний уровень дискриминации)

ном энергетическом диапазоне или канале. На рис. 4.13 проиллюстрировано действие ОКА.

Энергетический спектр гамма-излучения можно измерить, устанавливая узкое энергетическое окно и регистрируя серии отсчетов при последовательном перемещении окна вдоль рассматриваемого энергетического диапазона в виде серии непрерывных и не перекрывающихся энергетических каналов. Этот метод очень продолжителен по времени, когда окно узкое и необходимо зарегистрировать много отсчетов. До появления многоканальных анализаторов (МКА) для измерения спектров гамма-излучения использовались ОКА (см. рис. 4.14). Методику иногда автоматизировали, добавляя механический привод для управления нижним порогом и регистрирующий измеритель скорости отсчетов на выходе ОКА.

Если значение напряжения верхнего порога привязано к значению напряжения нижнего порога, то оба порога ОКА могут привязываться к одному и тому же исходному уровню напряжения, обычно ноль вольт. Окно регистрации можно продвигать по спектру, регулируя только нижний порог. Некоторые ОКА могут действовать как два независимых дискриминатора, как ОКА с независимыми порогами или как только что описанный оконный ОКА. Некоторые ОКА дают информацию только об амплитуде импульса, другие — амплитудно-импульсную и временную информацию. Для установки окна ОКА в требуемом энергетическом

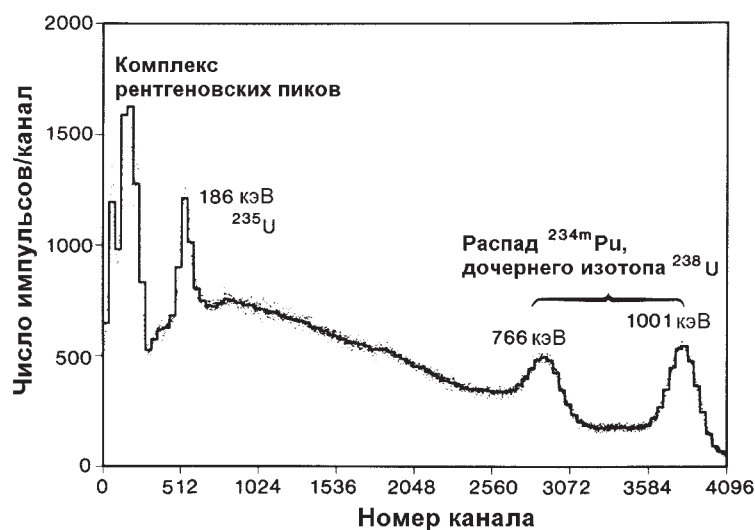


Рис. 4.14. Гамма-спектр высокообогащенного урана, измеренный с помощью высококачественного детектора NaI. Точки показывают 4096-канальный спектр МКА, а гистограмма — 100-канальный спектр ОКА. Общее число отсчетов в обоих спектрах одинаково; следовательно, точность отдельной точки в 4096-канальном спектре составляет только одну шестую соответствующей полосы в 100-канальном спектре. Вертикальные шкалы обоих спектров были нормированы

диапазоне могут быть использованы некоторые процедуры, запирая осциллограф или МКА от выходного сигнала ОКА.

4.7 СЧЕТЧИКИ, ПЕРЕСЧЕТНЫЕ УСТРОЙСТВА, ТАЙМЕРЫ И ИЗМЕРИТЕЛИ СКОРОСТИ СЧЕТА

Счетчик/таймер, показанный на рис. 4.1, является самой простой частью спектрометрической системы; его функция заключается в счете выходных логических импульсов ОКА.

Термины *счетчик* и *пересчетное устройство* обычно равнозначны. До появления цифровых электронных дисплеев, таких как светодиоды и жидкокристаллические дисплеи, для индикации числа зарегистрированных импульсов использовались электромеханические регистраторы. Однако они были очень медленными и часто им предшествовали электронные цепи, вырабатывающие один логический импульс, соответствующий фиксированному числу входных логических импульсов. Такой "пересчетный" коэффициент обычно является степенью 10. Исторически термин *пересчетное устройство* правильно применять к электронным цепям, которым предшествовали электромеханические регистраторы. Хотя механические регистраторы больше не используют, термин *пересчетное устройство* часто применяют в регистрирующей аппаратуре, которая не имеет функции управления и контроля времени. Термин *счетчик* является более предпочтительным и наглядным. Термин *таймер* обычно применяется к отдельному устройству, которое измеряет время и может включать один или более счетчиков в вы-

бранный временной интервал. В прошлом счетчики и таймеры были обычно отдельными устройствами; сейчас обе функции часто объединяются в одном устройстве, которое можно назвать *счетчик/таймер* или просто *счетчик*. *Измеритель скорости счета* определяет среднюю скорость счета импульсов, поступающих на его вход, и может быть использован вместо или вместе со счетчиком.

Современные счетчики действуют при максимальных нагрузках около 2×10^7 имп./с и могут зарегистрировать два импульса, интервал времени между которыми составляет почти 50 нс. Большинство счетчиков имеют емкость в шесть десятичных разрядов, однако имеются семи и восьмизрядные счетчики. Хотя счетчики и таймеры обычно имеют визуальное отображение числа импульсов или секунд, существуют счетчики и без визуального отображения для тех случаев, когда требуется только автоматическое считывание в компьютер или на печать. Многие счетчики выдают логический импульс переполнения для того, чтобы показать превышение емкости счетчика. Некоторые счетчики могут запираются (включаться или выключаться) логическими импульсами от другого управляющего электронного устройства. Бывают варианты счетчиков, которые имеют внутренние дискриминаторы, принтеры и интерфейсы компьютера и могут регистрировать положительные или отрицательные входные импульсы.

Таймеры являются счетчиками, которые считают сигналы генератора импульсов фиксированной частоты для определения требуемого интервала времени. Эталонный сигнал времени приходит либо от сети переменного тока (60 Гц в США, 50 Гц в Европе и России) или от внутреннего кварцевого генератора. Источник частоты, которым является сеть, менее дорог и почти отвечает основным требованиям. Если частота линии переменного тока усредняется в течение дня, точность такого источника частоты достаточно высока. Если должны измеряться интервалы меньше, чем один день, с погрешностью менее 0,1 %, необходимо использовать управляемый кварцевый генератор частоты. Многие комбинации счетчик/таймер могут либо считать в течение заданного времени, либо измерять время, необходимое, чтобы сосчитать заданное число импульсов. Последний режим позволяет получить все измерения с одинаковой статистической погрешностью.

В прошлом все измерители скорости счета представляли собой аналоговые устройства, которые давали токовый сигнал, пропорциональный средней скорости счета. Сигнал, соответствующий скорости счета, отображался на измерительном приборе и мог быть передан самописцу через внешний разъем. Все измерители скорости счета имели набор постоянных времени для выбора быстрого отклика прибора при изменении скорости счета. Имелись линейные и логарифмические шкалы, и некоторые приборы издавали звуковой сигнал, если скорость счета превышала заданный предел. Современные измерители скорости счета могут быть либо аналоговыми, либо цифровыми приборами. Цифровой измеритель скорости счета представляет собой счетчик/таймер, который автоматически проводит счет и повторяет цикл измерений; время счета часто устанавливается равным 1 с, чтобы цифровой дисплей показывал число отсчетов за секунду. Визуальное табло цифрового измерителя скорости счета считывается лучше, чем стрелочный индикатор аналогового измерителя скорости счета. Цифровой измеритель скорости счета часто используется для измерения полной скорости поступления импульсов гамма-излучения с усилителя. Поскольку полная скорость счета ока-

зывает значительное влияние на характеристики системы, скорость счета часто контролируется непрерывно.

4.8 МНОГОКАНАЛЬНЫЙ АНАЛИЗАТОР

Функции, которые на рис. 4.2 представлены внутри пунктирной линии, обычно выполняются многоканальным анализатором (МКА), действующим по принципу амплитудно-импульсного анализа. Термины многоканальный анализатор и амплитудно-импульсный анализатор часто взаимозаменяемы. МКА может работать в нескольких режимах, включая анализ амплитуды импульсов, выбор уровней напряжения и многоканальное масштабирование. Он сортирует и накапливает импульсы от зарегистрированных гамма-квантов, поступающие от основного усилителя, для построения цифрового и визуального представления амплитудно-импульсного спектра, полученного с помощью детектора.

4.8.1 Аналого-цифровой преобразователь

Аналого-цифровой преобразователь (АЦП) расположен на входе МКА и производит основной анализ амплитуды импульсов. На вход АЦП подается аналоговый импульс напряжения от главного усилителя; на его выходе появляется двоичное число, которое пропорционально амплитуде входного импульса. Двоичное число на выходе часто называют адресом. Другие цепи МКА добавляют единицу в регистр памяти МКА, адрес которого соответствует адресу АЦП, который выполняет функцию, аналогичную той, которую выполняет пользователь осциллографа, производящий "пять вольт", когда на входную клемму осциллографа поступает импульс в 5 В. АЦП принимает импульсы в заданном диапазоне напряжения, обычно от 0 до 8 или до 10 В, и сортирует их по большому ряду прилегающих друг к другу ячеек или каналов напряжения равной ширины. Из-за функции сортировки первые МКА часто называли "сортировщиками" всплесков, так как импульс усилителя сравнивался с электрическим всплеском.

Число каналов, на которое делится весь диапазон напряжений, обычно является степенью числа 2 и называется коэффициентом преобразования АЦП. В середине 1950-х годов высококачественные АЦП делили 100 В на 256 каналов. Сейчас АЦП обычно делит 10 В на 16384 каналов. Эта способность впечатляет; отдельный канал имеет ширину всего 0,6 мВ. Требуемый коэффициент преобразования АЦП изменяется в зависимости от типа детектора и рассматриваемого диапазона энергии. На рис. 4.15 показана часть 8192-канального спектра плутония, измеренного с помощью германиевого детектора высокого разрешения. Пики полного поглощения должны содержать достаточное число каналов, чтобы точно описать структуру спектра. В некоторых случаях вполне достаточно пяти каналов. Когда требуется процедура подгонки пика, для точного определения формы пика необходимы 10 или более каналов.

АЦП сортирует выходные импульсы усилителя в соответствии с уровнем их напряжения, который пропорционален энергии, потерянной гамма-квантом в детекторе. Подобно соотношению между напряжением импульса и энергией гам-

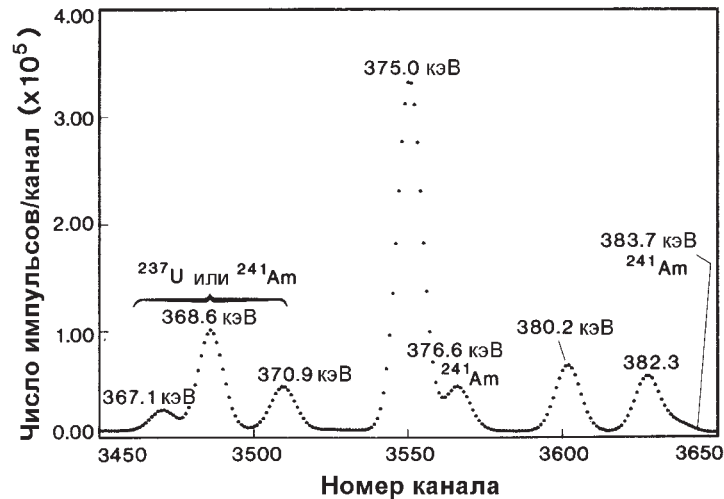


Рис. 4.15. Небольшая часть 8192-канального спектра плутония, полученного с помощью высококачественного коаксиального германиевого детектора. Главным пиком является пик 375 кэВ от распада ^{239}Pu

ма-кванта отношение между номером канала и энергией гамма-кванта приблизительно линейно. Это соотношение можно представить уравнением (4.1):

$$E = mX + bE, \quad (4.1)$$

где: E — энергия, кэВ;

X — номер канала;

m — наклон прямой, кэВ/канал;

b — точка пересечения прямой с осью X , кэВ.

Наклон m зависит от коэффициента преобразования энергии гамма-кванта в заряд детектора и коэффициента усиления усилителя; обычно значения этого коэффициента изменяются от 0,05 до 1,0 кэВ/канал. Хотя логично предположить, что нулевая энергия соответствует нулевому каналу ($b=0$), часто это не так. Точка пересечения оси X и наклон прямой могут быть отрегулированы таким образом, чтобы подогнать рассматриваемый энергетический диапазон в нужный диапазон каналов. Например, при измерении плутония часто используют гамма-излучение в диапазоне от 60 до 420 кэВ. Если наклон установлен равным 0,1 кэВ/канал, а точка пересечения нуля находится на 20 кэВ, 4096-канальный спектр перекрывает энергетический диапазон от 20 до 429,6 кэВ и включает рассматриваемое гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ. В этом примере номер канала легко может быть преобразован в энергию. Большинство АЦП имеют как аналоговое, так и цифровое управление для регулировки точки пересечения оси X . Аналоговое управление называется управлением базового уровня или нуля, а цифровое управление называется цифровым компенсатором.

Поскольку предусилители, усилители и аналогово-цифровые преобразователи не являются абсолютно линейными устройствами, соотношение между энергией и номером канала, показанное в уравнении (4.1), не является точным. Однако при хорошем оборудовании энергия гамма-излучения может быть измерена с точностью до десятых долей кэВ, предполагая линейную зависимость. Линей-

ность АЦП обычно определяют двумя величинами: интегральной и дифференциальной нелинейностями. Интегральная нелинейность характеризуется слабой кривизной в соотношении между энергией и номером канала; дифференциальная нелинейность определяется изменением в ширине канала. Трудно создать АЦП, который не имел бы дифференциальной нелинейности. Часто примыкающие каналы имеют заметно разную ширину. Это можно наблюдать на горизонтальных участках спектра, когда все каналы с четными номерами имеют больше отсчетов, чем все каналы с нечетными номерами. Такие нечетно-четные эффекты общеизвестны и могут проявляться и в чередующихся группах двух, четырех или даже восьми каналов. Общая проблема АЦП, которая может влиять на результаты измерений, заключается в медленном росте дифференциальной нелинейности со временем. Уровень дифференциальной нелинейности обычных АЦП, равный 1%, является вполне приемлемым для большинства задач.

Обычно используются два типа АЦП: АЦП Уилкинсона и АЦП последовательного приближения. АЦП Уилкинсона считает импульсы от быстрого генератора за интервал времени, который пропорционален амплитуде импульса усилителя. Время, преобразованное в код, определяет номер канала, приписываемый каждому импульсу. АЦП последовательного приближения проводит сравнение импульса усилителя в серии аналоговых компараторов. Первый компаратор определяет, находится ли амплитуда импульса выше или ниже половины диапазона АЦП. Каждый последующий компаратор показывает, находится ли импульс выше или ниже половины интервала напряжения предыдущего компаратора. Серия из 12 компараторов приписывает амплитуду анализируемого импульса к одному из 2^{12} (или 4096) каналов. Время, преобразованное в код, для АЦП последовательного приближения является постоянным и не зависит от амплитуды импульса. До недавнего времени АЦП Уилкинсона доминировали в области гамма-спектрометрии, поскольку они имели лучшую дифференциальную линейность. Сейчас АЦП последовательного приближения имеют сравнимую дифференциальную линейность и становятся более популярными, поскольку они работают быстрее, чем АЦП Уилкинсона.

Для спектрометрии при высоких скоростях счета быстродействие АЦП является важным параметром. Когда АЦП обрабатывает один импульс, все другие импульсы игнорируются. Время обработки импульса, или мертвое время, может быть существенной частью общего времени набора данных. Мертвое время, равное 25 %, означает, что в потоке импульсов усилителя теряется 25 % информации. Для обоих типов АЦП мертвое время на одно событие равно сумме времени преобразования амплитуды в код и фиксированного времени обработки (обычно от 2 до 3 мкс). Генераторы с частотами 450 и 100 МГц, используемые в АЦП Уилкинсона, требуют от 12 до 43 мкс на преобразование в число и запись события для гамма-кванта в 4000-й канал. В АЦП последовательного приближения (4096 каналов) на анализ события для одного гамма-кванта требуется от 4 до 12 мкс. Подробное рассмотрение быстродействия АЦП требует анализа энергетического спектра гамма-излучения, общего коэффициента усиления системы и диапазона АЦП. В общем случае для спектров с числом каналов 4096 и более, АЦП последовательного приближения работают быстрее, чем АЦП Уилкинсона, но для спектра с небольшим числом каналов у АЦП Уилкинсона выше скорость работы. В спектре со средним числом каналов, равным 512, АЦП Уилкинсона с частотой 400 МГц имеет среднее мертвое время на событие, равное 3 мкс.

Большинство АЦП, независимо от их типа или изготовителя, имеют несколько общих характеристик. Дискриминаторы нижнего и верхнего уровня определяют наименьший и наибольший импульсы, которые допустимы для цифрового преобразования. Эти дискриминаторы могут быть отрегулированы таким образом, чтобы отбраковывать не представляющие интерес события низких и высоких энергий и снизить мертвое время АЦП. Регулировка дискриминатора не оказывает действия на общую скорость счета гамма-квантов и не может быть использована для снижения потерь из-за наложений импульсов, которые имеют место в детекторе, предусилителе и усилителе. Эти дискриминаторы являются ОКА на входе АЦП. Большинство АЦП снабжены выходным разъемом от ОКА и имеют входы совпадений и антисовпадений, которые позволяют внешним логическим цепям управлять работой АЦП. Цепи режекции наложений импульсов генерируют управляющий импульс, который подается на вход антисовпадений, чтобы запретить обработку или запоминание наложенных импульсов. Вход совпадений также используется для анализа событий гамма-излучения, которые регистрируются в двух отдельных детекторах. Большинство АЦП имеют регулируемые коэффициент и диапазон преобразования; управление диапазоном задает максимальное число преобразуемых каналов. Обычно существует индикатор мертвого времени, который показывает его долю. В МКА на основе компьютеров параметры АЦП часто могут устанавливаться управляющей программой компьютера. Большинство небольших МКА имеют встроенный АЦП. Большие системы МКА используют отдельные модули АЦП в стандарте NIM или встроенные АЦП.

4.8.2 Стабилизаторы спектра

Для германиевых и кремниевых детекторов соотношение энергии и номера канала изменяется со временем даже тогда, когда коэффициент преобразования энергии в собранный заряд постоянен. Коэффициент усиления и нулевой уровень предусилителя, усилителя и АЦП подвержены небольшим, но конечным изменениям, обусловленным отклонениями в температуре и скорости счета. В лабораторных условиях положение пика полного поглощения в 4000-м канале может сместиться только на несколько каналов за период времени в несколько недель; однако даже этот небольшой дрейф может оказаться нежелательным. Большие дрейфы могут внезапно возникнуть в неконтролируемой окружающей среде, что характерно для промышленных установок. В спектрометрической системе для компенсации возможного дрейфа используются электронные модули — стабилизаторы спектра, которые фиксируют положение одного или более пиков полного поглощения при настройке усиления или уровня постоянного тока. Стабилизаторы спектра особенно рекомендуются для гамма-спектрометрических систем, которые должны эксплуатироваться в неконтролируемой окружающей среде неквалифицированными операторами (это часто характерно для обычных систем анализа на заводе). Стабилизаторы также рекомендуются при использовании процедуры суммирования в каналах для определения площадей пиков полного поглощения.

Спектрометрические стабилизаторы, используемые вместе с германиевыми и кремниевыми детекторами, обычно представляют собой цифровые схемы, соединенные непосредственно с АЦП. Стабилизатор рассматривает адрес каждого

гамма-события, генерируемого АЦП, и сохраняет число отсчетов в двух узких окнах на каждой стороне выбранного канала пика полного поглощения. Стабилизатор генерирует сигнал обратной связи для АЦП. Этот сигнал пропорционален разности числа отсчетов в двух окнах. Сигнал обратной связи корректирует коэффициент усиления АЦП и нулевой уровень так, чтобы среднее число отсчетов в каждом окне оставалось одним и тем же; регулировка фиксирует позицию выбранного стабилизационного пика. Часто для стабилизации используются два независимых пика: пик на высокоэнергетическом участке спектра используется для корректировки усиления, а пик на низкоэнергетическом участке спектра — для корректировки нулевого уровня АЦП. Обычно при двухточечной стабилизации стабильность спектрометрической системы настолько высока, что дрейф спектральных пиков не превышает одной десятой части канала в течение многих месяцев. Цифровые стабилизаторы также могут использоваться, чтобы облегчить установку простой и удобной энергетической градуировки (например, $E = 0,1 X$).

Пики стабилизации должны быть свободны от наложений, иметь достаточную интенсивность и присутствовать в течение всего времени анализа. Часто в качестве пика стабилизации используется пик одного из источников гамма-излучения, который прилагается к детектору для градуировки. Обычно такой источник стабилизации является моноэнергетическим и дает пик стабилизации с такой низкой энергией, что его комптоновское распределение не интерферирует с другими рассматриваемыми пиками гамма-излучения. В некоторых случаях к входу предусилителя может быть подсоединен высокостабильный генератор электрических импульсов для получения искусственного пика стабилизации. Пики от генераторов импульсов или специальных источников стабилизации также могут использоваться для обеспечения учета потерь из-за наложений импульсов и мертвого времени (см. главу 5).

Не во всех АЦП имеется цифровая стабилизация, она часто отсутствует в портативных многоканальных анализаторах и АЦП последовательного приближения. Цифровые стабилизаторы являются обычно модулями в стандарте NIM единичной или двойной ширины. Все стабилизаторы имеют ручки управления для установки нужного номера канала центра пика и ширины окон для пиков стабилизации; часто имеется ручка управления для установки чувствительности стабилизатора. Сейчас выпускаются цифровые стабилизаторы, которые могут управляться внешним компьютером; это полезно, когда пики стабилизации необходимо менять в течение автоматизированных процедур анализа.

Цифровые стабилизаторы с малым диапазоном коррекции не работоспособны при использовании детекторов NaI. Кроме того, цифровые стабилизаторы работают с АЦП, а многие системы на основе детектора NaI используют ОКА для накопления необходимой спектрометрической информации. Вследствие относительно большей нестабильности сцинтилляционных детекторов с фотоумножителем (находящейся в диапазоне от 1 до 2 %/°C), для детекторов NaI стабилизация спектра часто более необходима, чем для германиевых или кремниевых детекторов.

Стабилизаторы сцинтилляционных детекторов подобны цифровым стабилизаторам, но работают с усилителем, а не с АЦП. Стабилизатор сравнивает скорость счета на каждой стороне пика, выбранного для стабилизации, и формирует сигнал обратной связи, который подгоняет коэффициент усиления так, чтобы

поддерживать эти две скорости счета равными. Стабилизаторы для детекторов NaI выполняются в виде модулей в стандарте NIM и могут содержать сочетания усилитель/стабилизатор или отдельные стабилизаторы. Когда в спектрах NaI отсутствуют пики, подходящие для стабилизации, в качестве их заменителя нельзя использовать пик от генератора импульсов, потому что он может только корректировать нестабильность предусилителя и усилителя; основной дрейф в системе анализа с детектором NaI связан с фотоумножителем. Хотя внешний источник гамма-излучения дает пик стабилизации, комптоновское распределение от источника может чрезмерно интерферировать с гамма-излучением рассматриваемых энергий. В качестве альтернативного решения можно использовать детектор со встроенным генератором световых импульсов. Кристаллы NaI могут быть выращены с внедрением небольшой примеси ядер, испускающих альфа-частицы (например, ^{241}Am). Взаимодействие альфа-частиц с кристаллом NaI дает четкий пик с фиксированной скоростью счета и энергией, эквивалентной энергии гамма-излучения. Поскольку температурные зависимости сцинтилляции, вызванной альфа-частицами и гамма-излучением, не одинаковы, точная стабилизация для большого температурного диапазона может потребовать специальной цепи температурной компенсации.

4.8.3 Память многоканального анализатора, дисплей и анализ данных

После того как АЦП преобразует импульс напряжения от усилителя в двоичный адрес, этот адрес запоминается для последующего анализа. Все системы МКА имеют память, предназначенную для запоминания спектра, а большинство систем содержат спектральный дисплей и встроенные устройства анализа данных.

Хотя наиболее принятым размером памяти является 4096 каналов, имеются МКА с другими размерами памяти, такими как 1024, 8192 или 16384 канала. Меньший размер памяти обычно используется вместе с детекторами NaI, а также с германиевыми или кремниевыми детекторами при рассмотрении узкого энергетического диапазона. Чтобы иметь достаточное число каналов в пике полного поглощения, обычно требуется общее усиление системы порядка 0,1 кэВ/канал; однако с таким коэффициентом усиления 1024-канальный МКА может собрать данные в диапазоне с шириной до 100 кэВ. Большие системы МКА обычно могут принимать данные от нескольких АЦП одновременно. 16384-канальный МКА может собирать четыре 4096-канальных спектра одновременно. Имеются МКА с большим числом каналов (до 65536).

Максимальное число отсчетов, которое может быть записано в канал, часто является важной характеристикой, поскольку оно устанавливает предел сходимости результатов измерения, который может быть получен при одном измерении. Первые транзисторные МКА часто имели максимальную емкость 65536 отсчетов в канале. Современным стандартом обычно является 10^6 отсчетов в канале, однако, имеются большие МКА с числом отсчетов в канале, равным $1,6 \times 10^7$, $2,56 \times 10^8$ и даже 4×10^9 (последнее число, возможно, больше, чем когда-либо требуется). Хотя действующий стандарт в 10^6 отсчетов в канале подходит для многих задач с низкой скоростью счета, он является определенным ограничением, например, для высокоточных измерений образцов высокой активности. Это ограниче-

ние особенно заметно, когда необходимо измерить в одном спектре слабые и интенсивные пики, как это бывает во многих случаях измерения плутония. Время счета должно быть выбрано таким, чтобы самый интенсивный пик в рассматриваемой области не переполнял емкость канала; к сожалению, это время счета может давать неприемлемо низкие сходимости для определения площадей более слабых пиков. В результате потребуется проведение многократных измерений. Когда решаются вопросы о размере памяти МКА и требования к емкости, особенно внимательно следует рассматривать предполагаемые области применения.

Самый быстрый и полезный путь получения качественной и полуколичественной информации из спектра, записанного в памяти, это просмотр на графике содержимого канала. Большинство МКА имеют дисплей для отображения спектра, и многие предлагают широкий диапазон возможностей отображения на дисплее. Все дисплеи обладают вертикальными и горизонтальными шкалами, а многие имеют линейные и логарифмические масштабы. Большинство дисплеев имеют один или два курсора, которые могут перемещаться по спектру; номер канала, соответствующего положению курсора, и содержимое этого канала в численном виде отображаются на экране. Большинство МКА могут увеличивать отдельные рассматриваемые области или изменять цвет рассматриваемого диапазона, чтобы выделить конкретные спектральные характеристики. Хороший МКА может показать два или более спектров одновременно, а также наложить спектры для проведения тщательного визуального сравнения.

До недавнего времени в большинстве дисплеев МКА использовались катодно-лучевые трубки с электростатическим отклонением, которое используется только для небольших экранов дисплеев, размером приблизительно 15×15 см. Сейчас большинство МКА используют магнитное отклонение, что позволяет получить больший размер экрана; изображение идентично телевизионному изображению. Некоторые дисплеи многоцветны, но большинство еще монохромны. В каждом типе дисплея канал представлен точкой или полосой, высота которой по вертикали пропорциональна содержимому канала. Жидкокристаллические дисплеи только начали производиться и используются, главным образом, для низкоэнергетических применений в портативных МКА.

Магнито-отклоняющие дисплеи с большими экранами экономичны и дают отличное изображение, но имеют один существенный недостаток. Генератор развертки в цепи магнитного отклонения генерирует импульсы электромагнитной помехи на частотах приблизительно 16 кГц; помеха легко проходит по линиям сигналов предусилителя и может вызвать значительное ухудшение качества спектра. Значительное внимание должно быть уделено заземлению, экранированию и расположению сигнальных кабелей, чтобы исключить или минимизировать эту проблему. Обычно используемые с большими МКА и компьютерными системами видеотерминалы также генерируют подобный шум; все сигнальные кабели должны быть проложены на значительном расстоянии от терминалов.

Большинство крупных МКА имеют несколько встроенных функций для проведения анализа, которые обычно определяют положения пиков и их ширину в числе каналов, проводят энергетическую градуировку, определяют полное число импульсов в выбранном диапазоне, а также площади пиков полного поглощения. Другие имеющиеся функции могут включать сглаживание, нормировку и вычитание фонового спектра. Результаты в численном виде обычно изображаются на экране или печатаются на терминале системы. Указанные функции обеспечива-

ются микропроцессорами, которые выполняют программу, записанную в постоянном запоминающем устройстве (ПЗУ).

Большие МКА часто соединяются с внешним компьютером, который может полностью управлять анализом и выполнять сложные программы анализа. Вычислительная система обычно включает один или более запоминающих устройств, таких как жесткие или гибкие диски, которые обеспечивают хранение спектральных данных и программ анализа. Последним звеном в спектрометрической системе часто является принтер, который дает бумажную копию результатов измерений.

4.9 ВСПОМОГАТЕЛЬНОЕ ЭЛЕКТРОННОЕ ОБОРУДОВАНИЕ

На рис. 4.1 и 4.2 показаны только основные компоненты гамма-спектрометрических систем. В этом разделе описаны другие устройства, которые могут использоваться в дополнение к основным компонентам.

Самым полезным вспомогательным прибором, используемым с гамма-спектрометрическими системами, является осциллограф. Он фактически незаменим при настройке спектрометрической системы на оптимальные эксплуатационные характеристики, для контроля этих характеристик, обнаружения неисправностей или ложных сигналов и корректировки сложных ситуаций. Дорогой осциллограф не требуется; частота 50 МГц, один или два входа по вертикали, обычная временная развертка — вполне достаточны. Портативные осциллографы с питанием от батарей могут быть легко использованы в системах, расположенных в неудобных местах.

Для проверки характеристик системы и корректировки потерь из-за мертвого времени и наложений импульсов используются электронные генераторы импульсов. Ртутные генераторы импульсов отличаются отличной стабильностью амплитуды импульсов, но очень медленны и имеют ограниченную возможность изменения формы импульса. Другие электронные генераторы импульсов часто имеют более высокую частоту и очень широкие возможности изменения формы импульса, но обычно не дают большую амплитуду и не стабильны. Некоторые генераторы импульсов дают случайные интервалы между импульсами, а не обычные фиксированные интервалы. "Скользящие" генераторы импульсов используются для проверки линейности АЦП; амплитуда их импульсов линейно изменяется во времени.

Часто для фотографирования экранов МКА и изображений осциллографа используют фотокамеры. Фотографии формы импульса помогают документировать и диагностировать сложные случаи; фотографии спектров обеспечивают быстрый способ записи информации. Имеются фотокамеры с необходимыми приспособлениями для присоединения их к осциллографу и МКА. Обычно для быстрого получения фотографии используется фотоматериал типа "Полароид".

Существует много различных приборов для получения информации о временных характеристиках импульсов гамма-излучения. Они необходимы, чтобы установить временное соотношение между двумя или большим числом детекторов. Усилители с временными фильтрами для сохранения временной информации проигрывают в соотношении сигнал/шум и общем разрешении. Другие при-

боры анализируют выход предусилителя, биполярный выход основного усилителя или выход усилителя с временным фильтром и генерируют быстрый логический сигнал, который имеет фиксированную и точную временную связь с регистрацией гамма-излучения в детекторе. Временную информацию получают с помощью следующих методик: быстрой дискриминации переднего фронта; выделения постоянной составляющей; компенсации нарастания амплитуды во времени; тщательного определения точки пересечения нуля. Временная информация либо считывается, либо учитывается в схемах совпадения, которые определяют: имели ли место определенные временные соотношения между событиями в двух или более детекторах. В зависимости от типа детектора границы временных ворот совпадений могут сужаться до нескольких наносекунд. Логический выход схемы совпадений либо считывается, либо используется как управляющий сигнал. Когда требуется более подробная временная информация для генерации выходного импульса, амплитуда которого пропорциональна временному интервалу между входными импульсами, может использоваться время-амплитудный преобразователь.

В качестве схемы совпадений или управления на входе в МКА могут быть использованы линейные ворота, которые передают аналоговые сигналы неизменной амплитуды и формы, если они закрываются и открываются управляющими сигналами, которые поступают от одной из цепей синхронизации, описанных выше. Линейный расширитель генерирует импульс той же амплитуды, что и у входного импульса, но регулируемой длины. Расширитель изредка используется для улучшения сигнала усилителя перед последующей обработкой в АЦП. Суммирующие усилители, или микшеры, производят выходные сигналы, которые являются линейной суммой двух или более входных сигналов. Микшер может применяться при наборе спектра от нескольких детекторов и использовании одного АЦП.

Подавление вклада комптоновского распределения является общепринятой процедурой, которая улучшает качество гамма-спектров и использует некоторые цепи синхронизации, описанные выше. Спектрометр, подавляющий комптоновский эффект, обычно включает детектор высокого разрешения, который окружается кольцевым детектором низкого разрешения. Рассеянное гамма-излучение с энергией ниже полной энергии взаимодействия, зарегистрированной в детекторе высокого разрешения, часто регистрируется кольцевым детектором. Совпадение событий в двух детекторах препятствует запоминанию события высокого разрешения в МКА и уменьшает уровень непрерывного комптоновского распределения между пиками полного поглощения.

4.10 ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ЗАМЕЧАНИЯ

Аппаратура, описанная в данной главе, может объединяться для формирования гамма-спектрометрических систем для различных задач НРА. Многие производители аппаратуры могут предоставить пользователю полные спектрометрические системы, которые включают все компоненты от детектора до выходного принтера. Если пользователь имеет достаточный опыт, система может быть собрана из отдельных компонентов, поставляемых различными производителями. В любом случае, до выбора спектрометрической системы из почти бесконечной массы

вариантов и конфигураций, необходимо уделить значительное внимание рассмотрению требований, продиктованных будущим применением. В литературе [1-4] приводится детальное описание функций и работы гамма-спектрометрической аппаратуры. Для пользователя, который не является профессионалом в гамма-спектрометрии, данная информация является наилучшей; она получена из исследовательских отчетов, коммерческой литературы, от разработчиков и пользователей современной аппаратуры.

Системы для анализа гамма-излучения, которые предназначены для конкретной задачи, могут быть очень простыми в работе. С другой стороны, большая многосторонность и гибкость обеспечиваются сочетанием соответствующего детектора, усилителя, МКА и возможностями анализа, что в совокупности позволяет сделать большую современную гамма-спектрометрическую систему. К сожалению, сложный и универсальный прибор в действительности никогда не может быть простым в эксплуатации; обычно требуется не менее нескольких недель, чтобы овладеть навыками управления такой большой системой. Однако приложенные усилия приведут к тому, что можно использовать приборы с поистине впечатляющими возможностями. Достижения современных спектрометрических систем наилучшим образом оцениваются теми, кто помнит по собственному опыту то время, когда все спектральные измерения проводились с помощью NaI детекторов, одноканального анализатора и счетчика.

Гамма-спектрометрическое оборудование быстро совершенствовалось за последние 25 лет, когда вакуумные лампы были заменены транзисторами, а транзисторы — интегральными схемами. Микропроцессор обеспечивает большие возможности при меньших объемах. Эффективность системы на доллар стоимости возросла, несмотря на инфляцию. Скорость роста эффективности все еще значительна, особенно в объеме и гибкости памяти МКА, изображении и анализе данных. Качество спектров не прогрессирует так быстро, хотя улучшения в импульсной электронике имеют место, особенно при очень высоких скоростях счета (до 10^6 имп./с) от детекторов высокого разрешения. Технология NaI, германиевых и кремниевых детекторов вполне развита и существенных улучшений пока не ожидается. Будет продолжаться постоянный прогресс во всех областях технологии гамма-спектрометрии, где могут быть неожиданные прорывы.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, second edition (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1988).

Эта книга описывает все типы детекторов излучений и соответствующую электронику, включая гамма-спектрометрические системы высокого разрешения. Проводится очень широкое обсуждение с высококачественными объяснениями и многочисленными рисунками. Приводится много математических формул и их выводов, но книга остается легкой для чтения. Это, вероятно, лучшая публикация по гамма-спектрометрическому оборудованию.

2. P. W. Nicholson, *Nuclear Electronics* (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1974).

Эта книга является обширным научным трудом по электронике, связанной с детекторами высокого разрешения. Даны подробные описания предусилителей детекторов, формирования импульсов, определения потерь из-за скорости счета, амплитудно-импульсного анализа и разрешения спектров.

3. F. Adams and R. Dams, *Applied Gamma-Ray Spectroscopy* (Pergamon Press, Oxford, 1970).

Хотя это более ранняя работа, чем [1], она дает всестороннее освещение гамма-спектрометрии. Имеется информация о NaI и германиевых детекторах и связанной с ними аппаратуре.

4. W. J. Price, *Nuclear Radiation Detection*, 2nd ed. (McGraw-Hill Book Co., New York, 1964).

Хотя эта книга более старая и более узко направленная, чем три предыдущих, она дает полезные альтернативные описания процесса регистрации и функции электронного оборудования. Она также дает взгляд на детекторы и методы анализа, которые сейчас редко используются, и дает интересный обзор спектрометрического оборудования того времени, когда транзисторы начинали заменять лампы.

Глава 5

Основные вопросы пассивного анализа гамма-излучения

Дж. Л. Паркер
(Переводчик В.В. Свиридова)

В этой главе рассматриваются основные вопросы, относящиеся к методикам анализа гамма-излучения, представленным в главах с 7-й по 10-ю включительно. Для получения оптимальных результатов по какой-либо методике анализа пользователю необходимо разобраться в ряде вопросов, которые в первую очередь включают:

- энергетическую градуировку и определение положения пика;
- измерения энергетического разрешения;
- определение площади пика полного поглощения;
- поправки на наложение импульсов и просчеты;
- эффекты закона обратных квадратов;
- измерения эффективности детектора.

5.1 ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ГРАДУИРОВКА И ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПОЛОЖЕНИЯ ПИКА

5.1.1 Введение

Энергетическая градуировка гамма-спектрометрической системы позволяет получить соотношение между энергией, потерянной гамма-излучением в детекторе, и амплитудой соответствующего выходного импульса усилителя. Амплитуда импульса измеряется либо аналогово-цифровым преобразователем (АЦП) многоканального анализатора (МКА), либо одним или несколькими одноканальными анализаторами (ОКА). Энергетическая градуировка используется для определения ширины и положения рассматриваемых областей (РО), для определения разрешения и значений энергий любых неидентифицированных гамма-квантов.

Энергетическая градуировка хорошей спектрометрической системы приблизительно линейна:

$$E = mx + b, \tag{5.1}$$

где E — энергия, потерянная в детекторе;

m — наклон;

x — амплитуда выходного импульса;

b — пересечение (смещение энергетической шкалы).

Предположение линейности обычно является достаточным для методик неразрушающего анализа (НРА). Однако не существует абсолютно линейных систем, каждая имеет небольшую, но измеримую нелинейность. Когда необходимо получить более точное соотношение, используются полиномы более высоких порядков. Значения энергии гамма-квантов могут определяться с погрешностью от 0,01 до 0,05 кэВ при использовании нелинейной характеристики градуировки и нескольких стандартных источников гамма-излучения с энергиями, известными с погрешностью менее 0,001 кэВ.

Для детекторов низкого разрешения (например, сцинтилляторов NaI(Tl)) часто используют уравнение (5.1) с нулевым значением пересечения ($b = 0$). Обычно линейная аппроксимация является приемлемой даже для задач НРА высокого разрешения. Для хорошего германиевого детектора линейная градуировка будет определять энергию пиков с погрешностью до десятой доли кэВ, что отвечает требованиям определения присутствия изотопа в исследуемом образце. Для большинства изотопов, представляющих интерес для НРА, гамма-спектр настолько специфичен, что для идентификации присутствия изотопов опытному специалисту достаточно визуального просмотра спектра на дисплее МКА. На рис. 5.1 показан характерный спектр плутония низкого выгорания, а на рис. 5.2 представлен характерный спектр урана природного обогащения (0,7 % ^{235}U).

Процедура градуировки включает определение положений пиков известной энергии в каналах и подгонку этих значений к градуировочной функции. Часто для определения энергетической градуировки могут использоваться гамма-кванты от измеряемых образцов ядерных материалов. На рис. 5.1 показано, что спектры плутония имеют свободные от интерференции пики при следующих значениях энергий: 59,54; 129,29; 148,57; 164,57; 208,00; 267,54; 345,01; 375,04 и 413,71 кэВ. Подобные внутренние градуировки возможны для многих нуклидов [1, 2].

Когда измеряемые ядерные материалы не могут обеспечить требуемую внутреннюю градуировку, используются стандарты изотопов, которые испускают гамма-кванты известных энергий. В табл. 5.1 приведен список наиболее часто используемых изотопов, а также значения их периодов полураспада и энергий их основных излучений [3]. Большинство приведенных в списке изотопов испускают только несколько гамма-линий и применимы для детекторов как низкого, так и высокого разрешения. Все изотопы, приведенные в таблице, могут быть приобретены у коммерческих поставщиков. Закрытые источники обычно содержат единственный изотоп и производятся в широком диапазоне форм и размеров. Активности источников от 0,1 до 100 мкКи обычно отвечают требованиям энергетической градуировки. У большинства поставщиков можно приобрести удобные наборы, содержащие от шести до восьми источников отдельных изотопов. Эти источники используются для настройки, тестирования и контроля многих эксплуатационных характеристик спектрометрических систем. Наборы источников полезны для выполнения энергетической градуировки, проверки разрешения и измерения эффективности детектора, регулировки схемы «полос-ноль» и поправки потерь из-за высокой загрузки.

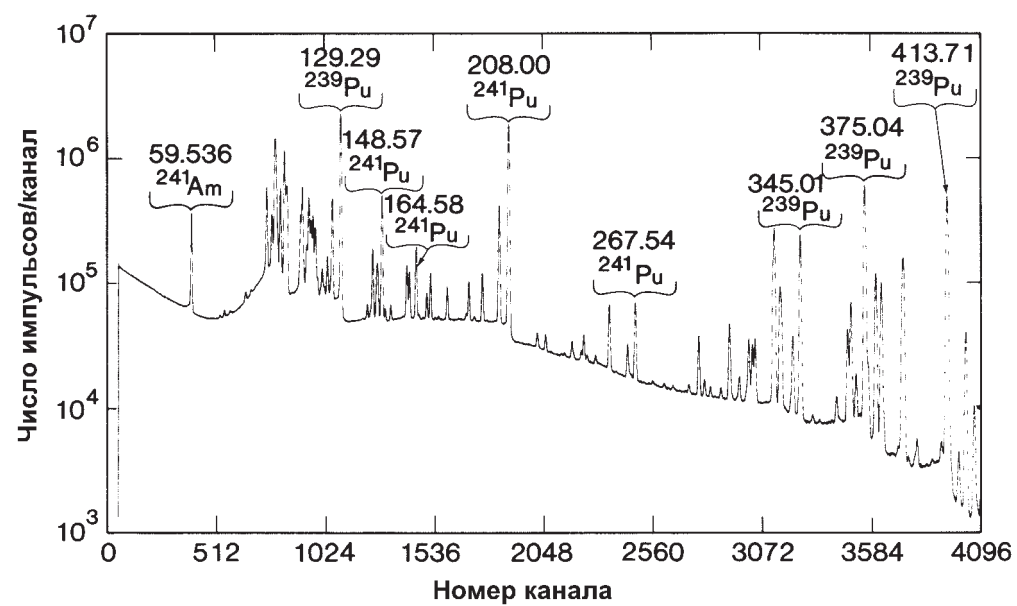


Рис. 5.1. Спектр плутония низкого выгорания, измеренный с помощью детектора высокого разрешения. Обозначенные на рисунке пики используются при энергетической градуировке спектра плутония. Для получения значения энергии в килоэлектронвольтах следует номер канала разделить на 10 и прибавить 20

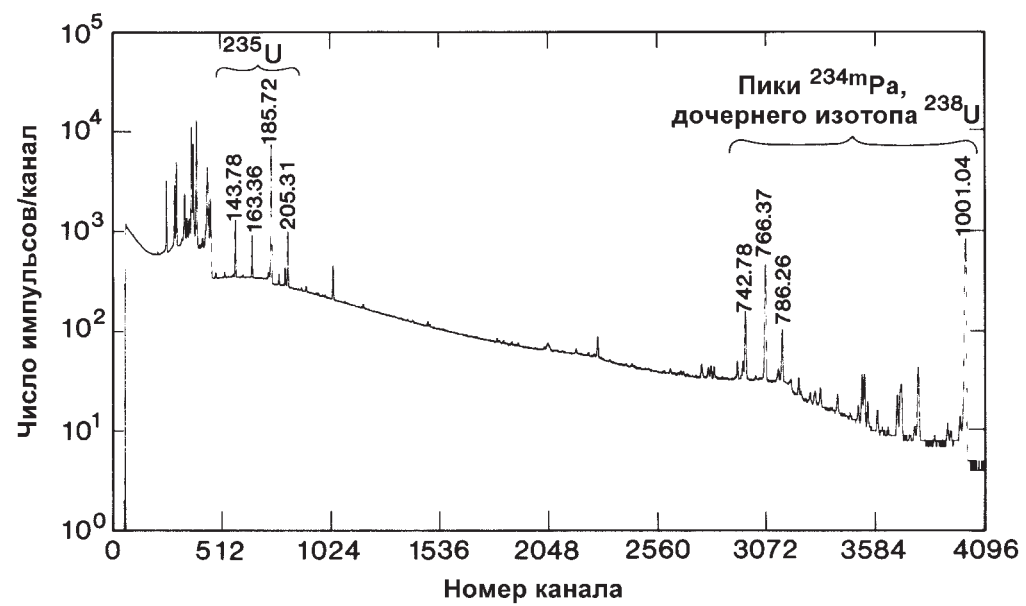


Рис. 5.2. Спектр урана природного обогащения (0,7% ^{235}U), измеренный с помощью детектора высокого разрешения. Для получения значения энергии в килоэлектронвольтах следует номер канала разделить на 4

Таблица 5.1 – Периоды полураспада и энергии основных излучений для отдельных изотопов*

Нуклиды	T _{1/2}	Энергия, кэВ	Примечания
²⁴¹ Am	433 г.	59,54	Существует много других гамма-линий, но более слабых — в 10 ⁴ и более раз
¹³⁷ Cs	29,9 г.	661,64	Другим излучением являются К-линии рентгеновского излучения от Ba
¹³³ Ba	10,9 г.	81,0; 276,40; 302,85; 356,00; 383,85	Существует несколько других, но намного более слабых гамма-линий
⁶⁰ Co	5,3 г.	1173,23; 1332,51	
²² Na	2,8 г.	511,01 1274,51	Аннигиляционное излучение
⁵⁵ Fe	2,7 г.	Рентгеновские лучи К-серии от Mn 5,9; 6,5	Часто используют для градуировки в области низких энергий
¹⁰⁹ Cd	1,2 г.	88,04	К-линии рентгеновского излучения Ag с энергией 22,16 и 24,9 кэВ
⁵⁴ Mn	312 сут	834,8	Моноэнергетический источник
⁶⁵ Zn	244 сут	511,01 1115,5	Аннигиляционное излучение
⁵⁷ Co	271 сут	122,06; 136,47	Существуют две другие гамма-линии более высокой энергии, но значительно более слабые
⁷⁵ Se	120 сут	121,12; 136,00; 264,65; 279,53; 400,65	Существует несколько других, но значительно более слабых гамма-линий

* Представлены в порядке уменьшения периода полураспада. Все приведенные изотопы можно использовать, по крайней мере, в течение 1 года, так как их периоды полураспада больше 100 дней.

Существуют также стандартные источники гамма-излучения с несколькими изотопами в одной капсуле. Эти многоэнергетические источники используются для определения характеристики энергетической градуировки и характеристики эффективности детекторов высокого разрешения. Источник SRM-4275 Национального бюро стандартов (NBS) содержит ¹²⁵Sb (период полураспада 2,75 г.), ¹⁵⁴Eu (период полураспада 8,49 г.) и ¹⁵⁵Eu (период полураспада 4,73 г.) и излучает 18 хорошо разрешенных гамма-линий со значениями энергий, находящимися в интервале между 27 и 1275 кэВ. Интенсивности всех 18 аттестованных гамма-линий хорошо известны с погрешностью менее 1 %.

5.1.2 Линейная энергетическая градуировка

Уравнение (5.1) описывает предполагаемую форму функции для линейной энергетической градуировки. Если известны положения x_1 и x_2 двух пиков полного поглощения, которым соответствуют значения энергий E_1 и E_2 , то m и b могут быть вычислены из следующих выражений:

$$m = \frac{(E_2 - E_1)}{(x_2 - x_1)}, \quad (5.2)$$

$$b = \frac{(x_2 E_1 - x_1 E_2)}{(x_2 - x_1)}. \quad (5.3)$$

Для градуировки по двум точкам, чтобы избежать дальних экстраполяций вне области градуировки, необходимы два градуировочных пика, которые должны располагаться на концах рассматриваемого энергетического диапазона.

Когда проявляется неприемлемая степень нелинейности, могут быть использованы несколько линейных градуировок на более коротких энергетических интервалах. Спектры, измеренные с высоким разрешением, для большинства плутониевых образцов имеют девять хорошо разрешенных пиков в диапазоне энергий между 59,5 и 413,7 кэВ, поэтому можно построить восемь линейных градуировок на интервалах между соседними пиками; протяженность любого интервала не превышает 78 кэВ. Набор линейных градуировок для коротких участков может быть такой же точности, как единственная градуировочная кривая с полиномом второго или более высокого порядка.

Когда в рассматриваемой энергетической области имеется более двух пиков, для подгонки градуировочной линии ко всем пикам может быть использован метод наименьших квадратов. Использование этого метода позволяет определить параметры m и b для n пиков с помощью следующих выражений:

$$m = \frac{n \sum x_i E_i - \sum x_i \sum E_i}{\Delta}, \quad (5.4)$$

$$b = \frac{\sum x_i^2 \sum E_i - \sum x_i \sum x_i E_i}{\Delta}, \quad (5.5)$$

где $\Delta = n \sum x_i^2 - (\sum x_i)^2$.

Линейную подгонку методом наименьших квадратов можно проводить с использованием большинства ручных калькуляторов. Многие системы МКА могут определять x_i и рассчитывать значения m и b для любого выбранного числа пиков. Некоторые системы позволяют выполнять также квадратичную подгонку.

Линейная градуировка обычно удовлетворяет требованиям задач НРА. В табл. 5.2 приводятся результаты линейной градуировки по двум и девяти точкам плутониевого спектра высокого качества. Установкой гамма-линии ^{241}Am 59,536 кэВ на канале 395,0, и гамма-линии ^{239}Pu 413,712 кэВ на канале 3937,0, была получена следующая градуировочная зависимость: $E \text{ (кэВ)} = 0,1x + 20,0$. Во втором столбце табл. 5.2 приведены положения пиков, определенные с помощью подгонки кривой Гаусса к верхней части пиков. В третьем и четвертом столбцах даны разности между общепринятыми значениями энергий и значениями, полученными с помощью градуировок по двум и девяти точкам. Несмотря на то, что существует заметная нелинейность в соотношении между энергией и каналом,

максимальная погрешность градуировки по двум точкам не превышает $\sim 0,03$ кэВ и $\sim 0,017$ кэВ — для градуировки по девяти точкам. Последовательность приведенных в таблице результатов показывает, что положения пиков могут быть определены с погрешностью $\sim 0,1$ канала ($\sim 0,01$ кэВ), и что измеренные и общепринятые значения энергий пиков согласуются с погрешностью $\sim 0,01$ кэВ.

Таблица 5.2 – Результаты линейных энергетических градуировок высококачественного спектра плутония

Общепринятые значения энергии пиков, кэВ	Положения пиков, каналы	Разность значений энергий, кэВ*	
		градуировка по двум точкам	градуировка по девяти точкам
59,536	395,00	---	- 0,017
129,294	1092,77	0,014	- 0,001
148,567	1285,51	0,014	0,000
164,58	1445,80	0,029	+ 0,015
208,000	1879,96	0,022	+ 0,009
267,54	2475,37	0,019	+ 0,007
345,014	3249,98	0,001	- 0,009
375,042	3550,40	0,013	+ 0,004
413,712	3937,00	---	- 0,008

*Приведенные в таблице числа являются разностью значений энергий, полученных при градуировке, и их общепринятых значений. Для градуировки по двум точкам $m = 0,099993$ кэВ/канал, $b = 20,039$ кэВ. Для градуировки по девяти точкам $m = 0,099996$ кэВ/канал, $b = 20,021$ кэВ.

5.1.3 Определение положения пика (центроиды)

Даже для детекторов с высоким разрешением ширина пиков полного поглощения обычно составляет, как минимум, несколько каналов. Пики почти симметричны, и в качестве положения пиков выбираются их центроиды, определенные осью симметрии. Пики полного поглощения обычно хорошо описываются функцией Гаусса следующего вида:

$$y(x) = y_0 \exp[-(x - x_0)^2 / 2\sigma^2], \quad (5.6)$$

где $y(x)$ — число отсчетов в канале x ;

y_0 — амплитуда пика;

x_0 — центроида пика;

σ^2 — дисперсия.

В литературе [4, 5 и 6] приводится подробное объяснение свойств функции Гаусса. Функция Гаусса симметрична относительно точки x_0 , которая является центроидой пика и используется при энергетической градуировке. Параметр y_0 является максимальным значением функции и почти равен максимальному числу отсчетов в канале пика, если фон под ним пренебрежимо мал. Между парамет-

ром σ^2 (дисперсией) и полной шириной на половине высоты FWHM функции Гаусса справедливо следующее соотношение:

$$\text{FWHM} = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma = 2,35482 \sigma. \quad (5.7)$$

Площадь под кривой Гаусса определяется выражением

$$A = \sqrt{2\pi} \sigma y_0 = 2,507 \sigma y_0 = 1,0645(\text{FWHM})y_0. \quad (5.8)$$

Постоянная в последней части уравнения (5.8) близка к единице, так как площадь кривой Гаусса незначительно превышает площадь равнобедренного треугольника с той же высотой и шириной на уровне половины максимума.

Пики полного поглощения не повторяют точно форму кривой Гаусса. Для германиевых детекторов высокого качества трудно увидеть отклонение от формы кривой Гаусса, но для детекторов низкого качества легко обнаружить эти отклонения в виде избыточного числа отсчетов на низкоэнергетической стороне пика (называемой хвостом). При очень высоких нагрузках или плохо отрегулированном оборудовании иногда видны высокоэнергетические хвосты. Верхняя часть пика, составляющая от половины до двух третей высоты, обычно хорошо описывается кривой Гаусса, а центроида, полученная с помощью подгонки функции Гаусса к верхней части пика, достаточно точно определяет его положение. На рис. 5.3(а), (б) и (в) показан пик полного поглощения ^{60}Co с энергией 1332,5 кэВ и подогнанная функция Гаусса. Рис. 5.3(а) соответствует германиевому детектору высокого качества при низкой скорости счета с правильно отрегулированной электроникой. Отклонения от кривой Гаусса трудно различимы за исключением наличия незначительного низкоэнергетического хвоста. На рис. 5.3(б) представлен спектр, полученный с помощью детектора с плохой формой пика, где хорошо виден низкоэнергетический хвост. На рис. 5.3(в) показан спектр, полученный с помощью того же детектора, что и на рис. 5.3(а), но при очень высоких нагрузках, которые обуславливают наличие отчетливого высокоэнергетического хвоста и значительные отклонения от формы истинной кривой Гаусса. Во всех трех случаях функция Гаусса, которая подгоняется к верхним двум третям пика, позволяет точно определить положение пика.

5.1.4 Визуальное определение положения пика

Человеческий глаз очень хорошо делит пополам симметричные формы. Когда пик может быть выведен на дисплей МКА, оценки положений пиков можно сделать визуально с погрешностью до нескольких десятых долей канала. Перемещаемые маркеры (курсоры), которые имеются у большинства дисплеев МКА, помогают в проведении визуальных определений.

5.1.5 Графическое определение положения пика

На рис. 5.4 показан спектр ^{137}Cs , полученный с помощью высококачественного сцинтиллятора NaI(Tl) с размерами чувствительного объема $\varnothing 7,62 \times 7,62$ см и ОКА. Желательно изображать такие спектры в виде гистограмм с шириной полосы, равной ширине окна, а низкоэнергетическую сторону полосы начинать со значения установленного порогового напряжения. Обычно интервалы между установленными порогами равны ширине окна. Центр пика определяется построени-

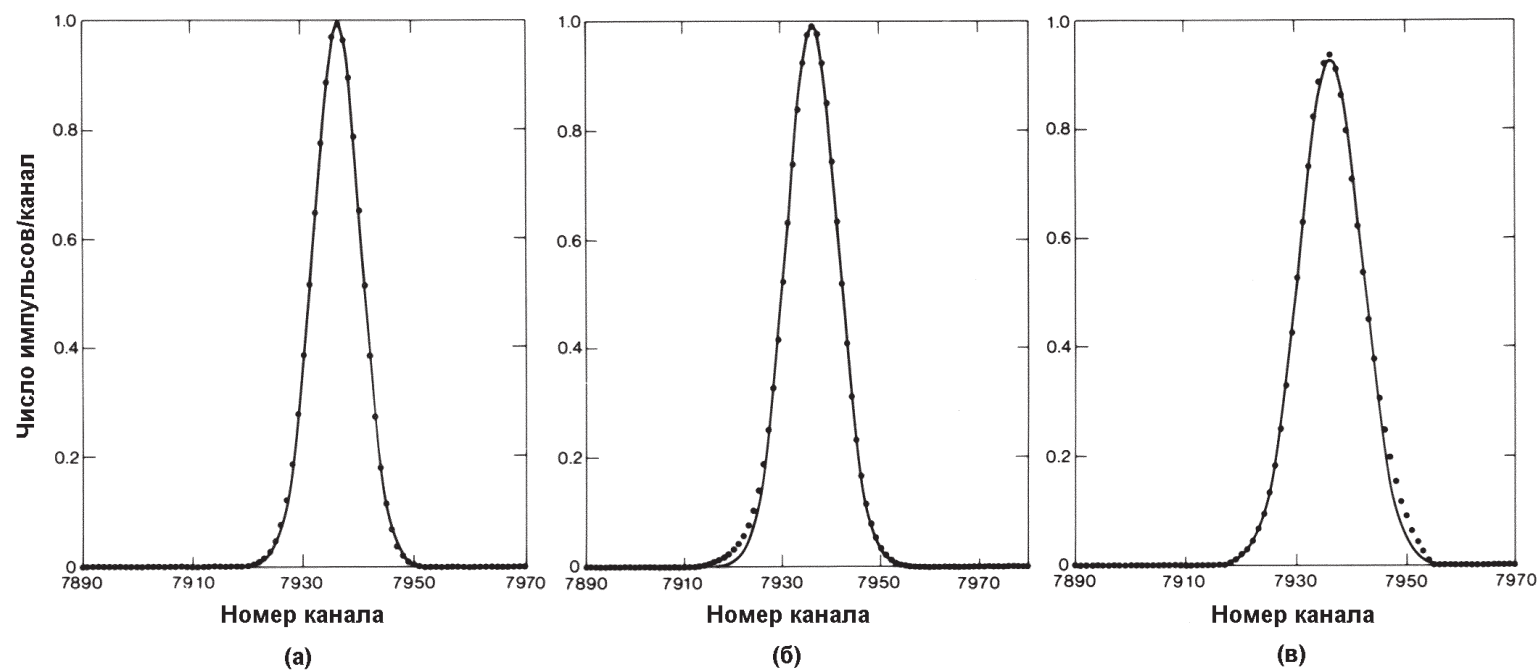


Рис. 5.3. Пик полного поглощения ^{60}Co с энергией 1332,5 кэВ для трех комбинаций детектора и скорости счета: (а) высококачественный германиевый детектор и низкая скорость счета; (б) германиевый детектор с плохой формой пика; (в) высококачественный германиевый детектор и высокая скорость счета. Функция Гаусса подгоняется к верхним двум третям пика

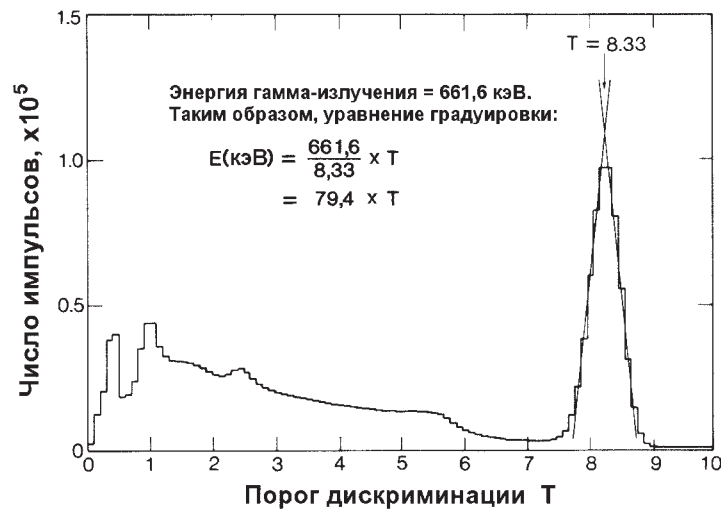


Рис. 5.4. График спектра ^{137}Cs , полученного с помощью сцинтилляционного детектора NaI с чувствительной областью 7,62×7,62 см и ОКА. График показывает способ оценки центра пика с помощью визуального подбора пересечения линий, которые проходят вдоль сторон пика

ем прямых линий вдоль обеих сторон пика через центры полос. Пересечение двух линий и является центром пика.

5.1.6 Определение положения пика методом первых моментов

Центроида положительной функции $y(x)$ определяется выражением:

$$\bar{x} = \frac{\int_{x_1}^{x_2} x y(x) dx}{\int_{x_1}^{x_2} y(x) dx} \approx \frac{\sum x_i y_i}{\sum y_i}, \quad (5.9)$$

где x_1 и x_2 — границы рассматриваемой площади;

y_i — число отсчетов в канале x_i .

Этот способ называется методом первых моментов потому, что числитель уравнения (5.9) является первым моментом $y(x)$. Для функции Гаусса (уравнение (5.6)) $\bar{x} = x_0$. При вычислениях интегралы заменяются суммами, которые являются хорошим приближением к ним. Функция Гаусса стремится к нулю при $x \rightarrow \pm\infty$; однако суммирование в диапазоне трех FWHM обычно вполне достаточно. Если пик симметричен, а диапазон суммирования симметричен по отношению к пику, даже без вычитания фона под пиком получаются хорошие результаты. Результаты таких вычислений будут ошибочными, если под пиком имеется большой фон, а диапазон суммирования расположен асимметрично. Если фон под пиком вычитается, погрешность в вычислении положения пика, обусловленная асимметрией диапазона суммирования, мала. На рис. 5.5 показаны примеры правильного и неправильного выбора диапазона суммирования. Методы вычитания фона рассматриваются в этой главе далее.

Метод первых моментов особенно полезен для пиков с относительно небольшим числом отсчетов в каналах. Для пиков с явной асимметрией этот метод следу-

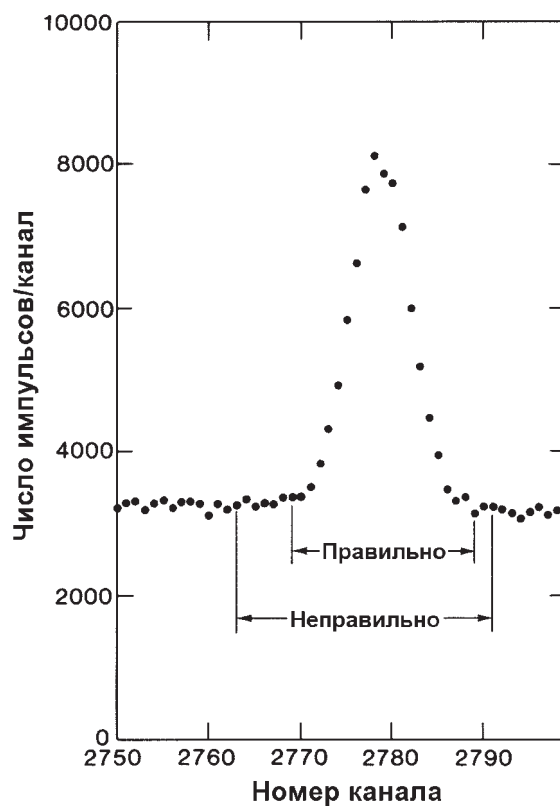


Рис. 5.5. Участок спектра с пиком, на котором представлены правильно и неправильно выбранные диапазоны суммирования при определении центроиды пика методом первого момента

ет использовать осторожно, поскольку рассчитанная центроида не будет совпадать с центроидой функции Гаусса, которая должна определяться при энергетической градуировке. Для использования процедуры первых моментов не требуется, чтобы пик имел форму функции Гаусса, но необходимо, чтобы он был симметричным.

5.1.7 Определение положения пика с помощью метода пяти каналов

Для оценки центроиды пика с помощью метода пяти каналов используется канал с максимальным числом отсчетов и два смежных с ним канала с каждой стороны. Соответствующая формула имеет следующий вид:

$$x_0 = x_m + \frac{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) - y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) + y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}, \quad (5.10)$$

где m — номер канала с максимальным числом отсчетов;
 y_i — число отсчетов в канале x_i .

Уравнение (5.10) предполагает, что форма пика близка к форме кривой Гаусса. Подобная формула может быть выведена в предположении, что вершина пика имеет параболическую форму. Уравнение (5.10) хорошо работает, когда выше точки FWHM имеется от 6 до 30 каналов, а также достаточное число отсчетов в пяти каналах для четкого описания формы вершины пика. Для широких пиков, измеренных с низкой точностью, метод пяти каналов работает не так хорошо, как метод первых моментов. Однако метод пяти каналов менее чувствителен по сравнению с методом первых моментов к асимметричным хвостам для плохих детекторов.

5.1.8 Определение положения пика с помощью подгонки линейаризованной функцией Гаусса

Эта процедура преобразует пик в форме кривой Гаусса в линейную функцию, а затем подгоняет линию к преобразованному пику. Наклон и пересечение подгоняемой линии связаны с параметрами x_0 и σ . Фон под пиком предварительно вычитается так, чтобы подгонка выполнялась только к пику, который имеет форму кривой Гаусса.

Преобразования, которые линеаризуют функцию Гаусса, стали применяться совсем недавно для определения параметров пиков гамма-излучения [7]. Простейшим типом подобных преобразований является функция

$$Q(x) = \ln \frac{y(x-1)}{y(x+1)} = \frac{2}{\sigma^2} x - \frac{2x_0}{\sigma^2}, \quad (5.11)$$

где $y(x)$ — число отсчетов в канале x .

Последнее выражение в уравнении (5.11) справедливо, если $y(x)$ является обычной функцией Гаусса. Линейная функция $Q(x)$ имеет наклон m и пересечение b , определяемые как

$$\begin{aligned} m &= 2/\sigma^2; \\ b &= -2x_0/\sigma^2. \end{aligned} \quad (5.12)$$

Решая эти уравнения относительно σ^2 и x_0 , получаем

$$\begin{aligned} \sigma^2 &= 2/m; \\ x_0 &= -b/m. \end{aligned} \quad (5.13)$$

Уравнение (5.14) дает выражения для наклона и пересечения линии подгонки к набору точек $[x, Q(x)]$ методом взвешенных наименьших квадратов:

$$\begin{aligned} b &= \frac{1}{\Delta} \left(\sum \frac{x_i^2}{s_i^2} \sum \frac{Q_i}{s_i^2} - \sum \frac{x_i}{s_i^2} \sum \frac{x_i Q_i}{s_i^2} \right); \\ m &= \frac{1}{\Delta} \left(\sum \frac{1}{s_i^2} \sum \frac{x_i Q_i}{s_i^2} - \sum \frac{x_i}{s_i^2} \sum \frac{Q_i}{s_i^2} \right), \end{aligned} \quad (5.14)$$

где $\Delta = \sum \frac{1}{s_i^2} \sum \frac{x_i^2}{s_i^2} - \left(\sum \frac{x_i}{s_i^2} \right)^2$;

s_i^2 — оцененная дисперсия величины $Q(x)$.

Оцененная дисперсия $Q(x)$ является функцией только неопределенностей в $y(x)$:

$$s^2[Q(x)] = s_r^2[y(x-1)] + s_r^2[y(x+1)], \quad (5.15)$$

где $s_r(y) \equiv s(y) / y$

Если фон так мал, что им можно пренебречь, то

$$s_r^2[y(x)] \approx 1 / y(x). \quad (5.16)$$

Если фон вычитается с помощью прямой линии по процедуре, показанной позднее в разделе 5.3.3, для оценки $s^2[y(x)]$ используется следующее выражение:

$$s^2[y(x)] = y_t(x) + \frac{1}{4} \left[k^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2-k)^2 \frac{B_l}{N_l^2} \right], \quad (5.17)$$

где $k = \frac{2(x-x_l)}{(x_h-x_l)}$.

Значение $y_t(x)$ является общим числом отсчетов в канале x , а значения других параметров даны в разделе 5.3.3.

Для линейной подгонки существуют простые выражения для оценок дисперсий s^2 значений m и b :

$$\begin{aligned} s^2(m) &\approx \frac{1}{\Delta} \sum \frac{1}{s_i^2}; \\ s^2(b) &\approx \frac{1}{\Delta} \sum \frac{x_i}{s_i^2}. \end{aligned} \quad (5.18)$$

Несмотря на то, что описанная процедура подгонки может казаться до некоторой степени сложной, она может производиться с помощью короткой вычислительной программы всего за несколько секунд. Чтобы избежать трудностей из-за хвостов пика, форма которых отличается от формы кривой Гаусса, и из-за неточных данных, функцию Гаусса следует подгонять только к верхней части пика, составляющей от трех четвертей до двух его третей. n каналов в пике позволяют определить $n-2$ параметра функции $Q(x)$. Когда при подгонке используются не менее четырех или пяти значений, их более чем достаточно, чтобы определить центры пиков, значения которых необходимы для энергетической градуировки. К сожалению, используя эту процедуру подгонки, очень трудно оценить статистическую неопределенность значения x_0 . Однако опыт показывает, что для пиков, имеющих приемлемые точности, значения x_0 получаются с погрешностью $\sim 0,1$ канала или лучше.

При автоматизированной обработке необходимо создать критерий для проверки пригодности функции Гаусса для описания входных данных. Приведенная статистика хи-квадрат χ^2/ν обеспечивает такой критерий. При линейной подгонке функции $Q(x)$ по отношению к x значения этой статистики определяются из выражения:

$$\chi^2 / \nu = \frac{1}{n-2} \left\{ \sum \frac{1}{s_i^2} [Q_i - (mx_i + b)]^2 \right\}, \quad (5.19)$$

где m и b вычисляются из уравнения (5.14), а n является числом значений функции $Q(x)$, которые используются при подгонке. Для хороших подгонок χ^2/ν должно быть близко к 1,00 (см. [5], где в доступной форме представлены описания свойств χ^2/ν). Величина χ^2/ν действительно составляет $\sim 1,00$ для пиков, которые имеют хорошую форму. Так как максимальное число отсчетов в канале увеличивается, то χ^2/ν возрастает, даже если форма пика остается такой же. Возрастание χ^2/ν не обязательно означает, что подгонка не отвечает требованиям определения градуировочной энергии или проверке разрешения. При низкой точности высокому качеству подгонки препятствует недостаточная статистика отсчетов; а при высокой точности ему мешают неизбежные небольшие отклонения формы пика от истинной формы кривой Гаусса, которые приводят к увеличению вычисляемого значения χ^2/ν . Практика подскажет приемлемое значение χ^2/ν для данного диапазона точности пика.

На рис. 5.6 показан пик спектра, измеренного с низкой точностью при помощи германиевого детектора (FWHM ~ 19 каналов), вместе с наложенной на него подгоняемой функцией Гаусса. Нижняя часть рисунка показывает график функции $Q(x)$ от x для верхних двух третей пика вместе с подгоняемой линией, а также параметры рассматриваемого пика.

5.1.9 Определение положения пика с использованием подгонки параболаризованной функцией Гаусса

Натуральный логарифм функции Гаусса является параболой, что становится заметным, когда пики полного поглощения рассматриваются с использованием дисплея МКА в логарифмическом масштабе. Натуральный логарифм функции Гаусса (уравнение (5.6)) представляется в виде

$$\ln y = c_2 x^2 + c_1 x + c_0, \quad (5.20)$$

где $c_2 = -1 / 2\sigma^2$;

$$c_1 = x_0 / \sigma^2;$$

$$c_0 = \ln y_0 - x_0^2 / 2\sigma^2.$$

Подгонка уравнения (5.20) к набору точек $(x_i, \ln y_i)$ дает значения c_2 , c_1 и c_0 , которые позволяют получить параметры кривой Гаусса:

$$x_0 = -c_1 / 2c_2;$$

$$\sigma = \sqrt{-1 / 2c_2};$$

$$\ln y_0 = c_0 - c_1^2 / 4c_2. \quad (5.21)$$

Подгоняемая кривая является параболой, которая направлена крыльями вниз, а ее ось параллельна оси y . Процедура, описанная здесь, позволяет определить значение y_0 в дополнение к двум параметрам: x_0 и b , полученным с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса. Следовательно, площадь пика полного поглощения можно определить с помощью уравнения (5.8).

На рис. 5.7 показана подгонка параболаризованной кривой Гаусса к пику спектра высокой точности от гамма-излучения ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Использовался тот же германиевый детектор высокого качества, что и на рис. 5.3(а). Сбор

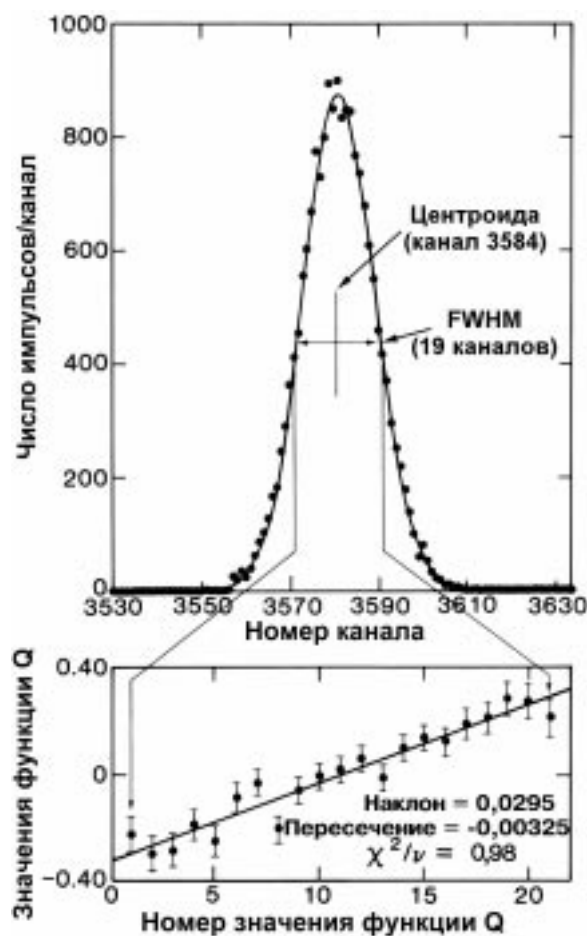


Рис. 5.6. Верхняя часть рисунка показывает пик, измеренный с низкой точностью при помощи детектора высокого разрешения, к которому подгонялась линеаризованная функция Гаусса. Нижняя часть рисунка показывает график точечных значений $Q(x)$ и подогапанную линию

заряда на низких энергиях в германиевом детекторе производился более полный, чем на высокой энергиях, что привело к меньшему затягиванию низкоэнергетического хвоста. Сравнение рис. 5.3 (а) и 5.7 показывает, что затягивание хвоста пика 122 кэВ на рис. 5.7 даже ниже, чем небольшое затягивание хвоста пика 1332 кэВ на рис. 5.3 (а).

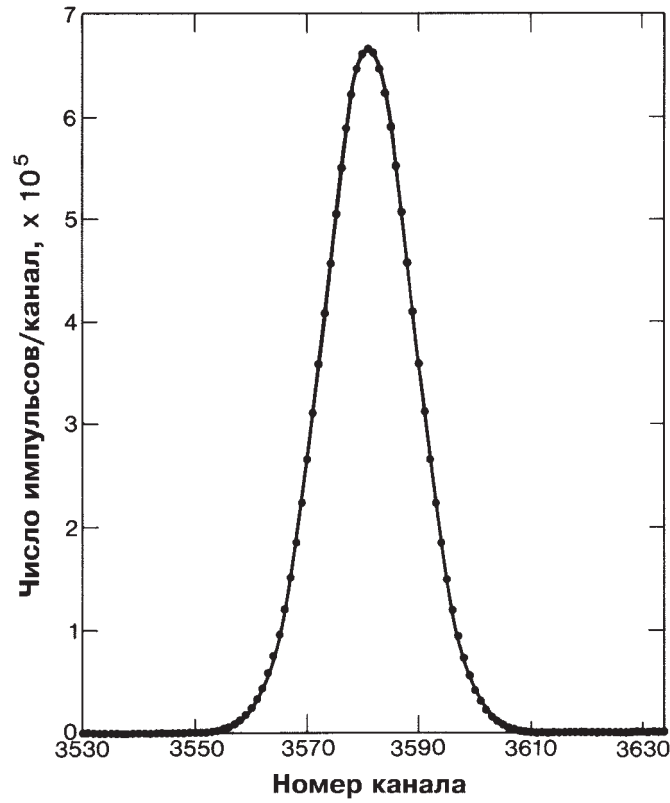


Рис. 5.7. Участок спектра с пиком полного поглощения ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Спектр получен с помощью коаксиального германиевого детектора высокого разрешения с хорошей формой пика полного поглощения. Кривой подгонки является параболаризованная функция Гаусса

Выражения для подгонки взвешенных наименьших квадратов приведены здесь для удобства возможных пользователей. Выражения даны в форме определителей и включают восемь сумм, обозначенных S1, S2, ..., S8.

$$\begin{aligned}
 c_0 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_6 & S_2 & S_3 \\ S_7 & S_3 & S_4 \\ S_8 & S_4 & S_5 \end{vmatrix}, \\
 c_1 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_1 & S_6 & S_3 \\ S_2 & S_7 & S_4 \\ S_3 & S_8 & S_5 \end{vmatrix}, \\
 c_2 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_1 & S_2 & S_6 \\ S_2 & S_3 & S_7 \\ S_3 & S_4 & S_8 \end{vmatrix},
 \end{aligned} \tag{5.22}$$

$$\text{где } \Delta = \begin{vmatrix} S1 & S2 & S3 \\ S2 & S3 & S4 \\ S3 & S4 & S5 \end{vmatrix};$$

$$S1 = \sum \frac{1}{s_i^2}; \quad S2 = \sum \frac{x_i}{s_i^2}; \quad S3 = \sum \frac{x_i^2}{s_i^2}; \quad S4 = \sum \frac{x_i^3}{s_i^2};$$

$$S5 = \sum \frac{x_i^4}{s_i^2}; \quad S6 = \sum \frac{\ln y_i}{s_i^2}; \quad S7 = \sum \frac{x_i \ln y_i}{s_i^2}; \quad S8 = \sum \frac{x_i^2 \ln y_i}{s_i^2}.$$

Как обычно, суммирование производится по всем точкам подгонки. В значениях y_i вычтен фон. Кроме того, для процедуры подгонки требуются следующие выражения:

$$s_i = s(\ln y_i),$$

$$s(\ln y) = \frac{s(y)}{\ln y}, \quad (5.23)$$

где $s(y)$ определяется уравнением (5.17). Выражение для χ^2/ν , которое представляет статистику качества подгонки, определяется следующей формулой:

$$\chi^2 / \nu = \frac{1}{n-3} \left\{ \sum_i \frac{1}{s_i^2} [\ln y_i - (c_2 x_i^2 + c_1 x_i + c_0)]^2 \right\}, \quad (5.24)$$

где n — число точек подгонки, а c_2 , c_1 и c_0 — величины, которые определяются из уравнения (5.22).

Замечания, сделанные в предыдущем разделе относительно части пика, которую следует подгонять, и относительно тенденций статистики χ^2/ν в данном случае также справедливы. Квадратичные подгонки предъявляют определенные требования к компьютеру, и для выполнения правильной квадратичной подгонки с заданной точностью часто недостаточно шестизначных десятичных цифр, которые обеспечиваются 16-ти разрядными процессорами, работающими с одинарной точностью.

5.1.10 Определение положения пика с помощью сложных программ подгонки спектра

Для анализа сложных спектров с перекрывающимися пиками используются большие вычислительные программы подгонки. Они описывают пики функциями, которые используют функцию Гаусса в качестве основной, с добавлением хвостовых функций для более точного описания формы пика. Для подгонки данных используется итерационная нелинейная процедура наименьших квадратов. Центроида функции Гаусса, которая является составляющей пика, принимается за положение пика и используется для определения значения энергии рассматриваемого гамма-излучения.

5.2 ИЗМЕРЕНИЯ РАЗРЕШЕНИЯ ДЕТЕКТОРА

5.2.1 Введение

Этот раздел посвящается, главным образом, измерению разрешения детектора. Трудно переоценить важность обеспечения разрешения и хорошей формы пика для получения правильных результатов НРА. Узкая кривая Гаусса, используемая для описания формы пика, упрощает определение площади и минимизирует возможность появления смещения результатов анализа.

Полная ширина пика на половине высоты (FWHM или FW0,5M) является основной мерой разрешения пика. Она обычно приводится в единицах энергии (кэВ) для детекторов высокого разрешения, либо выражается в процентах от измеряемой энергии для детекторов низкого разрешения. Разрешение, измеренное в единицах энергии, возрастает с увеличением энергии: $FWHM^2 \approx a + bE$. Разрешение, измеряемое в процентах, уменьшается с увеличением энергии.

Большинство детекторов дают пики полного поглощения, которые выше уровня половины высоты являются фактически кривыми Гаусса. Отношение полной ширины на высотах ниже, чем половина максимума, к FWHM долго использовалось для количественного определения качества формы пика полного поглощения. Для описания качества формы пика производители измеряют FWHM (или FW0,5M) и ее отношение к полной ширине на одной десятой части максимума (FW0,1M); в течение многих лет величина FW0,1M/FW0,5M менее 1,9 считалась соответствующей хорошей форме пика. Сейчас, когда требуется наилучшая форма пика, определяют отношение FW0,02M/FW0,5M и даже FW0,01M/FW0,5M.

В табл. 5.3 приведены теоретические отношения для кривой Гаусса и измеренные отношения для коаксиального германиевого детектора высокого качества. Таблица показывает, что действительная форма пика близка к идеальной кривой Гаусса. Отношения на одной пятидесятой и одной сотой от максимума пика следует измерять после вычитания фона.

Таблица 5.3 – Теоретические и измеренные отношения разрешений

	FW0,1M/FW0,5M	FW0,02M/FW0,5M	FW0,01M/FW0,5M
Функция Гаусса	1,823	2,376	2,578
122,0 кэВ	1,829	2,388	2,599
	(1,003)*	(1,005)*	(1,008)*
1332,5 кэВ	1,856	2,428	2,640
	(1,018)*	(1,022)*	(1,024)*

* Отношение измеренного отношения к теоретическому отношению для функции Гаусса.

Спектр импульсов от детектора является сплошным, несмотря на то, что МКА или ОКА группирует импульсы в энергетических интервалах. Предполагается, что все события в интервале могут быть представлены энергией центра интервала. Когда функция Гаусса подгоняется к центральным точкам этого интервала, параметр ширины σ оказывается слегка больше, чем параметр исходного не-

прерывного распределения. Как предлагается в работе [8], дисперсия кривой Гаусса и действительная дисперсия соотносятся как

$$(\sigma^2)_G = (\sigma^2)_A + h^2 / 12,$$

$$(\text{FWHM}^2)_G = (\text{FWHM}^2)_A + 0,462h^2, \quad (5.25)$$

где $(\sigma^2)_G$ — дисперсия для интервального представления спектра;

$(\sigma^2)_A$ — действительная дисперсия;

h — ширина интервала (ширина канала МКА или окна ОКА).

Для спектра, измеренного МКА, величина h имеет размерность кэВ/канал, если величина FWHM представлена в кэВ, и $h=1,00$, если величина FWHM представлена числом каналов. В табл. 5.4 приведены соотношения $(\text{FWHM})_A / (\text{FWHM})_G$. Чтобы измерить действительное разрешение с погрешностью до 0,1 %, усиление системы должно быть отрегулировано так, чтобы обеспечить более 15 каналов в $(\text{FWHM})_G$. Если $(\text{FWHM})_G$ составляет всего 3 канала, то $(\text{FWHM})_A$ переоценена на ~ 3 %. Поправка не имеет практического смысла для площади пика полного поглощения. Функция Гаусса, подгоняемая к набранным точкам, имеет ту же площадь (с точностью лучше, чем 0,01 %), что и непрерывное распределение, потому что параметр y_0 уменьшается почти точно с таким же коэффициентом, с каким возрастает параметр ширины.

Таблица 5.4 – Отношение $(\text{FWHM})_A$ к $(\text{FWHM})_G$

FWHM _G , каналы	FWHM _A /FWHM _G
3,0	0,9740
5,0	0,9907
10,0	0,9971
15,0	0,9990
20,0	0,9994
25,0	0,9996
30,0	0,9997
35,0	0,9998
40,0	0,9999

5.2.2 Определение ширины пика с помощью визуальной оценки изображения на дисплее МКА

Визуальная оценка показывает себя наилучшим образом для МКА, которые имеют горизонтальные и вертикальные линии сетки и соответствующие ручки для управления вертикальной и горизонтальной развертками изображения. Многие маленькие МКА имеют такие возможности. Большие лабораторные модули обычно не позволяют пользователю осуществлять какой-либо контроль над вертикальным положением изображения.

Для определения значения FWHM с погрешностью до ~1 %, должен быть выбран такой коэффициент усиления энергии, чтобы FWHM составляла ≥ 10 каналов. После того как спектр получен, ручки регулировки дисплея устанавливаются так, чтобы отдельные каналы были разрешены и одна из горизонтальных линий решетки пересекала пик на половине максимума. На рис. 5.8 показан пик, разделенный горизонтальной линией на уровне половины максимума. После того как пик разделен пополам, подсчитываются каналы выше горизонтальной линии, оценивая их до десятых долей канала. Поскольку каналы нанесены в виде точек, фактически считают пространство между точками. Обычно фон на высокоэнергетической стороне пика считают "основанием" пика. Наклон линии энергетической градуировки используется для преобразования значения FWHM, выраженного в каналах, в энергию. Если энергетическая градуировка не была выполнена, можно использовать многоэнергетические источники. Большие германиевые детекторы градуируются с помощью гамма-излучения ^{57}Co с энергиями 122,06 и 136,47 кэВ и с помощью гамма-излучения ^{60}Co с энергиями 1173,2 и 1332,5 кэВ. В каждом из этих случаев энергетическая градуировка может быть

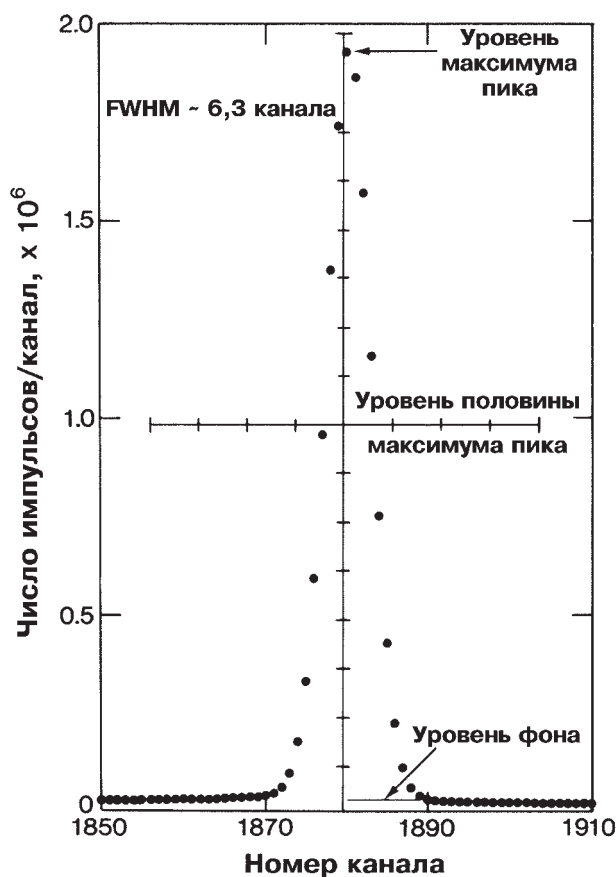


Рис. 5.8. Пик полного поглощения, разделенный на две части центральной линией дисплея МКА. Значение FWHM равно числу каналов выше уровня на половине максимума пика

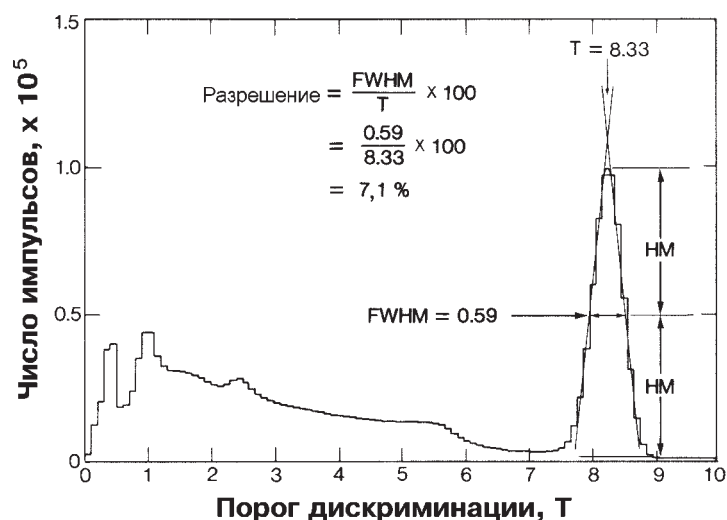


Рис. 5.9. Спектр ^{137}Cs , полученный ОКА с помощью детектора NaI

определена по расстоянию между парой пиков в каналах и известной разности энергий¹. Затем определяется разрешение, умножением значения FWHM, выраженного в каналах для 122 или 1332,5 кэВ пика, на наклон соответствующей энергетической градуировки (кэВ/канал). После небольшой практики значения FWHM (кэВ) могут быть определены с погрешностью 1 %.

5.2.3 Графическое определение ширины пика

Для измерения разрешения может быть использован такой же тип графика, как для энергетической градуировки (раздел 5.1.5); в действительности эти два измерения могут быть объединены. Для оценки максимальной высоты пика и линии на половине максимума пика необходимо нарисовать форму верхней части пика. На рис. 5.9 изображен тот же спектр ^{137}Cs , что и на рис. 5.4, но дополнительно показаны верхняя часть пика, линия на половине максимума и приведена оценка величины FWHM.

5.2.4 Определение ширины пика с помощью аналитической интерполяции

Процедура, приведенная ниже, количественно описывает графическую процедуру, представленную в предыдущем разделе. Большинство функций для определения значения FWHM, встроенных в современные системы МКА, используют некоторые вариации этой процедуры. Интерполяционная процедура особенно полезна тем, что позволяет легко определить полную ширину на любой доле высоты пика.

1 Наиболее точное значение разности энергий между двумя гамма-излучениями ^{57}Co составляет 14,413 кэВ, наиболее точное значение разности энергий между двумя гамма-излучениями ^{60}Co составляет 159,27 кэВ.

На рис. 5.10 показан пик полного поглощения и канал, который соответствует максимальному числу отсчетов и расположен близко к центроиде. На рисунке линия, пересекающая пик, показывает часть высоты, на которой оценивается ширина пика. Координаты точек по оси x пересечения пика линией на высоте, составляющей K -ю часть от максимума пика, равны

$$\begin{aligned} x_l &= \frac{K y_p - y_l}{y_2 - y_1} + x_1, \\ x_h &= \frac{y_3 - K y_p}{y_3 - y_4} + x_3, \end{aligned} \quad (5.26)$$

где K — часть пика относительно его максимума, на которой оценивается ширина пика;

y_x — число отсчетов в канале x ;

y_p — число отсчетов в канале с максимальной интенсивностью;

x_l — координата на оси x пересечения K -линии с низкоэнергетической стороной пика;

x_h — координата на оси x пересечения K -линии с высокоэнергетической стороной пика;

x_1, x_2 — каналы ниже и выше x_l ;

x_3, x_4 — каналы ниже и выше x_h .

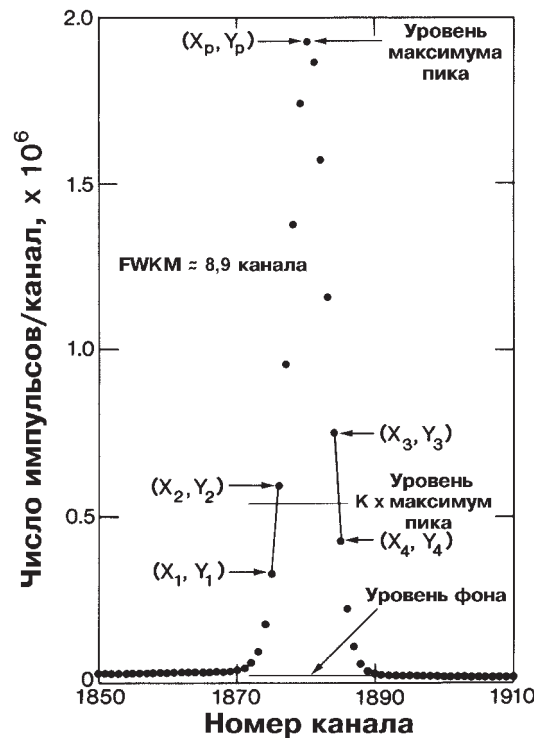


Рис. 5.10. Диаграмма процедуры определения значения $FWKM$ с помощью линейного интерполирования. Значение коэффициента K может изменяться в пределах от 0,0 до 1,0

Полная ширина на уровне К-й части от максимума пика (FWKM) равна

$$\text{FWKM} = x_h - x_l = (x_3 - x_1) + \left[\left(\frac{y_3 - Ky_p}{y_3 - y_4} \right) - \left(\frac{Ky_p - y_1}{y_2 - y_1} \right) \right]. \quad (5.27)$$

Для получения наиболее точных результатов необходимо наиболее точно оценить величину y_p . Когда на вершине пика находятся два канала с равными числами отсчетов, максимальное значение пика явно выше максимального значения в канале. Максимальное значение в канале недооценивает величину Ky_p и дает немного большее значение величины FWKM. Процедуру следует применять к пикам, которые близки к симметричным относительно канала с максимальным числом отсчетом. Максимум пика y_p может быть точно определен с помощью подгонки кривой Гаусса к верхней части пика. Форма пика может быть точно определена, если использовать пик с хорошей статистической точностью на всех измеряемых уровнях. Для измерения FW 0,01M следует использовать $y_p \sim 10^6$ так, чтобы погрешность на уровне 0,01 все еще была равна $\sim 1\%$. Для получения состоятельных результатов для пиков с плохой точностью может быть использовано сглаживание; однако процедура сглаживания всегда немного расширяет пики.

5.2.5 Определение ширины пика с помощью метода вторых моментов

Метод вторых моментов для определения параметра ширины σ аналогичен методу первых моментов, который используется для получения центроиды. Второй момент нормализованной функции Гаусса равен σ^2 — дисперсии функции. Для ненормализованной функции в уравнении (5.6) второй момент определяется следующей функцией:

$$\sigma^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} (x - x_0)^2 y(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} y(x) dx} \approx \frac{\sum (x_i - x_0)^2 y_i}{\sum y_i}. \quad (5.28)$$

Уравнение (5.7) дает зависимость параметра σ от величины FWHM.

Перед тем как использовать уравнение (5.28) из числа отсчетов предварительно следует вычесть фон. Суммы вычисляются на диапазоне, равном или большем утроенного значения величины FWHM. Метод следует использовать для пиков со значительной асимметрией или с формой, отличной от кривой Гаусса.

Процедура полезна для широких пиков с формой, близкой к кривой Гаусса, измеренных с низкой точностью, для которых методы линейной интерполяции хорошо не работают. Определения первых и вторых моментов обычно производятся вместе потому, что в алгоритме второго момента требуется знание значения центроиды, полученного при использовании алгоритма первого момента.

5.2.6 Определение ширины пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса

В разделе 5.1.8 было показано, что уравнение (5.11) может быть использовано для линеаризации кривой Гаусса. Наклон и пересечение подгоняемой линии связаны с центроидой пика и величиной FWHM (уравнения (5.7) и (5.13)). Процедура линеаризации кривой Гаусса является хорошей проверкой энергетической градуировки и разрешения детектора. Проверка двух пиков (на высоких и низких энергиях) гарантирует правильность работы электроники системы НРА. Эта проверка может быть важной частью программы контроля измерения для гамма-спектрометрической системы НРА высокого разрешения.

5.2.7 Определение ширины пика с помощью подгонки параболаризованной функцией Гаусса

В разделе 5.1.9 было показано, что натуральный логарифм функции Гаусса является квадратичной функцией от x . Подгонка этой функции к набору точек $(x_i, \ln y_i)$ дает параметры функции Гаусса x_0 , y_0 и σ и обеспечивает другой способ определения ширины пика, близкого по форме к кривой Гаусса.

5.3 ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПЛОЩАДИ ПИКА ПОЛНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

5.3.1 Введение

Амплитудно-импульсный спектр гамма-излучения содержит много полезной информации о значениях энергии и интенсивности гамма-излучений. Одной из самых важных забот при использовании гамма-спектрометрии является правильное выделение нужной информации. Как правило, самой важной информацией является площадь пика полного поглощения и связанная с ней неопределенность.

Пики полного поглощения энергетических спектров расположены на фоне, вызванном комптоновским рассеянием гамма-излучений более высоких энергий. Основным фундаментальным ограничением в получении несмещенных значений площадей пиков является определение фона. Когда фон мал по сравнению с пиком, он может внести только небольшую часть в общую погрешность определения площади пика. Однако, когда отношение площади пика к площади фона становится меньше, чем 1,0, возможность смещения результата быстро возрастает.

Для многих задач НРА вполне пригодны простые методы вычитания фона. При определенных обстоятельствах должны использоваться сложные вычислительные программы подгонки спектров с длинными и короткими функциями для описания хвостов. Проблема учета событий рассеяния на малые углы становится серьезной для детекторов с низким разрешением, но иногда для решения этой проблемы можно применить рассчитанные поправки [9].

5.3.2 Выбор рассматриваемых областей

Выбор рассматриваемых областей (РО) является таким же важным, как выбор алгоритмов для оценки площадей пиков. Большинство процедур для определения уровня фона на низкоэнергетической и высокоэнергетической сторонах пика или мультиплета используют две РО. Среднее число отсчетов в канале на РО принимается как уровень фона в центре РО. Третья РО определяет область пика.

Для функции Гаусса 99,96 % площади лежит внутри области с центром x_0 , ширина которой равна утроенному значению FWHM функции Гаусса. Амплитуда функции Гаусса в точках с координатами $(x_0 \pm 1,75 \text{ FWHM})$ составляет только 0,0082 % от максимального значения в точке x_0 , поэтому РО фона, которые начинаются в этих точках, имеют минимальные вклады от пика. Таким образом, РО пика, равная утроенному FWHM, и РО фона, помещенные симметрично и равные от 3,5 до 4,0 FWHM каждая, представляют ~ 99,9 % площади пика.

В принципе, фон оценивается более точно, если РО фона выбраны достаточно хорошо. Однако, вероятность появления систематической ошибки возрастает с увеличением энергетических диапазонов. Для большинства задач НРА вполне подходят РО фона с шириной, изменяющейся в диапазоне от 0,5 до 1,0 FWHM. При энергетической градуировке 0,1 кэВ/канал РО фона обычно имеет ширину от трех до пяти каналов. Когда между соседними пиками расстояние очень мало, приходится использовать в качестве РО фона от одного до двух каналов. Пики, центры которых отделены друг от друга на расстояние $3 \times \text{FWHM}$, считаются разрешенными; обычно между ними может быть помещена узкая РО фона. Лучше пожертвовать статистической точностью, чем ввести смещение за счет использования слишком широких РО фона.

Спектры, пики которых имеют значительные низкоэнергетические и высокоэнергетические хвосты, требуют более широких РО для пиков, чем три FWHM. Так как разрешение пика ухудшается при высоких нагрузках, РО пиков должны быть установлены на спектре при высокой скорости счета (низкое разрешение). Обычно лучшие результаты получаются, если все РО имеют равную ширину; следовательно, РО для пиков на низких энергиях и пика генератора импульсов устанавливаются несколько шире, чем утроенное значение FWHM.

Для точного и согласованного выбора РО могут быть написаны специальные вычислительные программы. Чтобы удерживать определенные пики внутри однажды выбранной РО в течение длительного времени, можно использовать цифровую стабилизацию. Иногда требуется несколько изменить спектр, чтобы достичь определенной установки РО. Существуют вычислительные программы, которые могут изменить содержимое спектра, чтобы установить любую требуемую энергетическую градуировку с небольшой степенью ухудшения качества спектра.

5.3.3 Вычитание линейного комптоновского фона

Часто вполне подходит аппроксимация комптоновского фона прямой линией между высоко- и низкоэнергетическими сторонами отдельных пиков или групп перекрывающихся пиков. На рис. 5.11 показано, как выбирают РО, и введены символичные обозначения, которые используются ниже в уравнениях для определения фона. Заметим, что нет необходимости располагать РО фона сим-

метрично по отношению к пику, как нет необходимости устанавливать их равной ширины. Фон является площадью трапеции под линией фона, которая задается уравнением:

$$B = [Y(F_p) + Y(L_p)](N_p / 2), \quad (5.29)$$

где $Y(F_p) = mF_p + b$;

$$Y(L_p) = mL_p + b$$

и где $m = (Y_h - Y_l) / (X_h - X_l)$;

$$b = (X_h Y_l - X_l Y_h) / (X_h - X_l).$$

Дисперсия фона B

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2} \right)^2 \left[K^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2 - K)^2 \frac{B_l}{N_l^2} \right], \quad (5.30)$$

$$\text{где } K = \frac{(F_p + L_p - 2X_l)}{(X_h - X_l)}.$$

Уравнение (5.30) не предполагает существования неопределенностей в положении границ РО и является функцией только статистических неопределенностей величин B_h и B_l , которые оцениваются посредством $S^2(B_l) = B_l$ и $S^2(B_h) = B_h$. Уравнение (5.30) справедливо, когда РО фона расположены несимметрично относительно РО пика. Если РО фона расположены симметрично по отношению к РО пика, выражения для B и $S^2(B)$ упрощаются. Требование симметричности означает, что $(F_p - X_l) = (X_h - L_p)$ и $K = 1$, и тогда выражения становятся следующими:

$$B = \left(\frac{Y_l + Y_h}{2} \right) N_p = \left(\frac{B_h}{N_h} + \frac{B_l}{N_l} \right) \frac{N_p}{2} \quad (5.31)$$

и

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2} \right)^2 \left(\frac{B_h}{N_h^2} + \frac{B_l}{N_l^2} \right). \quad (5.32)$$

Часто уравнения (5.31) и (5.32) используются даже тогда, когда требование симметричности не выполняется, и если чистые площади пиков много больше, чем вычтенный фон. Имея дело со сложными спектрами (хорошим примером являются спектры плутония), часто приходится использовать асимметрично расположенные РО. Когда требуемые вычисления производятся внутренними процессорами МКА, следует использовать уравнения (5.29) и (5.30) потому, что они дают наилучшие результаты при использовании любой версии линейной процедуры.

Для проведения вычислений с использованием небольших калькуляторов, желательны наиболее простые выражения, поэтому РО следует выбирать соответствующим образом. Если $N_h = N_l \equiv N_c$, уравнения (5.31) и (5.32) упрощаются до

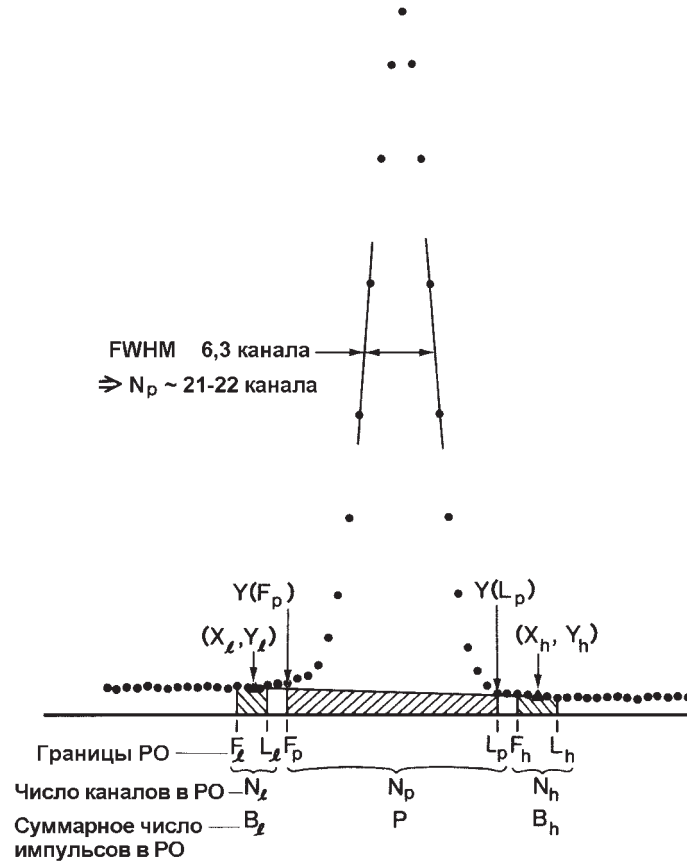


Рис. 5.11. Рассматриваемые области (РО) и параметры, которые используются для вычисления чистой площади пика полного поглощения и оценки ее стандартного отклонения

$$B = \frac{N_p}{2N_c} (B_h + B_l) \quad (5.33)$$

и

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2N_c} \right)^2 (B_h + B_l). \quad (5.34)$$

Если можно выбрать РО так, чтобы $N_c = N_p/2$, выражения достигают самой простой формы:

$$B = (B_h + B_l) \quad (5.35)$$

и

$$S^2(B) = (B_h + B_l) = B. \quad (5.36)$$

5.3.4 Вычитание сглаженной ступеньки комптоновского фона

Комптоновский фон под пиком полного поглощения в действительности не является прямой линией. Большая часть фона под пиком вызвана комптоновским рассеянием гамма-излучения более высокой энергии на большие углы или наложением импульсов от взаимодействий гамма-излучения более низкой энергии. Часть фона под пиком вызвана гамма-излучением, соответствующим данному пику, но которое претерпело комптоновское рассеяние на малые углы, а также событиями полного поглощения энергии рассматриваемого гамма-кванта при неполном сборе заряда; этот вклад может быть описан функцией сглаженной ступеньки.

Ганнинк [10] изобрел оригинальную процедуру для моделирования сглаженной ступеньки фона под одиночными пиками или мультиплетами, основанную на использовании формы спектра. Процедура дает результаты лучше, чем прямолинейная аппроксимация фона, особенно для перекрывающихся пиков в мультиплете. Для чистых одиночных пиков часто наблюдается лишь незначительное улучшение.

На рис. 5.12 приведен график мультиплета и фона ступеньки-функции в логарифмическом масштабе. Используя обозначения, приведенные на рис. 5.11, фон в канале n равен

$$B_n = Y_l - D \left[\frac{\sum_{i=X_l+1}^{i=n} (y_i - Y_h)}{\sum_{i=X_l+1}^{i=X_h} (y_i - Y_h)} \right], \quad (5.37)$$

где y_i — суммарное число отсчетов в канале i ;

$$D = Y_l - Y_h;$$

$$B(X_l) = Y_l;$$

$$B(X_h) = Y_h.$$

Значение фона Y_h вычитается из содержимого каждого канала, поскольку комптоновские события от гамма-излучений с высокой энергией не могут влиять на форму сглаженной ступеньки для пика полного поглощения гамма-излучения с низкой энергией. Уравнение (5.37) можно использовать, когда фон под пиком или мультиплетом имеет слабо отрицательный или нулевой наклон.

Значительное затруднение в использовании процедуры сглаженной ступеньки вызвано тем, что выражение для оценки дисперсии величины чистой площади становится чрезвычайно сложным, когда выводится из уравнения (5.37). Выражение для оценки дисперсии (уравнение (5.30)), основанное на прямолинейной аппроксимации, намного проще и имеет почти такую же точность.

5.3.5 Вычитание комптоновского фона при использовании единственной рассматриваемой области фона

Иногда проведение оценки фона по единственной РО является желательным и необходимым. Например, единственная РО часто предпочтительна при использовании детектора NaI и одноканального анализатора при измерении обогащения ^{235}U или содержания ^{239}Pu .

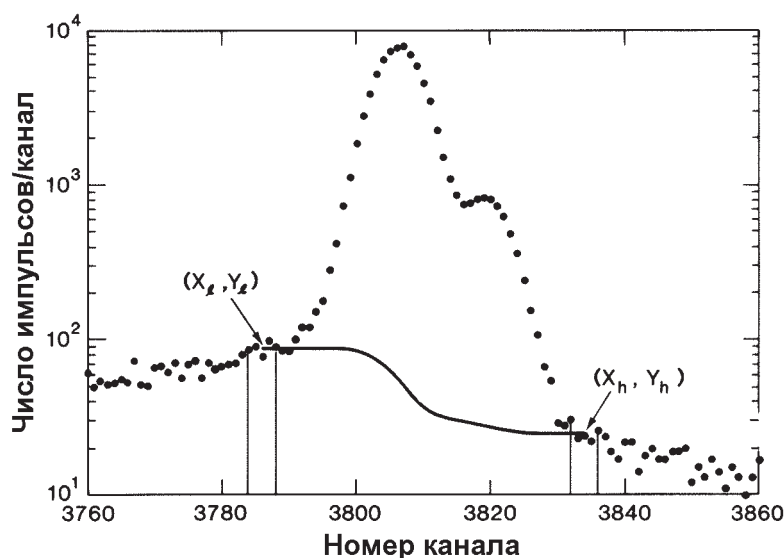


Рис. 5.12. Дублет пиков с оцененным фоном спектра, который рассчитывался с помощью простого алгоритма сглаженной ступеньки

Когда отношение сигнала к фону велико, может оказаться достаточным предположение плоской формы фона. Здесь вклад фона в РО пика определяется как:

$$B = \frac{N_p}{N_h} B_h, \quad (5.38)$$

$$s(B) \approx \frac{N_p}{N_h} s(B_h). \quad (5.39)$$

Хотя данная процедура очень часто используется со сцинтилляторами низкого разрешения, она также применяется и с германиевыми детекторами в тех случаях, когда на низкоэнергетической стороне пика трудно выбрать удобное место для РО фона.

Если фон не плоский, но можно предположить, что он имеет постоянный наклон на соответствующем энергетическом отрезке, уравнение (5.38) может быть преобразовано к виду

$$B = K B_h, \quad (5.40)$$

где K является постоянным коэффициентом, который определяется экспериментально. Если радиоактивность окружающей среды является основным вкладом в комптоновский фон, для определения значения K может быть использован спектр "без образца". Если в фоне доминирует гамма-излучение более высоких энергий от образца, значение K можно оценить по спектру МКА. Часто значение K изменяется от образца к образцу. Хотя эти процедуры с единственной РО имеют ограниченную точность, их часто предпочитают использовать, чтобы полностью решить проблему фона.

5.3.6 Вычитание комптоновского фона с помощью процедуры двух стандартных образцов

Измерение обогащения ^{235}U по гамма-излучению с энергией 185,7 кэВ является успешным применением одного окна ОКА для поправки на фон. Предположение о постоянстве формы фона является оправданным, и постоянная K уравнения (5.40) может быть определена точно. Обогащение E определяется уравнением

$$E = C(P - KB), \quad (5.41)$$

где C является константой, которая выражается в % ^{235}U /имп. Для двух стандартных образцов с различным обогащением, измеренных в течение равных периодов времени, уравнение (5.41) имеет вид

$$\begin{aligned} E_1 &= C(P_1 - KB_1), \\ E_2 &= C(P_2 - KB_2). \end{aligned} \quad (5.42)$$

Решая эти уравнения, получают

$$\begin{aligned} C &= (E_2 B_1 - E_1 B_2) / (P_2 B_1 - P_1 B_2), \\ K &= (E_2 P_1 - E_1 P_2) / (E_2 B_1 - E_1 B_2). \end{aligned} \quad (5.43)$$

Уравнение (5.41) может быть записано в виде

$$E = aP - bB, \quad (5.44)$$

$$\text{где } a = \frac{E_2 B_1 - E_1 B_2}{P_2 B_1 - P_1 B_2};$$

$$b = \frac{P_1 E_2 - P_2 E_1}{P_2 B_1 - P_1 B_2}. \quad (5.45)$$

Метод двух стандартных образцов можно использовать для измерения низкоактивных радиоактивных загрязнений воды или других жидкостей (см. главу 7 об обогащении урана, где эта процедура описана более подробно).

5.3.7 Использование сумм числа отсчетов в рассматриваемых областях для измерения площадей пиков

Для хорошо разрешенных пиков простое суммирование числа отсчетов над оцененным фоном вероятно также хорошо, как любой другой метод определения площади пика. Этот метод поканального суммирования не имеет проблем из-за несовершенства моделей формы пика, которые присущи вычислительным программам подгонки спектра. Метод суммирования в РО вполне терпим к небольшим вариациям в форме пика и обеспечивает точную и непосредственную оценку погрешности чистой площади пика.

Для всех процедур суммирования в РО, площадь пика определяется выражением:

$$A = P - B, \quad (5.46)$$

где P — интеграл РО пика;

B — вклад от фона.

Выражения для $S^2(A)$, оценки дисперсии чистой площади, изменяются в соответствии с процедурой, используемой для оценки фона.

Когда B оценивается линейной интерполяцией по РО фона на каждой стороне от РО пика, оценка дисперсии площади пика определяется как

$$S^2(A) = S^2(P) + S^2(B) = P + S^2(B). \quad (5.47)$$

Уравнения от (5.29) до (5.36) дают B и $S^2(B)$ для различных условий, которые включают значения ширины и положение РО фона по отношению к РО пика. Выражения объединены в табл. 5.5. Простейшие выражения получаются, когда РО фона помещены симметрично относительно РО пика и имеют подходящие значения ширины. Когда имеется компьютер с требуемым объемом памяти, следует использовать самую общую форму выражений так, чтобы РО могли быть установлены без каких-либо ограничений.

Когда для оценки фона используется функция пошагового сглаживания, уравнения (5.46) и (5.37) объединяются, чтобы дать

$$A = P - \sum_{n=F_p}^{L_p} \left\{ Y_l - D \left[\frac{\sum_{i=X_l+1}^n (y_i - Y_h)}{\sum_{i=X_l+1}^{X_h} (y_i - Y_h)} \right] \right\}. \quad (5.48)$$

Поскольку оценка фона является функцией числа отсчетов в каналах, точные выражения для $S^2(A)$ становятся очень сложными. Следует использовать одну из оценок $S^2(A)$, приведенных в табл. 5.5.

Когда для фона используется единственная РО, уравнение (5.46) остается в силе для чистой площади пика, а выражение для $S^2(A)$ основано на уравнении (5.47). Если предположить, что фон является плоским (уравнение (5.38)), то выражения для A и $S^2(A)$ имеют следующий вид:

$$A = P - \frac{N_p}{N_h} B_h, \quad (5.49)$$

$$S^2(A) = P + \left(\frac{N_p}{N_h} \right)^2 B_h.$$

Для наклонного фона (уравнение (5.40)) выражения для A и $S^2(A)$ приобретают следующий вид:

$$A = P - KB_h, \quad (5.50)$$

$$S^2(A) = P + K^2 B_h.$$

Заметим, что хотя уравнения (5.49) и (5.50) могут правильно оценить повторяемость измерений, они не позволяют оценить какое-либо смещение результатов анализа, обусловленное природой аппроксимации оценки фона по одной РО.

Таблица 5.5 – Выражения для чистых площадей пиков полного поглощения и оцененных дисперсий* (предполагается наличие прямолинейного фона)**

Условия для РО	Фон В	Дисперсия фона $S^2(B)$
Произвольное положение и ширина РО	$B = [Y(L_p) + Y(F_p)](N_p / 2),$ где $Y(L_p) = mL_p + b$ и $Y(F_p) = mF_p + b$ и где $m = (Y_h - Y_l) / (X_h - X_l),$ $b = (X_h Y_l - X_l Y_h) / (X_h - X_l)$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2}\right)^2 \left[K^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2-K)^2 \frac{B_l}{N_l^2} \right],$ где $K = \frac{2(X - X_l)}{(X_h - X_l)} = \frac{(F_p + L_p - 2X_l)}{(X_h - X_l)}.$
Симметричное расположение РО фона по отношению к РО пика, $(F_p - X_l) = (X_h - L_p)$	$B = (Y_l + Y_h) \frac{N_p}{2} = \left(\frac{B_h}{N_h} + \frac{B_l}{N_l} \right) \frac{N_p}{2}$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2} \right)^2 \left(\frac{B_h}{N_h^2} + \frac{B_l}{N_l^2} \right)$
Симметричное расположение РО фона при $N_l = N_h = N_c$	$B = \frac{N_p}{2N_c} (B_h + B_l)$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2N_c} \right)^2 (B_h + B_l)$
Симметричное расположение РО фона при $N_l = N_h = N_p / 2$	$B = (B_h + B_l)$	$S^2(B) = (B_h + B_l) = B$

* $A = P - B,$

$$S^2(A) = P + S^2(B).$$

** Условные обозначения – см. рис. 5.11;

НЭ – низкая энергия;

ВЭ – высокая энергия;

 F_e, L_e – первый и последние каналы РО фона НЭ; F_p, L_p – первый и последние каналы РО пика; F_h, L_h – первый и последние каналы РО фона ВЭ; B_e, P, B_h – интегралы РО фона НЭ, пика и фона ВЭ; N_e, N_p, N_h – числа каналов в РО фона НЭ, пика и фона ВЭ; $Y_h = B_h / N_h$ – средний уровень фона в РО фона ВЭ; $Y_e = B_e / N_e$ – средний уровень фона в РО фона НЭ; X_h, x_e – центры фоновых РО; $Y(F_p)$ и $Y(L_p)$ – ординаты линии фона F_p и L_p ; m и b – наклон и пересечение линии фона между (X_e, Y_e) и (X_h, Y_h) .

5.3.8 Использование простых подгонок функций Гаусса для измерения площади пика

Как показано в разделе 5.1.3, получая значения параметров σ и y_0 с помощью подгонки функцией Гаусса, можно также определить площадь пика, используя уравнение (5.8). Для хорошо разрешенных пиков значения площадей, полученные с помощью подгонки простыми функциями Гаусса, вероятно, не точнее, чем значения площадей, полученные при суммировании в РО, и даже могут быть несколько хуже. Это утверждение, как известно, справедливо для германиевых детекторов. Для NaI сцинтилляторов подгонка функцией Гаусса может дать более согласующиеся площади пиков, чем методы суммирования в РО. Простые процедуры подгонки функциями Гаусса не обеспечивают простого способа оценки погрешности определения площади пика.

В некоторых ситуациях подгонка функцией Гаусса имеет преимущества. Когда два пика полностью не разрешены и нужные для пиков РО перекрываются, то для определения площадей пиков кривые Гаусса могут подгоняться к РО с шириной в одну FWHM с центром в каждом пике. Когда положение центроиды и значение FWHM являются главной информацией, которая получается при подгонке функцией Гаусса, оценка площади часто происходит без затруднений. Если пик имеет значительный низкоэнергетический хвост, обусловленный комптоновским рассеянием в образце или защите, простая подгонка функцией Гаусса в середине FWHM пика может легко определить желаемую площадь.

Когда функция Гаусса преобразуется в линейную, для получения параметров x_0 и σ подгонкой наименьших квадратов, параметр y_0 можно также определить, используя любые точки исходных данных и уравнение (5.6) для получения решения относительно y_0 . Среднее значение величины y_0 , определенное по несколькими точкам в окрестности x_0 , дает удовлетворительное значение для уравнения площади пика.

В разделе 5.1.9 было показано, что логарифм функции Гаусса является параболой, и что квадратичная подгонка к $\ln(y_i)$ дает все три параметра функции Гаусса x_0 , y_0 и σ . Площадь пика получается из уравнения (5.8). Для процедуры с использованием линеаризованной функции Гаусса не существует простых выражений для оценки погрешности площадей пиков.

5.3.9 Использование известных параметров формы для измерения площадей пиков в мультиплетах

В предыдущем разделе основное внимание было уделено хорошо разрешенным одиночным пикам, которые используются в большинстве задач НРА ядерных материалов. Однако для измерения изотопных отношений по спектру плутония высокого разрешения необходимо проанализировать неразрешенные мультиплеты пиков.

Если форма пика описывается адекватной математической моделью, в которой, за исключением амплитуды, все параметры известны, неразрешенные мультиплеты можно исследовать совсем просто — обычными неитерационными методами наименьших квадратов. В некоторых случаях подходит простая функция Гаусса (уравнение (5.6)) без каких-либо хвостовых членов. Если параметры положения x_0 и ширины σ известны, неизвестным является только параметр амплитуды y_0 . Часто хорошо разрешенные пики в спектре могут дать достаточную ин-

формацию для определения параметров x_0 и σ неразрешенных пиков. Значения энергии гамма-квантов всех делящихся изотопов известны достаточно точно, поэтому параметры энергетической градуировки могут быть определены с высокой точностью для вычисления параметра x_0 всех неразрешенных пиков. Параметр ширины σ можно определить из хорошо разрешенных пиков и эти значения использовать при интерполяции параметров ширины неразрешенных пиков, используя соотношение $\text{FWHM}^2 = a + bE$, которое является достаточно точным для германиевых детекторов и гамма-квантов с энергией выше 100 кэВ. Хорошо разрешенные пики могут также давать информацию, необходимую для определения параметров хвостовых членов в функции формы пика.

Процедуру подгонки наименьших квадратов при определении амплитуд пиков легко описать на следующем примере. Предположим, что существует мультиплет из трех пиков, все пики которого происходят от разных изотопов. После того, как под мультиплетом вычитается комптоновский фон, полученный спектр имеет только три перекрывающихся пика, и число отсчетов в i -м канале может быть записано как

$$y_i = A1 \times F1_i + A2 \times F2_i + A3 \times F3_i, \quad (5.51)$$

где $A1$, $A2$ и $A3$ являются амплитудами пиков, которые требуется определить, а $F1$, $F2$ и $F3$ являются функциями, описывающими формы пиков. Предположим, что все пики хорошо описываются чистыми функциями Гаусса:

$$\begin{aligned} F1 &= \exp[K1(x_i - x1_0)^2], \\ F2 &= \exp[K2(x_i - x2_0)^2], \\ F3 &= \exp[K3(x_i - x3_0)^2], \end{aligned} \quad (5.52)$$

где $x1_0$, $x2_0$, $x3_0$ — известные положения центроид;

$$K1, K2, K3 = 1 / 2\sigma_{1,2,3}^2;$$

$$\sigma_i = (\text{FWHM})_i / (2\sqrt{2 \ln 2}).$$

Процедура подгонки наименьших квадратов определяет значения $A1$, $A2$, и $A3$ из условия минимизации разности квадратов между действительными значениями спектра и значениями выбранной функции. Беря производные, получаем следующие выражения для $A1$, $A2$, и $A3$:

$$A1 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum y F1 & \sum F1 F2 & \sum F1 F3 \\ \sum y F2 & \sum F2^2 & \sum F2 F3 \\ \sum y F3 & \sum F3 F2 & \sum F3^2 \end{vmatrix},$$

$$A2 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum F1^2 & \sum y F1 & \sum F1 F3 \\ \sum F2 F1 & \sum y F2 & \sum F2 F3 \\ \sum F3 F1 & \sum y F3 & \sum F3^2 \end{vmatrix},$$

$$A_3 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum F_1^2 & \sum F_1 F_2 & \sum y F_1 \\ \sum F_2 F_3 & \sum F_2^2 & \sum y F_2 \\ \sum F_3 F_1 & \sum F_3 F_2 & \sum y F_3 \end{vmatrix}, \quad (5.53)$$

$$D = \begin{vmatrix} \sum F_1^2 & \sum F_1 F_2 & \sum F_1 F_3 \\ \sum F_2 F_1 & \sum F_2^2 & \sum F_2 F_3 \\ \sum F_3 F_1 & \sum F_3 F_2 & \sum F_3^2 \end{vmatrix}.$$

Вид уравнений (5.53) можно распространить на дополнительные неизвестные. Форма функций F_1 , F_2 и F_3 не влияет на вид решения для A_1 , A_2 и A_3 . Существует только одно требование, чтобы функции были полностью определены, за исключением значений амплитуды. Для улучшения точности описания формы пиков могут быть добавлены составляющие функций, описывающие хвосты. Если в мультиплете два пика или более принадлежат одному изотопу, при подгонке пиков могут использоваться квантовые выходы I_1 , I_2 ... в качестве одной составляющей. Если один или два пика в мультиплете принадлежат одному изотопу, уравнение (5.51) преобразуется в уравнение

$$y_i = A \times F_{1i} + A_3 \times F_{3i}, \quad (5.54)$$

где $F = \exp[K_1(x_i - x_{10})^2] + (I_2 / I_1) \exp[K_2(x_i - x_{20})^2]$.

Уравнение (5.54) имеет только два неизвестных, A и A_3 . Строго говоря, коэффициенты в выражении для F должны быть равны $1/E_1$ и $I_2/I_1 E_2$, где E_1 и E_2 являются относительными эффективностями регистрации гамма-излучения двух энергий. Если возможно, значения эффективностей следует ввести в выражение, но часто соседние пики мультиплета так близки друг к другу по энергиям, что $E_1 \approx E_2$. Когда гамма-излучение одного из соседних пиков намного интенсивнее другого, погрешности для интенсивных пиков, вызванные предположением, что $E_1 = E_2$, обычно незначительны.

5.3.10 Использование сложных вычислительных программ для измерения площади пика

Было затрачено много усилий на разработку вычислительных программ для определения площадей пиков в сложных перекрывающихся мультиплетах. Существует ряд удачных вычислительных программ вместе со многими модификациями для конкретных задач. Хелмер и Ли [11] рассмотрели модели пиков и процедуры вычитания фона для большинства вычислительных программ, используемых в настоящее время.

Сложные вычислительные программы описывают пики полного поглощения базовой функцией Гаусса плюс один или два члена для описания низкоэнергетических хвостов (длинный и короткий хвосты), а также иногда плюс член для описания высокоэнергетического хвоста. Длинный хвост часто не включают в площадь пика полного поглощения потому, что он приписывается к комптоновскому рассеянию на малые углы внутри образца. Обычно для спектра высокого разре-

шения не требуется включения функции для описания длинного хвоста. Форма деталей хвостовых членов изменяется от программы к программе, хотя результаты часто получаются одинаковыми. Процедуры для вычитания комптоновского фона также различны; в основном, больше всего требуют улучшения процедуры вычитания фона.

Вычислительные программы подгонки часто необходимы, но для разумного использования обычно требуют больших усилий по изучению их работы. Изучение работы таких вычислительных программ подобно обучению игре на большом духовом органе; после овладения некоторыми основными навыками, каждый должен изучить возможности и ограничения многих комбинаций "регистров органа." Потенциальный пользователь, который не имеет значительного опыта в гамма-спектрометрии, должен консультироваться у более опытных пользователей вычислительных программ.

Отметим, что все вычислительные программы подгонки лучше работают с высококачественными спектрами хорошего разрешения и минимальными хвостами пиков. Вычислительные программы подгонки не могут полностью компенсировать низкое качество детектора и электроники или неудачные процедуры накопления данных. Образно говоря, грамм разрешения стоит килограмма вычислительной программы. За последние несколько лет качество детекторов и электроники улучшалось параллельно разработке вычислительных программ, что позволяет в настоящее время выполнять такие измерения, которые прежде были очень трудны или невозможны.

5.4 ПОПРАВКИ НА НАЛОЖЕНИЕ ИМПУЛЬСОВ И ПРОСЧЕТЫ

5.4.1 Введение

Как обсуждалось в главе 4, мертвое время аналогово-цифрового преобразователя (АЦП) определяется как сумма временных интервалов, в течение которых АЦП не способен обрабатывать другие события. Мертвое время может иметь место во всех компонентах систем неразрушающего анализа. Интервалы мертвого времени могут быть либо фиксированными, либо являться функцией параметров системы и амплитуды импульса.

Для систем на основе МКА мертвое время начинается, когда выходной импульс усилителя превосходит порог дискриминатора АЦП. Мертвое время включает время нарастания импульса, небольшое фиксированное время на регистрацию пика и блокировку, время преобразования к цифровому виду и часто время на пересылку информации в память. Для систем с германиевым детектором, использующих АЦП Уилкинсона с частотой 100 МГц, мертвое время для события в 4000 канале составляет ~ 55 мкс. При скорости счета всего в несколько тысяч импульсов в секунду значительная часть информации может быть потеряна только из-за мертвого времени системы.

Для систем на основе ОКА, использующих детекторы NaI(Tl), мертвое время много короче и часто им можно пренебречь. Потери в таких системах обычно обусловлены наложением импульсов.

Наложение импульсов кратко описано в главе 4. На рис. 4.9 показано, как два события, которые следуют друг за другом и разделены интервалом времени меньшим, чем ширина импульса усилителя, суммируются и дают импульс, амплитуда которого не пропорциональна ни одному из исходных импульсов. На рис. 4.10 показано искажение спектра вследствие наложения событий. Наложение может иметь место в детекторе, предусилителе или основном усилителе, но общий эффект определяется самой медленной составной частью, обычно — основным усилителем. Наложение всегда ведет к потере информации; степень потери зависит от рассматриваемой информации и общей скорости счета. Например, когда регистрируется число импульсов, превысивших порог дискриминатора, то два наложенных события считаются как одно; если же производится амплитудно-импульсный анализ, то оба события теряются из соответствующих пиков.

В спектрометрических системах высокого разрешения ширина импульса усилителя часто сравнима со временем обработки АЦП, и потеря информации, вызванная наложением импульсов, может быть равна или больше потерь, вызванных мертвым временем. Хотя МКА может работать в режиме живого времени и компенсировать потери, обусловленные мертвым временем, этот метод не является полной компенсацией потерь вследствие наложений.

Во многих работах все потери регистрации рассматриваются с точки зрения двух граничных случаев, каждый из которых обусловлен мертвым временем (см., например, главу 3 и работу [12]). Один из случаев, описывающих работу реального оборудования, называется "непарализуемым" мертвым временем и является типичной работой АЦП; другой — называется "парализуемым" мертвым временем и относится к наложению импульсов. Терминология является неудачной, поскольку схема не является мертвой в течение наложения импульсов; скорее события теряются из соответствующих каналов вследствие искажения импульса. В этой книге различие между мертвым временем и наложением сохраняется потому, что эти случаи являются двумя ясно различимыми механизмами потери.

Целью многих гамма-спектрометрических задач является вычисление скорректированной скорости счета (CR) для исследуемого гамма-излучения:

$$CR = RR \times CF(RL) \times CF(AT), \quad (5.55)$$

где RR — исходная скорость счета импульсов;

$CF(RL)$ — коэффициент поправки на просчеты;

$CF(AT)$ — коэффициент поправки на ослабление (см. главу 6).

Когда коэффициенты поправки определены правильно, CR соответствует скорости счета при отсутствии потерь в электронике и ослабления излучения в образце. Скорректированная скорость счета CR часто прямо пропорциональна измеряемой величине, такой как масса ^{239}Pu или обогащение ^{235}U . Для получения точных результатов анализа должны быть точно определены все три коэффициента в уравнении (5.55).

5.4.2 Зависимость просчетов от входной загрузки

В современных спектрометрических системах потери счета редко достаточно хорошо описываются с помощью простой модели "непарализуемого" мертвого времени; однако здесь эта модель приводится для завершенности описания. В ранних системах потери из-за мертвого времени были значительно выше, чем потери вследствие наложения импульсов, и простая "непарализуемая" модель была вполне приемлемой.

Для фиксированного мертвого времени D , величина CR может быть представлена следующим образом:

$$CR = \frac{RR}{1 - RR \times D}. \quad (5.56)$$

Решая уравнение относительно RR , получаем

$$RR = \frac{CR}{1 + CR \times D} = \frac{1}{1/CR + D}. \quad (5.57)$$

Когда $CR \rightarrow \infty$, $RR \rightarrow 1/D$, т.е. к предельному значению пропускной способности системы. Степень "непарализуемости" растет, потому что RR растет монотонно, стремясь к пределу $1/D$. Для потерь вследствие наложения $RR \rightarrow 0$, когда $CR \rightarrow \infty$, подтверждая термин "парализуемости".

Хотя АЦП Уилкинсона не имеет фиксированного мертвого времени, уравнения (5.56) и (5.57) применимы, если D установлено равным интервалу среднего мертвого времени. Значения либо фиксированного, либо среднего мертвого времени определяют редко потому, что большинство пользователей хотят корректировать объединенные потери в скорости счета импульсов.

Потери вследствие наложения импульсов важны для спектрометрии высокого разрешения по двум причинам. Во-первых, потому, что относительно длительные интервалы времени формирования импульса, которые требуются для оптимального отношения сигнал/шум, дают импульсы с шириной до 50 мкс, что увеличивает вероятность наложения. Во-вторых, потому, что небольшое искажение вследствие наложения может вывести импульс из узкого пика. Поскольку системы с NaI(Tl) работают с постоянными времени, равными ~ 3 мкс или менее, они имеют более низкие потери вследствие наложения. Более того, так как пики от детекторов NaI в 10–20 раз шире, чем пики от германиевых детекторов, многие события могут претерпевать слабые наложения, но все еще останутся внутри пика полного поглощения. Поэтому из-за большей ширины пиков потери вследствие наложения в спектрах от детекторов NaI труднее корректировать.

На рис. 5.13 показано, что амплитуда пика искажается, если два импульса следуют друг за другом в интервале времени, приблизительно равном половине ширины импульса. Степень искажения зависит от амплитуды и времени поступления интерферирующего импульса по отношению к анализируемому импульсу. При регистрации для предотвращения анализа искаженных событий часто используется цепь режекции наложений. К сожалению, вместе с режекцией некачественных импульсов почти все системы также отбраковывают и некоторую часть неискаженных импульсов.

Если внутри интервала времени T , в котором возможны наложения, отсутствуют другие события, импульс будет проанализирован и сохранен в соответствующей позиции. Фундаментальное выражение для статистик Пуассона [1,3], которое применяется в данном случае, имеет следующий вид:

$$P(N) = \frac{(RT)^N e^{-RT}}{N!}, \quad (5.58)$$

где $P(N)$ — вероятность N событий, которые происходят в интервале времени T , если средняя скорость счета равна R .

Выражение для вероятности того, что событие не будет потеряно вследствие наложения, получается, подставляя в уравнение (5.58) $N = 0$:

$$P(0) = e^{-RT}. \quad (5.59)$$

Доля потери импульсов F вследствие наложения выражается

$$F = 1 - P(0) = 1 - e^{-RT}. \quad (5.60)$$

Если значение RT много меньше 1, уравнение (5.60) упрощается до

$$F \approx RT. \quad (5.61)$$

Это выражение дает очень простое соотношение для оценки потерь вследствие наложения при низких скоростях счета.

Если потерями из-за мертвого времени можно пренебречь, уравнение (5.59) описывает пропускную способность спектрометрической системы высокого разрешения. Измеренная исходная скорость RR выражается

$$RR = Re^{-RT}, \quad (5.62)$$

где R является полной скоростью событий от детектора. Дифференцирование уравнения (5.62) показывает, что RR достигает максимума при $R=1/T$, и что часть от R , которая анализируется и запоминается при этой скорости, равна $1/e \approx 0,37$. Таким образом, при входной скорости с максимальной пропускной способностью свыше трети входных событий правильно регистрируются и запоминаются. Часть скорости входных импульсов, которая запоминается, составляет e^{-RT} , а регистрируемая скорость как часть максимальной регистрируемой скорости $1/(eT)$ определяется выражением $RT e^{-RT}$. Обе эти части нанесены на график на рис. 5.14.

5.4.3 Пропускная способность спектрометрических систем

Из рис. 5.14 видно, что степень пропускной способности ослабевает до неожиданно низких значений для обычных гамма-спектрометрических систем высокого разрешения. Для $T=50$ мкс (довольно высокая величина), $1/T=20\,000\text{ с}^{-1}$ и максимум пропускной способности приблизительно равен 7350 с^{-1} . Когда для получения требуемого разрешения необходимы большие постоянные времени, пропускной способностью приходится жертвовать в качестве расплаты за наилучшее разрешение. В действительности, когда это возможно, следует использовать сторону низких скоростей кривой пропускной способности, так как она дает лучшие разрешение и форму пика. При скорости счета 0,6 ($1/T$) пропускная способность

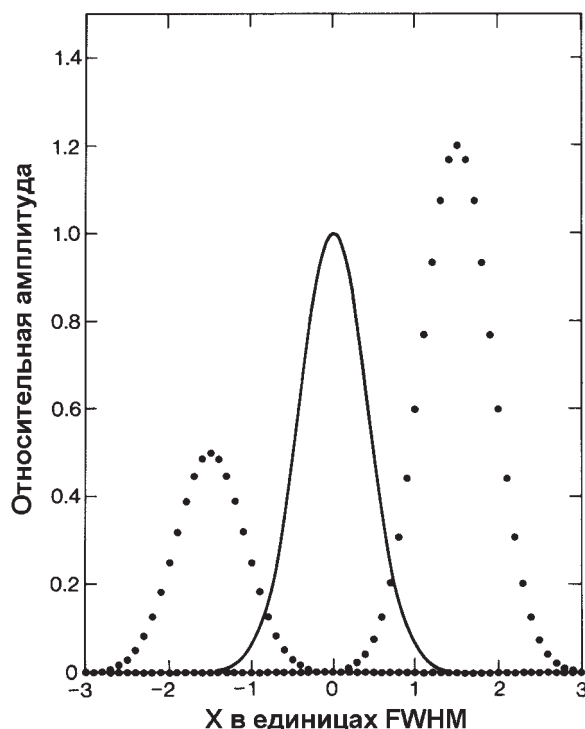


Рис. 5.13. Три кривых Гаусса (импульсы усилителя), которые расположены друг от друга на расстоянии $1,5 \times \text{FWHM}$. Как показано на рисунке, в каждом импульсе присутствует минимальное искажение вследствие наложения. Если расстояние между импульсами уменьшается, искажение заметно возрастет

равна 90 % от максимальной; при 0,5 ($1/T$) пропускная способность еще составляет 82 % от максимальной.

Иногда спектрометрическая система должна работать далеко от максимума пропускной способности. При скорости счета $2/T$ ($40\,000\text{ с}^{-1}$ при $T = 50\text{ мкс}$) запоминается только 14 % информации, допуская поправку потерь из-за наложений ~ 7 . Очевидно, что для максимизации пропускной способности системы и минимизации необходимой поправки, следует минимизировать T и допускать некоторую потерю в разрешении. К счастью, в последнее время достигнут большой прогресс в минимизации T при сохранении разрешения и формы пика (см. работу [13] и главу 4).

Если уравнения от (5.59) до (5.62) используются для оценки показателя пропускной способности и доли потерь, значения величин R и T должны быть довольно хорошо известны. Входную скорость счета R обычно легко получить. Многие современные усилители включают схемы для режекции наложения импульсов и имеют быструю синхронизацию канала с разрешением пары импульсов в районе от 0,5 до 1,0 мкс и выход, который может быть сосчитан с помощью счетчика-таймера. Для поправки значения R может быть использовано уравнение (5.56), когда существует значительная потеря при быстром определении канала. Для измерения высокой скорости счета к выходу предусилителя могут быть подсоединены

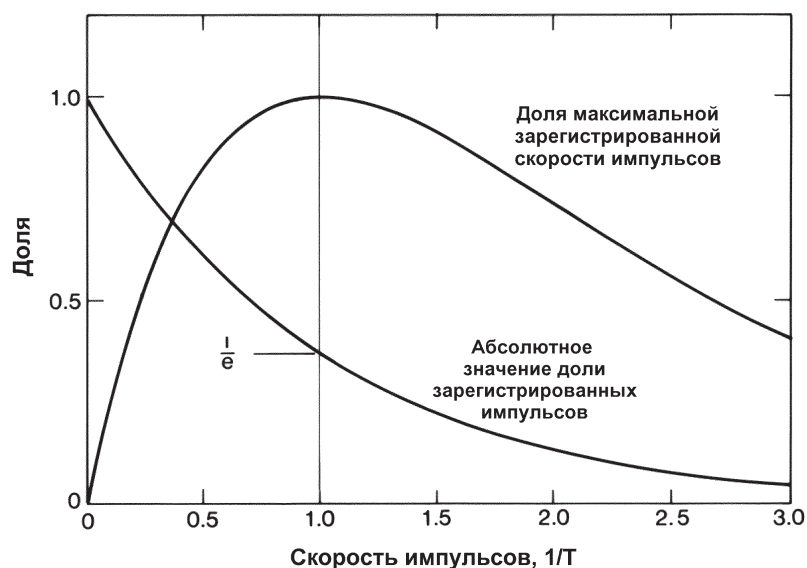


Рис. 5.14. Абсолютное значение доли зарегистрированных импульсов и доля максимальной зарегистрированной скорости импульсов для парализованной системы мертвого времени T в зависимости от входной скорости импульсов в единицах $1/T$

быстрые усилители и дискриминаторы. Для измерения R не должен использоваться выход ОКА в АЦП, так как он работает много медленнее, чем выход усилителя.

Интервал T режекции или потери оценить труднее. Если не используется электронная режекция наложения, то можно предположить, что T будет приблизительно равен ширине импульса (см. рис. 5.13). Можно использовать осциллограф для измерения ширины импульса с погрешностью до 1 или 2 %. Для многих усилителей ширина импульса составляет приблизительно шесть постоянных времени τ , но при этом обычно недооцениваются потери вследствие наложений. После того как импульс будет проанализирован и до того, как наступит следующее событие, сигнал на выходе усилителя должен стать меньше нижнего уровня дискриминатора АЦП. Так как уровень дискриминатора обычно низкий, последующий импульс, отстоящий от предыдущего менее, чем на полную ширину импульса, анализироваться не будет. Чтобы исключить этот эффект, значение T следует принимать равным приблизительно 1,5 значениям ширины импульса для системы без режекции наложений.

При использовании электронной режекции наложений их различные конфигурации могут иметь различные значения T . Одна процедура использует быструю схему счета времени для оценки интервалов между импульсами предусилителя, а также для выработки запрещающего сигнала, если интервал оказывается менее фиксированного значения. Длина интервала и запрещающего сигнала приблизительно равны ширине импульса усилителя. Запрещающий сигнал подается к воротам антисовпадений АЦП для того, чтобы блокировать анализ накладывающихся событий. Значение T зависит от требований к антисовпадениям АЦП;

обычно импульс отбраковывается, если внутри установленного интервала ему предшествует другой импульс или если другой импульс следует за ним до того, как закрываются линейные ворота АЦП, когда начинается преобразование в число. Очевидно, что для точной оценки значения T требуется хорошее понимание работы АЦП и цепи режекции наложений. Дополнительные потери, вызванные мертвым временем АЦП, часто могут быть проигнорированы. Например, если ширина импульса равна 35 мкс (соответствует использованию постоянной времени, равной ~ 6 мкс) и преобразование в число занимает 15 мкс или менее, начиная с момента, когда импульс падает до 90 % от своего максимального значения, то АЦП завершает преобразование в число и запоминание производится до того, как сигнал запрета наложения будет послан, и тогда АЦП не дает вклада в дополнительные потери.

Доля хорошей информации, которая запоминается, обычно несколько ниже, чем поступает на вход. Одной из причин этого является то, что цепь режекции наложений допускает анализ некоторой части наложенных событий, вызывая потерю хороших событий. Большинство цепей режекции наложений имеет разрешение для пар импульсов от 0,5 до 1,0 мкс. Импульсы, разделенные расстоянием меньшим, чем временное разрешение, будут накладываться, но все еще анализироваться, вызывая пики сумм в спектре. Когда используются постоянные времени усилителя ≥ 3 мкс, вершины импульсов становятся почти плоскими на интервале в одну микросекунду и события внутри времени разрешения цепи наложения суммируются вместе почти полностью, формируя пики сумм, которые имеют почти ту же форму и ширину, что и настоящие пики. Такие пики имеют обыкновение появляться в сложных местах спектра и иногда ошибочно принимаются за одиночные пики гамма-излучения.

Другая причина потери информации обусловлена генерацией импульсов предусилителя с большим временем нарастания. Обычно время нарастания составляет несколько десятых микросекунды. Однако, если взаимодействие гамма-излучения происходит в той части детектора, где электрическое поле слабое, или там, где существует избыток ловушек, то для сбора освободившегося заряда может потребоваться несколько микросекунд. Тогда основной усилитель создаст очень длинные импульсы низкой амплитуды, часто в два или три раза длиннее нормальных. Хорошие события, которые суммируются с этими длинными импульсами низкой амплитуды, теряются в качестве полезной информации. Частота, с которой генерируются такие события, зависит от свойств детектора и от того, как он облучается гамма-излучением. Если гамма-излучение падает на края детектора, где поля часто искажены и являются слабыми, имеется большая вероятность неправильного сбора заряда. В некоторых случаях детектор на высоких скоростях работает лучше, если гамма-излучение может быть сколлапсировано, чтобы попадать только в центральную часть детектора. Для относительно плохих детекторов при условиях облучения широким пучком до 10 % регистрируемых событий могут иметь большие времена нарастания и это приводит к существенным потерям информации. Для достижения высокой пропускной способности при повышенных нагрузках требуется отличный детектор, обеспечивающий минимум плохо собранных, медленно растущих импульсов.

Кривая пропускной способности может быть определена экспериментально с помощью подходящих источников и оборудования. На рис. 5.15 показана кривая пропускной способности для наилучшей гамма-спектрометрической системы, ра-

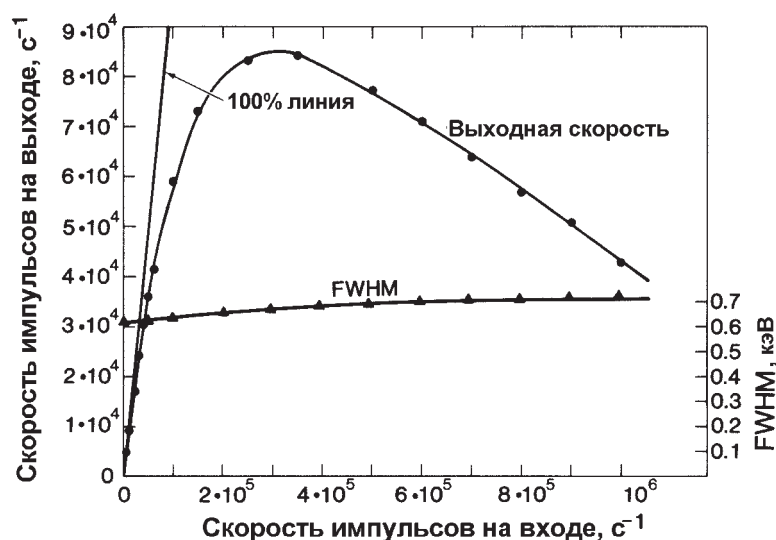


Рис. 5.15. Экспериментальные кривые пропускной способности и разрешения для наилучшей высокоскоростной гамма-спектрометрической системы. Прямая линия показывает 100 %-ную пропускную способность

ботающей на больших нагрузках с использованием временной модификации методики фильтрации (см. главу 4) для достижения очень высокой пропускной способности при почти постоянном разрешении. Используется маленький планарный германиевый детектор с источником ^{241}Am . Максимальная измеренная пропускная способность составляет $\sim 85000 \text{ с}^{-1}$ при нагрузке $\sim 300000 \text{ с}^{-1}$. Однако модель с «парализуемым» мертвым временем предсказывает максимальную пропускную способность 110000 с^{-1} при нагрузке 300000 с^{-1} , т.е. простая модель не подходит. Разрешение системы при 60 кэВ почти постоянно и равно $\sim 0,63 \text{ кэВ}$ вплоть до скорости 100000 имп./с , затем оно медленно возрастает до $\sim 0,72 \text{ кэВ}$ при входной скорости 1000000 имп./с . На рис. 5.16 показана кривая пропускной способности для ^{241}Am при использовании стандартной электроники высокого качества, которая оптимизирована для высокого разрешения при низких скоростях счета с постоянными формирования, равными 6 мкс, а также АЦП Уилкинсона на 100 МГц для получения 8192-канального спектра. Дополнительные потери происходят при установке в нуль импульсно-оптического предусилителя. Максимальная пропускная способность этой системы составляет только $\sim 2800 \text{ с}^{-1}$, но разрешение для 60 кэВ составляет $\sim 0,34 \text{ кэВ}$ при самой низкой скорости счета и равно только $\sim 0,44 \text{ кэВ}$ при 21500 с^{-1} . Кривые пропускной способности и разрешения показывают, что с помощью наилучшей в настоящее время системы нельзя при высокой скорости счета одновременно получить высокую пропускную способность и наилучшее разрешение. FWHM возрастает приблизительно с коэффициентом 2 при переходе от системы, оптимизированной по разрешению, к системе, оптимизированной по высокой пропускной способности. Две экспериментальных кривых, хотя относятся к очень разным системам, похожи одна на другую и на теоретическую кривую, показанную на рис. 5.14 для полностью «парализуемой» системы.

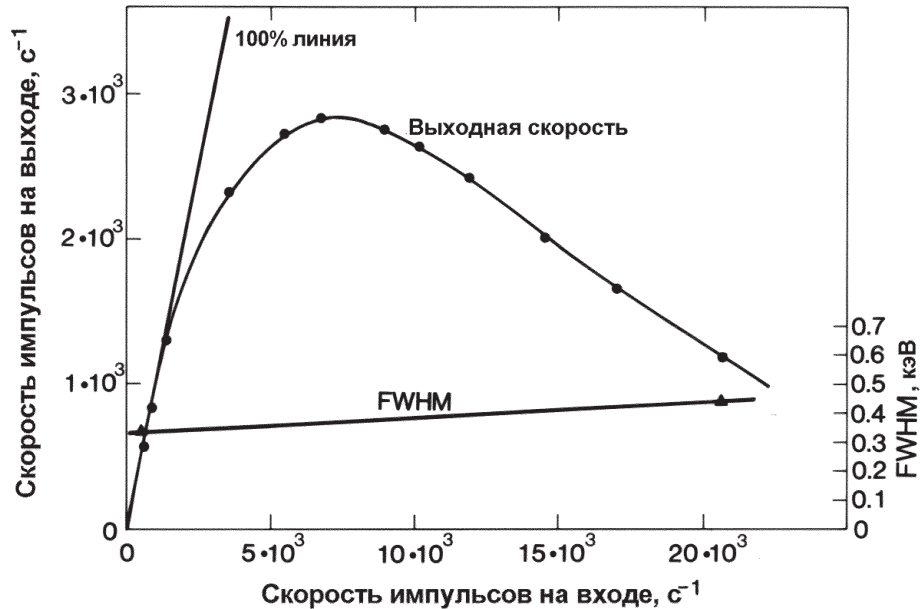


Рис. 5.16. Экспериментальные кривые пропускной способности и разрешения для стандартной гамма-спектрометрической системы, которая оптимизирована по разрешению за счет пропускной способности. Прямая линия показывает 100 %-ную пропускную способность

5.4.4 Методы введения поправок. Общие замечания

Определение скоростей счета в пике полного поглощения (FEIR) анализируемого гамма-излучения является основополагающим во многих процедурах НРА. Аналитики должны определить величину

$$\text{FEIR} = \frac{A(\gamma)}{TT} \text{CF(RL)}, \quad (5.63)$$

где $A(\gamma)$ — площадь пика полного поглощения;

TT — истинное время набора спектра;

CF(RL) — коэффициент поправки на просчеты.

В этом разделе обсуждаются три класса процедур введения поправок. Для определения событий наложения первая процедура измерения интервалов между импульсами использует электронику быстрого измерения времени счета. Поправки выполняются с помощью увеличения времени счета или добавления отсчетов в спектр в течение набора. Вторая процедура заключается в добавлении искусственного пика в спектр путем подсоединения источника импульсов к предусилителю. Третья процедура использует источник гамма-излучения для создания пика поправки. Вторая и третья процедуры при расчете коэффициента поправки используют отклонения в площади пика, применяемого для поправки.

Все три метода исходят из предположения, что все пики подвержены одинаковым долям потерь из-за объединенных эффектов наложения и мертвого времени. Как правило, это предположение соответствует истине.

5.4.5 Методы введения поправки на наложения. Электроника

Методы, увеличивающие время счета, используют цепи быстрого счета, которые начинаются непосредственно с выхода предусилителя. Применяемые постоянные времена позволяют разделять соседние импульсы при расстоянии между ними от 0,5 до 1,0 мкс. Временное разрешение достигается за счет ухудшения энергетического разрешения так, что некоторые небольшие импульсы при анализе АЦП теряются в цепи измерения времени счета. Цепь не может ни регистрировать, ни корректировать события из-за наложения, когда интервал между ними меньше, чем время разрешения цепи, или когда одно из событий находится ниже временного порога обнаружения. Когда два или более событий расположены ближе друг к другу, чем выбранный порог режекции наложений, такие события не записываются, а время счета увеличивается для компенсации потерь.

Один метод продления времени счета заключается в генерировании интервала мертвого времени, который начинается, когда обнаруживается событие наложения, и оканчивается, когда обработано и зарегистрировано следующее хорошее событие; эта процедура дает приблизительную поправку. Процедура не может компенсировать необнаруженные события. Однако, при типичном периоде времени для ворот режекции, равном 20 мкс, и времени между соседними импульсами, которое составляет ~ 1 мкс, погрешность поправки будет составлять лишь несколько процентов. Для скоростей счета до нескольких десятков тысяч счетов за секунду, общая погрешность не будет превышать 1 %. Необходимые цепи режекции часто встраиваются в усилители спектрометров. Метод требует использования "живого" времени, так как время анализа не известно заранее. Метод также требует, чтобы скорость счета и форма спектра были неизменными в течение времени счета. Это ограничение несущественно для анализа долгоживущих нуклидов, но очень важно при активационном анализе очень короткоживущих нуклидов.

В последние годы требование активационного анализа к работе с высокими скоростями счета и быстро изменяющимися формами спектра привели к дальнейшим достижениям в области поправок на наложения и мертвое время. Такие системы сложны и только недавно появились в свободной продаже. Они могут работать при нагрузках порядка сотен тысяч импульсов в секунду и точно корректировать потери, превышающие 90 %. Способность корректировать потери на мертвое время и наложения при высоких скоростях может потенциально повысить скорость выполнения некоторых процедур НРА.

5.4.6 Введение поправок на мертвое время и наложения импульсов с помощью генератора импульсов

Метод генератора импульсов используется для введения искусственного пика в накапливаемый спектр; он имеет множество вариантов в зависимости от типа используемого генератора. Большинство предусилителей для германиевых и кремниевых детекторов имеют вход "КОНТРОЛЬ", через который могут быть введены импульсы подходящей формы. Эти импульсы претерпевают такие же потери вследствие мертвого времени и наложений, как импульсы, возникающие при регистрации гамма-квантов, и формируют пик, подобный пику гамма-излучения. Пик генератора импульсов имеет лучшее разрешение и форму, чем пики гамма-излучения потому, что он не расширяется из-за статистических

процессов, имеющих место при регистрации гамма-излучения. Площадь пика генератора импульсов определяется таким же образом, что и площадь пика гамма-излучения. Число импульсов, вводимых в предусилитель, легко определяется непосредственным счетом или из частоты генератора импульсов и времени накопления.

Преимуществом метода генератора импульсов является то, что искусственный пик обычно может быть расположен так, чтобы избежать интерференции с пиками гамма-излучения. Кроме того, поскольку все события генератора импульсов относятся к полному поглощению энергии, генерируется минимальное дополнительное мертвое время и наложения. С другой стороны, трудно найти генераторы импульсов с требуемой стабильностью амплитуды, способностью формирования импульса нужной формы и регулируемой частотой.

Другой общей проблемой является трудность введения импульсов через предусилитель без некоторого "недолета" в выходном импульсе. Длинный "недолет" нежелателен, поскольку импульсы гамма-излучения могут накладываться на "недолет" подобно тому, как они накладываются на положительную часть импульса. Нуль усилителя не может одновременно компенсировать различные постоянные спада генератора импульсов и импульсов гамма-излучения, поэтому компенсирующие системы редко используются на входе "КОНТРОЛЬ" из-за вероятного ухудшения в разрешении. Проблема "недолета" может быть минимизирована за счет использования длительного времени спада у импульса от генератора импульсов (часто порядка одной миллисекунды) и более короткой постоянной времени. Для минимизации проблемы схемы "полюс-ноль" обычно требуется некоторая жертва в отношении общего разрешения.

Простейший подход заключается в использовании обычного генератора импульсов с фиксированным периодом, в котором интервал между импульсами является постоянной величиной, равной обратной величине скорости счета импульсов. Лучшая стабильность амплитуды достигается от генератора импульсов с ртутным переключателем, в котором емкость заряжается и разряжается через цепь сопротивлений с помощью ртутного механического переключателя, который, однако, ограничивает полезную скорость таких генераторов до ≤ 100 Гц.

Предполагая, что пики генератора и пики гамма-излучения теряют некоторую часть событий из-за мертвого времени и наложений, соответствующий коэффициент поправки равен

$$CF(RL) = N / A(P), \quad (5.64)$$

где N — число (скорость счета) вводимых импульсов;

$A(P)$ — площадь (скорость счета для площади) пика генератора импульсов.

$CF(RL)$ имеет минимальное значение равное 1,00 и является обратной величиной от доли событий, накопленных в пике.

Уравнение (5.64) не совсем верно, поскольку импульсы генератора никогда не теряются ни в результате собственного мертвого времени, ни в результате наложений, ни чего-либо другого. Таким образом, общие потери для гамма-излучения больше, чем потери пика генератора, хотя разница очень мала. При средней скорости потери из-за мертвого времени и наложения почти независимы и

CF(RL) может быть скорректирован для получения более точного результата с помощью двух перемножаемых коэффициентов:

$$CF(RL) = \frac{N}{A(P)} (1 + RT_D)(1 + RT), \quad (5.65)$$

где R — частота импульсов генератора;
 T_D — мертвое время для импульса генератора;
 T — интервал наложения.

Мертвое время T_D можно достаточно хорошо оценить по быстродействию АЦП, а для АЦП Уилкинсона — по положению пика генератора. Интервал T обычно равен от 1,5 до 2 значений ширины импульса. Если $R \leq 100$ Гц, оба коэффициента обычно малы. Если принять типичное значение для обеих величин T_D и T , равное 20 мкс, то значение каждого дополнительного коэффициента равно 1,002, поэтому увеличение в CF(RL) составит всего ~ 0,4 %. Если используются большие величины R , T_D или T , поправки будут иметь большие значения. Если для более быстрого получения высокой точности R увеличивается до 1000 Гц, дополнительные факторы доводят разницу до нескольких процентов.

Беспокойство о точности анализа приводит к довольно любопытному, но полезному свойству периодических генераторов импульсов. Точность пика генератора определяется другим соотношением, чем точность пиков гамма-излучения. Точность пика генератора на самом деле всегда выше, чем точность пика гамма-излучения той же площади потому, что испускание гамма-квантов случайно, а производство импульсов генератором — нет. Точность площадей пиков гамма-излучения подчиняется статистике Пуассона, в то время как точность пиков импульсного генератора подчиняется, главным образом, биномиальной статистике.

Полагая, что фон под пиком генератора незначителен, и что площадь пика равна P , дисперсия и относительная дисперсия величины P определяются как

$$\begin{aligned} S^2(P) &= P(1 - P/N), \\ S_r^2(P) &= \frac{1}{P}(1 - P/N), \end{aligned} \quad (5.66)$$

где N — общее число импульсов, введенных в спектр.

Предполагая опять, что комптоновский фон незначителен, дисперсия и относительная дисперсия пика гамма-излучения площади A определяются выражениями:

$$\begin{aligned} S^2(A) &= A, \\ S_r^2(A) &= 1/A. \end{aligned} \quad (5.67)$$

На рис. 5.17 представлен график $S_r(P)$ от P для нескольких выбранных значений P/N , который показывает, что для $P/N \approx 0,5$ наблюдается совсем незначительное улучшение точности.

Когда пик генератора находится на значительном по величине фоне, вид выражения для $S(P)$ будет более сложным из-за случайной природы фона. Пик генератора следует располагать на той части спектра, которая имеет низкий фон (обычно в области высоких энергий) так, чтобы можно было достичь улучшенной точности и использовать уравнение (5.66).

Использование пика от генератора импульсов в области высокой энергии может усложнить минимизацию "недолета". Альтернативным подходом является

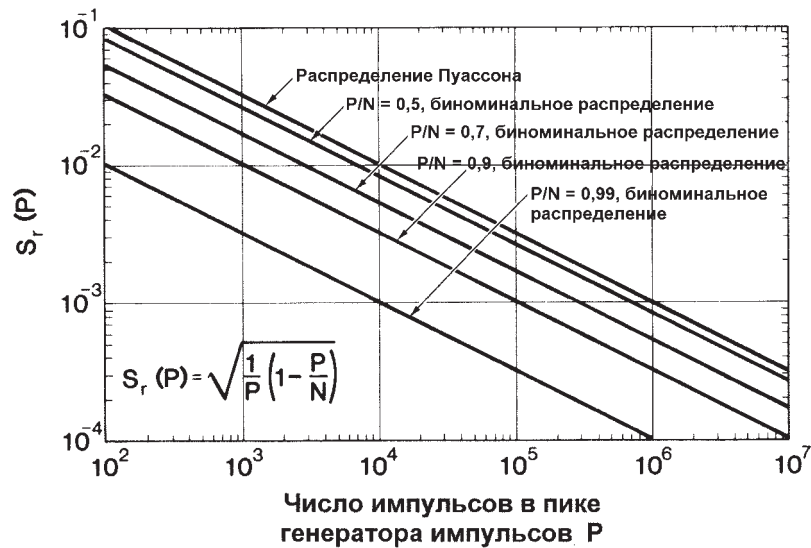


Рис. 5.17. Относительное стандартное отклонение $S_r(P)$ площади пика генератора импульсов P в зависимости от P для нескольких значений отношения P/N , где N — общее число набранных в спектре импульсов

использование прямоугольного импульса, который длиннее, чем выходной импульс усилителя; тогда исчезает проблема схемы "полюс-ноль" и отсутствуют мелкие "недолеты". Взамен генерируется отрицательный импульс как падение напряжения на выходе генератора. Другие события накладываются на отрицательный импульс, но он четко определяется и ведет к исключению событий наложения из их пика. Дополнительный коэффициент для потерь из-за наложений может быть записан как $(1+2RT)$.

Если бы имелись подходящие генераторы случайных импульсов, CF(RL) определялся бы просто уравнением (5.64). К сожалению, генераторы случайных импульсов успешно использовались только в исследовательских лабораториях, аналогичных коммерческих приборов нет. Одновременно трудно достигнуть требуемой стабильности амплитуды, случайного распределения интервала и постоянной средней скорости, которые требуются в практических задачах анализа гамма-излучения.

Поправки на мертвое время и наложения на основе импульсного генератора точны только тогда, когда и скорость счета, и форма спектра не изменяются в течение всего времени измерения. Когда скорость счета изменяется в течение времени измерения, правильная поправка не может быть выполнена, если генератор импульсов работает при фиксированной частоте. В принципе, поправка может быть выполнена при использовании генератора, работающего с частотой, которая является функцией общей скорости счета детектора. Были разработаны и успешно используются генераторы, основанные на этом принципе [14]. Такие генераторы используются в активационном анализе, при определении периодов полураспада, в экспериментах на ускорителях и везде, где могут встретиться изменяемые скорости счета при постоянной форме спектра. Использование генераторов импульсов с изменяемой частотой показывает разнообразие и мастерство, с кото-

рым применялись фундаментальные идеи введения в спектр искусственного пика для решения проблемы поправки на мертвое время и наложения.

5.4.7 Метод образцового источника для введения поправок на мертвое время и наложения

Большинство точных методов измерения поправки на мертвое время и наложения используют образцовый источник, установленный в фиксированном положении по отношению к детектору. Источник обеспечивает постоянную скорость взаимодействия гамма-излучения в детекторе. Пик стандартного источника выполняет такую же функцию, что и пик генератора импульсов.

Подобно другим методам, метод образцового источника исходит из предположения, что все пики подвержены одинаковым относительным потерям вследствие мертвого времени и наложений. При этом отношение площади любого пика к площади пика стандартного источника не зависит от таких потерь. Пусть $A(\gamma)$ и $FEIR(\gamma)$ представляют, как обычно, площадь пика полного поглощения и скорость счета в пике полного поглощения энергии для любого гамма-излучения, отличного от гамма-излучения образцового источника R . Если F является общей накопленной частью, а TT равно реальному времени накопления, то площади равны

$$\begin{aligned} A(\gamma) &= F \times FEIR(\gamma) \times TT, \\ A(R) &= F \times FEIR(R) \times TT. \end{aligned} \quad (5.68)$$

Отношение двух выражений дает

$$A(\gamma) / A(R) = FEIR(\gamma) / FEIR(R), \quad (5.69)$$

которое не зависит ни от F , ни от TT . Анализ гамма-излучения часто основан непосредственно на отношениях $A(\gamma)/A(R)$, которые не зависят от потерь, без определения в явном виде $CF(RL)$ или $FEIR(\gamma)$.

Для гамма-излучения образцового источника коэффициент поправки определяется как

$$CF(RL) = FEIR(R) \times TT / A(R). \quad (5.70)$$

Объединение этого выражения с уравнением (5.63) дает:

$$FEIR(\gamma) = \frac{A(\gamma)}{A(R)} FEIR(R), \quad (5.71)$$

которая не зависит от времени счета. Уравнение (5.55) для откорректированной скорости счета CR может теперь быть записано в виде

$$CR(\gamma) = FEIR(\gamma) \times CF(AT) = \frac{A(\gamma)}{A(R)} FEIR(R) \times CF(AT). \quad (5.72)$$

Величина $CR(\gamma)$ не зависит от реального времени измерения, хотя очевидно, что точность этой величины зависит от этого времени.

Если аналитические системы отградуированы с помощью образцовых источников, нет необходимости знать $FEIR(R)$ для получения точных результатов анализа. Во многих процедурах анализа искомая величина M (масса изотопа или элемента)

пропорциональна $CR(\gamma)$. В уравнениях с (5.73) по (5.75) величина K является градуировочной постоянной, индекс s обозначает характеристики, относящиеся к эталонам, а индекс u обозначает характеристики, относящиеся к неизвестным образцам:

$$M_u = \frac{CR(\gamma)_u}{K} = \frac{[A(\gamma)_u / A(R)_u] FEIR(R) \times CF(AT)_u}{K}. \quad (5.73)$$

Градуировочная постоянная может определяться по одному источнику:

$$K = \frac{CR(\gamma)_s}{M_s} = \frac{[A(\gamma)_s / A(R)_s] FEIR(R) \times CF(AT)_u}{M_s}. \quad (5.74)$$

Объединение уравнений (5.73) и (5.74) дает

$$M_u = \frac{[A(\gamma)_u / A(R)_u] CF(AT)_u}{[A(\gamma)_s / A(R)_s] CF(AT)_s} M_s, \quad (5.75)$$

которая не зависит от величины $FEIR(R)$.

Хотя точное знание величины $FEIR(R)$ не является необходимым, полезно получить приблизительные значения величин $FEIR(\gamma)$, $FEIR(R)$ и $CF(RL)$, чтобы действительные скорости накопления данных были известны вместе с частью информации, теряющейся из-за мертвого времени и наложений. Наличие градуировочной постоянной, выраженной в виде откорректированного числа отсчетов за секунду для единицы массы, может быть полезным при оценке требуемых времен анализа.

Достаточно точное значение величины $FEIR(R)$ может быть получено путем регистрации в живом времени излучения от одного образцового источника и оценки поправки на потери из-за наложения. Более точные значения поправок на потери из-за мертвого времени и наложения могут быть получены с помощью генератора импульсов.

Метод образцового источника может быть применен для любой спектрометрической системы без дополнительной электроники. Метод лишен проблем, вызванных введением импульсов генератора в предусилитель и смещением стандартного пика по отношению к пикам гамма-излучения. Он также не требует дополнительных поправок, которые необходимы при использовании генератора с фиксированной частотой. Кроме того, отсутствует погрешность вследствие конечного временного разрешения между соседними пиками, и пик образцового источника всегда имеется в распоряжении для проведения цифровой стабилизации и для выбора характеристик системы.

Главным значительным ограничением этой процедуры является то, что не всегда имеется в распоряжении образцовый источник с подходящим периодом полураспада и энергией. Дополнительным ограничением является то, что образцовый источник должен иметь значительную активность, что вызывает дополнительные потери и приводит к ухудшению общей точности, которая достижима для того же времени счета с другими методами. Метод образцового источника так же, как более простой метод генератора импульсов, применим только тогда, когда скорость счета и форма спектра постоянны.

Образцовый источник должен иметь большой период полураспада и интенсивное гамма-излучение в чистой части спектра. Энергия гамма-излучения об-

разцового источника должна быть ниже, но относительно близка к энергии анализируемых гамма-излучений, чтобы не добавив фона под анализируемые пики. Применение моноэнергетического образцового источника ограничивает рост на больших скоростях счета и общие потери из-за мертвого времени и наложений. Мало источников отвечают всем требованиям, но некоторые соответствуют требованиям для многих задач.

Для анализа ^{239}Pu , основанного на гамма-излучении с энергией 413,7 кэВ, самым полезным источником является ^{133}Ba . Гамма-излучение с энергией, равной 356,0 кэВ, не подвержено интерференции ни с одним из гамма-излучений плутония или америция, и оно находится на расстоянии не более 60 кэВ от анализируемой энергии. Очень удобен период полураспада, составляющий 10,3 года. Хотя ^{133}Ba испускает и другие гамма-кванты, их энергии находятся ниже 414 кэВ.

Для анализа плутония, когда требуется использование гамма-квантов более низких энергий, полезным образцовым источником является ^{109}Cd . Его гамма-линия с энергией 88,0 кэВ является единственным значимым излучением, за исключением рентгеновского излучения ^{109}Ag от захвата электрона с энергией ~ 25 кэВ, которое легко удаляется с помощью тонкого фильтра. Его период полураспада ~ 453 дней отвечает требованию применения в течение года или двух до замены. Хотя для нуклидов плутония и америция отсутствуют интерферирующие пики гамма-излучения, существует возможность интерференции с рентгеновским излучением свинца, который используется для защиты детектора. Линия $K_{\beta 2}$ -рентгеновского излучения свинца попадает непосредственно в область пика гамма-излучения ^{109}Cd с энергией 88,0 кэВ. Интерференции можно избежать, обертывая детектор кадмием для поглощения рентгеновского излучения свинца и используя достаточно мощный ^{109}Cd источник, который подавит любое остаточное прохождение рентгеновского излучения свинца. Кроме того, если можно использовать разнообразные защитные материалы (например, сплав железа и вольфрама), то проблема исчезает.

Для анализа ^{235}U часто используется гамма-излучение ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Его период полураспада, равный 271 дню, вполне подходит, хотя он не такой длительности, как можно было бы желать. Гамма-излучение с энергией 122,0 кэВ приблизительно в восемь раз интенсивнее гамма-излучения с энергией 136,5 кэВ и является единственным из других гамма-излучений, которое имеет значимую интенсивность. Заметим, что при использовании ^{57}Co для анализа образцов урана высокого обогащения, гамма-излучение ^{234}U с энергией 120,9 кэВ может быть досадной помехой. Эту проблему можно исключить, используя фильтр, который снижает интенсивность излучений с энергиями, более низкими по сравнению с излучением с энергией 185,7 кэВ, и достаточно сильный источник ^{57}Co , чтобы превысить остаточный сигнал от ^{234}U .

Часто для анализа урана или других элементов в качестве образцового источника используют ^{241}Am . Хотя гамма-излучение ^{241}Am с энергией 59,5 кэВ находится дальше от 186 кэВ, чем хотелось бы, его можно использовать, особенно, если приняты меры к снижению разницы в разрешении. Период полураспада, составляющий 433,6 года, не требует поправок. Чтобы использовать для анализа этот источник, америций-241 должен полностью отсутствовать в любых анализируемых материалах. Иногда в качестве источника излучения в плотнометре или для количественного анализа ^{235}U используется ^{169}Yb . Дочерние нуклиды иттербия испускают рентгеновское излучение, которое непосредственно интерферирует с

гамма-излучением с энергией 59,5 кэВ, но любую возможную проблему можно решить за счет достаточной фильтрации вместе с выбором подходящей интенсивности источника.

Современные методы определения поправок на мертвое время и наложения предполагают, что все пики полного поглощения подвержены одинаковым относительным потерям. Это предположение не совсем верно, главным образом потому, что ширина и форма пика являются функциями и энергии, и скорости счета импульсов. Применяя метод образцового источника, должны быть предприняты меры предосторожности для минимизации числа нарушений этого предположения. Ниже приводятся четыре таких предосторожности, большинство из которых применяются в любом методе определения поправок:

- когда это возможно, применять процедуру только в узком энергетическом диапазоне;
- поддерживать постоянными, насколько это возможно, ширину пика и форму относительно энергии и скорости счета, даже если это слегка ухудшит разрешение на низких скоростях и при низкой энергии. Правильная регулировка усилителя и режекция наложений могут в этом существенно помочь;
- избегать выпуклой или вогнутой формы комптоновского фона под важными пиками, особенно под пиком образцового источника. Если возможно, соотношение площади пика образцового источника к площади фона должна быть ≥ 10 ;
- уделять больше внимания определению площадей пиков. Методы выбора РО могут быть менее чувствительны к небольшим изменениям формы пика, чем методы подгонки спектров.

Экспериментальные результаты показывают, что метод образцового источника может корректировать потери из-за мертвого времени и наложений с погрешностью около 0,1 % в широком диапазоне скорости счета. Такие погрешности могут быть также достигнуты с помощью метода генератора импульсов, особенно при низких скоростях, и с помощью некоторых чисто электронных методов. Однако оборудование, которое требуется для чисто электронных методов, очень сложное.

5.5 ЭФФЕКТЫ ЗАКОНА ОБРАТНОГО КВАДРАТА

Полная эффективность регистрации детектора изменяется приблизительно как обратная величина квадрата расстояния между детектором и источником гамма-излучения. Рассмотрим точечный источник, испускающий I гамма-квант в секунду. Поток F гамма-квантов на расстоянии R определяется как число гамма-квантов в секунду, проходящих через единицу площади сферы с радиусом R и центром, совпадающим с положением источника. Так как площадь сферы равна $4\pi R^2$, выражение для F имеет следующий вид:

$$F = \frac{I}{4\pi R^2}. \quad (5.76)$$

Скорость счета детектора пропорциональна случайному потоку, и если поверхность детектора может быть аппроксимирована частью сферической поверх-

ности с центром в точке расположения источника, скорость счета имеет аналогичную потоку зависимость, т.е. $1/R^2$. Когда регистрируется низкоинтенсивное излучение от образца, желательно уменьшить расстояние образец-детектор и увеличить скорость счета. К сожалению, когда расстояние образец-детектор настолько мало, что для разных частей образца заметно различие в расстояниях до детектора, то и скорости счета от различных частей образца значительно отличаются. Это различие расстояний может вызвать погрешность в результатах анализа, когда распределение излучающего материала в образце неравномерно.

Общая скорость счета от образцов конечных размеров не подчиняется простому закону: обычно отклонение менее сильное, чем $1/R^2$. Несколько простых случаев могут помочь оценить общие скорости счета и неравномерность отклика.

Простейшим примером такого источника является линейный источник, который часто является подходящей моделью трубы, по которой прокачиваются радиоактивные растворы. Рассмотрим идеальный точечный детектор с собственной эффективностью ϵ , расположенный на расстоянии D от неограниченно длинного источника интенсивности I на единицу длины (рис 5.18). Скорость счета от этого источника может быть выражена как

$$CR = 2 \int_0^{\infty} \frac{I\epsilon}{r^2 + D^2} dr = \frac{\pi I\epsilon}{D}. \quad (5.77)$$

В этом идеальном случае зависимость скорости счета скорее $\propto 1/R$, чем $1/R^2$. Когда трубы измеряются на расстояниях меньших, чем их длина, изменение скорости счета приблизительно пропорционально $1/R$.

Скорость счета от точечного детектора, расположенного на расстоянии R от плоской бесконечной поверхности, совсем не зависит от R . Для детектора, расположенного близко к однородно загрязненной стене перчаточного бокса, скорости счета изменяются очень мало с изменением расстояния стена-детектор.

Должно быть минимизировано изменение отклика, связанное с изменением распределения материала внутри образца. Расстояние образец-детектор может быть увеличено, но расплатой являются большие потери в скорости счета. Лучшей стратегией является вращение образца. Рассмотрим поперечное сечение цилиндрического образца с радиусом R , центр которого находится на расстоянии D от детектора (рис. 5.19). Пока D незначительно превышает R , скорости счетов для идентичных источников, расположенных в точках 1, 2, 3 и 4, изменяются заметно. На рисунке показано, что если $D = 3R$, максимальное отношение скоростей счета $CR(2)/CR(4)=4$. Отношение отклика при вращении источника по окружности радиуса R к отклику для центра (положение 1 на рис. 5.19) определяется по формуле

$$\frac{CR(R)}{CR(1)} = \frac{1}{1 + (R/D)^2}. \quad (5.78)$$

Отклик будет тем же самым, что и отклик, полученный для однородного непоглощающего круглого источника с радиусом R , центр которого расположен на расстоянии D от детектора. В табл. 5.6 представлены значения этой функции для нескольких значений R/D , а так же для сравнения $CR(2)/CR(1)$ для невращающегося источника на рис. 5.19. Отклонение отклика даже больше, если принимать

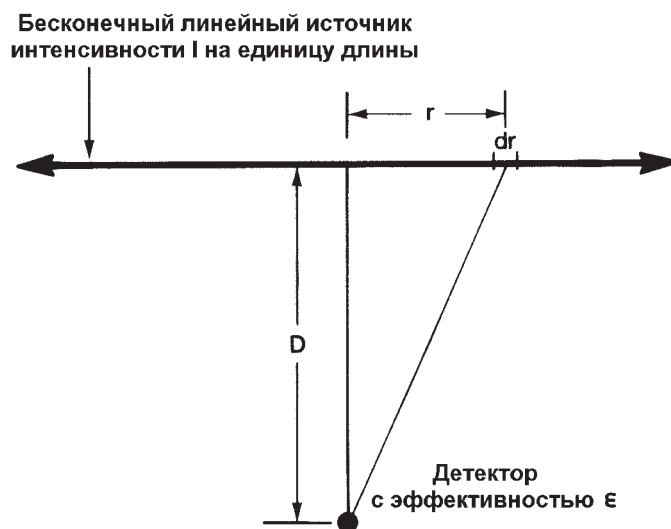


Рис. 5.18. Геометрия для расчета отклика точечного детектора при линейном источнике

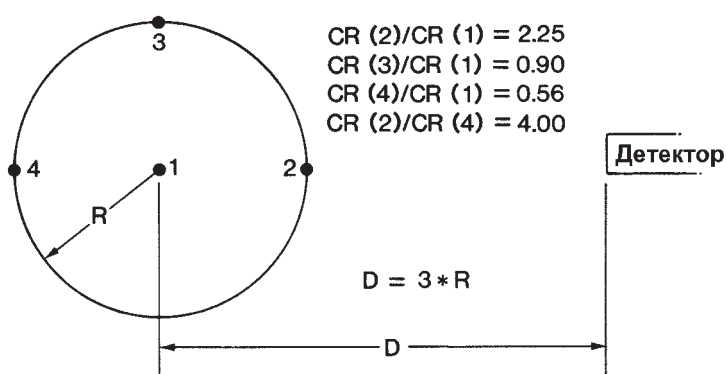


Рис. 5.19. Поперечное сечение цилиндрического образца и точечного детектора. Рисунок показывает изменение скорости счета с изменением положения источника

во внимание поглощение. Вращение только уменьшает эффекты $1/R^2$; оно не уничтожает полностью этот эффект.

Вращение уменьшает отклонения отклика, вызванные расположением источника по радиусу, но практически не позволяет компенсировать большие отклонения. Если высота источника не превышает одной трети расстояния образец-детектор, уменьшение в отклике составляет менее 10 % по сравнению с нормальным положением.

Таблица 5.6 – Влияние простого вращения на изменение скорости счета

R/D	CR(R)/CR(1) (вращение)	CR(2)/CR(1) (нет вращения)
1/2	1,33	4,0
1/3*	1,125	2,25
1/4	1,067	1,78
1/5	1,042	1,56
1/6	1,029	1,44
1/7	1,021	1,36

* См. рис. 5.19.

Выбор расстояния образец-детектор является компромиссом между минимизацией отклонений отклика и поддержкой достаточной скорости счета. Полезной информацией является то, что отклонение максимума скорости счета составляет менее 10 %, если расстояние образец-детектор равно утроенному значению большей из величин — радиус образца или половина высоты. Если образец не может вращаться, очень полезно измерять его в двух позициях с поворотом на 180°.

5.6 ИЗМЕРЕНИЯ ЭФФЕКТИВНОСТИ ДЕТЕКТОРА

5.6.1 Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения

Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения представляет собой долю гамма-квантов, зарегистрированных в пике полного поглощения, от потока гамма-квантов, испущенных точечным источником на конкретном расстоянии источник-детектор. Эта эффективность определяется в виде функции от энергии. Эта функция получается с помощью измерения эффективности для ряда энергий, а затем подгонки соответствующей функции к экспериментальным точкам:

$$\epsilon_A(\gamma) = \text{FEIR}(\gamma) / \text{ER}(\gamma), \quad (5.79)$$

где ϵ_A — абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения;
 $\text{ER}(\gamma)$ — скорость испускания гамма-квантов.

Определение величины FEIR описывается в разделе 5.4. Для детекторов с высоким разрешением необходимы поправки на потери вследствие наложений и мертвого времени. Для сцинтилляторов с низким разрешением поправками из-за наложений обычно пренебрегают.

Градуировочные источники для проведения абсолютных градуировок имеются у ряда поставщиков. Есть свидетельства трудности измерения точных скоростей счета излучения, поэтому приводимые в литературе погрешности нахо-

дятся в интервале между 0,5 и 2,0 %. В табл. 5.1 приведен список нескольких источников моноэнергетического гамма-излучения. Многоизотопные многоэнергетические источники, такие как источник Национального бюро стандартов США типа SRM-4275 (см. раздел 5.1.1), удобны для градуировки детекторов с высоким разрешением. Этот источник может быть использован в течение нескольких лет и перекрывает энергетический диапазон, наиболее часто используемый в НРА.

Часто в каскадных переходах между энергетическими уровнями одного возбужденного ядра испускаются два или более гамма-кванта. Так как интервал времени между испусканием таких каскадных гамма-квантов очень мал по сравнению со временем сбора заряда в германиевых, кремниевых или NaI-детекторах, с мультиплетным гамма-излучением обращаются, как с одиночным взаимодействием. Этот суммарный каскад может внести в измеряемые значения FEIR погрешности при вычитании или суммировании. Проблема важна, когда источник расположен так близко к детектору, что вероятность регистрации двух или более каскадных гамма-квантов очень велика. Если для повышения чувствительности приходится использовать очень короткие расстояния источник-детектор, необходимо очень внимательно рассматривать проблемы каскадного суммирования. Сопроводительная информация для источника SRM-4275 содержит подробное обсуждение этой проблемы, а так же другие возможные трудности, связанные с использованием многоэнергетических гамма-источников.

5.6.2 Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения энергии

Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения равна вероятности потери гамма-квантом всей своей энергии, если он попадает в объем детектора. Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения ϵ_A и собственная эффективность регистрации пика полного поглощения ϵ_I связаны простым уравнением

$$\epsilon_A = \frac{\Omega}{4\pi} \epsilon_I, \quad (5.80)$$

где Ω является телесным углом детектора по отношению к источнику, а $\Omega/4\pi$ есть вероятность того, что гамма-квант попадет в объем детектора. Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения определяется экспериментально с помощью измерения абсолютной эффективности регистрации пика полного поглощения и решения уравнения (5.80) для ϵ_I . Вычисляемое значение величины ϵ_I слабо зависит от положения источника по отношению к детектору.

При вычислении телесного угла Ω необходима определенная осторожность, особенно, если детектор имеет необычную форму или не расположен на оси симметрии. На рис. 5.20 показан точечный источник, расположенный на расстоянии D от лицевой стороны цилиндрического детектора радиуса R . Правильным выражением для телесного угла детектора относительно источника является

$$\Omega = 2\pi \left[1 - \left(\frac{D}{\sqrt{D^2 + R^2}} \right) \right], \quad (5.81)$$

где $D / \sqrt{D^2 + R^2} = \cos \Theta$;

Θ — телесный угол, показанный на рис. 5.20.

Однако для круглого детектора часто используется приближительное выражение:

$$\Omega \approx A / D^2 = \pi R^2 / D^2, \quad (5.82)$$

где A является площадью лицевой стороны детектора. Первое выражение в уравнении (5.82) может быть применено даже тогда, когда поперечное сечение детектора только приблизительно имеет форму круга, но является верным только тогда, когда площадь A много меньше, чем $4\pi D^2$. Сравнение уравнений (5.81) и (5.82) показывает, что когда D становится меньше R , величина для Ω из уравнения (5.82) становится слишком большой. Для $D/R = 8$, Ω составляет примерно 1 %; для $D/R = 1$, $\Omega \sim 70$ %.

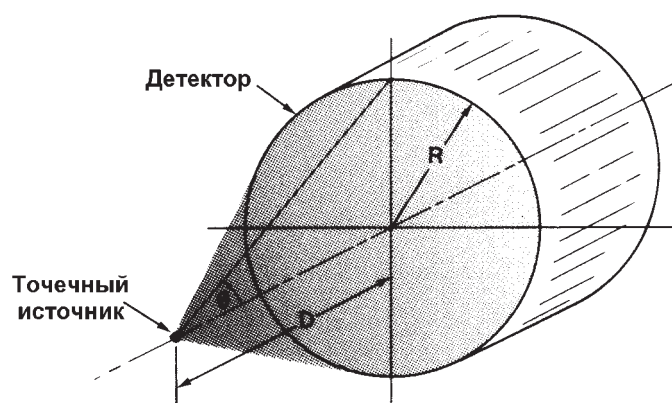


Рис. 5.20. Точечный источник на оси цилиндрического детектора

5.6.3 Относительная эффективность

Часто знание истинного значения абсолютной или собственной эффективности регистрации пика полного поглощения не является необходимым, и требуется только знать отношения эффективностей для различных значений энергии. Кривая относительной эффективности обычно определяется легче, чем абсолютная и собственная эффективности. Относительная эффективность отличается от абсолютной или собственной только постоянным множителем, который зависит от процедуры, используемой при определении относительной эффективности. Точные значения скоростей испускания гамма-квантов не требуются, а нужны только значения, которые пропорциональны скоростям испускания. Когда используется отдельный изотоп, испускающий много гамма-квантов различной энергии распада, необходимую информацию дают величины квантового выхода [15]. Уравнение (5.79) может быть модифицировано для получения выражения для определения относительной эффективности в случае одного источника:

$$\epsilon_R = A(\gamma) / B(\gamma), \quad (5.83)$$

где $B(\gamma)$ является коэффициентом ветвления распада, который соответствует площади пика $A(\gamma)$. Обычно кривые относительных эффективностей приведены

к 1,00 для некоторой удобной энергии. Полулогарифмический график относительной эффективности имеет ту же форму, что и соответствующие графики абсолютной и собственной эффективностей. На рис. 5.21 показан график кривой относительной эффективности коаксиального детектора, полученный с помощью спектра тонкого источника ^{133}Ba . Заметим, если предполагается, что коэффициенты ветвления распада пропорциональны скоростям испускания гамма-квантов из источника, то должны использоваться источники с пренебрежимо малым самопоглощением. Это предположение не верно для многих источников, помещенных в стальную капсулу, особенно при низких энергиях.

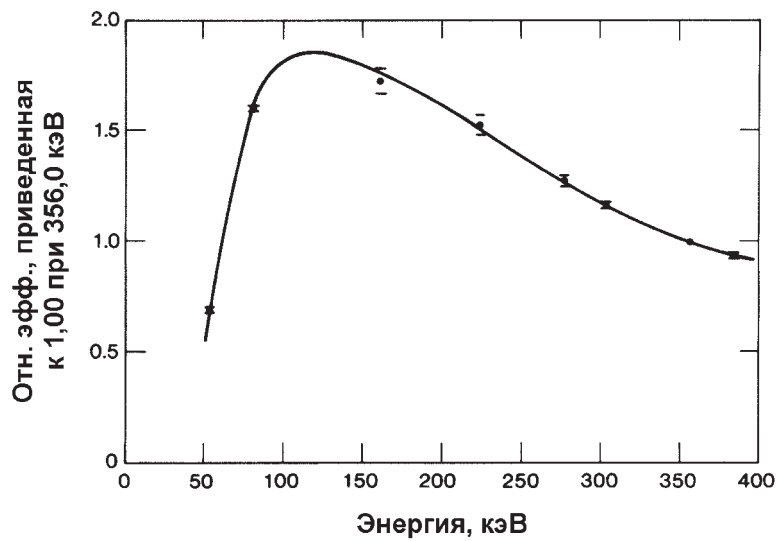


Рис. 5.21. Относительная эффективность коаксиального германиевого детектора между ~50 и ~400 кэВ, полученная с помощью спектра тонкого источника ^{133}Ba

5.6.4 Эффективность по отношению к детектору NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см

Производители германиевых детекторов обычно характеризуют эффективность коаксиальных детекторов, сравнивая ее с абсолютной эффективностью регистрации пика полного поглощения детектором NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см. Сравнение всегда проводится при энергии 1332,5 кэВ для расстояния источник-детектор, равного 25 см, а эффективность выражается в процентах по отношению к эффективности детектора NaI(Tl). Эффективность германиевого детектора измеряется, а абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения детектора NaI(Tl) предполагается равной 0,0012 для установленных значений энергии и расстояния. Выражение для расчета измеряемой эффективности германиевого детектора имеет вид:

$$\varepsilon_{\text{RNaI}} = \left[\frac{\text{FEIR}(1332,5) / \text{ER}(1332,5)}{0,0012} \right] 100, \quad (5.84)$$

где FEIR(1332,5) учитывает поправки на потери из-за мертвого времени и наложений, а ER(1332,5) — текущая скорость излучения. Расстояние источник-детектор очень трудно определить точно, так как кристалл германиевого детектора спрятан за торцевой крышкой криостата. Поскольку лицевая сторона кристалла детектора монтируется большинством производителей внутри детектора в пределах 5 мм от торцевой крышки, измерение производится на расстоянии 24,5 см от источника до торцевой крышки.

Если для определения просчетов скорости счета используется генератор импульсов на 60 Гц, можно записать уравнение (5.84) в следующем виде:

$$\varepsilon_{\text{RNaI}} = \frac{135,1 A(1332,5)}{A(p)I_0 \exp(-0,1318T)}, \quad (5.85)$$

где $A(1332,5)$ и $A(p)$ — площади пиков 1332,5 кэВ и генератора импульсов, а T — время, выраженное в годах, поскольку источник ^{60}Co имеет активность I_0 микрокюри. Если один источник используется постоянно, величина I_0 может быть включена в численную константу.

5.6.5 Эффективность в зависимости от энергии и положения

Обычно градуировка системы НРА осуществляется с использованием стандартных образцов, которые содержат известные количества исследуемых изотопов в упаковках подходящей формы и размера. Поскольку приблизительные эффективности детекторов используются только для оценки ожидаемых скоростей счета, необходимо обратить внимание на определение функциональной зависимости эффективности от энергии и положения. Детектор, который имеет такую характеристику, можно использовать для анализа без применения стандартных образцов, но с большей трудностью и с меньшей точностью. Когда стандартных образцов в распоряжении нет, или не позволяет пространство, могут быть проведены проверочные измерения отдельных образцов известной геометрии и содержания с использованием известной эффективности детектора для предсказания значений FEIR при выбранной геометрии детектор-образец. Если измеренные значения FEIR согласуются в пределах погрешностей с предсказанной скоростью счета, содержание образца считается определенным верно.

При построении приемлемых функций эффективности абсолютное значение эффективности измеряется для многих энергий и положений, а затем подгоняется к подходящей математической модели. Метод Клайна [16] сочетает разумную точность с простой процедурой определения параметров эффективности. Требуется несколько дней или более, чтобы точно определить характеристики детектора.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Gunnink, J. E. Evans, and A. L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energy and Absolute Branching Intensities of ^{237}U , $^{238,239,240,241}\text{Pu}$, and ^{241}Am ," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (1976).
2. M. E. Anderson and J. F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).

3. *Table of Isotopes*, 7th ed., C. M. Lederer and V. S. Shirely, Eds, (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
4. R. D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1955), Chapters 23-25.
5. P. R. Bevington, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1969).
6. Y. Beers, *Introduction to the Theory of Error* (Addison-Wisley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1962).
7. T. Mukoyama, "Fitting of Gaussian to Peaks by Non-Iterative Methods," *Nuclear Instrument and Methods* 125, 289-291 (1975).
8. S. L. Meyer, *Data Analysis for Scientists and Engineers* (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1975), p. 37.
9. R. B. Walton, E. I. Whitted, and R. A. Foster, "Gamma-Ray Assay of Low-Enriched Uranium Waste," *Nuclear Technology* 24, 81-92 (1974).
10. R. Gunnink, "Computer Techniques for Analysis of Gamma-Ray Spectra," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-80297 (1978).
11. R. G. Helmer and M. A. Lee, "Analytical Functions for Fitting Peak From Ge Semiconductor Detectors," *Nuclear Instrument and Methods* 178, 499-512 (1980).
12. G. K. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
13. J. G. Fleissner, C. P. Oertel, and A. G. Garrett, "A High Count Gamma-Ray Spectrometer System for Plutonium Isotopic Measurements," *Journal of the Institute of Nuclear Materials Management* 14, 45-56 (1986).
14. H. H. Bolotin, M. G. Strauss, and D. A. McClure, "Simple Technique for Precise Determination of Counting Losses in Nuclear Pulse Processing Systems," *Nuclear Instrument and Methods* 83 1-12 (1970).
15. R. A. Meyer, "Multigamma-Ray Calibration Sources," Lawrence Livermore Laboratory report M-100 (1978).
16. J. E. Cline, "A Technique of Gamma-Ray Detector Absolute Efficiency Calibration for Extended Sources," Proc. American Nuclear Society Topical Conference of Computers in Activation Analysis and Gamma-Ray Spectroscopy, Mayaguez, Puerto Rico (1978), pp. 185-196 (Conf. 780421).

Глава 6

Процедуры учета ослабления

Джеск Л. Паркер
(Переводчик В. В. Свиридова)

6.1 ВВЕДЕНИЕ

Неразрушающий анализ (НРА) ядерного материала проводится на образцах больших размеров и с высоким самопоглощением. Типичные контейнеры для таких материалов представляют собой цилиндры емкостью от 2 до 220 л, даже небольшой образец с высокой концентрацией ядерного материала имеет значимое самоослабление. Хотя самоослабление гамма-излучения часто может не учитываться для бумажных фильтров или небольших ампул, которые используются в радиохимии, его, как правило, нельзя не учитывать при неразрушающем анализе ядерного материала.

Поскольку размеры и форма образцов ядерных материалов изменяются в широком диапазоне, то трудно создать подходящие эталоны для градуировки. В принципе градуировочные стандартные образцы не требуются, если точно известна эффективность детектора как функция положения источника, энергии, геометрии регистрации, если размеры и форма образцов точно известны и, кроме того, если точно известны интенсивности излучения гамма-квантов. Однако трудно с достаточной точностью определить эффективность детектора, так как все еще остаются значимые неопределенности в величинах удельной активности для многих важных источников гамма-квантов. Использование стандартных образцов сводит к минимуму или исключает необходимость точного знания эффективности детектора, геометрии регистрации и удельных активностей.

Наиболее авторитетное руководство по калибровке систем НРА ANSI N15.20-1975 [1] устанавливает, что стандартный образец представляет собой "объект, физически и химически аналогичный измеряемым объектам", других ограничений на анализ гамма-излучения не накладывается. Это руководство также указывает на то, что стандартные образцы должны выбираться таким образом, чтобы "содержание нуклидов в них охватывало ожидаемый диапазон масс измеряемых образцов". Такое ограничение может оказаться слишком мягким. Обычно для градуировки различных систем анализа гамма-излучения требуется относительно небольшое число эталонов, чтобы перекрыть широкий диапазон размеров, форм, химических составов и масс различных образцов.

В разделах 6.2–6.6 описывается природа и порядок расчета поправки на ослабление $CF(AT)$. Более подробно этот вопрос обсуждается в работе [2]. В разделе 6.7 рассматриваются стандартные образцы, а в разделе 6.8 описываются измерительные системы, использующие процедуры учета пропускания облучения через образец.

6.2 ПРОЦЕДУРЫ

6.2.1 Предварительные замечания

Процедуры и методы, описанные в данном разделе, более всего применимы для детекторов гамма-излучения высокого разрешения. Эти методы и поправки на ослабление могут использоваться также для измерений, проводимых с помощью детекторов низкого разрешения, но чтобы избежать чрезмерной погрешности, следует проявлять дополнительную осторожность, при этом точность результатов не будет такой же высокой, как в случае детекторов высокого разрешения.

Наиболее неприятным и важным обстоятельством при использовании гамма-спектрометрии является то, что скорость счета для конкретного гамма-излучения обычно не пропорциональна количеству нуклидов, испускающих гамма-излучение. Отсутствие такой пропорциональности объясняется двумя причинами: процессами, происходящими в электронике из-за скорости счета, которые приводят к мертвому времени и наложению импульсов, а также самоослаблением излучения в образце. Точные методы анализа гамма-излучения требуют введения точных поправок как на потери в электронике из-за скорости счета, так и на потери вследствие самоослабления излучения в образце. Поправки на потери в электронике подробно описываются в главе 5.

6.2.2 Общее описание процедуры анализа

Если исходную скорость счета умножить на соответствующие коэффициенты поправок на потери в электронике и потери вследствие самоослабления в образце, то можно записать (как в уравнении (5.55) раздела 5.4)

$$CR = RR \times CF(RL) \times CF(AT)$$

или

$$CR = FEIR \times CF(AT), \quad (6.1)$$

где CR — полная скорректированная скорость счета;

RR — исходная скорость счета;

$CF(RL)$ — коэффициент поправки на потери в электронике, связанные со скоростью счета;

$CF(AT)$ — коэффициент поправки на самоослабление в образце;

$FEIR$ — скорость счета в пике полного поглощения.

Если коэффициенты поправок правильно определены и рассчитаны, то CR есть скорость счета, которая наблюдалась бы, если бы не было потерь в электронике и если бы образец имел простую геометрическую форму (например, точка или линия) с пренебрежимо малым самоослаблением. Рассчитанная таким образом величина CR пропорциональна массе изотопа, испускающего исследуемое гамма-излучение. Тогда можно записать

$$CR = K \times M, \quad (6.2)$$

где M — масса анализируемого изотопа, а K — градуировочная постоянная, которая определяется с помощью соответствующих стандартных образцов и учитыва-

ет влияние эффективности детектора, телесных углов при измерении и скорости испускаемого гамма-излучения. $CF(AT)$ определяется в предположении, что значения CR для исследуемого и стандартного образцов совпадают, что справедливо, если исследуемый и стандартный образцы имеют одинаковую пространственную конфигурацию без самоослабления.

Вышесказанное представляет собой, по существу, общий метод пассивных измерений с использованием гамма-излучения. Отдельными шагами такого метода являются:

- 1) измерение исходной скорости счета;
- 2) определение поправки на потери в электронике (просчеты), связанные с скоростью счета;
- 3) определение поправки на самоославление гамма-излучения в образце;
- 4) расчет полной скорректированной скорости, которая пропорциональна массе измеряемого изотопа;
- 5) определение постоянной пропорциональности, т.е. градуировочной постоянной путем использования соответствующих физических эталонов, при условии, что значения CR для стандартных и исследуемых образцов соответствуют идентичной неослабляющей геометрической форме, а так же идентичному положению относительно детектора.

Значения RR и $CF(RL)$ определить точно относительно легко, и эта процедура подробно рассматривается в главе 5.

6.2.3 Необходимые требования при определении коэффициента поправки на самоославление

При определении значения $CF(AT)$ основной вопрос состоит в том, какая часть гамма-излучения, испускаемого в направлении детектора, действительно достигает детектора? Если материал образца может быть охарактеризован простым линейным коэффициентом ослабления μ , то в общем случае доля гамма-излучения, которая проходит через образец, может быть рассчитана. Для определения значения $CF(AT)$ ключевым моментом является определение величины μ .

Для проведения точного анализа гамма-излучения уместны следующие два требования:

- смесь элемента, испускающего исследуемое гамма-излучение, с элементами матрицы образца достаточно равномерна и однородна по составу и плотности;
- частицы, испускающие гамма-излучение, достаточно малы, поэтому самоославление внутри отдельных частиц пренебрежимо мало.

Эти требования гарантируют, что линейный коэффициент ослабления имеет одно значение в достаточно большом диапазоне, поэтому его можно использовать для точного расчета доли гамма-излучения, испускаемого образцом. Все, что требуется — это то, чтобы коэффициент μ , можно было рассчитать или измерить. Исследуемые образцы не обязательно должны иметь один и тот же или аналогичный химический состав, что и градуировочные стандартные образцы. Не предъявляется также требований к размерам и форме стандартных образцов, хотя имеются некоторые ограничения.

Предположение о “достаточной” однородности образца воспринимается с трудом и затруднительно для определения. То, что представляет собой приемлемую однородность, зависит от энергии гамма-излучения, химического состава образца и требуемой точности. Некоторые типы образцов всегда удовлетворяют этому требованию, другие же — почти никогда.

Массовые коэффициенты ослабления μ (глава 2) элементов накладывают фундаментальные ограничения на размеры, форму, состав и плотность образцов, которые можно успешно анализировать с помощью методов, использующих гамма-излучение. На рис. 6.1 показаны массовые коэффициенты ослабления для элементов от водорода ($Z = 1$) до плутония ($Z = 94$). Представленные на рисунке данные иллюстрируют почти все возможности и ограничения пассивных методов гамма-анализа. Следует заметить, что значение μ для урана при энергии 185,7 кэВ почти в шесть раз больше, чем для плутония при энергии 413,7 кэВ. Это означает, что при анализе ^{235}U с помощью излучения с энергией 185,7 кэВ имеются значительно более строгие ограничения по размерам образца, размерам частиц и однородности, чем при анализе ^{239}Pu с помощью его гамма-излучения с энергией 413,7 кэВ. Ниже энергии 80 кэВ для большинства элементов значение μ быстро увеличивается, при этом проблема учета ослабления становится трудноразрешимой для всех образцов, кроме очень малых.

На рис. 6.2. приведена оценка самоослабления для некоторых образцов¹ и показана доля потока гамма-излучения, выходящего нерассеянным из сферического источника в зависимости произведения $\mu\rho D$, где D является диаметром этой сферы. Например, для частицы UO_2 с плотностью $\rho = 10 \text{ г/см}^3$ и диаметром 200 мкм величина $\mu\rho D \approx 0,28$. При этом около 10 % испускаемого потока гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ рассеивается с некоторой потерей энергии или полностью поглощается внутри частицы.

Растворы удовлетворяют критерию точного гамма-анализа, если в них отсутствуют частицы или осадки. Чистые порошки (PuO_2 , UO_2 , U_3O_8 и т.д.) почти всегда удобны для анализа, также как некоторые хорошо перемешанные отходы, например, такие как зола из печей для сжигания отходов. Топливные частицы с оболочкой (микротвэлы) и стержни для высокотемпературного газоохлаждаемого ядерного реактора (HTGR) близки к удовлетворению этих требований, но полученная с помощью такого анализа погрешность результатов возрастает до 5-10 %, если не введена поправка на самоослабление в ядрах частиц [5]. Небольшие количества (менее 10 г) гамма-излучателей с высоким атомным номером, смешанные с органическими веществами малой плотности и низким атомным номером, могут соответствовать поставленным требованиям, если отсутствуют частицы порошка со значительным самопоглощением. Большие количества (более 100 г) порошков веществ с большими атомными номерами будут почти наверняка иметь частицы, существенно ослабляющие излучение. Наихудший случай связан с металлической стружкой металлов высокой плотности с большими атомными номерами

1 Выражение для доли гамма-квантов, которые выходят нерассеянными и непоглощенными из сферы, свойства ослабления которой характеризуются величиной $X = \mu\rho D$, имеет следующий вид:

$$F = \frac{3}{2X} \left[1 - \frac{2}{X^2} + \exp(-X) \left(\frac{2}{X} + \frac{2}{X^2} \right) \right].$$

Обоснование этого выражения см. в работе [4].

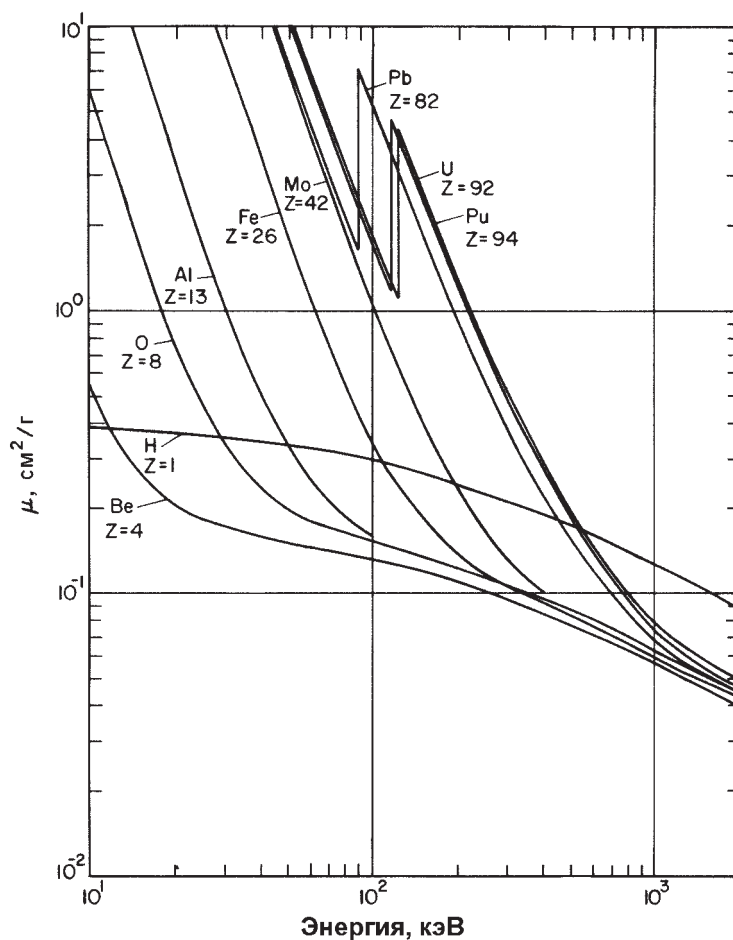


Рис. 6.1. Полные массовые коэффициенты ослабления (без учета когерентного рассеивания) в зависимости от энергии для девяти элементов с атомными номерами Z , изменяющимися в диапазоне от 1 до 94 [3]

Z или с таблетками топлива, смешанными с матрицами низкой плотности с малым атомным номером Z . В этой ситуации результаты анализа могут быть занижены в 2-3 раза и более. Это обстоятельство заставляет быть осторожным при использовании методов гамма-анализа экранированных гетерогенных материалов с целью исключения возможной ядерной опасности.

Необходимо подчеркнуть, что степень соответствия материалов этим двум требованиям является наиболее важным фактором в определении потенциальной точности гамма-анализа. Например, практика показывает, что небольшие образцы раствора (до нескольких десятых кубического сантиметра) могут измеряться с погрешностями до нескольких десятых долей процента. Образцы равномерных, однородных порошков объемом до нескольких литров измерялись с погрешностями, приближающимися к 1 %, несмотря на существенные отличия по плотности. Для больших контейнеров с отходами (например, бочек емкостью

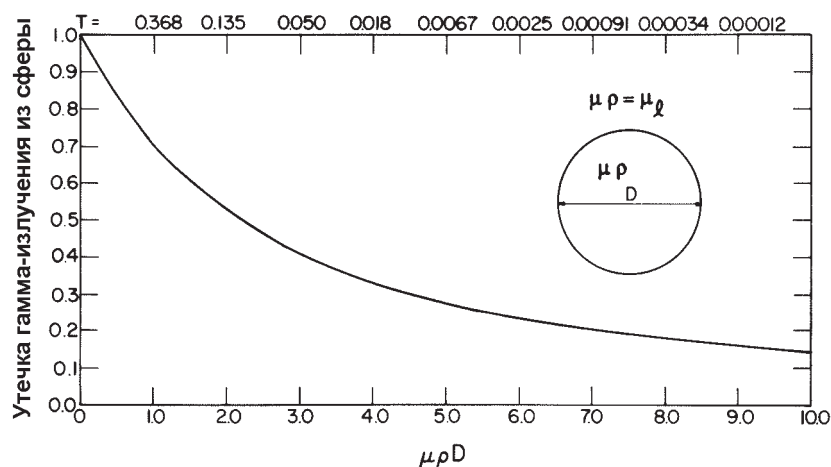


Рис. 6.2. Доля гамма-излучения, выходящая нерассеянной и непоглощенной из сферического источника в зависимости от $\mu\rho D$. Когерентное (упругое) рассеивание не учитывалось

113 литров) характерны погрешности $< 10\%$, при этом погрешность будет намного выше для случаев с высокой неоднородностью.

Другим важным обстоятельством, общим для гамма-анализа, является то, что результаты почти всегда хуже, когда образцы, несоответствующие предъявляемым к ним требованиям, анализируются вместе со стандартными образцами, которые удовлетворяют соответствующим требованиям. Процедуры, точно определяющие самоослабление в образцах, соответствующих предъявляемым требованиям, занижают значения поправок для образцов, которые не соответствуют этим требованиям.

6.2.4. Методы определения линейного коэффициента ослабления образца

Для определения коэффициента μ_c образца используются четыре основных метода [6]. Самый старый из них позволяет избежать проблем, используя представительные стандартные образцы. При этом набор градуировочных стандартных образцов подбирается по возможности наиболее близким к исследуемым образцам по размерам, форме и составу. Для получения градуировочной кривой производят измерения для стандартных образцов при постоянной геометрии, а анализ исследуемых образцов проводится путем измерения их при идентичной геометрии и сравнения числа отсчетов непосредственно с градуировочной кривой. Эта процедура дает хорошие результаты только тогда, когда исследуемые и стандартные образцы достаточно идентичны, поскольку одинаковая концентрация анализируемого материала в каждом образце дает один и тот же коэффициент μ_c и, соответственно, такой же коэффициент $CF(AT)$. Процедура с представительными стандартными образцами предполагает также, что просчеты из-за наложений и мертвого времени одинаковы для равных концентраций анализируе-

мых изотопов. Данный метод применим только тогда, когда природа и состав образца хорошо известны и по существу не изменяются.

Второй метод для расчета значения величины μ_c использует предварительно полученные сведения о химическом составе, массе и форме. Наличие достаточных сведений для расчета значения μ_c для образца не обязательно означает, что результат анализа известен заранее. Во многих случаях μ_c почти напрямую зависит от состава матрицы и массы, которая достаточно хорошо известна. Если требуются только проверочные измерения для хорошо известных материалов, то такой подход удобен, даже когда анализируемый материал вносит существенный вклад в самоослабление образца. Расчет μ_c образца на основе сведений о химическом составе и плотностях достаточно прост. В работах [3 и 7] приведены в табличной форме необходимые коэффициенты ослабления.

Третий метод определения коэффициента $CF(AT)$ включает измерение отношения интенсивностей излучения гамма-квантов двух различных энергий одного изотопа и сравнение этого отношения с аналогичным отношением для тонкого источника (с пренебрежимо малым самоослаблением), который содержит тот же изотоп. Этот метод имеет ограниченное применение, поскольку в общем случае μ_c неоднозначно связан с измеренными отношениями интенсивностей. Кроме того, для получения реальных коэффициентов поправок требуются некоторые предварительные сведения о природе образца. Более того, не все изотопы имеют два гамма-кванта с подходящими значениями энергий. Тем не менее, в определенных случаях этот метод удобнее и потенциально применим, когда требования по однородности и размерам частиц грубо нарушаются.

Четвертый и наиболее общий метод получения значения величины μ_c связан с измерением коэффициента пропускания пучка гамма-квантов от внешнего источника через образец. В соответствии с фундаментальным законом ослабления гамма-излучения, коэффициент пропускания описывается выражением

$$T = \exp(-\mu_1 x), \quad (6.3)$$

где x — толщина образца. Решая это выражение относительно μ_c , получаем

$$\mu_1 = \frac{-\ln(T)}{x}. \quad (6.4)$$

Этот метод не требует данных о химическом составе или плотности образца, а просто использует основные требования к однородности и размеру частиц. В действительности данный метод часто является более предпочтительным, даже если имеются некоторые сведения о составе образца, в частности, когда требуется наибольшая точность. Экспериментально полученные значения величины μ_c учитывают все влияния химического состава и плотности.

Метод пропускания может идентифицировать те образцы, для которых невозможно провести точные количественные измерения из-за чрезмерно большого самоослабления. Когда измеренный коэффициент пропускания излучения уменьшается, его точность ухудшается вместе с точностью измерения образца, тем самым увеличивая погрешность в расчетном значении коэффициента $CF(AT)$. Точность измерения пропускания становится неприемлемой для значений коэффициента пропускания в пределах между 0,01 и 0,001. Значения коэф-

коэффициента пропускания $\leq 0,001$ (возможны даже отрицательные величины) почти всегда указывают на невозможность проведения измерений для образцов.

6.3 ФОРМАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ

6.3.1 Общее определение

Выражения для коэффициента $CF(AT)$ могут быть представлены рядом способов. По принятой здесь формулировке это коэффициент, который корректирует скорость счета и прямо пропорционален измеряемому количеству изотопа. Удобно определять коэффициент $CF(AT)$ по отношению к типовой геометрической форме, которая обычно проще, чем реальная форма:

$$CF(AT) = \frac{FEIR(\mu_c = 0; \text{ типовая форма})}{FEIR(\mu_c \neq 0; \text{ реальная форма})}, \quad (6.5)$$

где $FEIR(\mu_c = 0; \text{ типовая форма})$ — $FEIR$, которая была бы получена в результате измерений, если бы образец полностью не имел ослабления ($\mu_c = 0$) и если бы образец был приведен к типовой форме;

$FEIR(\mu_c \neq 0; \text{ реальная форма})$ — реальная измеренная $FEIR$ для образца.

На практике значение коэффициента $CF(AT)$ не рассчитывается по уравнению (6.5); оно определяется из μ_c , геометрической конфигурации и положения образца относительно детектора. Как правило, выражения для коэффициента $CF(AT)$ нельзя представить в виде элементарных функций, поэтому для расчетов должны использоваться численные методы.

В общем случае не требуется знать эффективность детектора. Обычно детектор можно считать точечным с одинаковой эффективностью регистрации излучения по всем направлениям, что существенно упрощает расчеты. Это предположение, как правило, выполняется, когда расстояние между образцом и детектором, по крайней мере, в несколько раз больше максимального размера либо детектора, либо образца. Если расстояние между образцом и детектором должно оставаться небольшим (из-за требований к эффективности регистрации) и если требуется наибольшая достижимая точность результатов, то может использоваться реальная измеренная или рассчитанная эффективность детектора в зависимости от энергии и его положения. Клайн [8] описывает процедуру определения функции эффективности на основе измерений для стандартных источников.

6.3.2 Удобные типовые формы образцов

Наиболее удобными типовыми формами образцов являются:

- реальная;
- точечная;
- линейная.

Если имеется много анализируемых и стандартных образцов одной и той же геометрической формы и размера, то коэффициент $CF(AT)$ может рассчитываться относительно образца той же формы, который не имеет ослабления. Когда образец достаточно однороден, имеет обычную форму и приемлемые размеры, то следует дать возможность детектору обследовать весь образец и использовать значение коэффициента $CF(AT)$, рассчитанное по отношению к точке, которая не имеет ослабления. Это позволяет использовать стандартные образцы, которые имеют размеры, формы и химический состав, отличные от соответствующих характеристик исследуемых образцов. Однако, для того чтобы такой анализ был точным, весь образец целиком должен быть представлен одним значением μ_c с приемлемой точностью.

Образцы часто имеют различия в составе и различную плотность по вертикали, что является естественным следствием заполнения относительно узких контейнеров сверху вниз. Материал имеет тенденцию укладываться в контейнере слоями. В таких случаях ослабление излучения не удастся правильно охарактеризовать одной величиной μ_c . Точность анализа может быть улучшена с помощью сегментного сканирования, при котором детектор просматривает образец через коллиматор, обеспечивающий относительно узкие горизонтальные сегменты, в пределах которых μ_c можно считать постоянной величиной. При таком сегментном сканировании лучше всего вычислять коэффициент $CF(AT)$ по отношению к линии, проходящей вдоль оси контейнера на некотором расстоянии и не имеющей ослабления. При таком способе можно точно проанализировать цилиндрические образцы относительно стандартных, которые имеют совершенно другие значения диаметра.

6.4 ОСНОВНЫЕ ПАРАМЕТРЫ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ

Коэффициент поправки на самоослабление $CF(AT)$ является функцией многих параметров. Общеизвестно, что наиболее важными параметрами являются (параметры перечислены в порядке убывания их важности):

- μ_c материала образца;
- объем и форма материала образца;
- μ_c контейнера образца;
- размеры и форма контейнера образца;
- положение и ориентация образца относительно детектора;
- размеры, форма и эффективность детектора.

Во многих случаях зависимость величины $CF(AT)$ от нескольких параметров слабо выражена. Например, когда расстояние от образца до детектора по крайней мере в несколько раз превышает максимальные размеры детектора, то зависимость $CF(AT)$ от размеров, формы и эффективности детектора часто можно пренебречь. Когда расстояние между образцом цилиндрической формы и детектором по крайней мере в несколько раз превышает максимальный размер либо образца, либо детектора, то коэффициент $CF(AT)$ обычно в сильной степени зависит от μ_c образ-

ца, слабо зависит от его размеров и от расстояния до детектора и имеет пренебрежимо малую зависимость от размеров, формы и эффективности детектора.

Наиболее сильное упрощение имеет место при больших расстояниях от образца до детектора, когда максимальные размеры образца и детектора пренебрежимо малы по сравнению с разделяющим их расстоянием (так называемая "дальняя геометрия"). В этом случае гамма-кванты достигают детектор по существу в виде параллельного пучка. При небольших изменениях расстояния между образцом и детектором или при малом размере образца отсутствует зависимость от размеров или формы детектора, за исключением влияния размера на ту долю гамма-излучения, которая покидает образец. Для нескольких геометрических форм образцов могут быть получены простые аналитические выражения. Часто они представляют собой удобные приближения для случаев анализа образцов, при которых, строго говоря, не выполняются условия дальней геометрии. Действительно, случай дальней геометрии является полезным эталонным значением для анализа случаев ближней геометрии.

Обычно зависимость $CF(AT)$, полезно представить в графическом виде от параметра μ_c , (наиболее сильная зависимость) и построить отдельные кривые для определенных значений других параметров. Поскольку μ_c часто определяют с помощью измерения коэффициента пропускания гамма-излучения T и используют зависимость $T = \exp(-\mu_c x)$, то более удобно представить графическую зависимость $CF(AT)$ от $\ln(T)$.

Рассмотрим выражение для коэффициента $CF(AT)$ для случая анализа в дальней геометрии для прямоугольных образцов, просматриваемых в направлении, перпендикулярном к боковой стороне:

$$CF(AT) = \frac{\mu_c x}{[1 - \exp(-\mu_c x)]}, \quad (6.6)$$

где x — толщина образца в направлении, перпендикулярном к детектору.

Используя выражение $T = \exp(-\mu_c x)$, можно записать простое выражение

$$CF(AT) = \frac{-\ln(T)}{(1 - T)}. \quad (6.7)$$

Если $T \ll 1$, то коэффициент $CF(AT) \cong -\ln(T)$, поэтому график зависимости коэффициента $CF(AT)$ от $\ln(AT)$ является почти прямой линией. На рис. 6.3 показан график зависимости, соответствующий уравнению (6.7). На этом графике также показана зависимость коэффициента $CF(AT)$ от $\ln(T)$ для образцов цилиндрической и сферической форм, где T измеряется по диаметру образца. Все случаи имеют зависимость $CF(AT) \cong k \ln(T)$ для $T \ll 1$. Эта приближенная зависимость относительно $\ln(T)$ существует для большинства геометрий анализа образцов и ее очень полезно иметь в виду.

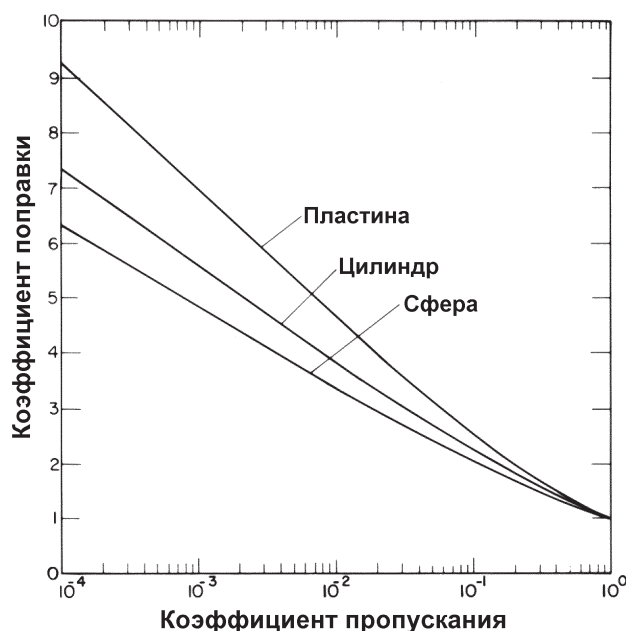


Рис. 6.3. Коэффициенты поправки для дальней геометрии для образцов в форме пластины, цилиндра и сферы как функции коэффициента пропускания, который измеряется по нормали к лицевой поверхности пластины и по диаметру для цилиндрического и сферического образцов

6.5 АНАЛИТИЧЕСКИЕ ЗАВИСИМОСТИ ДЛЯ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ В ДАЛЬНОЙ ГЕОМЕТРИИ

В общем случае интегральные выражения для коэффициента $CF(AT)$ в случаях ближней геометрии нельзя выразить с помощью элементарных функций. Однако для случаев дальней геометрии были получены выражения для трех простых форм образцов: пластины (прямоугольного параллелепипеда), цилиндра и сферы. На рис. 6.3 приведены зависимости коэффициента поправки $CF(AT)$ для всех трех форм образцов, а в табл. 6.1 представлены численные значения для этих трех случаев.

Таблица 6.1 – Коэффициенты поправки для пластины, цилиндра и сферы в зависимости от коэффициентов пропускания для дальней геометрии

Коэффициент пропускания	Пластина*	Цилиндр**	Сфера**
1,0000	1,000	1,000	1,000
0,8000	1,116	1,097	1,086
0,6000	1,277	1,231	1,202
0,4000	1,527	1,434	1,376
0,2000	2,012	1,816	1,701
0,1000	2,558	2,238	2,054
0,0500	3,153	2,692	2,431
0,0200	3,992	3,326	2,956
0,0100	4,652	3,826	3,370
0,0010	6,915	5,552	4,805
0,0001	9,211	7,325	6,288

* Пропускание перпендикулярно поверхности

** Пропускание по диаметру

6.5.1 Образцы в форме пластины

Только для образца в форме пластины существует достаточно простое выражение. Из уравнения (6.5) можно записать выражение для коэффициента CF(AT) по отношению к образцу, который не имеет ослабления (типовая форма такая же, как реальная форма), в виде

$$CF(AT) = \frac{\int_V \rho I \epsilon \, dV}{\int_V \rho I \epsilon \exp(-\mu_l r) \, dV}, \quad (6.8)$$

где ρ — объемная плотность образца, г/см³;

I — интенсивность гамма-излучения образца, γ/г·с;

ϵ — абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения;

μ_l — линейный коэффициент ослабления образца;

r — расстояние, которое гамма излучение проходит внутри образца;

dV — элемент объема.

Параметры ρ , I и μ_l являются постоянными, а параметры ϵ и ρ — функциями положения. Экспоненциальный член в знаменателе для большинства геометрических конфигураций не может быть выражен через элементарные функции.

Рассмотрим конфигурацию, показанную на рис. 6.4. Параметр I постоянен для заданного изотопа, а ρ и μ_e также являются постоянными, благодаря предположению об однородности образца. Предположение о большом расстоянии от образца до детектора эквивалентно предположению о том, что ϵ также является постоянной величиной.

Благодаря этому предположению имеет смысл только интегрирование по X . После очевидных упрощений получаем

$$CF(AT) = \frac{\int_0^X dx}{\int_0^X \exp[-\mu_1(X-x)] dx}. \quad (6.9)$$

После вычисления интегралов получаем

$$CF(AT) = \frac{\mu_1 X}{1 - \exp(-\mu_1 X)}, \quad (6.10)$$

как в уравнении (6.6)

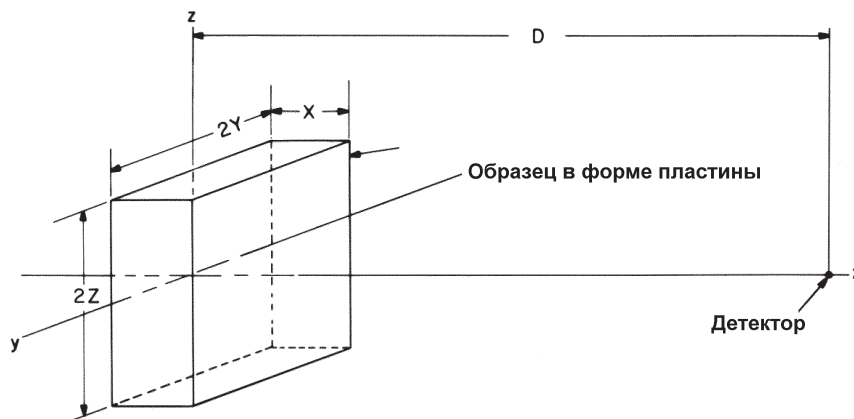


Рис. 6.4. Геометрия расчета для образца в форме пластины (с координатами и размерами), которая используется для получения значения коэффициента поправки для дальней геометрии

6.5.2 Цилиндрические образцы

Для цилиндрического образца, просматриваемого по диаметру, в случае дальней геометрии [9]

$$CF(AT) = \frac{1}{2} \frac{\mu_1 D}{I_1(\mu_1 D) - L_1(\mu_1 D)}, \quad (6.11)$$

где L_1 — модифицированная функция Струве первого порядка;

I_1 — модифицированная функция Бесселя первого порядка;

D — диаметр образца;

μ_e — линейный коэффициент ослабления образца.

Это выражение очень компактно, но не удобно для использования из-за наличия в нем функций Струве и Бесселя [10]. Уравнение (6.11) использовалось для получения кривой для цилиндра, представленного на рис. 6.3. Следует отметить, что коэффициент $CF(AT)$ для цилиндра немного меньше, чем коэффициент для образца в форме пластины (прямоугольного параллелепипеда). В образце цилиндрической формы меньше гамма-квантов должно проникать через максимальную толщину материала; по этой причине доля гамма-квантов, покидающих образец, больше, а коэффициент $CF(AT)$ в этом случае меньше.

6.5.3 Образцы сферической формы

Для образца сферической формы в случае дальней геометрии коэффициент поправки равен [4]:

$$CF(AT) = \left(\frac{3/2}{\mu_1 D} \left\{ 1 - \frac{2}{(\mu_1 D)^2} + \exp(-\mu_1 D) \left[\frac{2}{\mu_1 D} + \frac{2}{(\mu_1 D)^2} \right] \right\} \right)^{-1}. \quad (6.12)$$

Это выражение графически показано на рис. 6.3. Коэффициент $CF(AT)$ для сферы меньше, чем для параллелепипеда или цилиндра. В среднем гамма-излучение проходит меньшее расстояние, чтобы выйти из сферы, чем для цилиндра или куба. Образцы сферической формы редко встречаются на практике, однако подстановка коэффициента $CF(AT)$ дает долю гамма-излучения, выходящего из сферических частиц, и удобна для принятия решения о том, удовлетворяет ли образец требованиям к размерам сферических частиц. Показанные на рис. 6.2 данные были получены на основе уравнения (6.12).

6.6 ЧИСЛЕННЫЕ РАСЧЕТЫ ДЛЯ БЛИЖНЕЙ ГЕОМЕТРИИ

6.6.1 Общие положения

Для большинства случаев малых расстояний от образца до детектора (ближней геометрии), для которых должна точно учитываться обратная квадратичная зависимость, результирующие выражения не могут быть выражены через элементарные функции. Как следствие этого, должны использоваться численные методы, которые предполагают использование компьютеров. Однако даже при использовании вычислительных возможностей современных компьютеров необходимо применять простейшую модель. Часто невозможно упростить расчеты, принимая предположение о точечном или линейном детекторе с эффективностью, независимой от угла падения потока излучения. Для сложных геометрий могут использоваться вычислительные программы, использующие метод Монте-Карло. Однако для задач НРА легко могут применяться упрощенные модели и простые одно-, двух- и трехмерные методы численного интегрирования с использованием простых программ и небольших компьютеров. Точность НРА с использованием гамма-излучения обычно в большей степени определяется подобием формы и однородностью образца, а не точностью расчета коэффициента $CF(AT)$.

Существуют приближенные аналитические формулы, которые дают соответствующие точные значения коэффициента $CF(AT)$ в необходимом диапазоне ко-

эфициента пропускания излучения. Несколько таких формул приведено ниже. Пригодность формул может быть определена путем сравнения с результатами более точных численных расчетов. Приближенные аналитические формулы часто обеспечивают возможность получения аналитических выражений для расчета точных значений коэффициента $CF(AT)$.

6.6.2 Одномерная модель

Общепринятой геометрией анализа образца является такая геометрия, при которой германиевый детектор просматривает бутылку с раствором снизу. Геометрические формы как детектора, так и образца, хорошо аппроксимируются цилиндрами. Предположим, что оси симметрии бутылки и детектора совпадают, и что радиус детектора составляет r_d , радиус образца — r_s , высота образца — D и расстояние от образца до детектора — d (рис. 6.5). Если d в несколько раз больше радиусов r_d и r_s , то все гамма-кванты приходят в детектор под углами более $\sim 10^\circ$ относительно их общей оси. Поскольку $\cos\Theta \geq 0,95$ для углов $< 19^\circ$, ясно, что гамма-кванты пройдут расстояние на пути к детектору всего на несколько процентов большее, чем расстояние в направлении, параллельном их общей оси. Следовательно, этот случай может быть описан одномерной моделью, содержащей точечный детектор и находящийся от него на расстоянии d линейный образец “глубиной” D с линейным коэффициентом ослабления μ_l , как показано на рис. 6.6. Эта модель учитывает влияние закона обратной квадратичной зависимости от расстояния и ослабления гамма-излучения, которые являются главными эффектами, оказывающими влияние на величину коэффициента $CF(AT)$.

Используя эту модель, получаем величину коэффициента $CF(AT)$ для образца, который не имеет ослабления:

$$CF(AT) = \left[\int_0^D \frac{dx}{(d+x)^2} \right] / \left[\int_0^D \frac{[\exp(-\mu_l x)] dx}{(d+x)^2} \right], \quad (6.13)$$

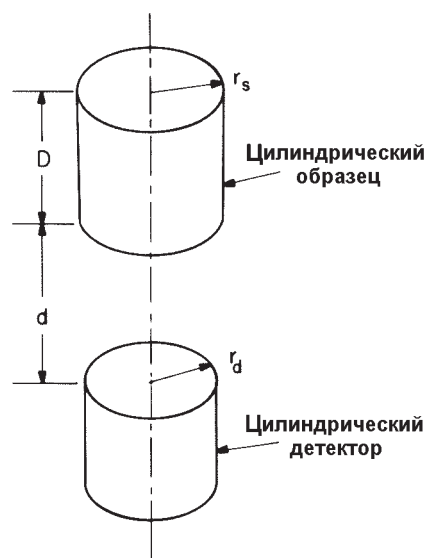


Рис. 6.5. Общепринятая вертикальная геометрия анализа, для которой пригодна одномерная модель для расчета коэффициента $CF(AT)$



Рис. 6.6. Одномерная модель для расчета коэффициента CF(AT)

где исключены все постоянные, имеющие отношение к эффективности детектора и интенсивности гамма-излучения. В числителе интеграл равен $D/[d(d + D)]$. Интеграл в знаменателе не может быть выражен с помощью элементарных функций, но он может быть представлен виде суммы. Тогда выражение для CF(AT) имеет следующий вид:

$$CF(AT) = \left[\frac{D}{d(d+D)} \right] / \sum_{i=1}^N \frac{\{\exp(-\mu_l x(I-0,5)\Delta x)\} \Delta x}{[d + (I-0,5)\Delta x]^2}, \quad (6.14)$$

где $\Delta x = D/N$, а N равно числу интервалов численного интегрирования. Обычно принимают $N \cong 100$, что дает погрешность результатов менее 0,1 %. Численное интегрирование можно было бы, разумеется, выполнить с большей точностью и с меньшим количеством шагов, используя правило Симпсона или другие более точные методы. Уравнение (6.14) ясно показывает функциональную зависимость коэффициента CF(AT) от d, D и μ_l , а также эквивалентность интеграла сумме. Параметр D определяется как высота образца. Параметр d, однако, хуже определен, так как гамма-кванты взаимодействуют с материалом при прохождении через детектор, а средняя глубина взаимодействия является функцией энергии. Опыт показывает, что если номинальная величина d по крайней мере в несколько раз превышает величину D, то с помощью набора стандартных образцов, перекрывающих широкий диапазон значений μ_l , величина d в уравнении (6.14) может быть подобрана таким образом, чтобы давать такую величину коэффициента CF(AT), чтобы скорректированная скорость счета на единицу активности становилась почти постоянной в широком диапазоне значений величины μ_l . Подбор d компенсирует неточно известное расстояние между образцом и детектором и отличие одномерной модели от реальной трехмерной геометрии образца.

На рис. 6.7 показаны результаты измерения с использованием только что описанной процедуры. Образцы представляли собой растворы нитрата обедненного урана в бутылочках объемом 25 мл с плоским дном площадью 10 см² (круглые цилиндры диаметром 3,57 см и высотой 2,5 см). Концентрация урана изменялась в диапазоне от 5 до 500 г/л, и все образцы были помечены равным количеством ⁷⁵Se, который являлся материалом источника, уран служил только в качестве поглотителя. Кристалл детектора имел диаметр и длину равные 4,0 см. Для гамма-излучения с энергией 136,0 кэВ от источника ⁷⁵Se коэффициенты поправки на приборные потери CF(RL) изменялись в пределах ~ 10 %, в то время как коэф-

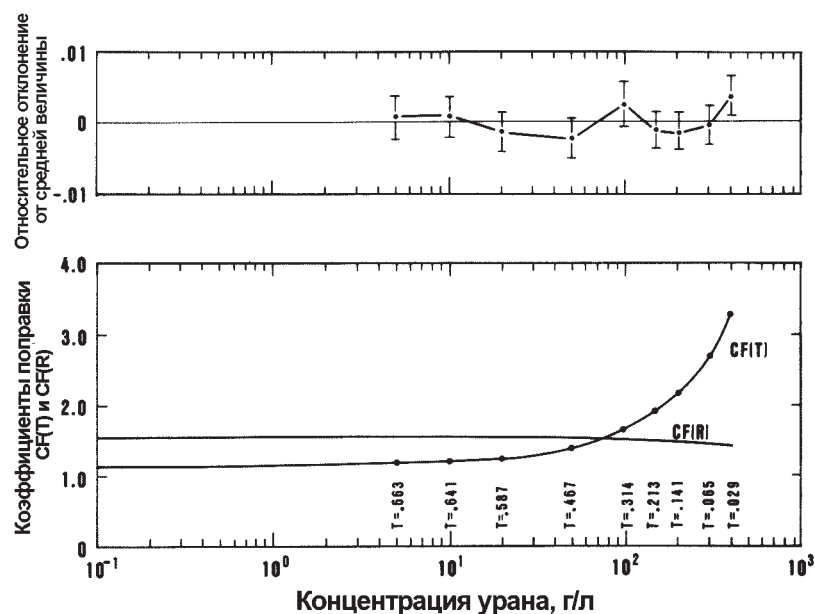


Рис. 6.7. Результаты измерений, предназначенные для проверки применимости одномерной модели для расчета коэффициента $CF(AT) = CF(T)$

коэффициенты поправки на ослабление гамма-излучения $CF(AT)$ изменялись до ~ 275 %.

Поскольку каждый образец имел одинаковое количество ^{75}Se , то скорректированная интенсивность излучения с энергией 136,0 кэВ должна быть равной для всех образцов. В верхней части рисунка приводятся отклонение скорректированных интенсивностей от средней величины и указывается типичная статистическая погрешность измерений. Все скорректированные интенсивности находятся в пределах диапазона $\pm 0,5$ % от средней величины. В этом случае расстояние от дна образца до средней длины пробега квантов в детекторе составляло около 8 см, а уточненное значение составило 9,0 см. С качественной стороны одномерная модель дает значения коэффициента $CF(AT)$, которые немного хуже по сравнению с трехмерной моделью поправок, так как гамма-кванты проходят через несколько больших толщин раствора, чем в случае одномерной модели. Увеличение значения параметра d в общем случае приводит как к росту коэффициента $CF(AT)$, так и к росту коэффициента $CF(AT)$ для меньших величин T . Поэтому используемое в расчетах значение d обычно немного больше физического.

Если набор образцов растворов имеет различные, но определяемые высоты, то было бы предпочтительнее рассчитывать величину коэффициента $CF(AT)$ относительно точечного образца без ослабления, чтобы скорректированные интенсивности могли сравниваться непосредственно для всех образцов. Отношение коэффициента $CF(AT)$, определенного для точки без ослабления, к коэффициенту $CF(AT)$, определенного для образца без ослабления, составляет $(1 + D/d)$ независимо от величины μ_c . Все значения коэффициента $CF(AT)$, как для стандартных, так и для измеряемых образцов, должны рассчитываться по отношению к од-

ной и той же не имеющей ослабления геометрической форме, чтобы можно было непосредственно сравнивать скорректированные интенсивности.

6.6.3 Двухмерная модель

В другой общепринятой геометрии анализа детектор просматривает цилиндрический образец с боковой стороны (рис. 6.8). Если высота (длина) образца меньше его диаметра и расстояние от детектора до центра образца по крайней мере в несколько раз больше диаметра образца, то для расчета величины коэффициента $CF(AT)$ может использоваться простая двухмерная модель. Модель представляет собой точечный детектор, находящийся на расстоянии D от центра круглого образца радиуса R (рис. 6.9). Эффективность детектора постоянна для гамма-квантов, выходящих из любой точки в пределах объема образца. Коэффициент поправки относительно образца без ослабления, может быть записан в виде

$$CF(AT) \cong \frac{(\pi / 2) \ln[1 - R^2 / D^2]}{\sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^N \{ \exp[-\mu_t t(m, n)] \Delta A(n) / L^2(n, m) \}}. \quad (6.15)$$

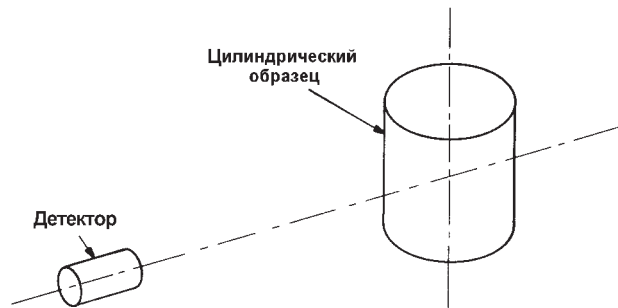


Рис. 6.8. Типичная геометрия анализа, для которой обычно приемлема двухмерная модель расчета значения коэффициента $CF(AT)$

Вывод этого выражения приведен в работе [2]. Отношение коэффициента $CF(AT)$, рассчитанного для образца без ослабления, к коэффициенту $CF(AT)$, рассчитанному для точки, в которой нет ослабления, равно $-(D^2/R^2) \ln(1 - R^2/D^2)$. Для постоянной величины T коэффициент $CF(AT)$ является только функцией отношения D/R . На рис. 6.10 приведен график коэффициента $CF(AT)$ в зависимости от D/R для нескольких значений T . Существенным моментом является то, что коэффициент $CF(AT)$ медленно снижается при уменьшении отношения D/R ; большие изменения проявляются при небольших значениях величины T . Такое поведение является следствием закона обратной квадратичной зависимости. Для заданной величины T коэффициент $CF(AT)$ асимптотически приближается к максимуму, когда отношение D/R стремится к бесконечности. Отклонения от случая больших расстояний ($D/R = \infty$) представлены на рис. 6.11. Для $T > 0,001$ и $D/R > 50$ все отклонения не превышают 1 %. Поэтому $D/R \geq 50$ может считаться

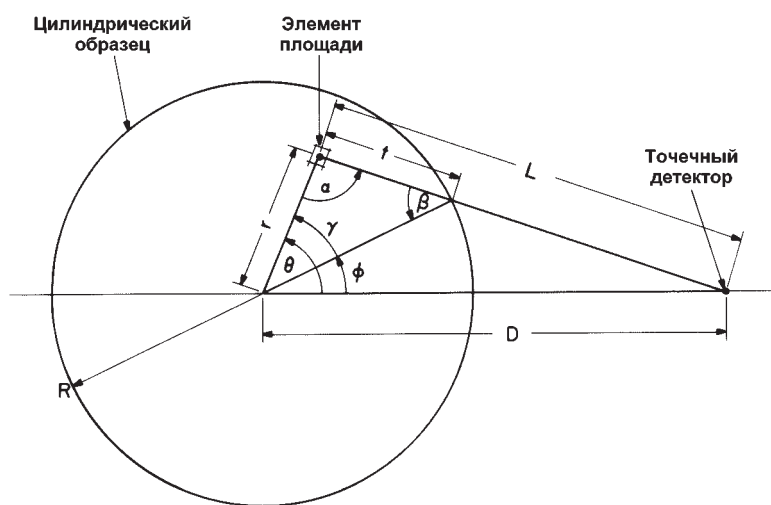


Рис. 6.9. Двухмерная модель для расчета коэффициента $CF(AT)$. На рисунке показаны расстояния, которые должны быть определены, и переменные, через которые они выражаются. Следует заметить, что $0 \leq \alpha \leq \pi$, $\beta \leq \pi/2$ и $0 \leq \gamma \leq \pi$

случае дальней геометрии. Изменение коэффициента $CF(AT)$ в зависимости от T намного сильнее, чем от отношения D/R .

Результаты, представленные на рис. 6.10 и рис. 6.11, были получены с помощью компьютера при значениях $M=200$ и $N=200$, для которых все значения в пределах 0,1 % согласуются с величинами, которые дали бы действительные интегралы. Общее число рассчитанных элементов площади составило 40000, а требуемое время на определение каждой величины — около 2 мин. Время, необходимое для точного определения поправочного коэффициента, во многом зависит от вычислительной аппаратуры и используемого языка программирования. При двухмерном численном интегрировании результаты с высокой точностью могут быть получены за время около 1 мин. Для трехмерной модели, если третья размерность также задается с помощью 200 интервалов, требуемое время для выполнения интегрирования увеличивается до сотен минут.

6.6.4 Трехмерная модель

В качестве заключительной модели геометрии анализа рассмотрим пример сегментированного анализа цилиндрических образцов. В этом случае (рис. 6.12) детектор просматривает образец через горизонтальный коллиматор, который выделяет сегменты образца, которые просматриваются индивидуально. Образец обычно располагается настолько близко к коллиматору, насколько это возможно. Детектор часто представляет собой круглый цилиндр из германия диаметром 5,0 см и длиной 5,0 см. В этом случае необходимо точно учитывать эффекты обратной квадратичной зависимости, обусловленные коллиматором. Двухмерная модель в этом случае неприменима.

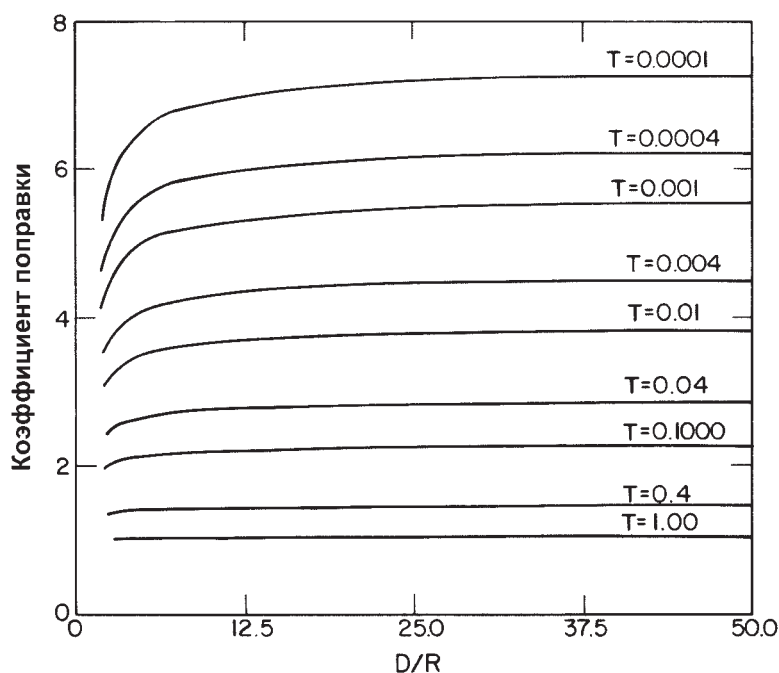


Рис. 6.10. Рассчитанные по двумерной модели коэффициенты поправки относительно образца, не имеющего ослабления. Они изображены графически в зависимости от отношения D/R для различных значений коэффициента пропускания T .
 D — расстояние от центра цилиндрического образца до точечного детектора,
 R — радиус образца

Модель состоит из идеального коллиматора (исключающего утечки) и вертикального линейного детектора, центр которого расположен с задней стороны коллиматора. Предполагается, что эффективность детектора не зависит от местоположения источника или угла, под которым гамма-кванты попадают в детектор. Расстояние от излучающего элемента до детектора увеличивается на постоянную величину, приблизительно равную средней глубине взаимодействия в детекторе. Поскольку материалы часто упаковываются в металлические контейнеры, которые существенно ослабляют испускаемое гамма-излучение, то упаковка также включена в модель. Получение трехмерной модели выходит за рамки настоящей книги; этот вопрос подробно рассматривается в работе [2].

6.6.5 Приближенные формулы и интерполяция

Наиболее точным способом расчета коэффициента $CF(AT)$ для приемлемых геометрий образцов является использование простой математической модели и численного интегрирования. Однако, ввиду длительных временных затрат на выполнение расчетов, часто требуется выполнить расчеты коэффициента $CF(AT)$ всего для нескольких значений величины T (или μ_c) и использовать процедуру интерполяции для нахождения значения коэффициента $CF(AT)$ при промежуточных значениях. К проблеме интерполяции можно подойти несколькими способами.

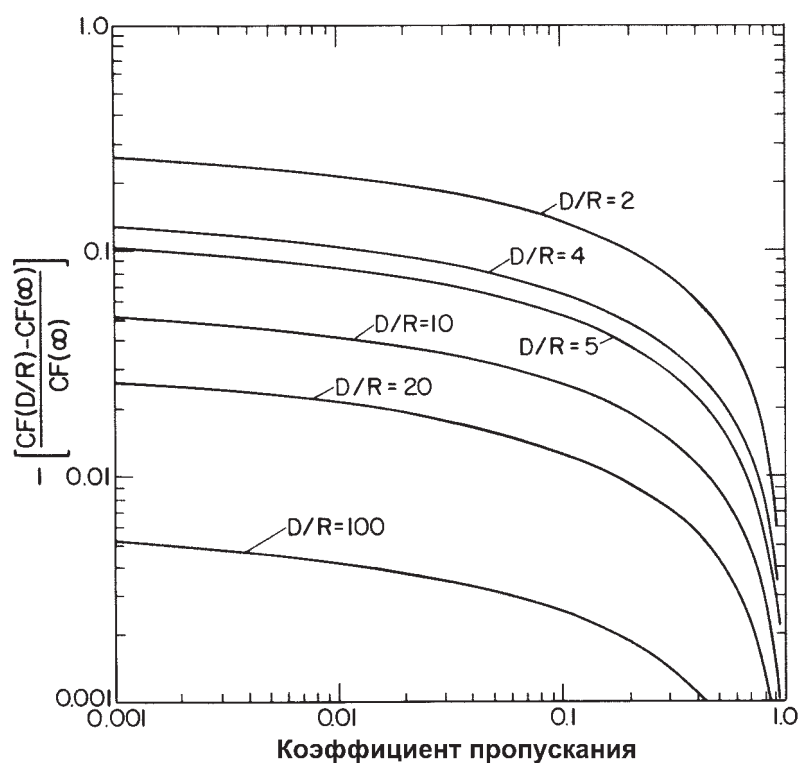


Рис. 6.11. Зависимость отклонения значений коэффициента $CF(AT)$ для ближней геометрии от значений коэффициента для дальней геометрии в зависимости от коэффициента пропускания при различных значениях отношения D/R

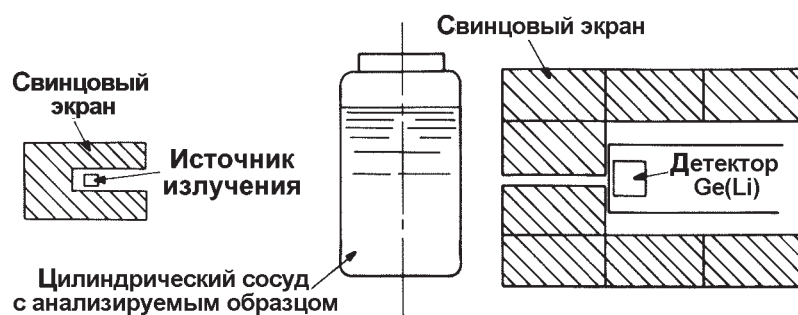


Рис. 6.12. Типичный случай сегментного анализа образца, для которого пригодна трехмерная модель расчета коэффициента $CF(AT)$

Так как коэффициент $CF(AT)$ имеет приближенную логарифмическую зависимость $\log(T)$ (см. рис. 6.3), то целесообразно использовать функцию подгонки в виде

$$CF(AT) = A + B \log(T) + C[\log(T)]^2. \quad (6.16)$$

Для расчетов требуется, чтобы для каждой геометрии образца в памяти компьютера хранились постоянные A , B и C . Эта схема работает очень хорошо в широком диапазоне значений T . При типичном случае сегментного сканирования могут определяться постоянные A , B и C , чтобы дать значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью не более 0,3 % в диапазоне $0,008 < T < 0,30$.

Наиболее простая схема основана на формуле для коэффициента $CF(AT)$ в дальней геометрии для образца в форме пластины: $-\ln(T)/(1-T)$. Учитывая, что круг не сильно отличается от квадрата (см. рис. 6.3), можно перейти к выражению

$$CF(AT) \cong \frac{-\ln(T^k)}{(1-T^k)}, \quad (6.17)$$

для $k < 1$ в качестве приближенной функции для цилиндрических образцов даже в случае ближней геометрии. Эта формула также имеет логарифмическую зависимость $\ln(T)$ для $T \ll 1$ и содержит только одну постоянную, которая должна быть определена. На рис. 6.13 и рис. 6.14 показано, насколько точной может быть приближенная формула. На рис. 6.13 приведено относительное отклонение уравнения (6.17) от точных значений для дальней геометрии для цилиндра (уравнение (6.11)) в зависимости от T и k . На рис. 6.14 сравниваются приближенные и точные значения при анализе образца цилиндрической формы в случае малого расстояния от образца до детектора, когда $D/R=5/1$. На рис. 6.13 для $k=0,82$ даны значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью до $\pm 0,01$ % для $0,01 < T < 1,0$, а на рис. 6.14 для $k=0,75$ даны значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью до $\pm 1,5$ % для $0,01 < T < 1,0$.

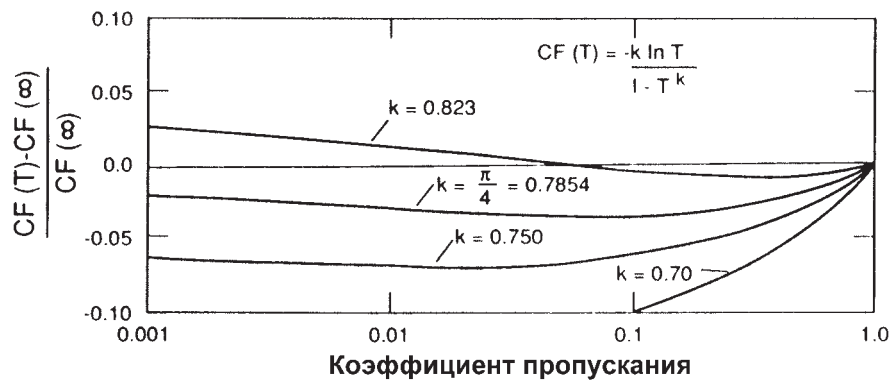


Рис. 6.13. Отклонения значений коэффициента $CF(AT)$, рассчитанных по приближенному выражению $CF(AT) = -k \ln T / (1 - T^k)$, от значений этого коэффициента при дальней геометрии для цилиндра при нескольких значениях параметра k

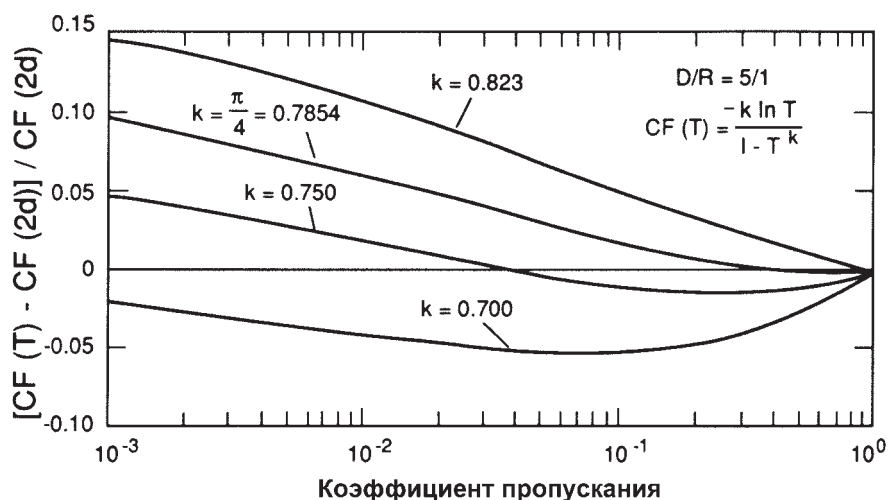


Рис. 6.14. Отклонения значений коэффициента $CF(AT)$, рассчитанных по приближенному выражению $CF(AT) = -k \ln T / (1 - T^k)$, от значений, полученных с помощью двумерной модели для цилиндрических образцов с $D/R = 5$. Отклонения представлены графически как функция коэффициента пропускания T для нескольких значений параметра k

Выбор процедуры интерполяции или приближенной формулы для расчета коэффициента $CF(AT)$ зависит от точности, необходимой или возможной для анализируемых материалов. Для рабочих условий измерений неоднородных бочек, содержащих ^{235}U , точность в большей степени определяется неоднородностью материала в образцах, чем функцией, которая используется для расчета значения коэффициента $CF(AT)$. Когда уровень погрешности $\pm 25\%$ представляет собой все, на что можно рассчитывать, то бесполезно создавать модель и производить численное интегрирование для определения значения коэффициента $CF(AT)$. С другой стороны, если образцы представляют собой растворы, когда тщательное моделирование и расчеты могут дать погрешности менее 1% , такая попытка полностью оправдана.

6.6.6 Влияние абсолютной и относительной погрешностей при расчете коэффициента поправки на самоослабление

Предполагается, что системы анализа с использованием гамма-излучения градуируются с помощью соответствующих стандартных образцов. Предполагается также, что коэффициент $CF(AT)$ определяется как для неизвестных образцов, так и для стандартных образцов. Как правило, коэффициент $CF(AT)$ главным образом является функцией измеряемого коэффициента пропускания T с некоторым влиянием геометрических параметров.

Следует проанализировать последствия использования ошибочной функции для определения величины коэффициента $CF(AT)$. На рис. 6.15 показаны правильная и ошибочная функции для расчета величины коэффициента $CF(AT)$. Примем следующие обозначения:

$CF(T) = CF(AT)$ — является функцией от T ;

G — масса анализируемого изотопа в неизвестном образце.

Надстрочные индексы f и t обозначают величины, связанные с правильной и ошибочной функциями для расчета коэффициента $CF(AT)$, а подстрочные индексы u и s обозначают величины, связанные с исследуемым и стандартным образцами. Отношение ошибочной величины к правильной составляет

$$\frac{G^f}{G^t} = \frac{CF^f(T_u) / CF^t(T_u)}{CF^f(T_s) / CF^t(T_s)} \quad (6.18)$$

Это отношение непосредственно не зависит от абсолютной погрешности определения значения коэффициента $CF(T)$, а только от отношения относительных величин. Если это отношение равно $\sim 1,00$, то результаты анализа будут правильными, несмотря на любую абсолютную погрешность при определении коэффициента $CF(AT)$.

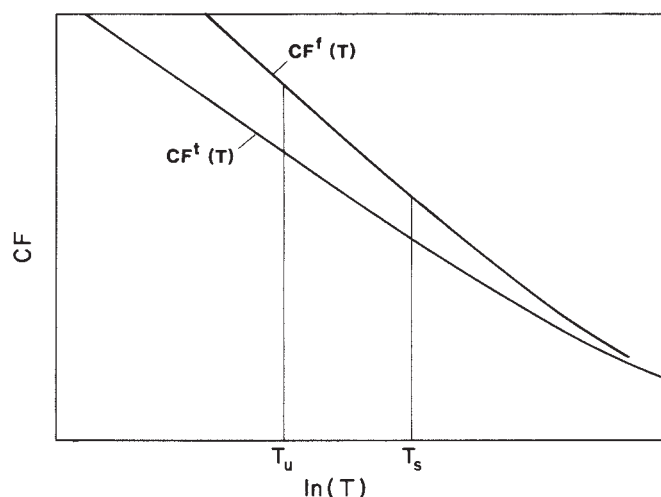


Рис. 6.15. Кривая иллюстрирует последствия использования ошибочной функции для расчета коэффициента $CF(AT)$. Кривая $CF^f(T)$ представляет ошибочную функцию для определения величины коэффициента $CF(AT)$, а кривая $CF^t(T)$ — правильную функцию. T_u и T_s представляют коэффициенты пропускания для исследуемого и стандартного образцов, соответственно

Этот результат показывает, что легче правильно отградуировать систему с помощью образцов для узкого диапазона коэффициентов пропускания (что обычно означает узкий диапазон концентраций изотопа образца), чем для широкого диапазона. Следует также подчеркнуть, что, если требуется высокая точность в широком диапазоне концентраций, необходимо соблюдать особую осторожность при моделировании геометрии анализа и расчете коэффициента $CF(AT)$.

Рассматривая трудность расчета коэффициента $CF(AT)$, можно задаться вопросом, почему бы не использовать стандартные образцы для определения градуировочной постоянной как функции от T ? Действительно, это можно сделать, но предпочтительно только в качестве точной настройки системы градуировки. Из-

меняемая градуировочная постоянная или кривая нелинейной градуировки только затрудняют понимание тех моментов, которые непонятны в физике выполнения анализа.

6.6.7 Точность определения коэффициента поправки на самоослабление и полной скорректированной скорости счета

При правильно работающей системе НРА, которая использует гамма-излучение, точность почти всецело является функцией случайной природы излучения и регистрации гамма-квантов. Влияние флуктуаций параметров электроники и дрейфов в приборах не превышает 0,1 %. Основная статистическая составляющая погрешности анализа может быть оценена по значениям площадей пиков полного поглощения и их погрешностей. Общая погрешность, включая любой вклад аппаратуры, оценивается на основе воспроизводимых анализов. Электронная и механическая стабильность системы анализа могут оцениваться путем сравнения общей погрешности с погрешностью, оцениваемой на основе площадей пиков и их погрешностей.

Рассмотрим влияние погрешности определения значения коэффициента $CF(AT)$ на конечную погрешность анализа. Ослабление пропорционально коэффициенту CR , который задается (см. уравнение (6.1)) выражением $CR = FEIR \times CF(AT)$. Процедуры, используемые для получения выражений для $\sigma(CR)$, $\sigma(FEIR)$ и $\sigma[CF(AT)]$, подробно рассматриваются во многих литературных источниках (двумя относительно простыми являются работы [11 и 12]). Здесь мы стремимся подчеркнуть несколько моментов, относящихся к получению приемлемого выражения для $\sigma(CR)$.

Если величина CR может быть записана в виде аналитической функции площадей пиков, то может быть получено выражение для $\sigma(CR)$. Однако, когда коэффициент $CF(AT)$ определен с помощью численных процедур, величина $\sigma(CR)$ не может быть рассчитана непосредственно. Для получения выражения для $\sigma(CR)$ можно использовать приближенную функцию для $CF(AT)$. Приближенные формулы для определения величины коэффициента $CF(AT)$ часто недостаточно точны для расчета CR , но они обычно дают приемлемое выражение для $\sigma(CR)$. В разделе 6.6.2 использовалась одномерная модель для определения коэффициента $CF(AT)$ в случае цилиндрических образцов. При определении выражения для $\sigma(CR)$ можно было использовать уравнение (6.7) или модифицированное уравнение (6.17) для коэффициента $CF(AT)$. Соответствующее значение величины k можно выбрать путем сравнения с погрешностями, рассчитанными на основе повторных анализов. Эта процедура дает точность, которая обеспечивается численным интегрированием более точной модели для определения величины коэффициента $CF(AT)$ и дает хорошие оценки для $\sigma(CR)$.

Хотя $\sigma(CR)$ определяет погрешность анализа, иногда представляет интерес величина $\sigma[CF(AT)]$. Выражение для $\sigma[CF(AT)]$ будет всегда проще, чем выражение для $\sigma(CR)$. Если нет площадей пиков, которые являются общими для определения выражений $FEIR$ и $CF(AT)$, то

$$\sigma_r(CR) = \sqrt{\sigma_r^2(FEIR) + \sigma_r^2[CF(AT)]}, \quad (6.19)$$

где $\sigma_r(x) \equiv \sigma(x)/x$.

Если имеются площади пиков, общие для выражений FEIR и CF(AT), то уравнение (6.19) не справедливо, и выражение для CR должно быть записано как явная функция таких площадей пиков. Формулы для определения погрешности часто сложны, но обычно может быть достигнуто существенное упрощение с помощью разумных приближений. Подобные упрощения сокращают время расчетов и обеспечивают лучшее понимание основного источника неточности.

6.7 ФАКТОРЫ, ОПРЕДЕЛЯЮЩИЕ ТРЕБУЕМОЕ КОЛИЧЕСТВО СТАНДАРТНЫХ ОБРАЗЦОВ

Существующее в настоящее время требование, чтобы диапазон масс стандартных образцов НРА охватывал ожидаемый диапазон исследуемых образцов, может быть существенно смягчено. Такое утверждение становится очевидным из последующих разделов.

Настоятельное требование, чтобы стандартные образцы охватывали диапазон ожидаемых масс, по-видимому, основывается на том, что к результатам измерений будет подгоняться нелинейная функция градуировки. Для систем НРА с использованием гамма-излучения этими данными могут быть RR или FEIR. Графики этих функций достаточно нелинейны, а экстраполяция нелинейной функции за пределы измеренных данных опасна. Однако, если коэффициенты поправки CF(RL) и CF(AT) определены правильно, то получается общая скорректированная скорость счета, которая является линейной функцией массы образца. Если градуировочная функция (уравнение (6.2)) является линейной, то экстраполяция гораздо менее опасна, чем в случае нелинейных градуировочных функций, и логическое рассуждение основывается на требовании, чтобы диапазон масс стандартных образцов перекрывал диапазон анализируемых образцов.

Для уравнения (6.2) градуировочную постоянную K можно определить с помощью одного стандартного образца. Однако разумно использовать несколько стандартных образцов, расширяя принятый диапазон масс и, возможно, изменяя другие параметры, такие как плотность образца и состав матрицы или размер образца. Использование нескольких стандартных образцов помогает подтвердить, что коэффициенты CF(RL) и CF(AT) правильно определяются и что уравнение (6.2) справедливо. Если выявлена некоторая нелинейность, то первым делом следует скорректировать задачу (задачи) в отношении аппаратуры или расчета коэффициентов CF(RL) и CF(AT), а не добавлять дополнительные члены в уравнение градуировки. Изменение уравнения градуировки просто скрывает влияние плохо отрегулированной аппаратуры. После того, как работа аппаратуры и алгоритмы вычислений стали настолько хорошими, насколько это возможно, и если еще существует некоторая нелинейность, то можно рассмотреть возможность изменения уравнения градуировки. Поскольку такие проблемы часто являются результатом работы в широком диапазоне скоростей счета, то сначала рассматривают две или более линейные градуировки с двумя параметрами для более ограниченных диапазонов масс. Такое уточнение функции градуировки требуется не часто. Чаще точность ограничена неоднородностью или чрезмерно большим размером частиц, и почти всегда достаточно одной линейной градуировки с одним параметром.

Границы, в которых можно безопасно экстраполировать линейную градуировку вне области имеющихся данных, зависят от того, производится ли экстраполяция в сторону меньших или больших масс. При низкой концентрации изотопа в образце обычно преобладает самоослабление в матрице и коэффициент $CF(AT)$ изменяется очень медленно в широком диапазоне концентраций. Аналогично, при низких скоростях счета коэффициент $CF(RL)$ не только изменяется медленно, но он мал и точно определяется. Вследствие этого можно быть уверенным в допустимости экстраполяции в направлении к наименьшим порогам обнаружения. Например, рассмотрим анализ раствора ^{235}U с помощью гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ. Для разумных объемов образца (более 25 мл) концентрация $^{235}U \sim 10$ г/л может обеспечить погрешность результатов $\sim 0,5\%$ за время измерения 1000 с. Образец с концентрацией ^{235}U , равной 0,1 г/л, имеет почти такой же коэффициент $CF(AT)$ и дает погрешность $\sim 5\%$ при анализе в течение 1000 с, что, вероятно, может считаться приемлемым. Однако потребовалось бы 100000 с для анализа стандартного образца ^{235}U с концентрацией 0,1 г/л с погрешностью до 0,5 %, которая могла бы потребоваться для получения градуировочной характеристики. При анализе стандартных образцов с очень низкими уровнями концентрации может быть потеряно много времени.

Экстраполяция для масс, превышающих массы стандартных образцов, должна производиться более осторожно, особенно если стандартный образец с наибольшей массой находится на уровне, когда оба коэффициента $CF(AT)$ и $CF(RL)$ быстро изменяются, или когда суммарные скорости счета достигают пределов работы электроники с точки зрения обеспечения соответствующего разрешения и формы пика. Работоспособность системы при больших массах и скоростях счета должна подтверждаться с помощью какого-нибудь материала источника, даже если не существует стандартного образца для требуемого уровня массы. Например, если было подтверждено, что система способна точно измерять пропускание на уровне 1 % при скорости счета 50000 с^{-1} , то нет уверенности в анализе неизвестного образца с пропусканием 1 % при этой скорости счета 50000 с^{-1} , даже если стандартный образец для наибольшей массы имеет пропускание $\sim 2\%$ и дает общую скорость счета около 40000 с^{-1} . Если весь диапазон масс дает приемлемые скорости счета, а также малые и медленно изменяющиеся величины коэффициентов $CF(RL)$ и $CF(AT)$, то надежнее выполнять экстраполяцию в сторону увеличения масс.

Благодаря последнему замечанию обладание соответствующим набором стандартных образцов не компенсирует отсутствие знания о том, как их использовать или как поступать в случае неправильно настроенной или неправильно работающей аппаратуры, несоответствующей геометрии образцов, неправильных выражений для коэффициентов поправки или образцов, которые не соответствуют требованиям по равномерности и однородности. Все эти обстоятельства являются важными факторами для выполнения точных анализов с использованием гамма-излучения и ни одним из них нельзя пренебрегать. При надлежащем учете всех факторов, включая правильное и эффективное использование градуировочных стандартных образцов, система НРА с использованием гамма-излучения может обеспечить экономичные, не требующие много времени и точные анализы для многих материалов.

6.8 МЕТОДЫ, ИСПОЛЬЗУЮЩИЕ ОТНОШЕНИЯ ИНТЕНСИВНОСТЕЙ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЙ

Методы, использующие отношения интенсивностей гамма-излучений, имеют несколько ограниченное применение для определения коэффициента $CF(AT)$. Подробное рассмотрение многих методов отношений выходит за рамки настоящей книги, однако краткое их обсуждение может дать читателю представление об их возможностях и ограничениях. Основная идея этих методов заключается в определении значения μ_c и коэффициента $CF(AT)$ на основе отношения интенсивностей гамма-излучений различных энергий. Рассмотрим образец в форме пластины с толщиной x , содержащий изотоп, который излучает гамма-излучение со значениями энергий E_1 и E_2 ; предположим, что исходные интенсивности излучений равны. Используя уравнение (6.6), отношение площадей пиков (A) равно

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{CF(E_1)}{CF(E_2)} = \frac{\mu_1(E_1)}{\mu_1(E_2)} \text{ для } \mu_1 x \gg 1. \quad (6.20)$$

Если состав матрицы или эффективный атомный номер Z известен или предполагается, то может оказаться возможным использование измеренного отношения коэффициентов ослабления для определения отдельных коэффициентов и оценки значения $CF(E)$. Основой всех методов отношений является идея о том, что гамма-излучения с различными энергиями ослабляются по разному и могут нести информацию о свойствах ослабления материалов, через которые они проходят.

Методы отношений интенсивностей гамма-излучений требуют предположений об однородности и размерах частиц, рассмотренных в разделе 6.2.3. Если эти предположения не выполняются, то методы введения поправок на пропускание излучения дают обычно плохие результаты. Методы отношений интенсивностей дают результаты, которые обычно лучше, чем результаты методов поправок на пропускание, но могут вызывать перекомпенсацию, определяемую размерами излучающих частиц.

Методы отношений интенсивностей гамма-излучений требуют некоторых дополнительных знаний об образце. Требуемая информация изменяется в зависимости от процедуры, но часто включает в себя плотность образца и эффективный атомный номер Z . Эффективный атомный номер обычно подразумевает, что кривая массового ослабления образца соответствует кривой для некоторого одного элемента. Для многоэлементных смесей, особенно содержащих водород, кривая далеко не соответствует кривой для одного элемента.

Во многих случаях методы отношений могут давать предупреждение, что предположения о равномерности и размере частиц нарушаются. К сожалению, хотя методы отношений могут давать предупреждение о потенциально неточных случаях измерений, в настоящее время не существует известного способа, при котором методы отношений могут существенным образом учесть возникшие проблемы. Сочетание методов поправок на пропускание и отношений интенсивностей дает наиболее полную информацию о данном образце.

Часто предполагается, что применение методов отношений проще, так как они не требуют использования источника излучения для измерения пропускания. В действительности, представляется сомнительным, что эти методы проще, поскольку:

- а) методы отношений требуют либо измерения, либо расчета требуемой величины “при отсутствии ослабления”;
- б) методы отношений требуют некоторых знаний о составе матрицы;
- в) во многих случаях метод отношений требует знания чистого веса и объема образца;
- г) методы отношений часто требуют нескольких итераций для достижения наилучшего результата.

Как методы поправки на пропускание, так и методы отношений интенсивностей для получения наилучших результатов обычно требуют знания размеров образцов и их положений относительно детектора.

6.9 ПРИМЕРЫ АНАЛИЗА

Эта глава включает в себя некоторые вопросы, полезные для проведения анализа с использованием гамма-излучения, и несколько примеров реальных измерений. В изданной Комиссией США по ядерному регулированию книге “Справочник по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий” [13] приведены основные отличительные особенности и рабочие характеристики многих систем анализа с использованием гамма-излучения.

6.9.1 Удобные сочетания гамма-излучений для анализа, пропускания и опорных пиков

Образец материала, подлежащий анализу, иногда может использоваться как источник излучения, чтобы определить пропускание для требуемой энергии. Часто невозможно получить такой источник с достаточной интенсивностью (уран и плутоний прекрасно поглощают свое собственное гамма-излучение). Ряд соображений определяют выбор источника излучения при анализе заданного изотопа: гамма-излучение для определения коэффициента пропускания должно быть близко по энергии к анализируемому гамма-излучению; энергия излучения для определения пропускания должна быть ниже энергии анализируемого излучения образца, чтобы комптоновский фон источника излучения для пропускания не попадал в область анализируемого пика; гамма-излучение не должно интерферировать с каким-либо гамма-излучением, используемым для анализа. Аналогичные соображения относятся к выбору образцового источника для определения поправки на мертвое время (наложения) импульсов. В течение ряда лет были обнаружены и использовались многие полезные комбинации источников излучений. В табл. 6.2 приведены некоторые комбинации, которые оказались особенно полезными.

6.9.2 Интерполяция и экстраполяция коэффициента пропускания излучения

Интерполяция энергии образца между двумя пиками пропускания предпочтительнее экстраполяции за пределами одного или более пиков пропускания. Данные, приведенные в табл. 6.2, показывают, что анализ ^{235}U с помощью его гамма-излучения с энергией 185,72 кэВ при измеренных значениях коэффициента пропускания излучения ^{169}Yb для энергий 177,2 и 198,0 кэВ дает такую благоприятную ситуацию. Предполагая наличие линейного соотношения между пропус-

канием и энергией, коэффициент пропускания для любой промежуточной энергии E определяется выражением

$$T(E) = \left(\frac{E_2 - E}{E_2 - E_1} \right) T_1 + \left(\frac{E - E_1}{E_2 - E_1} \right) T_2. \quad (6.21)$$

Если $E=185,7$, $E_1=177,2$ и $E_2=198,0$, то $T(E)=0,591(T_1)+0,409(T_2)$.

Таблица 6.2 – Полезные комбинации источников

Анализируемый изотоп	Источник для определения пропускания	Источник для определения поправок
^{238}Pu 766,4 кэВ	^{137}Cs 661,6 кэВ	^{133}Ba 356,3 кэВ
^{239}Pu 413,7 кэВ	^{75}Se 400,1 кэВ	^{133}Ba 356,3 кэВ
^{235}U 185,7 кэВ	^{169}Yb 177,2, 198,0 кэВ	^{57}Co 122,0 кэВ
^{238}U 1000,1 кэВ	^{54}Mn 834,8 кэВ	^{137}Cs 661,6 кэВ
^{237}Np 311,9 кэВ	^{203}Hg 279,2 кэВ	^{235}U 185,7 кэВ

Когда гамма-кванты, используемые для определения коэффициента пропускания, близки по энергии (в этом примере разность равна 21 кэВ), то обычно допустима линейная интерполяция, но если пики пропускания гамма-излучения разнесены гораздо дальше один от другого, то это может оказаться недопустимым. Если три или более гамма-квантов, разнесенных по энергии, испускаются от источника для определения пропускания гамма-излучения, то может оказаться возможным подогнать измеренные точки, чтобы определить точные значения коэффициента пропускания для промежуточных энергий. Если ослабление гамма-излучения для заданного образца является доминирующим для элемента с высоким атомным номером Z (U , Pu , Th и т.д.), то массовый коэффициент ослабления образца очень хорошо описывается степенной зависимостью от энергии

$$\mu(E) = KE^{-\gamma}, \quad (6.22)$$

где K и γ являются постоянными величинами. Если это справедливо, то зависимость $\ln(-\ln T)$ от $\ln E$ является линейной, и допустима интерполяция в широком диапазоне энергий.

Когда может измеряться только коэффициент пропускания, то поправка на энергию квантов образца часто возможна на основе соответствующего знания химического состава образца. Применяемое уравнение имеет вид

$$T_\alpha = T_t^\alpha, \quad (6.23)$$

где $\alpha = \mu_\alpha/\mu_t$,

μ_α , μ_t — массовые коэффициенты ослабления для анализируемой энергии и энергии для определения коэффициента пропускания.

В качестве примера рассмотрим анализ золы, загрязненной ^{239}Pu (414 кэВ), используя излучение ^{137}Cs (662 кэВ). Ее можно рассматривать как смесь двух компонентов, один из которых имеет ослабляющие свойства кислорода, а другой — свойства плутония. В табл. 6.3 показано изменение $\alpha(\mu_\alpha/\mu_\text{т})$ в зависимости от весовой доли плутония (F_Pu). Так как золы содержат как правило менее 10 % Pu по весу, то значение $\alpha=1,27$ можно брать как среднюю величину для измерений.

Таблица 6.3 – Изменение отношения $\mu(414 \text{ кэВ})/\mu(662 \text{ кэВ})$ в зависимости от весовой доли плутония

F_{Pu}	$\alpha = \mu(414 \text{ кэВ})/\mu(662 \text{ кэВ})$	
0	1,21	
0,1	1,33	
0,3	1,54	
0,5	1,71	
0,7	1,84	
0,9	1.95	
Массовый коэффициент ослабления, см ² /г		
	414 кэВ	662 кэВ
μ_{Pu}	0,26	0,13
μ_{O}	0,093	0,077

6.9.3 Анализ урана-235 в дальней геометрии

В табл. 6.4 приведены результаты анализов ^{235}U и 13 стандартных образцов четырех различных типов для случая неколлимированного потока излучения в дальней геометрии. Германиевый детектор устанавливался на расстоянии 80 см от центра образца. Реперный источник ^{241}Am использовался для определения поправок на мертвое время и наложение импульсов. Для стандартных образцов типов 1, 2 и 3 коэффициенты поправки на самоослабление образцов (CF_{186}) рассчитывались с использованием значений m , полученных из измеренных значений коэффициента пропускания гамма-излучения (T_{186}). Алгоритмы расчетов были аналогичны рассмотренным в разделе 6.6.2. Для стандартных образцов типа 4, которые представляют собой металлический уран с точно известной массой и размером, коэффициенты поправки рассчитывались по формуле для дальней геометрии (уравнение (6.6)). В табл. 6.4 показаны скорректированные интенсивности взаимодействия на грамм ^{235}U (отклик), которые должны быть одинаковыми для всех 13 стандартных образцов. Отклик нормирован на среднюю величину по двум откликам для трех типов. Средняя величина для 13 результатов составляет 0,999, стандартное отклонение ~0,5 %, а максимальное отклонение от средней величины составляет ~1,1 %. Эти данные прекрасно согласуются между собой, учитывая широкий диапазон размеров образцов, их форму, химический состав и содержание урана, особенно если учесть, что коэффициенты поправки находились в диапазоне от 1,26 до 3,30.

Таблица 6.4 – Перекрестное сравнение градуировочных стандартных образцов

Стандарт- ный образец	Тип 1				Тип 2			Тип 3			Тип 4		
Контейнер	Бутылка из полипропилена							Пузырек емкостью 5,4 мл			Тонкий пласт-массовый мешок		
Размер/ Форма	8,26 см (внутренний диаметр) x 17 см (высота)							14,7 мм (внутренний диаметр) x 5 см (высота)			Диск 5,08 см (диаметр) x от 0,25 мм до 0,50 мм (толщина)		
Состав	U ₃ O ₈ и графит				Раствор урана и HNO ₃			Раствор U и HNO ₃ или HCl			Металлический U		
²³⁵ U, %	92,83				10,08			93,12			93,15		
Уран, г	200,0	100,0	50,0	10,00	155,8	103,7	52,0	4,246	2,546	0,848	21,49	9,579	9,058
²³⁵ U, г	185,7	92,8	46,4	9,28	15,70	10,45	5,24	3,956	2,371	0,790	20,02	8,92	8,44
T ₁₈₆	0,022	0,091	0,184	0,335	0,033	0,064	0,123	0,249	0,377	0,588	0,210	0,499	0,518
CF ₁₈₆	3,30	2,32	1,88	1,54	2,994	2,552	2,132	1,729	1,493	1,263	1,976	1,388	1,365
Отклик, (с · г ⁻¹ ²³⁵ U) ⁻¹	5,104	5,038	5,042	5,096	5,084	5,116	5,090	5,104	5,110	5,104	5,101	5,074	5,074
Нормированный отклик	1,002	0,989	0,989	1,000	0,998	1,004	0,999	1,002	1,003	1,002	1,001	0,996	0,996

Результаты, приведенные в табл. 6.4, показывают, что любой из четырех наборов стандартных образцов мог бы служить в качестве практических стандартных образцов для анализа любых других наборов для случая дальней геометрии. Некоторые процедуры с использованием гамма-излучения (например, сегментное сканирование в ближней геометрии) не так чувствительны к размерам и форме, как анализ в дальней геометрии. И все же относительно небольшой набор физических стандартных образцов обычно может использоваться для градуировки большинства систем анализа, использующих гамма-излучение.

6.9.4 Анализ раствора плутония-239 в ближней геометрии

Геометрия анализа, показанная на рис. 6.16, используется для анализа в ближней геометрии раствора ²³⁹Pu. Бутылка с образцом представляет собой цилиндр с площадью дна 10 см² и высотой 4,0 см. Максимальный объем образца равен 40 мл; однако типичные объемы образцов составляют только 25 мл. Образец находится на расстоянии всего около 5 см от торцевой крышки детектора, а расстояние до эффективной глубины взаимодействия равно 7 или 8 см. Такое расположение является ближней геометрией, что создает повышенные трудности при расчете коэффициента поправки CF(AT). В принципе, исследователь хотел бы увеличить расстояние от образца до детектора, чтобы упростить расчеты. К сожалению, это уменьшило бы скорость счета до того уровня, когда требуемое для измерения время было бы чрезмерно велико.

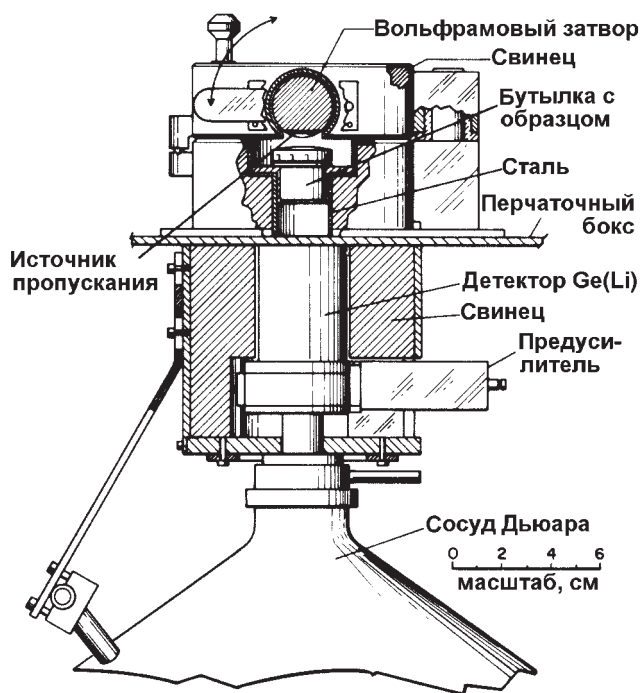


Рис. 6.16. Разрез установки, показывающий расположение детектора, образца и защиты. Установка использует ближнюю геометрию для анализа ^{239}Pu в растворах

Гамма-излучение ^{109}Cd с энергией 88,0 кэВ используется в качестве образцового (реперного) источника для определения поправок на мертвое время/наложения импульсов. Реперный источник жестко крепится к торцевой крышке детектора. Чтобы избежать интерполяции или экстраполяции плутониевый металлический диск используется в качестве источника для измерения коэффициента пропускания излучения, поэтому необходимо выполнить отдельные измерения для образца и образца с реперным источником и вычесть один результат из другого, чтобы получить значения коэффициента пропускания. При меньших концентрациях плутония более интенсивное гамма-излучение с энергией 129,3 кэВ дает более точные значения коэффициента пропускания и более точные результаты анализа, чем гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ. При более высоких концентрациях гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ с более высокой проникающей способностью дает более хороший сигнал в детекторе, более высокий коэффициент пропускания, и поэтому обеспечивает более точный анализ, чем гамма-излучение с энергией 129,3 кэВ. Средневзвешенная величина концентрации, полученная на основе измерения гамма-излучений с энергиями 129,3 и 413,7 кэВ, используется для конечного анализа, обеспечивая высокую точность измерений, которая постоянна в широком диапазоне концентраций.

Такая система анализа использует одномерную модель для расчета значения коэффициента CF(AT) , описанную в разделе 6.6.2. Расстояние от образца до де-

тектора является регулируемым параметром для получения общей скорректированной скорости счета от концентрации. При правильной регулировке и градуировке эта система измеряет содержание ^{239}Pu в растворах плутония с погрешностью менее 1 % для концентраций от 1 до 400 г Pu на литр. При времени измерения, равном 1000 с, как для образца, так и для образца с реперным источником погрешность составляет менее 1,0 % для концентраций > 1 г Pu на литр.

6.9.5 Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения

В разделе 6.6.4 сегментное сканирование приводилось в качестве примера процедуры анализа, при которой относительно простая трехмерная модель могла бы использоваться для расчета коэффициента CF(AT) . Этот раздел завершался обсуждением причин использования такой процедуры, а также некоторых реальных геометрий и комбинаций источников.

В процессе заполнения контейнеров скрапом или отходами часто возникают изменения объемной плотности по вертикали как для источника, так и для матрицы материала. Радиальная неоднородность часто менее выражена и ее влияние может быть существенно снижено за счет вращения образца. Даже тогда, когда существуют большие различия между слоями, внутри слоя в основном могут выполняться требования однородности. В этом случае анализ для контейнера может производиться как для вертикального штабеля частично перекрывающихся элементов. Преимущества процедуры сегментного сканирования получаются за счет потери некоторой степени чувствительности; поэтому система, использующая сегментное сканирование, вероятно, не должна использоваться для образцов, содержащих менее 1 г ^{239}Pu или ^{235}U .

На рис. 6.17 показано пространственное расположение детектора, коллиматора, анализируемого образца, источника излучения и реперного источника для системы, предназначенной для анализа содержания ^{239}Pu в цилиндрических контейнерах диаметром менее 20 см. На рисунке представлены также приближенные интенсивности излучений рабочего и реперного источников. На рис. 6.18 приведен общий вид установки для сегментного сканирования с использованием гамма-излучения (SGS).

Контейнер с образцом устанавливается по возможности близко к коллиматору для получения максимальной скорости счета и наилучшего пространственного разрешения при измерении сегмента. Перекрытие сегментов определяется размерами образца и коллиматора, а также относительными положениями сегментов. На рис. 6.17 коллиматор высотой 1,25 см и длиной 10 см обеспечивает приемлемое соотношение между чувствительностью и пространственной разрешающей способностью. Для бочек емкостью 113 и 208 литров приемлемым выбором является коллиматор высотой 5 и длиной 20 см. В последнем случае пространственная разрешающая способность не будет такой высокой, но она достаточна, чтобы обеспечить получение полезной информации о равномерности распределения материала. В качестве материала коллиматора обычно выбирается свинец. Если возникает проблема, связанная с объемом коллиматора, то может использоваться вольфрамовый сплав.

Для получения максимальной скорости счета детектор устанавливается по возможности ближе к коллиматору. При измерениях для плутония фильтр из

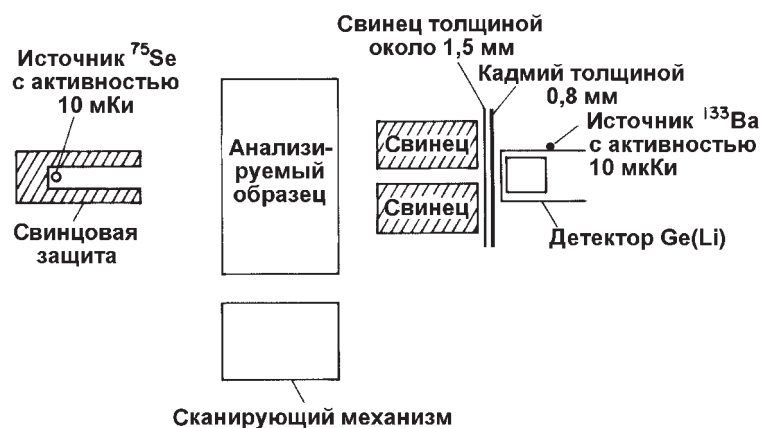


Рис. 6.17. Общее расположение элементов установки для посегментного гамма-сканирования с коррекцией на пропускание. Данная установка предназначена для анализа содержания ^{239}Pu в цилиндрических контейнерах

свинца (толщиной 1,5 мм) и кадмия (толщиной около 0,8 мм) уменьшает скорость счета при низких энергиях излучения ^{241}Am и убирает рентгеновское излучение, как для плутония, так и для свинца. При анализе ^{235}U достаточно использовать только кадмий, так как излучение ^{241}Am с энергией 60 кэВ не обнаружено в материалах, содержащих плутоний.

При анализе ^{239}Pu источником излучения пропускания является ^{75}Se , а реперным источником — ^{133}Ba . Около 10 мКи ^{75}Se обеспечивают достаточную интенсивность излучения, по крайней мере в течение 1 года, несмотря на относительно малый период полураспада. Источник такой активности должен находиться за экраном, чтобы избежать ненужного облучения персонала. Гамма-излучение ^{133}Ba с энергией 356,0 кэВ является реперным излучением; оно может также использоваться для стабилизации спектра, так как оно всегда присутствует в получаемом спектре. В этом случае удобным является период полураспада 10,4 года; один источник обычно служит на протяжении срока службы германиевого детектора. Источник активностью около 10 мКи может устанавливаться либо на передней, либо на боковой стороне торцевой крышки детектора; однако форма пика становится немного лучше, когда источник устанавливается с передней стороны торцевой крышки детектора по оси кристалла.

Существует несколько способов сегментного сканирования, известных как дискретное и непрерывное сканирование. При непрерывном сканировании вращающийся образец перемещается относительно коллиматора с постоянной скоростью. Время счета часто выбирается как время, которое требуется контейнеру для перемещения по высоте коллиматора. При дискретном сканировании образец устанавливается вертикально, выполняется измерение, образец передвигается, снова производится измерение и т.д. Такой режим работы позволяет избежать «микроакустического» эффекта детектора, который вызывается вибрацией системы вертикального привода. На практике интервал между сегментами, равный половине высоты коллиматора, обеспечивает хорошую работу и может быть рекомендован как эмпирически подобранный. Режим непрерывного сканирования обычно дает более хорошие результаты для среднего значения коэффициента



Рис. 6.18. Система SGS для сканирования бочек емкостью 55 галлонов

пропускания сегмента. Однако дискретное сканирование обычно легче осуществить. Такой режим также пригоден для измерений за два прохода, при которых измерение производится один раз с открытым источником излучения пропускания, а другой раз — при закрытом затворе источника. Схема с двумя проходами удобна, когда требуются высокие чувствительность и точность, и в частности удобно, когда в качестве источника излучения пропускания используется ^{169}Yb при анализе содержания ^{235}U . Возможны другие варианты применения процедуры сегментного сканирования, и они описаны в работах [14] и [15].

ЛИТЕРАТУРА

1. *American National Standard Guide to Calibrating Nondestructive Assay Systems*, ANSI N 15.20-1975 (American National Standards Institute, New York, 1975).
2. J. L. Parker, "The Use of Calibration Standards and Correction for Sample Self-Attenuation in Gamma-Ray Nondestructive Assay" Los Alamos National Laboratory report LA-10045 (August 1984).
3. J. H. Hubbell, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV," National Bureau of Standards report NSRDS-NBS 29 (August 1969).
4. J. P. Francois, "On the Calculation of the Self-Absorption in Spherical Radioactive Sources," *Nuclear Instruments and Methods* 117, 153-156 (1974).

5. J. L. Parker, "A Correction for Gamma-Ray Self-Attenuation in Regular Heterogeneous Materials," Los Alamos National Laboratory report LA-8987-MS (September 1981).
6. J. L. Parker and T. D. Reilly, "Bulk Sample Self-Attenuation Correction by Transmission Measurement," Proc. ERDA X- and Gamma-Ray Symposium, Ann Arbor, Michigan, May 19-21, 1976 (Conf. 760539).
7. W. H. McMaster, N. Kerr Del Grande, J. H. Mallett, and J. H. Hubbell, "Compilation of X-Ray Cross Sections," Lawrence Radiation Laboratory report UCRL-50174, Sec. II, Rev. 1 (1969).
8. J. E. Cline, "A Technique of Gamma-Ray Detector Absolute Efficiency Calibration for Extended Sources," Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Computers in Activation Analysis and Gamma Ray Spectroscopy, Mayaguez, Puerto Rico (1978), pp. 185-196 (Conf. 780421).
9. "Self-Shielding Correction for Photon Irradiation of Slab and Cylindrical Samples," Gulf General Atomic, Inc., Progress Report GA-9614 (July I, 1968-June 30, 1969).
10. *Handbook of Mathematical Functions With Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*, Milton Abramowitz and Irene A. Stegun, Eds., National Bureau of Standards, Applied Mathematics Series 55 (1970).
11. Yardley Beers, *Introduction to the Theory of Error* (Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1962).
12. Philip R. Bevington. *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McCraw-Hill Book Company, New York. 1969).
13. *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods*, Donald R. Rogers, Ed., NUREG/CR-2078, MLM-2855 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
14. E. R. Martin, D. F. Jones, and J. L. Parker, "Gamma-Ray Measurements with the Segmented Gamma Scan," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7059-M (December 1977).
15. American Society For Testing and Materials, "Standard Test Method for Nondestructive Assay of Special Nuclear Material in Low-Density Scrap and Waste by Segmented Passive Gamma-Ray Scanning," Vol. 12.01, C853-82, 1989, p. 366, ASTM, Philadelphia.

Глава 7

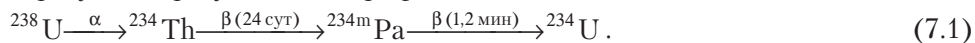
Измерение обогащения урана

*Хэйстингс А. Смит, мл.
(Переводчик И. Н. Сазонов)*

7.1 ВВЕДЕНИЕ

Образцы урана и плутония в ядерном топливном цикле представляют собой смеси изотопов с широким диапазоном содержаний, поэтому изотопный состав образцов часто служит объектом измерений (см. главу 8). В этой главе мы рассмотрим специальный случай изотопного анализа: определение удельного содержания изотопов в образце посредством радиационных измерений, которые наиболее часто применяются для определения содержания делящегося изотопа ^{235}U в образцах урана. Его содержание обычно называют *"обогащением урана"*. Термин "обогащение" используется потому, что содержание ^{235}U в материалах топливного цикла обычно выше, чем в природном уране.

В природе преобладают три изотопа урана (в круглых скобках приведено содержание атомов этих изотопов): ^{238}U (99,27 %), ^{235}U (0,720 %) и ^{234}U (0,006 %). ^{234}U образуется в результате альфа-распада ^{238}U :



Если образец получен в реакторе, в нем также могут присутствовать другие изотопы урана, включая ^{236}U , получаемый в результате захвата нейтрона ядром ^{235}U , и ^{237}U из реакции $(n,2n)$ на ядрах ^{238}U .

"Атомарное содержание" ^{235}U в уране определяется следующим выражением:

$$E_a (\text{ат.}\%) = \frac{\text{Число атомов } ^{235}\text{U}}{\text{Число атомов U}} \times 100\%. \quad (7.2)$$

Обогащение так же может быть выражено как *"весовое содержание"*:

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{\text{Количество граммов } ^{235}\text{U}}{\text{Количество граммов U}} \times 100\%. \quad (7.3)$$

Две величины обогащения соотносятся как

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{235E_a}{238 - 0,03E_a} \approx \frac{235}{238} E_a. \quad (7.4)$$

Обогащение урана в топливе для легководных реакторов LWR (Light Water Reactor) обычно составляет несколько процентов. Реакторы типа CANDU (CANadian Deuterium-Uranium reactor) используют природный уран, а материаловедческие реакторы MTR (Materials Testing Reactor) — высокообогащенный уран (обогащение от 20 до 90 %). Определение обогащения урана в образцах является ключевым измерением в технологических процессах и при контроле продукции на предприятиях по обогащению урана и изготовлению ядерного топлива, а так-

же играет очень важную роль при международных инспекциях по ядерным гарантиям для подтверждения использования уранового топлива в мирных целях.

Принципы измерения обогащения могут быть использованы для определения содержания любых изотопов, если известны их радиационные характеристики и удовлетворяются некоторые специальные условия измерений. Далее приводится описание различных методик измерения обогащения и их применение.

7.2 ИЗЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ УРАНА

Изотопы урана испускают альфа-, бета-, нейтронное и гамма-излучения. Основным излучением, используемым при пассивном неразрушающем анализе образцов урана, является гамма-излучение, которое обычно преобладает при распаде ^{235}U . Однако для образцов урана низкого обогащения наиболее интенсивным компонентом в спектре излучения является рентгеновское излучение. При измерении обогащения ^{235}U наиболее часто используется линия гамма-излучения с энергией гамма-квантов 186 кэВ. Она является самой выделенной одиночной линией гамма-излучения для любых образцов урана с обогащением по ^{235}U выше природного уровня. Обычно интерференции спектральных линий нет, кроме случая регенерированного топлива, в котором гамма-кванты с энергией 236 кэВ изотопа ^{212}Pb , дочернего продукта ^{232}Th , обычно накладываются на линию ^{235}U . В табл. 7.1 приведены наиболее интенсивные гамма-линии интересующих изотопов урана [1]. Данные по альфа- и нейтронному излучению изотопов урана также могут быть найдены в [1]. На рис. 7.1 [1] и рис. 7.2 [2] приведены спектры гамма-квантов образцов урана разной степени обогащения, измеренные гамма-детекторами низкого и высокого разрешения, соответственно.

7.3 МЕТОДИКА ГАММА-ИЗМЕРЕНИЙ БЕСКОНЕЧНЫХ ОБРАЗЦОВ

Метод определения обогащения урана по гамма-излучению [3-5] впервые был применен для контроля баллонов с UF_6 [6]. Основная методика измерения включает в себя регистрацию излучения образца урана через канал коллиматора детектором гамма-излучения (рис. 7.3). Обогащение определяется по интенсивности гамма-квантов изотопа ^{235}U с энергией 186 кэВ. Если образец достаточно толстый, то детектора достигают гамма-кванты с энергией 186 кэВ только от части общего объема образца, ввиду сильного поглощения квантов этой энергии в типичных материалах, в которых содержится уран. "Видимый объем" образца определяется коллиматором, геометрией детектора и длиной свободного пробега излучения с энергией 186 кэВ в материале образца. Его размер (показан на рис. 7.3 пунктирной линией) не зависит от обогащения, т.к. различные изотопы урана имеют сходные поглощающие свойства. Если глубина образца вдоль оси коллиматора намного больше, чем длина свободного пробега квантов с энергией 186 кэВ в материале образца, то все образцы со сходным физическим составом будут представлены одним и тем же видимым объемом. Это является критерием так называемой "бесконечной" толщины. В табл. 7.2 приведены длина свободного пробега и величина "бесконечной" толщины для гамма-квантов с энергией 186 кэВ в обычно встречающихся урановых смесях. Для многих урановых мате-

риалов критерий "бесконечной" толщины удовлетворяется при достаточно малых толщинах образцов урана. Однако, поскольку мы заглядываем внутрь образца не глубже, чем на определенное расстояние, указанное в табл. 7.2, измерения обогащения по гамма-излучению часто относятся только к *поверхности* уранового материала. Таким образом, чтобы измерение обогащения было значимым для всего образца, материал должен быть однородным по изотопному составу.

Таблица 7.1 – Гамма-излучение изотопов урана [1]

Изотоп	Энергия гамма-излучения, кэВ	Удельная интенсивность, квант/с·г изотопа
^{232}U	129,1	$6,5 \times 10^8$
	270,5	$3,0 \times 10^7$
	327,8	$2,7 \times 10^7$
^{233}U	119,0	$3,9 \times 10^4$
	120,8	$3,2 \times 10^4$
	146,4	$6,6 \times 10^4$
	164,6	$6,4 \times 10^4$
	245,3	$3,8 \times 10^4$
	291,3	$5,8 \times 10^4$
	317,2	$8,3 \times 10^4$
^{234}U	120,9	$5,4 \times 10^5$
^{235}U	143,8	$7,8 \times 10^3$
	163,4	$3,7 \times 10^3$
	185,7	$4,3 \times 10^4$
	202,1	$8,0 \times 10^2$
	205,3	$4,0 \times 10^3$
^{238}U в равновесии с $^{234\text{m}}\text{Pa}$	742,8	7,1
	766,4	$2,6 \times 10^1$
	786,3	4,3
	1001,0	$7,5 \times 10^1$

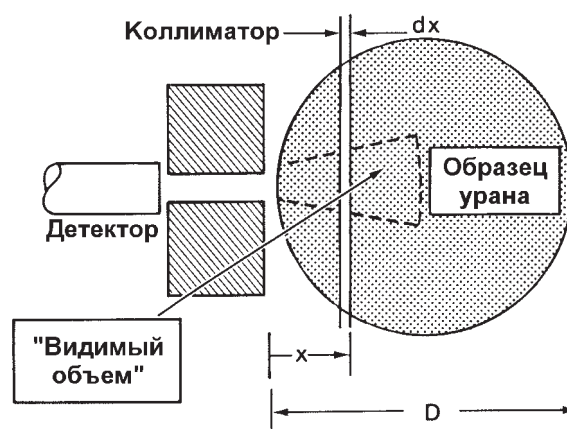


Рис. 7.3. Основные части установки для измерения обогащения урана по гамма-излучению. С целью наглядности размеры "видимого объема" увеличены относительно размеров детектора и коллиматора. Обычно глубина "видимого объема" гораздо меньше, чем расстояние от источника до детектора

7.3.1 Однокомпонентная задача (металлический уран)

Для заданной геометрии детектор-коллиматор все образцы из чистого металлического урана имеют одинаковый "видимый" объем, поскольку длина свободного пробега гамма-квантов с энергией 186 кэВ одна и та же для каждого образца. В результате, детектор "видит" излучение ^{235}U одного и того же количества урана, независимо от толщины образца. Интенсивность излучения с энергией 186 кэВ, хотя и сильнопоглощаемого, пропорциональна числу атомов ^{235}U в видимом объеме, т.е. пропорциональна его *атомарному* содержанию в образце.

Таблица 7.2 – Средняя длина пробега и "бесконечная" толщина для квантов с энергией 186 кэВ в урановых соединениях

Соединение урана	Плотность ρ , г/см ³	Средняя длина пробега, см*	"Бесконечная" толщина, см**
Металл	18,7	0,04	0,26
UF ₆ (твердый)	4,7	0,20	1,43
UO ₂ (спеченный)	10,9	0,07	0,49
UO ₂ (порошок)	2,0	0,39	2,75
U ₃ O ₈ (порошок)	7,3***	0,11	0,74
Уранилнитрат	2,8	0,43	3,04

* Равна $1/\mu_r$ при 186 кэВ для рассматриваемого материала.

**Определяется как семь средних длин пробега, т.е. расстояние, для которого погрешность в определении размера "бесконечного" образца менее, чем 0,1 % (см. уравнение (7.8)).

***Уплотненный порошок.

7.3.2 Двухкомпонентная задача (уран и материал матрицы)

Типичный обогащенный образец состоит из урана и материала матрицы (обычно с низким атомным номером Z). Геометрия измерений обычно та же, что показана на рис. 7.3, но дополнительным фактором в измерениях является поглощение в материале матрицы. Исчерпывающая сводка теоретических обоснований такого типа измерений дана в [7,8]. Ниже приведены ключевые математические результаты, необходимые для анализа измерений обогащения.

Рассмотрим измерение гамма-излучения двухкомпонентного образца толщиной D , когда расстояние от образца до детектора велико по сравнению с глубиной видимого объема. Эта особенность позволяет пренебречь эффектами порядка $1/r^2$ при интегрировании по объему образца. Скорость счета от бесконечно малой части образца (см. рис. 7.3) дается выражением:

$$dR = \epsilon E_w S dm_U \exp(-\mu_r x) \exp(-\mu_c \rho_c t_c), \quad (7.5)$$

где $dm_U = A \rho_U dx$;

ϵ — эффективность регистрации при данной энергии;

E_w — обогащение урана, *весовые* проценты (см. уравнение (7.3));

A — площадь канала коллиматора;

S — удельная активность гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ (см. табл. 7.1);

$\mu_c \rho_c$ — линейный коэффициент поглощения квантов данной энергии в контейнере для образца;

t_c — толщина одной стенки контейнера для образца.

Величина μ_r представляет собой линейный коэффициент поглощения квантов в смеси урана U и матрицы m при данной энергии:

$$\mu_r = \mu_U \rho_U + \mu_m \rho_m. \quad (7.6)$$

Интегрирование уравнения (7.5) по толщине образца дает полную скорость счета для энергии 186 кэВ:

$$R = \epsilon E_w S A \rho_U \exp(-\mu_c \rho_c t_c) \int_0^D \exp(-\mu_r x) dx, \quad (7.7)$$

которое преобразовывается к виду

$$E_w = \left[\frac{\mu_U}{\epsilon S A} \right] R \left[\frac{F \exp(\mu_c \rho_c t_c)}{1 - \exp(-\mu_r D)} \right], \quad (7.8)$$

$$\text{где } F = 1 + (\mu_m \rho_m / \mu_U \rho_U). \quad (7.9)$$

Если толщина образца D достаточно велика, тогда величина экспоненты в знаменателе уравнения (7.8) пренебрежимо мала по сравнению с единицей, делая несущественным изменения размеров образца. Это является основой подхода "бесконечной" толщины. Первая скобка в уравнении (7.8) содержит коэффициенты, зависящие только от характеристик прибора (ϵ и A) и собственных свойств урана (μ_U и S), и, таким образом, устанавливает основную градуировочную постоянную измерений. Если исследуемый и стандартный образец для градуировки имеют идентичные контейнеры, тогда величина $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$ может быть введена в

градуировочную постоянную; в ином случае эта величина должна быть использована для введения поправки на контейнер (см. раздел 7.7).

Коэффициент F в уравнении (7.8) отражает эффекты матрицы образца. Если стандартный и исследуемый образцы обладают одними и теми же свойствами матрицы, то этот коэффициент может быть включен в градуировочную постоянную. Если коэффициент F для матрицы исследуемого образца отличается от коэффициента F_s для матрицы стандартного образца, тогда также необходима небольшая поправка на это различие. В табл. 7.3 приведены значения коэффициента поправки F/F_s для различных соединений урана [2].

Таблица 7.3 – Коэффициент поправки F/F_s на состав материала [2]

Ядерный материал стандартного образца (коэффициент F_s)	Измеряемый ядерный материал (коэффициент F)					
	U	UC	UC ₂	UO ₂	U ₃ O ₈	UF ₆
U (100 %)	1,00	1,00	1,00	1,01	1,01	1,04
UC (95 % U)	1,00	1,00	1,00	1,01	1,01	1,03
UC ₂ (91 % U)	0,99	1,00	1,00	1,00	1,01	1,03
UO ₂ (88 % U)	0,99	0,99	1,00	1,00	1,00	1,03
U ₃ O ₈ (85 % U)	0,99	0,99	0,99	1,00	1,00	1,02
UF ₆ (68 % U)	0,96	0,97	0,97	0,98	0,98	1,00
Нитрат U (47 % U)	0,92	0,92	0,93	0,93	0,93	0,95

7.3.3 Аппаратура и методика для бесконечных образцов. Применение

Основной измерительной аппаратурой является коллимированный детектор гамма-излучения и соответствующая электроника. В раннем варианте такая аппаратура включала прибор SAM-II (Stabilized Assay Meter) и сцинтилляционный детектор NaI(Tl) [6]. Импульсы гамма-квантов анализировались двухканальным анализатором, одно окно которого было настроено на область энергии 186 кэВ (C1 на рис. 7.4), а другое окно настроено на область фона выше исследуемого пика (C2 на рис. 7.4).

Обогащение урана пропорционально *чистой* скорости счета в пике 186 кэВ (R в уравнении (7.8)), которая дается выражением:

$$R = C1 - f \cdot C2. \quad (7.10)$$

Эта формула представляет собой вычитание фона из общего счета в выбранной области пика с энергией 186 кэВ. Основной вклад в фон вносят высокоэнергетические гамма-кванты дочерних продуктов распада ²³⁸U, которые испытывают комптоновское рассеяние в детекторе. Хотя число отсчетов C2 прямо не относится к анализируемому пику, оно используется для определения уровня фона в близкой области энергии, а затем переносится на исследуемый пик с помощью спектрального множителя f , который должен определяться при градуировке. По-

сколькx обогащение (как атомарное, так и весовое) пропорционально чистой скорости счета R , мы имеем

$$E = a \cdot R \cdot F \cdot \exp(\mu_c \rho_c t_c) = F \cdot \exp(\mu_c \rho_c t_c) (a \cdot C1 - a \cdot f \cdot C2). \quad (7.11)$$

Градуировочная постоянная включает все геометрические факторы и константы, характеризующие свойства урана, из уравнения (7.8). Коэффициент матрицы F и коэффициент поправки на ослабление в стенке контейнера $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$ очень важны, когда стандартный и исследуемый образцы изготовлены из различных материалов или упакованы в разные контейнеры. Если измерения выполняются на материалах одного и того же вида, упакованных в контейнер одного типа, то множитель $F \exp(\mu_c \rho_c t_c)$ может быть включен в градуировочную постоянную. Тогда обогащение через измеряемые величины $C1$ и $C2$ записывается в виде

$$E = a \cdot C1 + b \cdot C2. \quad (7.12)$$

Градуировочные постоянные a и b ($= -a \cdot f$) в этом случае учитывают ослабление в контейнере и характеристики матрицы. Они определяются путем измерения двух стандартных образцов с известными величинами обогащения E_1 и E_2 .

При использовании аппаратуры SAM-II градуировочные постоянные вводятся в сигналы двух одноканальных анализаторов через цифровые умножители частоты. Реверсивный пересчетный прибор показывает разницу между масштабированными величинами $C1$ и $C2$, т.е. показывает обогащение урана. На газодиффузионном заводе в Портсмуте был установлен встроенный измеритель SAM-II [9]. Он находится в эксплуатации более 12 лет и продолжает контролировать выход продукции (жидкого UF_6) с относительной погрешностью 0,25 % (1σ). Аппаратура была разработана для непрерывного определения как обогащения ^{235}U (по гамма-измерениям), так и обогащения ^{234}U (по нейтронным измерениям; см. раздел 7.6 и главу 15). Изображение гамма-измерительной части аппаратуры приведено на рис. 7.5.

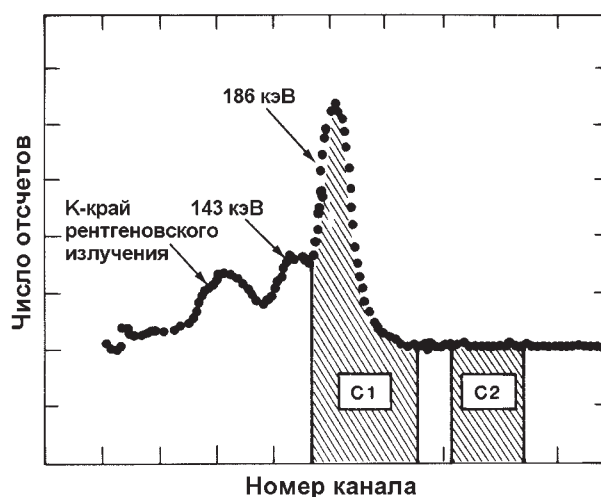


Рис. 7.4. Спектр гамма-излучения урана, измеренный детектором с низким разрешением, показывающий две энергетические области, используемые при измерении обогащения

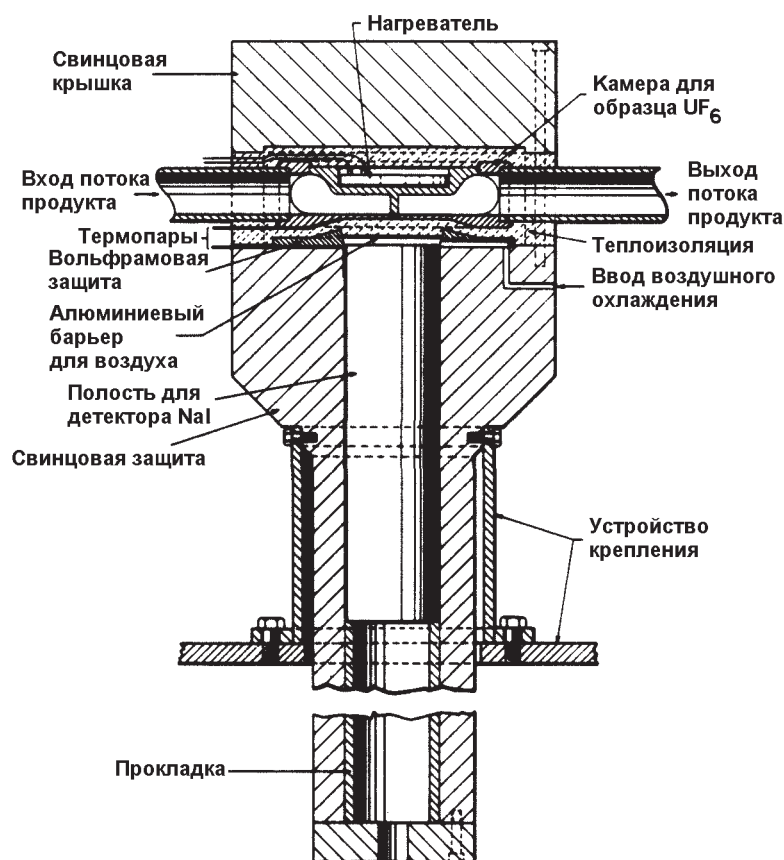


Рис. 7.5. Детектор и устройство защиты измерителя обогащения на газодиффузионном заводе в Портсмуте (США). Жидкий продукт UF_6 протекает через камеру, где измеряется интенсивность гамма-излучения с энергией 186 кэВ для определения обогащения UF_6 [9]

В более современном оборудовании [10] используется портативный, с батарейным питанием микропроцессорный многоканальный анализатор с детектором NaI (рис. 7.6). Аппаратура регистрирует полный спектр урана, интегрирует количество отсчетов в выбранных областях, соответствующих окнам С1 и С2 (например, как на рис. 7.4), рассчитывает обогащение и его статистическую неопределенность и представляет результаты на буквенно-цифровом дисплее. В программное обеспечение аппаратуры также включена методика градуировки по двум параметрам с помощью двух стандартных образцов. Подобная методика используется при обычных проверках обогащения на установках некоторых заводов [11]. Эти гамма-спектрометрические методики используются во многих внутри-заводских и полевых условиях применения, включая измерения UF_6 в накопительных емкостях. Как и в более ранних методиках, во многих современных применениях все еще используется детектор NaI [6]. Однако для исключения проблемы наложения излучения дочерних продуктов распада ^{238}U , отложившихся на внутренней поверхности контейнеров, более эффективна спектрометрия с высо-



Рис. 7.6. Оборудование для измерения обогащения урана по гамма-излучению, включающее портативный микропроцессорный многоканальный анализатор и детектор гамма-излучения NaI(Tl). Аппаратура может питаться от батарей и пригодна для применения в полевых условиях

ким разрешением на базе полупроводниковых детекторов. Детектор высокого разрешения особенно полезен, когда химические процессы приводят к концентрированию дочерних продуктов ^{238}U в отложениях или в самом урановом материале. В некоторых производственных процессах наблюдается десятикратное увеличение концентрации дочерних продуктов ^{238}U . Излучение дочерних продуктов создает высокий комптоновский фон в детекторе, который может затруднять выделение пика 185,7 кэВ.

Заслуживает внимания тот факт, что иногда требования методики "бесконечной" толщины соблюдаются не строго, что имеет место при измерениях, выполняемых аналитическими химическими лабораториями некоторых топливных производств, например, фирмы "Дженерал Электрик" в Уилмингтоне, штат Северная Каролина (США). Небольшие пробы технологических материалов растворяются и приготавливаются в виде разбавленных водных образцов уранилнитрата в стандартных ампулах. Дочерние продукты ^{238}U удаляются из раствора перед измерением. Эти образцы помещают в детектор NaI с колодцем и проводят измерения путем сравнения с тщательно подобранными стандартными образцами изотопов. Эта методика может обеспечить очень точный (0,1 — 0,2 %) контроль обогащения урана. Фирма "Дженерал Электрик" ежегодно проводит с использованием этой методики измерения нескольких тысяч образцов.

7.4 МЕТОДИКИ АНАЛИЗА ПО ОТНОШЕНИЮ ПИКОВ

7.4.1 Теория

Для произвольных "небесконечных" образцов (например, тонкой фольги, отложений загрязнений или разбавленных растворов) при определении обогащения очень трудно корректировать интенсивность гамма-излучения с энергией 186 кэВ на поглощение. Эта трудность возникает вследствие того, что множитель $[1 - \exp(-\mu_r D)]$ в уравнении (7.8) нельзя оценить точно. Методика отношения пиков требует измерить *отношения* интенсивностей гамма-излучения основных изотопов и использовать эту информацию для определения обогащения урана. Методика, в основном, идентична методике изотопного анализа плутония, описанной в главе 8. В простейшем случае низкого обогащения по ^{235}U , изотопы ^{235}U и ^{238}U , в сущности, являются единственными компонентами образца. Т.к. сумма их изотопных содержаний f в этом случае равна единице, атомарное содержание ^{235}U (возвращаясь к уравнению (7.2)) составляет

$$E_a = f_{235} = N(235) / [N(235) + N(238)] = (1 + f_{238} / f_{235})^{-1}. \quad (7.13)$$

Если в образце присутствуют в значимых количествах изотопы ^{234}U или ^{236}U , можно измерить другие отношения гамма-пиков от этих изотопов. Тогда выражение для атомарного содержания ^{235}U должно включать в себя эти другие отношения (см. в главе 8 для примера изотопный анализ плутония).

Трудным вопросом в методике отношения пиков является определение изотопного отношения f_{238}/f_{235} . Наиболее интенсивными пиками гамма-излучения ^{238}U являются пики от его дочернего изотопа $^{234\text{m}}\text{Pa}$, находящиеся в энергетическом диапазоне от 700 до 1000 кэВ (см. табл. 7.1). Большая разница энергии между гамма-квантами $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (^{238}U) и гамма-квантами 186 кэВ от ^{235}U делает необходимой существенную поправку на отличие относительной эффективности детектора, включая поглощение квантов в материалах образца и контейнера. Построение графика относительной эффективности как функции энергии требует измерения интенсивности известных пиков в заданном энергетическом диапазоне (см. в главе 8 детальное рассмотрение, относящиеся к изотопному анализу плутония). Для измерений обогащений урана необходимо определить скорости счета для нескольких гамма-пиков от двух основных изотопов (^{235}U и ^{238}U) и нормировать результаты измерений на общую кривую эффективности.

7.4.2 Применения

В одном из применений этой методики нормировочный коэффициент k между кривыми относительной эффективности для интенсивностей гамма-излучения ^{235}U и ^{238}U определяется методом последовательных приближений [12]. Тогда атомарное содержание в уравнении (7.13) равно

$$E_a = [1 + k(\lambda_{235} / \lambda_{228})]^{-1}, \quad (7.14)$$

где λ_A — постоянная времени радиоактивного распада для изотопа с массой A ;
 k — отношение активностей двух интересующих изотопов, определенное методом последовательных приближений:

$$k = A(^{238}\text{U}) / A(^{235}\text{U}). \quad (7.15)$$

При построении кривой относительной эффективности учитывают слабые пики гамма-излучения 258,3 кэВ от ^{234m}Pa и 63,3 кэВ от ^{234}Th для распространения данных по эффективности к гамма-излучению продуктов распада ^{238}U на область энергии, в которой преобладают гамма-кванты ^{235}U .

Аналогичный способ был применен [13-16] для спектрометрии гамма-излучения с высоким разрешением в узком диапазоне энергии от 89 до 99 кэВ. В одном из подходов [13-15] для изотопных измерений были использованы линии, расположенные в области от 92,4 до 93,4 кэВ: интенсивности линий 92,4 и 92,8 кэВ от ^{234}Th были использованы в качестве меры концентрации ^{238}U в образце, а линия тория $K_{\alpha 1}$ с энергией 93,35 кэВ применялась как мера концентрации ^{235}U . Вклад ^{238}U в линию 93,35 кэВ был учтен при градуировке. Рентгеновская K_{α} -линия урана использовалась при градуировке по энергии и эффективности. При лабораторных исследованиях было достигнуто согласие с результатами масс-спектрометрического анализа лучше, чем 1 %. При другом подходе [16] использовалась рентгеновская K-линия 89,9 кэВ тория от распада ^{235}U и дублет 92 кэВ гамма-излучения ^{234}Th ; результаты согласуются со стандартными величинами в пределах 1 %.

Оба способа использования областей низкоэнергетических пиков основываются на равновесии между дочерним ^{234}Th и материнским ^{238}U изотопами. Т.к. период полураспада изотопа ^{234}Th составляет 24 дня, равновесие обычно достигается через период времени от 120 до 168 дней (97 и 99 % от равновесной активности, соответственно) после химического разделения. Узкий энергетический диапазон снижает до минимума неопределенность зависящей от энергии относительной эффективности регистрации фотопиков, а предварительное определение этой эффективности для каждого образца делает эту методику измерения обогащения менее зависимой от знания материала матрицы. Однако ни одна низкоэнергетическая методика до сих пор не нашла подходящей области применения.

7.4.3 Выводы по методикам отношения пиков

Описанные выше методы имеют преимущество в том, что измеряется *отношение* пиков. Это позволяет определять обогащение урана без использования стандартных образцов обогащения или без определения зависящих от геометрии измерения градуировочных постоянных. При этом образцы не обязаны удовлетворять критерию "бесконечной" толщины. Кроме того, поправки на относительную эффективность делаются для каждого образца и включают поглощение не только в материале образца, но и в контейнере и во всех внешних поглотителях. Измерения изотопного состава плутония, описанные в главе 8, имеют те же самые преимущества. Недостатками этой методики являются:

- низкая интенсивность излучения дочерних продуктов ^{238}U для высокоэнергетического метода;
- необходимость установления векового равновесия между ^{238}U и его дочерними продуктами;
- необходимость изотопной однородности образца.

Необходимость изотопной однородности проявляется в случаях, когда в контейнере наряду с измеряемым материалом может оказаться остаток материала от

других образцов, например, при измерении баллонов с UF_6 , в которых уран от предыдущих партий может отложиться на стенках баллона.

Методы определения обогащения урана по отношению пиков могут, в принципе, также применяться для "бесконечных" образцов. Однако в этих случаях методы отношения пиков более трудоемки и продолжительны и обычно не имеют преимуществ перед другими методиками измерения обогащения, которые проще, быстрее и менее дороги.

7.5 МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА В ГАЗОВОЙ ФАЗЕ

Предельным случаем определения обогащения в "небесконечном" образце является измерение UF_6 в газовой фазе. В одной из методик [17-20] концентрация ^{235}U определялась путем измерения скорости R испускания гамма-квантов с энергией 186 кэВ при распаде ^{235}U , а общая концентрация урана — по измерению коэффициента пропускания T_{60} через газообразный UF_6 гамма-квантов с энергией 60 кэВ от внешнего источника ^{241}Am . На рис. 7.7 показаны система измерения с детектором NaI(Tl) и измерительной камерой и расположение источника ^{241}Am . Атомарное содержание E_a соотносится с измеряемой скоростью счета R квантов 186 кэВ по формуле

$$E_a = R / (C \ln T_{60}), \quad (7.16)$$

где R была откорректирована на потери от мертвого времени и ослабления в газе, C — градуировочная постоянная, а $\ln(T_{60})$ пропорционален общему содержанию урана в образце.

Т.к. измерение учитывает изменения плотности UF_6 , анализ не зависит от давления UF_6 . Этот метод имел результаты контроля с погрешностью измерения лучше, чем 1 % относительных в диапазоне обогащения UF_6 от 0,72 до 5,4 % используя одноточечную градуировку. Для UF_6 с обогащением 1,0 % при давлении 700 мм рт.ст. получена относительная погрешность 0,74 % при времени измерения 1000 с [19]. Эта методика применялась при относительно высоких давлениях UF_6 . В этом случае в сигнале преобладало излучение от газообразного UF_6 , а вклад от отложений урана на внутренней поверхности камеры для образца был незначителен. При испытаниях и оценке этого прибора в 1982 г. на линии питающего продуктопровода газодиффузионного завода в Ок-Ридже использовался детектор гамма-излучения NaI(Tl) . Прибор был модернизирован для регистрации гамма-квантов с высоким разрешением и испытан в 1983 г. Прототип прибора с высоким разрешением [20, 21] для газодиффузионного обогатительного завода в Портсмуте был создан и испытан в Ок-Ридже в 1984 г. (см. рис. 7.8).

При низких давлениях UF_6 (например, десятки мм рт.ст.) плотность газообразного UF_6 является недостаточно большой для того, чтобы измерение пропускания имело удовлетворительную точность. Кроме того, излучение от материала, отложившегося на поверхности контейнера, становится значительной частью общего сигнала, и тогда для получения точных результатов требуется тщательный учет наложений. Метод пассивного счета гамма-квантов и метод активной рентгенофлюоресценции были скомбинированы для приблизительной оценки обога-

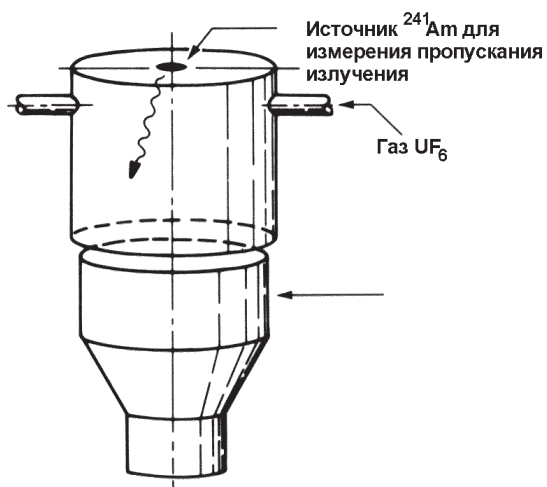


Рис. 7.7. Прибор для контроля обогащения UF_6 в газовой фазе на основе детектора NaI(Tl) , который регистрирует гамма-кванты с энергией 60 кэВ от источника ^{241}Am (при измерении пропускания) и 186 кэВ из камеры образца (при определении ^{235}U) [18]

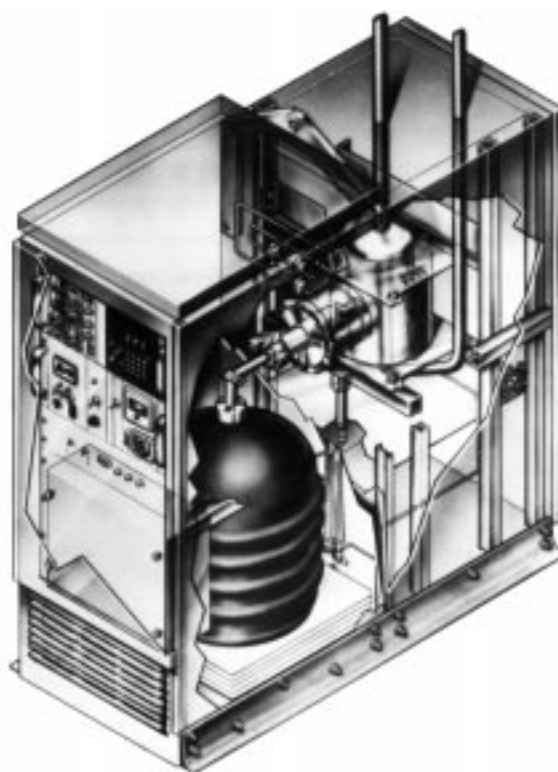


Рис. 7.8. Отсек установки контроля обогащения газообразного UF_6 для газодиффузионного обогатительного завода в Портсмуте. В половине отсека размещен детектор с электроникой, а вторая половина содержит нагревательную камеру для UF_6 и остальные приборы [21]

щения газообразного UF_6 низкого давления на трубопроводе головного каскада [22-26]. Измерялась интенсивность гамма-излучения распада ^{235}U (186 кэВ) и дочерних продуктов ^{238}U в отложениях на трубопроводе и от газообразного UF_6 для определения содержания ^{235}U в газе. Поправка на излучение от урана, отложившегося на внутренней поверхности трубопровода, была определена по гамма-излучению от распада ^{234}Th и ^{231}Th [25,26]. Общая масса урана в газе измерялась по рентгенофлюоресценции, возбуждаемой гамма-квантами 122 кэВ от источника ^{57}Co . Для получения прямого измерения обогащения градуировалось отношение интенсивностей гамма-излучения 186 кэВ от газообразного UF_6 к рентгеновской линии $\text{K}_{\alpha 1}$ -урана. Поправка на отложившийся уран определялась [24-26] по изменению поправки при пассивных измерениях гамма-излучения отложений урана при двух различных коллиматорах (см. рис. 7.9). В обоих случаях приборы были пригодны для обеспечения принятия решения «да/нет» при определении того, является ли измеренное обогащение меньшим или большим, чем 20 %, таким образом обеспечивая возможность определения наличия высокообогащенного урана для целей ядерной безопасности обогатительного завода.

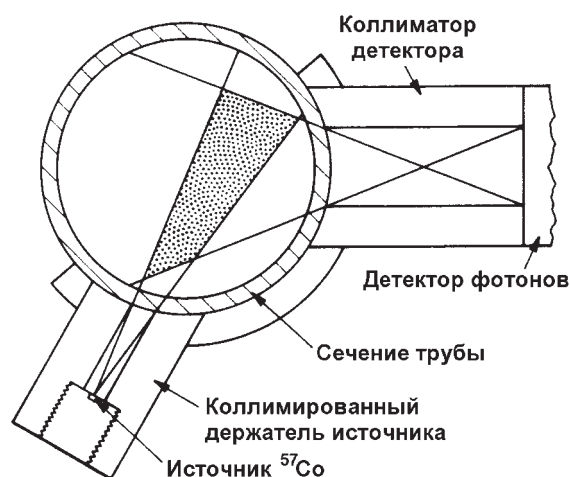


Рис. 7.9. Расположение детектор/коллиматор для измерения обогащения UF_6 низкого давления в трубопроводе. Устройство состоит из коллимированного держателя источника и коллиматора детектора, жестко закрепленных на трубопроводе. Частичное перекрытие двух полей обзора изолирует объем газа в середине трубы от отложений на стенках. Для возбуждения рентгенофлюоресценции в газе используется небольшой источник ^{57}Co [24]

7.6 ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ ПО НЕЙТРОННОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ

Другой пассивной методикой проверки обогащения UF_6 является регистрация нейтронов, испускаемых образцом в результате реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)$ [27]. Преобладающим альфа-излучателем в обогащенном уране и, следовательно, косвенно — основным источником нейтронов в UF_6 является ^{234}U . Кроме того, поскольку

ку обогащение по ^{234}U происходит совместно с обогащением по ^{235}U , пассивный подсчет общего числа нейтронов дает возможность грубого измерения обогащения ^{235}U . Отношение $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ может изменяться более чем в четыре раза в диапазоне от обедненного до высокообогащенного урана для газодиффузионного процесса обогащения. Но для низкообогащенного урана (<5%) оно более близко к постоянному и проверочные измерения с ограниченной точностью возможны без использования характеристик ^{234}U [6, 9, 28]. Дальнейшее обсуждение этой методики приведено в главе 15.

7.7 ПОПРАВКИ НА ОСЛАБЛЕНИЕ В СТЕНКАХ КОНТЕЙНЕРА

Типовое соотношение между обогащением и данными измерения (уравнение (7.8)) включает выражение $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$, которое учитывает ослабление измеряемого излучения в стенках контейнера образца. Ослабление может быть учтено при градуировке, если стандартный и измеряемый образцы имеют одинаковый тип контейнера. В некоторых случаях такое упрощение невозможно и поправка на ослабление в стенках контейнера должна применяться при каждом измерении. В этом разделе рассматриваются методы определения поправки для измерения обогащения в образце бесконечной толщины при постоянной матрице образца. Если коэффициент пропускания одной стенки контейнера исследуемого образца T_x определяется как

$$T_x = \exp[-(\mu_c \rho_c t_c)_x], \quad (7.17)$$

а T_s — определенный по аналогичной формуле коэффициент пропускания при градуировочном измерении, то искомое обогащение равно

$$E = KR(E_A)T_s / T_x, \quad (7.18)$$

где K — градуировочная постоянная;

$R(E_A)$ — чистая скорость счета гамма-пика исследуемого образца при анализируемой энергии ($E_A = 186$ кэВ), измеренная через стенку контейнера.

Далее представлены два метода определения этой поправки T_s/T_x на ослабление в стенке контейнера. Добавим, что контроль баллонов с UF_6 обсуждается для того, чтобы привести пример таких измерений, точность которых особенно критична к этой поправке.

7.7.1 Прямое измерение толщины стенки

Если состав контейнера и толщина стенки в точке измерения известны как для стандартного, так и для исследуемого образцов, то T_s/T_x может быть прямо рассчитано из экспоненциального выражения

$$T_s / T_x = \exp[(\mu_c \rho_c t_c)_s - (\mu_c \rho_c t_c)_x], \quad (7.19)$$

где ρ_c — плотность материала контейнера;

μ_c — оценено для анализируемой энергии.

Толщина стенки контейнера t_c может быть измерена непосредственно с помощью ультразвукового толщиномера (см. рис. 7.10). Ультразвуковой импульс посылается датчиком в материал контейнера и распространяется в нем, пока не до-

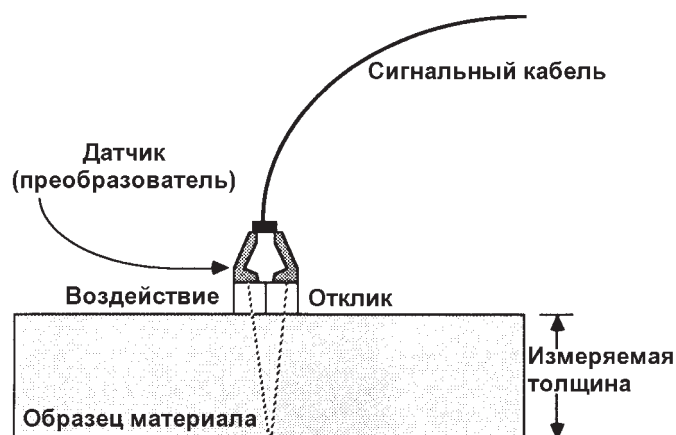


Рис. 7.10. Расположение датчика при ультразвуковом измерении толщины. Датчик должен иметь акустический контакт с внешней поверхностью материала для проникновения ультразвукового импульса внутрь материала без особого ослабления. Контакт достигается с помощью жидкого состава (обычно поставляемого с толщиномером), наносимого между торцом датчика и поверхностью материала

стигнет материала, существенно отличающегося по физическим характеристикам от материала контейнера, и тогда звук отражается обратно в датчик. Электронная часть прибора позволяет точно измерить время, необходимое ультразвуковому импульсу на прохождение туда и обратно в материале контейнера, и, таким образом, определить толщину материала. Такие толщиномеры выпускаются промышленностью и результаты обычно могут быть получены с погрешностью до $\pm 0,1$ мм. Недавние измерения [29] калиброванного стального диска, имеющего толщину 13,500 мм, дали при многократных измерениях разброс $\pm 0,055$ мм, что соответствует относительному стандартному отклонению 0,4 %.

7.7.2 Методика измерения отношения собственных гамма-линий

Отношение коэффициентов пропускания T_s/T_x также может быть определено по отношению интенсивностей гамма-квантов различных энергий от одного изотопа в предположении, что материал образца имеет бесконечную толщину для измеряемого гамма-излучения (см. раздел 7.3.2). Обычно для разделения интересных пиков требуется гамма-спектрометр с высоким разрешением. Для введения поправок в измерение обогащения по ^{235}U имеется несколько интенсивных резонансных гамма-линий вблизи пика 186 кэВ (см. табл. 7.1). Рассмотрим случай, когда дополнительно к площади основного анализируемого пика гамма-излучения измеряется интенсивность линий выше и ниже пика 186 кэВ (при энергиях E_H и E_L , соответственно). Если коэффициент пропускания определен уравнением (7.17), тогда имеем

$$\frac{T_s(E_A)}{T_x(E_A)} = \left[\frac{T_x(E_H)/T_s(E_H)}{T_x(E_L)/T_s(E_L)} \right]^{\frac{\mu_A}{\mu_L - \mu_H}}, \quad (7.20)$$

где индексы при μ соответствуют энергиям, при которых оценены μ . Для упрощения расчета коэффициентов пропускания при E_H и E_L преобразуем определение коэффициента пропускания с точки зрения измерений к виду

$$T = R / R_0, \quad (7.21)$$

где R — скорость счета для измеряемого пика, ослабленная в стенке контейнера; R_0 — скорость счета для измеряемого пика от образца с бесконечно тонким контейнером (т.е., $t_c \rightarrow 0$).

На практике R_0 не может быть измерена, но поскольку уравнение (7.20) содержит *отношения* коэффициентов пропускания, мы можем выразить эти отношения через отношения *площадей измеренных пиков*:

$$\frac{T_s(E_A)}{T_x(E_A)} = \left[\frac{R_x(E_H) / R_s(E_H)}{R_x(E_L) / R_s(E_L)} \right]^{\frac{\mu_A}{\mu_L - \mu_H}}, \quad (7.22)$$

где $R(E_{H,L})$ — площадь пика при энергии $E_{H,L}$.

Относительная погрешность отношения коэффициентов пропускания T_s/T_x отличается степенным показателем $\mu_A/(\mu_L - \mu_H)$ от относительной погрешности отношения площадей измеренных пиков, находящегося в скобках в правой части уравнения (7.22). Поэтому выгодно сделать этот показатель как можно меньшим, что достигается выбором пиков, не слишком близких по энергии. В табл. 7.4 приведены значения степенных показателей для наиболее часто встречающихся материалов контейнеров и двух выбранных измеряемых пиков. Заметьте, что одним из выбранных пиков является общепринятый для анализа пик 186 кэВ.

Таблица 7.4 — Значения степенных показателей $\mu_A/(\mu_L - \mu_H)$ для типичных материалов контейнеров

E_H/E_L	Железо	Монель	Алюминий	Полиэтилен*
205 кэВ/144 кэВ	2	2,17	8,13	8,88
186 кэВ/144 кэВ	3,20	2,78	11,09	11,83

* Полиэтилен низкой плотности, используемый в контейнерах.

Хотя методика отношения собственных гамма-линий является обычной для определения поправки на ослабление в стенках контейнеров, публикации по ее применению при измерении обогащения отсутствуют. Главная трудность в применении методики заключается в большом времени, необходимом для получения приемлемой статистической точности в областях вспомогательных пиков гамма-излучения.

7.7.3 Измерения баллонов с UF_6

Одним из наиболее обычных типов контейнеров при измерении обогащения является большой баллон, используемый для перевозки и хранения UF_6 в жидкой или твердой форме. Эти баллоны разнообразны по размерам и толщине стенок. В табл. 7.5 приведены некоторые основные параметры для наиболее распространенных типов баллонов [30].

Таблица 7.5 – Физические характеристики некоторых баллонов для перевозки и хранения UF_6 [30]

Характеристика	Тип баллона			
	5А	8А	30В	48Х
Номинальный диаметр, мм	127	203,2	762	1219,2
Номинальная длина, мм	914,4	1422,4	2057,4	3073,4
Конструкционный материал	Монель	Монель	Сталь	Сталь
Толщина стенки, мм	6,4	4,8	12,7	15,9

Большая толщина стенок баллона из материала с высокой плотностью означает, что небольшое изменение толщины стенок может вызвать значительное изменение скорости счета от гамма-излучения. Соотношение между относительным изменением результата определения обогащения и относительным отклонением толщины стенки получается путем дифференцирования уравнения (7.8):

$$dE/E = \mu_c \rho_c (dt_c / t_c) = 1,12(dt_c / t_c), \quad (7.23)$$

где последняя часть формулы получена для стали ($\mu_c = 0,144 \text{ см}^2/\text{г}$ при 186 кэВ и $\rho_c = 7,8 \text{ г/см}^3$). Таким образом, отклонение толщины стенки баллона на 10 % (только 1,27 мм для баллона типа 30В) вызовет смещение соответствующего результата измерения обогащения на 12 %. Использование измерения толщины стенки толщиномером уменьшает погрешность измерения до нескольких десятых долей процента, практически выводя толщину стенки из рассмотрения в качестве источника смещения результата измерения. Приборы для измерения обогащения UF_6 в баллонах могут градуироваться с использованием одного или более баллонов в качестве стандартных, которые затем могут быть направлены на анализ. С другой стороны, могут быть использованы стандартные образцы U_3O_8 или UF_4 известного обогащения с соответствующей поправкой на разницу в матрицах (т.е., на коэффициент F/F_s по табл. 7.3).

Ранее при оценке измерений обогащения в баллонах типов 30В и 5А с помощью сцинтилляционных детекторов NaI(Tl) [6] были получены результаты с относительным стандартным отклонением 5 % для баллонов типа 30В и <1 % — для баллонов типа 5А. Время измерения составляло несколько минут, а измерение толщины стенок занимало всего несколько секунд. Хороший акустический контакт между датчиком толщиномера и поверхностью баллона был достигнут полировкой пятна в области измерения гамма-детектором; неопределенность измерения толщины оценивалась в 0,4 %. Более современные оценки измерений обогащения баллонов типов 48 и 30 с UF_6 [28] показали аналогичные результаты даже с использованием гамма-детекторов высокого разрешения.

7.8 РАСПРОСТРАНЕНИЕ ПРИЕМОВ ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА НА ДРУГИЕ ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ

7.8.1 Измерение концентрации

В определенной области содержания урана приемы измерения обогащения становятся методами измерения *концентрации* урана [5]. Оба случая подчиняются одним и тем же математическим уравнениям, например (7.8); зависимость результатов от концентрации урана и матрицы содержится в коэффициенте F в уравнении (7.9). Для матриц с эффективным $Z \leq 30$ отношение μ_m/μ_U менее 0,1. Тогда для $\rho_m/\rho_U \leq 1$ величина коэффициента поправки F очень близка к единице, а скорость счета почти прямо пропорциональна обогащению:

$$R = KEF = KE. \quad (7.24)$$

Поэтому область, в которой $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \leq 0,1$, называют "областью обогащения".

На другом конце спектра измерений располагаются случаи, для которых концентрация урана очень мала по сравнению с вкладом матрицы. Когда $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \geq 10$, коэффициентом F можно пренебречь. Тогда, если известны величины обогащения и μ , уравнение (7.24) преобразуется к виду

$$R = KEF = K'E(\rho_U / \rho_m) \quad (7.25)$$

с погрешностью $\leq 10\%$. K' — новая градуировочная постоянная. Область, для которой $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \geq 10$, тогда может быть названа областью "измерения концентрации". В ней также должен удовлетворяться критерий "бесконечной" толщины. Примером образцов, которые полностью принадлежат области "измерения концентрации", являются контейнеры с загрязненными ураном материалами, например, растворы с разбавленным ураном или урановые отложения в баках с кольцами Рашига [5].

7.8.2 Соотношение компонентов в смешанном оксидном топливе

Принцип измерения обогащения также может быть использован для качественной оценки различных реакторных топливных смесей, например, PuO_2 , UO_2 , U -С и Th -С, или, в общем случае, для анализа любых делящихся материалов, имеющих подходящее низкоэнергетическое гамма-излучение, так чтобы образец удовлетворял критерию "бесконечной" толщины [4, 31]. В случае смеси нескольких компонентов, скорость счета характеристического гамма-излучения от изотопа с обогащением E дается выражением

$$R = ESA\epsilon / (\mu_1 F), \quad (7.26)$$

где F — теперь более общий вид уравнения (7.9):

$$F = 1 + [1 / (\mu_1 \rho_1)] \sum_{i=2}^n \mu_i \rho_i. \quad (7.27)$$

Текущий индекс i обозначает соответствующий компонент элемента в смеси материалов в образце, а индекс 1 обозначает элемент, чей изотоп испускает иссле-

дуемое "реперное" гамма-излучение. Для случая смеси $\text{PuO}_2 + \text{UO}_2$ и регистрации излучения плутония ("реперное" излучение 129 кэВ удовлетворяет критерию "бесконечной" толщины) предыдущее выражение преобразуется к виду:

$$R = \frac{E S A \epsilon}{\mu_{\text{Pu}} K (1 + r)}, \quad (7.28)$$

где параметр смеси $r = \rho_{\text{U}}/\rho_{\text{Pu}}$. Коэффициент K отражает вклад более высокого порядка от матрицы в смеси специальных ядерных материалов и имеет значение около единицы. Сомножитель $1/(1 + r)$ отражает существенное изменение ослабления гамма-излучения плутония при добавлении урана. Так как K крайне чувствителен к изменению соотношения смеси [4], результат измерения обогащения для бесконечного образца прямо пропорционален $E/(1 + r)$; т.е. очень чувствителен к изменению как изотопного обогащения, так и соотношения смеси. Дополнительное измерение одной из линий гамма-излучения урана в этом примере, в принципе, позволит контролировать независимо как обогащение плутония, так и соотношение элементов в смеси, при условии, что изотопный состав урана известен.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.E. Anderson and J.F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
2. T.R. Canada, *An Introduction to Non-Destructive Assay Instrumentation, A Training Manual for the International Atomic Energy Agency Inspectorate*, (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1984).
3. J.T. Russell, "Method and Apparatus for Nondestructive Determination of ^{235}U in Uranium," US Patent No. 3 389 254, June 1968.
4. T.D. Reilly, R.B. Walton, and J.L. Parker, "The Enrichment Meter — A Simple Method for Measuring Isotopic Enrichment," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December, 1970," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4605-MS (1970), p.19.
5. J.L. Parker and T.D. Reilly, "The Enrichment Meter as a Concentration Meter," in "Nuclear Analysis Research and Development, Program Status Report, September-December 1972," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5197-PR (1972), p.11.
6. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H. Menzel, E.D. Marshall, and L.W. Fields, "Measurement of UF_6 Cylinders with Portable Instruments," *Nuclear Technology* 21, 133 (1974).
7. L.A. Kull and R.O. Ginaven, "Guidelines for Gamma-Ray Spectroscopy Measurements of ^{235}U Enrichment," Brookhaven National Laboratory report BNL-50414 (1974).
8. P. Matussek, "Accurate Determination of the ^{235}U Isotope Abundance by Gamma Spectrometry: A User's Manual for the Certified Reference Material EC-NRM-171/NBS-SRM-969," Institut für Kernphysik report KfK 3752, Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Federal Republic of Germany (1985).

9. T.D. Reilly, E.R. Martin, J.L. Parker, L.G. Speir, and R.B. Walton "A Continuous In-Line Monitor for UF₆ Enrichment," *Nuclear Technology* 23, 318 (1974).
10. J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, and R.A. Cameron, "Application of a Portable Multichannel Analyzer in Nuclear Safeguards," Proc. of the IEEE 1985 Nuclear Science Symposium, San Francisco, California, October 23-25, 1985. Also available as Los Alamos National Laboratory document LA-UR-85-3735 (1985).
11. D.R. Terry, "Development of IAEA Safeguards Measurements for Enrichment Plants," *Transaction of the American Nuclear Society* 50,176 (1985).
12. R.J.S. Harry, J.K. Aaldijk, and J.P. Braak, "Gamma-Spectroscopic Determination of Isotopic Composition Without Use of Standards," *Proc. IAEA Symposium, "Safeguarding Nuclear Materials,"* Vienna, October 20-24, 1975, Vol. II (1975), p.235.
13. T.N. Dragnev and B.P. Damyanov, "Methods for Precise, Absolute Gamma-Spectrometric Measurements of Uranium and Plutonium Isotopic Ratios," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards*, Vienna, Austria, October 2-6, 1978, IAEA-SM-231, Vol. I (1978), p.739.
14. T.N. Dragnev, B.P. Damyanov, and K.S. Karamanova, "Non-Destructive Measurements of Uranium and Thorium Concentrations and Quantities," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards*, Vienna, Austria, October 2-6, 1978, IAEA-SM-231, Vol. II (1978), p.207.
15. T.N. Dragnev, B.P. Damyanov, and G.G. Grozev, "Simplified Procedures and Programs for Determining Uranium and Plutonium Isotopic Ratios," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards*, Vienna, Austria, November 8-12, 1982, IAEA-SM-260, Vol. II (1982), p.258.
16. R. Hagenauer, "Nondestructive Determination of Uranium Enrichment Using Low-Energy X and Gamma Rays," *Nuclear Materials Management* XI, 216 (1982).
17. J.W. Tape, M.P. Baker, R. Strittmatter, M. Jain, and M.L. Evans, "Selected Non-destructive Assay Instruments for an International Safeguards System at Uranium Enrichment Plants," *Nuclear Materials Management* VIII, 719 (1979).
18. R.B. Strittmatter, J.N. Leavitt, and R.W. Slice, "Conceptual Design for the Field Test and Evaluation of the Gas-Phase UF₆ Enrichment Meter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8657-MS (1980).
19. R.B. Strittmatter, "A Gas-Phase UF₆ Enrichment Monitor," *Nuclear Technology* 59, 355 (1982).
20. R.B. Strittmatter, L.A. Stovall, and J.K. Sprinkle, Jr., "Development of an Enrichment Monitor for the Portsmouth GCEP," *Proc. Conference on "Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface,"* Hilton Head Island, SC, November 28-December 3, 1983, (Conf. 831106, 1984), p.63.
21. R.B. Strittmatter, R.R. Pickard, J.K. Sprinkle, Jr., and J.R. Tarrant, "Data Evaluation of the Gas-Phase UF₆ Enrichment Meter," *Proc. ESARDA/INMM Joint Specialist Meeting on NDA Statistical Problems*, Ispra, Italy, September 12-14, 1984, p.243.
22. D.A. Close, J.C. Pratt, H.F. Atwater, J.J. Malanify, K.V. Nixon, and L.G. Speir, "The Measurement of Uranium Enrichment for Gaseous Uranium at Low Pressu-

- re," *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management*, ESARDA, Liege, Belgium, May 21-23, 1985, p.127.
23. D.A. Close, J.C. Pratt, J.J. Malanify, and H.F. Atwater, "X-Ray Fluorescent Determination of Uranium in the Gaseous Phase," *Nuclear Instruments and Methods A* 234, 556, (1985).
 24. D.A. Close, J.C. Pratt, and H.F. Atwater, "Development of an Enrichment Measurement Technique and its Application to Enrichment Verification of Gaseous UF₆," *Nuclear Instruments and Methods A* 240, 398, (1985).
 25. T.W. Packer and E.W. Lees, "Measurement of the Enrichment of Uranium in the Pipework of a Gas Centrifuge Plant," *Proc. of the 6th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management*, ESARDA, Venice, Italy, May 14-18, 1984, p.243.
 26. T.W. Packer and E.W. Lees, "Measurement of the Enrichment of UF₆ Gas in the Pipework of a Gas Centrifuge Plant," *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management*, ESARDA, Liege, Belgium, May 21-23, 1985, p.299.
 27. T.D. Reilly, J.L. Parker, A.L. Evans, and R.B. Walton, "Uranium Enrichment Measurement on UF₆ Product Cylinders," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1971," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4794-MS (1971), p.16.
 28. J.L. Weiman, "Practical Uncertainty Limits in Gamma-Ray Enrichment Measurements on Low-Enriched Uranium Hexafluoride," *Proc. ESARDA/INMM Joint Specialist Meeting on NDA Statistical Problems*, Ispra, Italy, September 12-14, 1984, p.101.
 29. L.R. Stieff, R.B. Walton, T.D. Reilly, L.W. Fields, R.L. Walker, W.T. Mullins, and J.I. Thoms, "Neutron Measurements of ²³⁴U Isotopic Abundances in UF₆ Samples," *Nuclear Materials Management IV*, 179 (1975).
 30. "Uranium Hexafluoride: Handling Procedures and Container Criteria," Oak Ridge Operations Office report ORO-651, Revision 4 (1977).
 31. G.W. Nelson, S.-T. Hsue, T.E. Sampson, and R.G. Gutmacher, "Measurement of Uranium/Plutonium Blendig Ratio," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1984," Darryl B.Smith, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-10529-PR (1986), p.19.

Глава 8

Гамма-спектрометрия изотопного состава плутония

Т. Е. Сэмпсон
(Переводчик И. Н. Сазонов)

8.1 ВВЕДЕНИЕ

Для интерпретации результатов измерений нейтронных совпадений или калориметрии необходимо точное измерение изотопного состава плутония. Были разработаны несколько методов определения изотопного состава плутония с помощью гамма-спектрометрии; некоторые ранние достижения описаны в работах [1-5]. Стандартный метод анализа изотопного состава плутония с использованием гамма-спектрометрии описан в работе Американского общества испытаний и материалов ASTM (American Society for Testing and Materials) [6]. Для различных типов образцов были разработаны различные методы.

В этой главе приведены характеристики спектров плутония, которые оказывают влияние на измерения изотопного состава, описываются используемые спектральные области и представлены основы спектрального анализа, важные для изотопных измерений. Глава включает описание типичных устройств для сбора данных, подробное изложение методов анализа и описание нескольких применяемых систем с примерами их точностных характеристик.

8.2 ОСНОВНЫЕ СВЕДЕНИЯ

8.2.1. Характеристики распада изотопов плутония

Большинство образцов плутония содержат изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu . Среди продуктов распада ^{241}Pu всегда присутствуют изотопы ^{241}Am и ^{237}U . В табл. 8.1 приведены некоторые характеристики распада этих важнейших изотопов.

Таблица 8.1 – Характеристики распада изотопов, используемых при измерениях изотопного состава плутония

Изотоп	Период полураспада, лет	Активность, распадов/с·г	Удельная мощность, мВт/г изотопа
^{238}Pu	$87,74 \pm 0,04$	$6,3330 \times 10^{11}$	$567,57 \pm 0,026$
^{239}Pu	24119 ± 26	$2,2942 \times 10^9$	$1,9288 \pm 0,0003$
^{240}Pu	6564 ± 11	$8,3971 \times 10^9$	$7,0824 \pm 0,0020$
^{241}Pu	$14,348 \pm 0,022$	$3,8244 \times 10^{12}$	$3,412 \pm 0,002$
^{242}Pu	376300 ± 900	$1,4522 \times 10^8$	$0,1159 \pm 0,0003$
^{241}Am	$433,6 \pm 1,4$	$1,2655 \times 10^{11}$	$114,20 \pm 0,50$
^{237}U	(6,75 сут)	$9,4080 \times 10^7$ *	—

* Активность ^{237}U рассчитана в предположении равновесия ^{241}Pu - ^{237}U (см. рис. 8.1). Вероятность альфа-распада ^{241}Pu предполагается равной $2,46 \times 10^{-5}$.

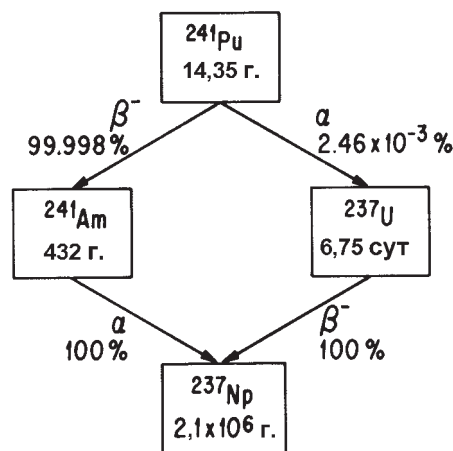


Рис. 8.1. Схема распада ^{241}Pu и его дочерних продуктов

8.2.2 Характеристики распада изотопа ^{241}Pu

Схема распада ^{241}Pu приведена на рис. 8.1. Из-за большого периода полураспада изотопа ^{241}Am концентрация его дочерних продуктов распада продолжает увеличиваться вплоть до 75 лет. Старые образцы плутония часто имеют очень высокое содержание ^{241}Am , особенно если начальная концентрация ^{241}Pu была очень высока.

Вследствие своего короткого времени полураспада дочерний изотоп ^{237}U быстро приходит в равновесие с материнским изотопом ^{241}Pu [7]. После приблизительно 47 дней (7 периодов полураспада), гамма-излучение ^{237}U может быть использовано в качестве меры содержания ^{241}Pu . Поскольку ^{237}U имеет несколько мощных гамма-линий, именно они особенно часто используются при измерениях изотопного состава плутония. В этой главе термины "равновесие ^{241}Pu - ^{237}U " или "возраст" относятся к образцам, в которых изотоп ^{237}U находится в установившемся (вековом) равновесии с изотопом ^{241}Pu . Образцы, в которых равновесие ^{241}Pu - ^{237}U не достигнуто, именуются "свежевыделенными". Для них изотоп ^{237}U не может быть использован в качестве меры содержания изотопа ^{241}Pu .

Изотопы ^{241}Am и ^{237}U распадаются до одного и того же изотопа ^{237}Np (см. рис. 8.1). При этом оба изотопа могут образовывать одни и те же возбужденные состояния ^{237}Np и испускать идентичные гамма-кванты. Таким образом, наиболее используемые пики гамма-излучения ^{237}U имеют вклад от ^{241}Am , величина которого зависит от конкретной гамма-линии и от времени, когда америций последний раз был выделен из образца. На рис. 8.2 показан относительный вклад основных гамма-линий изотопа ^{237}U . Для пиков ^{241}Pu - ^{237}U должна быть сделана поправка на вклад изотопа ^{241}Am .

8.2.3. Определение концентрации изотопа ^{242}Pu

Изотоп ^{242}Pu имеет всего несколько гамма-линий, которые по энергии и выходу подобны таким же линиям ^{240}Pu . Однако большой период полураспада ^{242}Pu и его низкое содержание в большинстве образцов плутония делают его определение с помощью гамма-измерений практически невозможным. Вместо этого используется эмпирическая изотопная корреляция [8] для расчета содержания ^{242}Pu по другим изотопным составляющим. Такой расчет концентрации ^{242}Pu (как правило, от 0,03 до 5 %), обычно дает приемлемые результаты для большинства образцов плутония, если не были перемешаны разные партии плутония и ^{241}Am не добавлялся и не извлекался.

8.2.4 Спектральная интерференция

Многие области спектра гамма-излучения могут содержать интерферирующие гамма-линии от других изотопов, присутствующих в образце. Например, образцы с очень высоким выгоранием часто содержат ^{243}Am и его дочерний изотоп ^{239}Np ; старые образцы могут содержать ^{237}Np и его дочерний изотоп ^{233}Pa ; образцы из регенерированного топлива могут содержать продукты деления. Здесь не могут быть перечислены все возможные случаи интерференции, однако знание истории образца (продолжительность облучения и выдержки, срок после переработки) позволяет предусмотреть возможные спектральные интерференции.

8.2.5 Практическое применение измерений изотопного состава плутония

Одной из основных целей измерений изотопного состава плутония является поддержка других методов неразрушающего анализа (НРА) для определения общего содержания плутония в образце. Двумя такими методами, которые используют результаты изотопного анализа плутония, являются калориметрия и регистрация нейтронных совпадений.

В калориметрии для расчета удельной тепловой мощности образца (Вт/г Pu) используются изотопная информация, полученная из измерений состава изотопов, и известная удельная тепловая мощность для каждого изотопа (см. главы 21 и 22).

Результат регистрации нейтронных совпадений является сложной функцией содержания всех изотопов плутония и ^{241}Am . Измерение изотопного состава необходимо для преобразования результата регистрации нейтронных совпадений в массу плутония (см. главу 16).

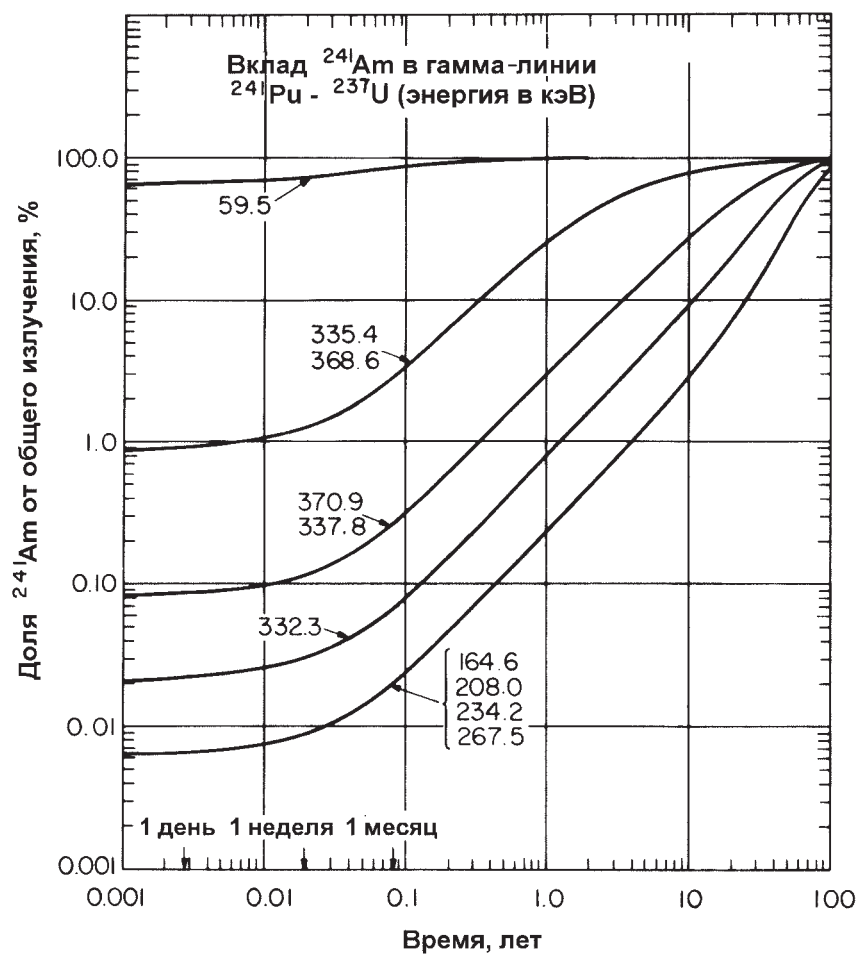


Рис. 8.2. Вклад америция-241 в пики гамма-излучения урана-237 как функция интервала времени после разделения. В момент времени $t = 0$ концентрация урана и америция – нулевая

8.3 СПЕКТРАЛЬНЫЕ ОБЛАСТИ, ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ ДЛЯ ИЗОТОПНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

В этом разделе приведены особенности спектров, которые важны для измерения изотопного состава плутония. Описание соответствует методике, используемой в работах Ганнинка с сотрудниками [9] и Лемминга и Рэкеда [10], в которых спектр разбивается на несколько различных областей. Спектр гамма-излучения плутония сильно зависит от изотопного состава и концентрации ^{241}Am . Спектры двух образцов приведены на рис. 8.3 и 8.4. На рис. 8.3 представлен пример низкого выгорания и малого содержания ^{241}Am ; на рис. 8.4 — среднего выгорания и относительно высокого содержания ^{241}Am . Подобные примеры приведены для каждой спектральной области в качестве иллюстрации изменений, которые могут встретиться.

В табл. 8.2 приведен перечень большинства гамма-линий, используемых при изотопных измерениях плутония. Этот перечень показывает, что гамма-кванты низкой энергии намного интенсивнее, чем при больших энергиях. Однако во многих случаях низкоэнергетические гамма-кванты использовать невозможно.

8.3.1. Область энергии 40 кэВ

Область энергии 40 кэВ используется, главным образом, для анализа свежевыделенных растворов, из которых были удалены ^{241}Am и ^{237}U . Если присутствует много ^{241}Am , его гамма-линия 60 кэВ подавляет все остальные пики в этой области. Обычно область 40 кэВ используется в период времени от 15 до 30 дней после отделения америция и урана. Типичный спектр от раствора регенерированного высоко выгоревшего топлива [11] показан на рис. 8.5; в табл. 8.3 приведены энергии пиков и их интенсивности. Область энергии гамма-излучения 40 кэВ — наиболее используемая для измерений ^{238}Pu , ^{239}Pu и ^{240}Pu , когда это технически возможно. Эта область не содержит измеряемых гамма-квантов ^{241}Pu ; обычно концентрация ^{241}Pu измеряется по его гамма-линии 148,6 кэВ. Для малых количеств ^{241}Pu и ^{237}U их пики интерферируют с пиком 43,5 кэВ ^{238}Pu , пиком 45,2 кэВ ^{240}Pu и пиком 51,6 кэВ ^{239}Pu .

Несколько экспериментаторов использовали эту область для измерения плутония в растворах: Ганнинк [12] и Руссо [11] измеряли растворы, сразу после разделения на радиохимическом заводе; Умегава [13] и Баберняк [14] использовали такие измерения для образцов, приготовленных в аналитической лаборатории. Лай [15] измерял субмиллиграммовые твердые образцы с незначительным содержанием ^{241}Am . Ганнинк использовал методику абсолютного счета и градуировку на известных стандартных растворах; Умегава — абсолютный счет с помощью предварительно отградуированного детектора. Баберняк проводил градуировку с помощью образцов известного изотопного состава. Руссо и Лай измеряли изотопные отношения без стандартных образцов, как это описано в разделе 8.4.

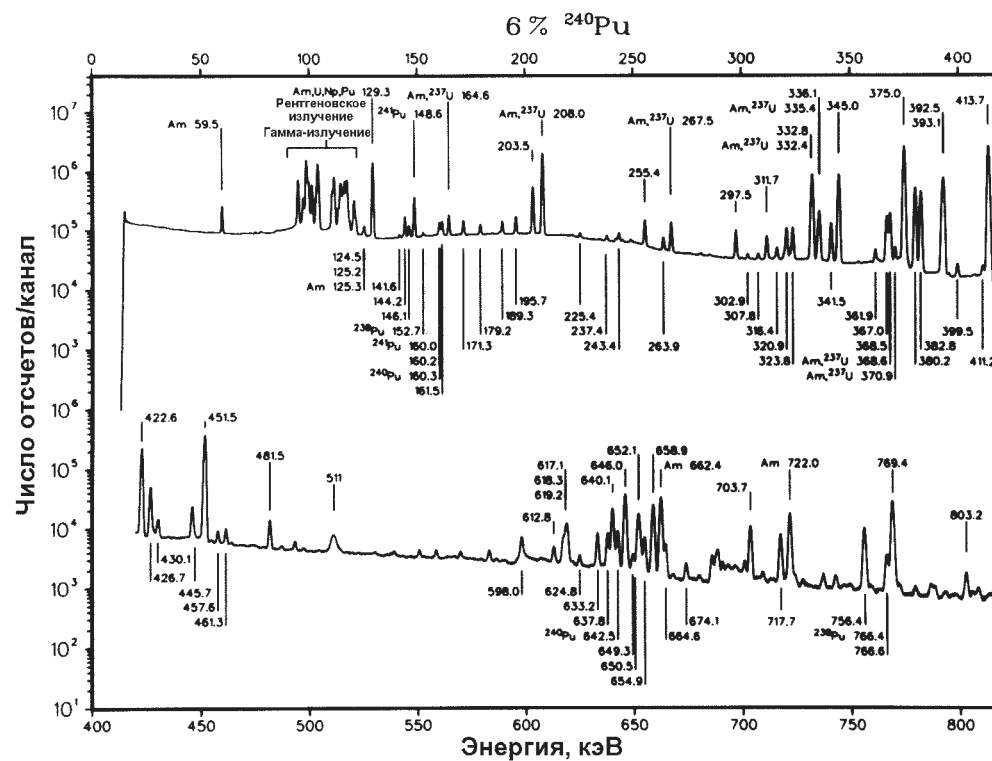


Рис. 8.3. Спектр гамма-излучения от 500 г металлического плутония, измеренный с помощью коаксиального германиевого детектора (при энергии 1332 кэВ: относительная эффективность — 11,7 %, ширина пика на полувысоте — 1,75 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,012 %; ^{239}Pu — 93,82 %; ^{240}Pu — 5,90 %; ^{241}Pu — 0,240 %, ^{242}Pu — 0,02 %, ^{241}Am — 630 мкг/г Pu. Необозначенные пики относятся к ^{239}Pu

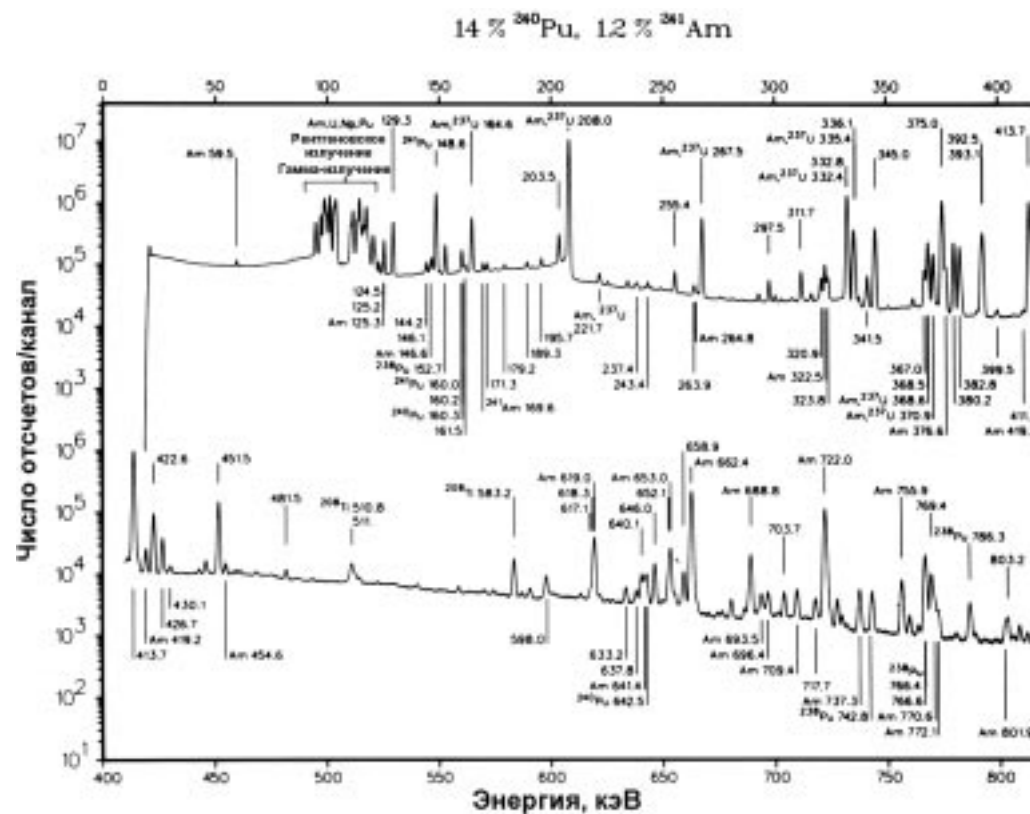


Рис. 8.4. Спектр гамма-излучения от 530 г плутония в виде PuO_2 , измеренный с помощью коаксиального германиевого детектора (при энергии 1332 кэВ: относительная эффективность — 10,2 %, ширина пика на полувысоте — 1,65 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,302 %; ^{239}Pu — 82,49 %; ^{240}Pu — 13,75 %; ^{241}Pu — 2,69 %; ^{242}Pu — 0,76 %; ^{241}Am — 11 800 мкг/г Pu . Необозначенные пики относятся к ^{239}Pu

Таблица 8.2 – Гамма-линии различных энергетических областей, используемые при измерениях изотопного состава плутония

Область энергии, кэВ	²³⁸ Pu		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴¹ Am	
	Энер- гия, кэВ	Интенсив- ность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсив- ность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсив- ность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсив- ность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсив- ность, квант/с·г
40-60	43	2,49×10 ⁸	51,63	6,19×10 ⁵	4	3,80×10 ⁶	-	-	59,54	4,54×10 ¹⁰
90-105	99,86	4,59×10 ⁷	98,78	2,80×10 ⁴	104,24	5,86×10 ⁵	103,68	3,86×10 ⁶	98,95	2,57×10 ⁷
									102,97	2,47×10 ⁷
120-450	152,68	6,05×10 ⁶	129,29	1,44×10 ⁵	160,28	3,38×10 ⁴	148,57	7,15×10 ⁶	125,29	5,16×10 ⁶
			203,54	1,28×10 ⁴			164,58*	1,73×10 ⁶	335,40	6,28×10 ⁵
			345,01	1,28×10 ⁴			208,00*	2,04×10 ⁷		
			375,04	3,60×10 ⁴			332,35*	1,14×10 ⁶		
			413,71	3,42×10 ⁴			370,93*	1,04×10 ⁵		
450-800	766,41	1,39×10 ⁵	645,97	3,42×10 ²	642,48	1,05×10 ³	-	-	662,42	4,61×10 ⁵
			717,72	6,29×10 ¹					721,99	2,48×10 ⁵

* Дочерний ²³⁷U от распада ²⁴¹Pu при равновесии ²⁴¹Pu-²³⁷U.

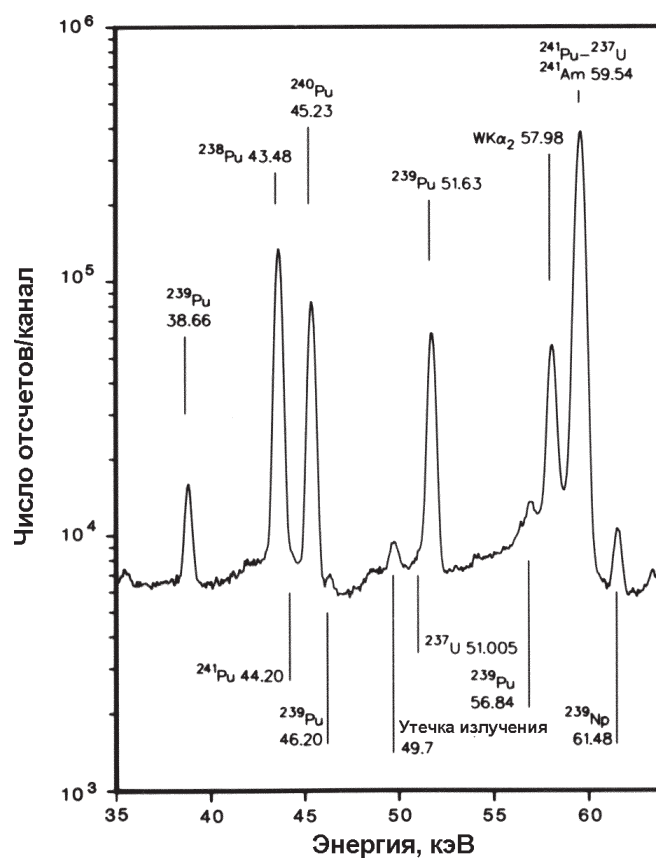


Рис. 8.5. Спектр гамма-излучения в области энергии 40 кэВ от раствора свежевыделенного плутония в азотной кислоте, концентрация 185 г/л. Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,649 %; ^{239}Pu — 67,01 %; ^{240}Pu — 21,80 %; ^{241}Pu — 8,11 %; ^{242}Pu — 2,44 % [11]. Рентгеновская $K_{\alpha 2}$ -линия вольфрама — от защиты, окружающей детектор

Таблица 8.3 – Энергии пиков в области 40 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	38,664	$1,050 \times 10^{-4}$	1,00	$2,4089 \times 10^5$
²³⁹ Pu	40,410	$1,620 \times 10^{-6}$	10,00	$3,7165 \times 10^3$
²³⁹ Pu	42,060	$1,650 \times 10^{-6}$	3,00	$3,7854 \times 10^3$
²³⁷ U	43,430	$5,904 \times 10^{-9}$	7,00	$2,2579 \times 10^4$ *
²³⁸ Pu	43,477	$3,930 \times 10^{-4}$	0,30	$2,4889 \times 10^8$
²⁴¹ Pu	44,200	$4,180 \times 10^{-8}$		$1,5986 \times 10^5$
²⁴¹ Pu	44,860	$8,360 \times 10^{-8}$		$3,1972 \times 10^4$
²⁴⁰ Pu	45,232	$4,530 \times 10^{-4}$	0,20	$3,8039 \times 10^6$
²³⁹ Pu	46,210	$7,370 \times 10^{-6}$	10,00	$1,6908 \times 10^4$
²³⁹ Pu	46,690	$5,800 \times 10^{-6}$	6,00	$1,3306 \times 10^3$
²³⁷ U	51,005	$8,364 \times 10^{-8}$	2,00	$3,1987 \times 10^5$ *
²³⁹ Pu	51,629	$2,700 \times 10^{-4}$	0,20	$6,1942 \times 10^5$
²³⁹ Pu	54,040	$2,000 \times 10^{-6}$	1,40	$4,5883 \times 10^3$
²⁴¹ Pu	56,320	$2,500 \times 10^{-8}$		$9,5610 \times 10^4$
²³⁹ Pu	56,760	$9,750 \times 10^{-9}$		$3,7288 \times 10^4$
²³⁹ Pu	56,838	$1,130 \times 10^{-5}$	1,00	$2,5924 \times 10^4$
²³⁷ U	59,536	$8,487 \times 10^{-6}$	0,20	$3,2458 \times 10^7$ *
²⁴¹ Am	59,536	$3,590 \times 10^{-1}$		$4,5432 \times 10^{10}$
²³⁷ U	64,832	$3,198 \times 10^{-7}$	0,50	$1,2230 \times 10^6$ *

* Интенсивность для ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

8.3.2. Область энергии 100 кэВ

Область энергии 100 кэВ является наиболее сложной в гамма-спектре плутония. В табл. 8.4 приводятся 14 линий гамма- и рентгеновского излучения в этой области энергии. Рентгеновское излучение урана возникает при распаде плутония и может быть использовано для измерения изотопов плутония. Рентгеновское излучение нептуния возникает при распаде ²⁴¹Am и ²³⁷U, а рентгеновское излучение плутония появляется в больших образцах или образцах более высокой концентрации в результате рентгеновской флюоресценции, возбужденной гамма-квантами или альфа-частицами. Область энергии 100 кэВ является единственной областью, в которой присутствует гамма-излучение всех изотопов.

На рис. 8.6 показана мощная интерферирующая природа области энергии 100 кэВ. С ее помощью может быть определено общее распределение изотопов для образцов растворов топлива низкого выгорания [4]. Спектр от такого образца, измеренный с помощью детектора из особо чистого германия (ОЧГ), показан в нижней части рис. 8.6. Сложность этой области требует проведения анализа с использованием методов подгонки пиков или функции соответствия [4, 16]. Низко выгоревший PuO_2 также анализировался с использованием методов функции соответствия. Растворы глубоко выгоревших образцов были проанализированы в этой области с использованием методов функции отклика [12], но такой анализ затруднен. Повышенная активность альфа- и гамма-излучения глубоко выгоревших материалов или образцов растворов высокой концентрации вызывает рентгеновскую флюоресценцию плутония с энергиями 99,53 и 103,75 кэВ. Это рентгеновское излучение интерферирует с пиками гамма-излучения 99,86 кэВ от ^{238}Pu и 104,24 кэВ от ^{240}Pu . Характерная форма линии рентгеновского излучения отличается от линии гамма-излучения; эта разница должна учитываться при анализе этой области методами функции отклика.

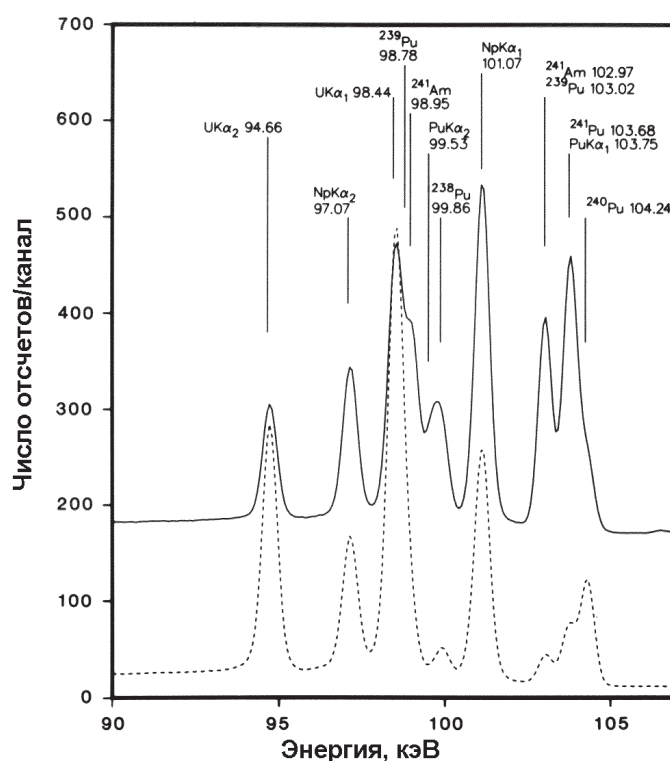


Рис. 8.6. Спектр гамма-излучения в области энергии 100 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Сплошная линия: 530 г плутония в виде PuO_2 . Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,302 %, ^{239}Pu — 82,49 %, ^{240}Pu — 13,75 %, ^{241}Pu — 2,69 %, ^{242}Pu — 0,76 %, ^{241}Am — 11 800 мкг/г Pu . Пунктирная линия: 10 мл раствора плутония с концентрацией 20 г/л в 1М HNO_3 . Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,027 %, ^{239}Pu — 91,65 %, ^{240}Pu — 7,68 %, ^{241}Pu — 0,532 %, ^{242}Pu — 0,12 %, ^{241}Am — 315 мкг/г Pu

Таблица 8.4 – Энергии пиков в области 100 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г	Рентгеновское излучение
²³⁸ Pu	94,658	1,050×10 ⁻⁶	1,40	6,6497×10 ⁵	U K _{α2}
²³⁹ Pu	94,658	4,220×10 ⁻⁵	0,25	9,6813×10 ⁴	U K _{α2}
²⁴⁰ Pu	94,658	6,360×10 ⁻⁷	5,00	5,3406×10 ³	U K _{α2}
²⁴¹ Pu	94,658	3,030×10 ⁻⁶	0,50	1,1588×10 ⁷	U K _{α2}
²³⁹ Pu	96,130	2,230×10 ⁻⁷	20,00	5,1160×10 ²	
²³⁷ U	97,071	3,887×10 ⁻⁶	0,40	1,4865×10 ⁷	Np K _{α2} *
²⁴¹ Am	97,072	1,180×10 ⁻⁵	2,00	1,4933×10 ⁶	Np K _{α2}
²³⁸ Pu	98,441	1,690×10 ⁻⁶	1,00	1,0703×10 ⁶	U K _{α1}
²³⁹ Pu	98,441	6,760×10 ⁻⁵	0,30	1,5508×10 ⁵	U K _{α1}
²⁴⁰ Pu	98,441	1,020×10 ⁻⁶	5,00	8,5651×10 ³	U K _{α1}
²⁴¹ Pu	98,441	4,850×10 ⁻⁶	0,50	1,8548×10 ⁷	U K _{α1}
²³⁹ Pu	98,780	1,220×10 ⁻⁵	3,00	2,7989×10 ⁴	
²⁴¹ Am	98,951	2,030×10 ⁻⁴	0,50	2,5690×10 ⁷	
Pu **	99,530				Pu K _{α2}
²³⁸ Pu	99,864	7,240×10 ⁻⁵	0,20	4,5851×10 ⁷	
²³⁷ U	101,066	6,199×10 ⁻⁶	0,30	2,3708×10 ⁷	Np K _{α1} *
²⁴¹ Am	101,066	1,900×10 ⁻⁵	1,40	2,4045×10 ⁶	Np K _{α1}
²⁴¹ Am	102,966	1,950×10 ⁻⁴	0,50	2,4677×10 ⁷	
²³⁹ Pu	103,020	2,170×10 ⁻⁶	1,60	4,9783×10 ³	
²⁴¹ Pu	103,680	1,010×10 ⁻⁶	0,50	3,8627×10 ⁶	
Pu **	103,748				Pu K _{α1}
²⁴⁰ Pu	104,244	6,980×10 ⁻⁵	0,40	5,8612×10 ⁵	

* Интенсивность для ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность 2,46×10⁻⁵ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

** Рентгеновское излучение плутония образуется в образцах большой массы или высокой концентрации при возбуждении флюоресценции гамма-квантами или альфа-частицами.

8.3.3 Область энергии 125 кэВ

Область энергии 125 кэВ используется для измерения ²⁴¹Am и ²³⁹Pu с помощью гамма-линий 125,29 и 129,29 кэВ. Имеется сильная интерференция гамма-линии с энергией 125,29 кэВ изотопа ²⁴¹Am с линиями 125,21 и 125,51 кэВ изотопа ²³⁹Pu. Площадь пика ²⁴¹Am трудно измерить при концентрациях ²⁴¹Am ниже нескольких сотен микрограммов на грамм плутония. При концентрации амери-

ция около 500 мкг на грамм плутония вклад интерференции ^{239}Pu составляет более 50 % от площади пика с энергией 125,3 кэВ; при концентрации америция около 5000 мкг на грамм плутония — свыше 90 % площади пика принадлежит ^{241}Am . Интерференция ^{239}Pu может быть устранена с помощью метода подгонки пика [17] или вычитания пика [18]. Во многих экспериментах используются поглотители или фильтры (см. раздел 8.5.3) для снижения скорости счета от низкоэнергетического гамма-излучения. Эти поглотители воздействуют на скорость счета в области 125 кэВ. Кадмиевый фильтр толщиной 0,15 см пропускает только 35 % падающего излучения с энергией 125,3 кэВ.

В табл. 8.5 приведены энергии и интенсивности гамма-излучения в области спектра 125 кэВ, которая показана на рис. 8.7. Рентгеновские K_β -линии плутония с энергиями 116,3, 117,3 и 120,6 кэВ (не указанные в табл. 8.5) затрудняют анализ в этой области, т.к. ниже 124,5 кэВ трудно найти область фона, свободную от интерференции. Плутоний высокого выгорания (сплошная линия на рис. 8.7) обычно дает более сильный пик ^{241}Am , но более слабый пик ^{239}Pu , чем плутоний низкого выгорания. Для материала высокого выгорания точность определения пика 129,29 кэВ изотопа ^{239}Pu ниже, т.к. в таком образце меньше ^{239}Pu и потому, что фон

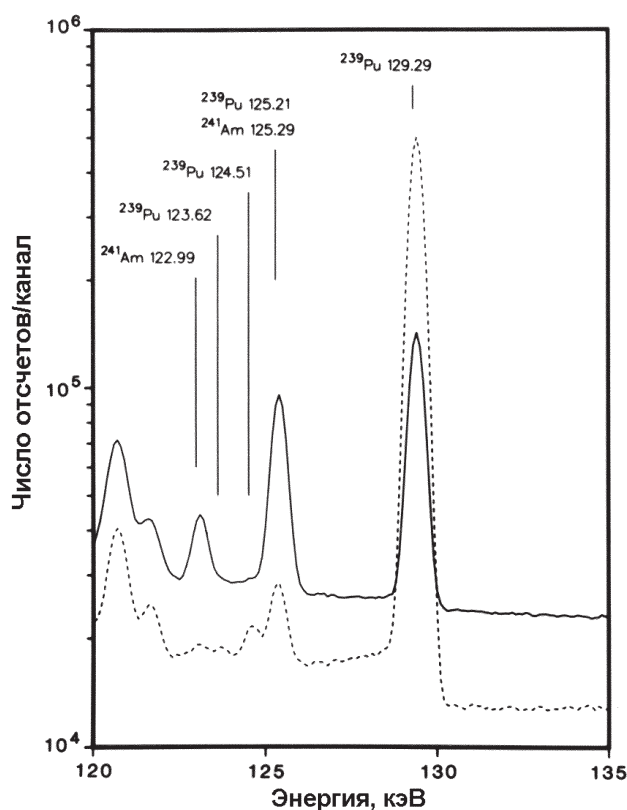


Рис. 8.7. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 125 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

под пиком обычно выше вследствие наличия мощного гамма-излучения ^{241}Pu и ^{237}U при больших энергиях.

Таблица 8.5 – Энергии пиков в области 125 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	119,708	$3,000 \times 10^{-7}$	2,00	$6,8825 \times 10^2$
^{241}Pu	121,200	$6,850 \times 10^{-9}$		$2,6197 \times 10^4$
^{241}Am	122,994	$1,000 \times 10^{-5}$	0,80	$1,2655 \times 10^6$
^{239}Pu	123,620	$1,970 \times 10^{-7}$	6,00	$4,5195 \times 10^2$
^{239}Pu	124,510	$6,130 \times 10^{-7}$	3,00	$1,4063 \times 10^3$
^{239}Pu	125,210	$7,110 \times 10^{-7}$	2,00	$1,6311 \times 10^3$
^{241}Am	125,292	$4,080 \times 10^{-5}$	0,50	$5,1633 \times 10^6$
^{239}Pu	129,294	$6,260 \times 10^{-5}$	0,20	$1,4063 \times 10^5$

8.3.4 Область энергии 148 кэВ

Наиболее важными в области энергии 148 кэВ являются пики 148,57 кэВ от ^{241}Pu и 152,68 кэВ от ^{238}Pu . Пик 148,57 кэВ — единственный используемый пик гамма-излучения вне сложной области 100 кэВ, непосредственно происходящий от ^{241}Pu . Пик 152,68 кэВ, хотя и более слабый, часто является единственным используемым от ^{238}Pu в области энергий выше 100 кэВ (для некоторых высоко выгоревших образцов для измерения ^{238}Pu может быть использован пик 766,4 кэВ). При измерении изотопного состава часто используются гамма-линии ^{239}Pu с энергиями 144,21 и 143,35 кэВ; однако в смешанных оксидных образцах с ними может интерферировать линия 143,76 кэВ от ^{235}U . Пики 146,56 и 150,11 кэВ от ^{241}Am затрудняют установку окон и определение фона для методик, использующих простое суммирование каналов для определения площади пиков. В системах, которые используют эталонный источник ^{109}Cd , может возникать дополнительная интерференция [11, 12]. Здесь энергия гамма-излучения 88,04 кэВ от ^{109}Cd может складываться с энергией гамма-излучения 59,54 кэВ от ^{241}Am , давая пик наложения с суммарной энергией 147,6 кэВ. Другие суммарные пики могут интерферировать с пиком 152,68 кэВ от ^{238}Pu (94,66 кэВ рентгеновской $K_{\alpha 2}$ -линии урана плюс 59,54 кэВ от ^{241}Am равно 154,2 кэВ).

Слабый пик 153 кэВ от ^{238}Pu обычно расположен на высоком пьедестале фона и дает низкую точность для материала низкого выгорания (0,01 вес. % ^{238}Pu). При типичных измерениях сходимость может быть ниже 10 %. Широко признано, что выход гамма-излучения с энергией 153 кэВ приблизительно на 2,5 % ниже, чем величина, приведенная в табл. 8.6. Отклонения значений выхода обсуждаются в работе [19]. На рис. 8.8 изображены пики в этой области энергии для материалов высокого и низкого выгорания.

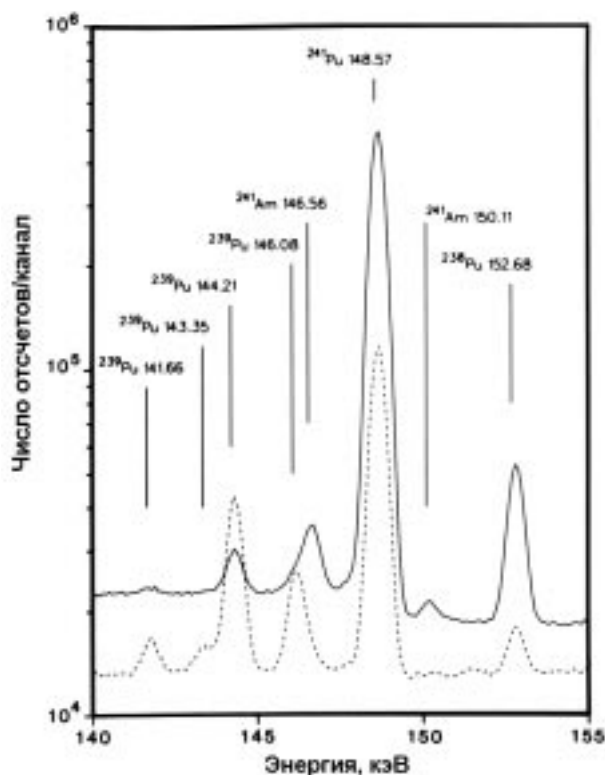


Рис. 8.8. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 148 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

Таблица 8.6 – Энергии пиков в области 148 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	141,657	$3,200 \times 10^{-7}$	2,00	$7,3413 \times 10^2$
^{239}Pu	143,350	$1,730 \times 10^{-7}$	4,00	$3,9689 \times 10^2$
^{239}Pu	144,211	$2,830 \times 10^{-6}$	0,60	$6,4925 \times 10^3$
^{239}Pu	146,077	$1,190 \times 10^{-6}$	0,60	$2,7300 \times 10^3$
^{241}Am	146,557	$4,610 \times 10^{-6}$	1,00	$5,8340 \times 10^5$
^{241}Pu	148,567	$1,870 \times 10^{-6}$	0,30	$7,1516 \times 10^6$
^{241}Am	150,110	$7,400 \times 10^{-7}$	2,00	$9,3648 \times 10^4$
^{238}Pu	152,680	$9,560 \times 10^{-6}$	0,50	$6,0544 \times 10^6$

8.3.5 Область энергии 160 кэВ

Для систем с одним детектором, в которых не используются области энергии 40 или 100 кэВ, для измерения ^{240}Pu может быть использована только область 160 кэВ. В табл. 8.7 приведены энергии и интенсивности основных гамма-квантов в области 160 кэВ. Гамма-линия ^{240}Pu с энергией 160,28 кэВ сильно интерферирует с линиями 159,95 кэВ от ^{241}Pu и 160,19 кэВ от ^{239}Pu . Этот комплекс из трех пиков (см. рис. 8.9) только частично разрешается от линии ^{239}Pu с энергией 161,45 кэВ. Для выделения интенсивности ^{240}Pu могут быть использованы методы подгонки пика, вычитания пика или функции соответствия. Содержание ^{240}Pu редко измеряется со статистической точностью лучше, чем ~2 %.

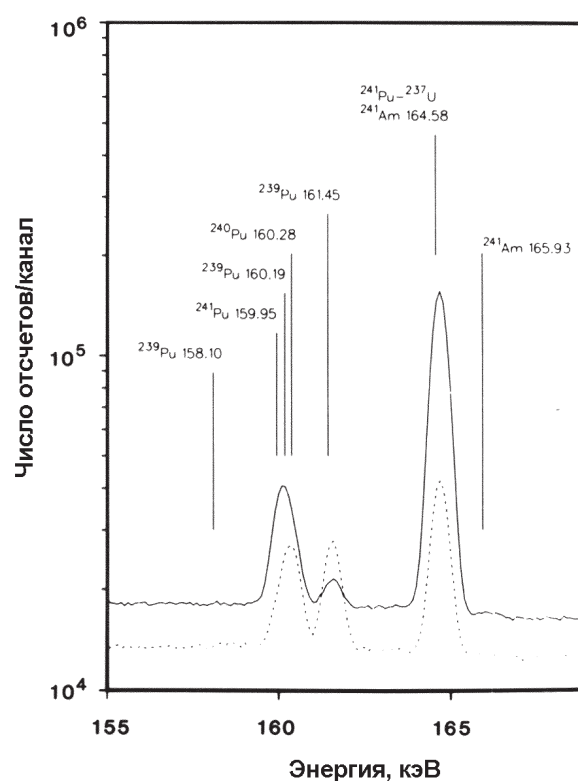


Рис. 8.9. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 160 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

Интенсивность всего этого комплекса возрастает при увеличении выгорания, но вклад ^{240}Pu уменьшается. В табл. 8.8 показано, как относительный вклад излучения ^{240}Pu в комплекс 160 кэВ уменьшается с почти 70 % для материала с 6 % ^{240}Pu до 25 % для материала с 20 % ^{240}Pu . Это снижение происходит из-за того, что с увеличением выгорания доля ^{241}Pu растет быстрее, чем доля ^{240}Pu .

Таблица 8.7 – Энергии пиков в области 160 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	158,100	$1,000 \times 10^{-8}$	10,00	$2,2942 \times 10^1$
²⁴¹ Pu	159,955	$6,740 \times 10^{-8}$		$2,5776 \times 10^5$
²³⁹ Pu	160,190	$6,200 \times 10^{-8}$	20,00	$1,4224 \times 10^2$
²⁴⁰ Pu	160,280	$4,020 \times 10^{-6}$	0,70	$3,3756 \times 10^4$
²³⁹ Pu	161,450	$1,200 \times 10^{-6}$	0,40	$2,7530 \times 10^3$
²³⁷ U	164,580	$4,526 \times 10^{-7}$	0,50	$1,7311 \times 10^6$ *
²⁴¹ Am	164,580	$6,670 \times 10^{-7}$	3,00	$8,4410 \times 10^4$
²⁴¹ Am	165,930	$2,320 \times 10^{-7}$	4,00	$2,9360 \times 10^4$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

Поскольку пик 164,58 кэВ принадлежит ²³⁷U, дочернему продукту ²⁴¹Pu, он может быть использован для измерения ²⁴¹Pu только после установления равновесия. Часто делается поправка на вклад ²⁴¹Am в пик 164,58 кэВ. Сумма рентгеновского и гамма-излучения из области 100 кэВ с гамма-линией 59,5 кэВ от ²⁴¹Am может интерферировать с комплексом линий в области энергий 160 кэВ. Этот суммарный пик может быть ослаблен с помощью фильтра для селективного поглощения рентгеновского и гамма-излучения из областей 60 и 100 кэВ перед их взаимодействием с детектором [20]. В образцах смешанных оксидных материалов пик 163,35 кэВ от ²³⁵U может интерферировать с пиком 164,58 кэВ, если отношение ²³⁵U к ²⁴¹Pu больше, чем приблизительно 1,5.

Таблица 8.8 – Компоненты гамма-комплекса в области энергий 160 кэВ

Изотоп Pu	Содержание, вес. %	Вклад в комплекс области энергий 160 кэВ от данного изотопа, %
239	93,5	4,5
240	6,0	69,1
241	0,3	26,4
239	86,0	1,5
240	12,0	50,4
241	1,5	48,1
239	67,0	0,3
240	20,0	24,6
241	8,0	75,1

8.3.6 Область энергии 208 кэВ

В области энергии 208 кэВ доминирует сильный пик ^{241}Pu - ^{237}U с энергией 208,00 кэВ. Обычно это наиболее интенсивный пик в спектре. Он содержит вклад от ^{241}Am , который после 4 лет составляет приблизительно 1% (относительных). Поскольку это гамма-излучение происходит от ^{237}U , оно может быть использовано для анализа образцов плутония только с возрастом более 7 недель после очистки. Интенсивность пика и отсутствие интерференции делают его пригодным для градуировки по форме и энергии для аналитических методик, использующих подгонку пика или функцию соответствия. Для смеси оксидов пики 202,1 и 205,3 кэВ от ^{235}U могут интерферировать с линией 203,54 кэВ от ^{239}Pu . Отношение $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ по паре линий 203,54/208,00 дает наилучшие результаты для материалов с низким выгоранием. Для материалов с высоким выгоранием точность измерения пика 203,54 кэВ от ^{239}Pu становится хуже из-за комптоновского фона и длинного хвоста от очень сильного пика 208,00 кэВ изотопа ^{237}U . Высокое содержание ^{241}Am (~1 %) может вызвать интерференцию в несколько десятых долей процента с пиком 203,5 кэВ; однако эффект от этой интерференции может быть легко устранен. В табл. 8.9 перечислены параметры, а на рис. 8.10 показаны спектральные характеристики области энергии 208 кэВ.

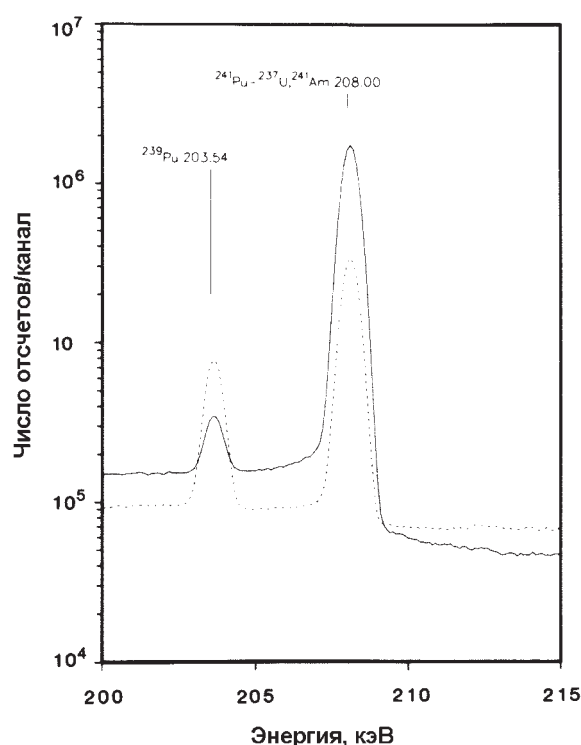


Рис. 8.10. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 208 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

Таблица 8.9 – Энергии пиков в области 208 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	203,537	$5,600 \times 10^{-6}$	0,20	$1,2847 \times 10^4$
²⁴¹ Am	203,870	$2,900 \times 10^{-8}$	6,00	$3,6700 \times 10^3$
²³⁷ U	208,000	$5,338 \times 10^{-6}$	0,20	$2,0415 \times 10^7$ *
²⁴¹ Am	208,000	$7,910 \times 10^{-6}$	0,50	$1,0010 \times 10^6$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

8.3.7 Область энергии 332 кэВ

Область энергии 332 кэВ состоит из пиков ²⁴¹Pu-²³⁷U, ²⁴¹Am и ²³⁹Pu, как показано в табл. 8.10 и на рис. 8.11. При анализе старых материалов высокого выгорания для измерения отношения ²³⁹Pu/²⁴¹Pu используется отношение пика 345,01 кэВ от ²³⁹Pu к пику 332,35 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U. Оба пика 332,35 и 335,40 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U имеют очень тесную интерференцию с пиками ²³⁹Pu. Рис. 8.11 для образца материала очень низкого выгорания (98 % ²³⁹Pu) иллюстрирует, как тесно расположены эти два интерферирующих пика. В табл. 8.11 даны относительные величины этих интерферирующих пиков ²³⁹Pu для различных изотопных смесей. Для измерения отношения ²⁴¹Pu/²⁴¹Am после удаления интерферирующих линий ²³⁹Pu могут быть использованы оба комплекса пиков с обеими компонентами ²⁴¹Pu-²³⁷U и ²⁴¹Am [3]. При анализе этой области энергии используются методы подгонки пика, вычитания пика или функции соответствия.

Таблица 8.10 – Энергии пиков в области 332 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁷ U	332,354	$2,977 \times 10^{-7}$	0,30	$1,1384 \times 10^6$ *
²⁴¹ Am	332,354	$1,490 \times 10^{-6}$	0,30	$1,8856 \times 10^5$
²³⁹ Pu	332,838	$5,060 \times 10^{-6}$	0,20	$1,1608 \times 10^4$
²³⁷ U	335,405	$2,386 \times 10^{-8}$	1,00	$9,1258 \times 10^4$ *
²⁴¹ Am	335,405	$4,960 \times 10^{-6}$	0,30	$6,2769 \times 10^5$
²³⁹ Pu	336,107	$1,134 \times 10^{-6}$	0,30	$2,6016 \times 10^3$
²⁴¹ Am	337,720	$4,290 \times 10^{-8}$	5,00	$5,4290 \times 10^3$
²³⁷ U	337,720	$2,189 \times 10^{-9}$	5,00	$8,3732 \times 10^3$ *
²³⁷ U	340,450	$4,059 \times 10^{-10}$	20,00	$1,5523 \times 10^3$ *
²³⁹ Pu	341,510	$6,620 \times 10^{-7}$	0,40	$1,5187 \times 10^3$
²³⁹ Pu	345,014	$5,592 \times 10^{-6}$	0,20	$1,2829 \times 10^4$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

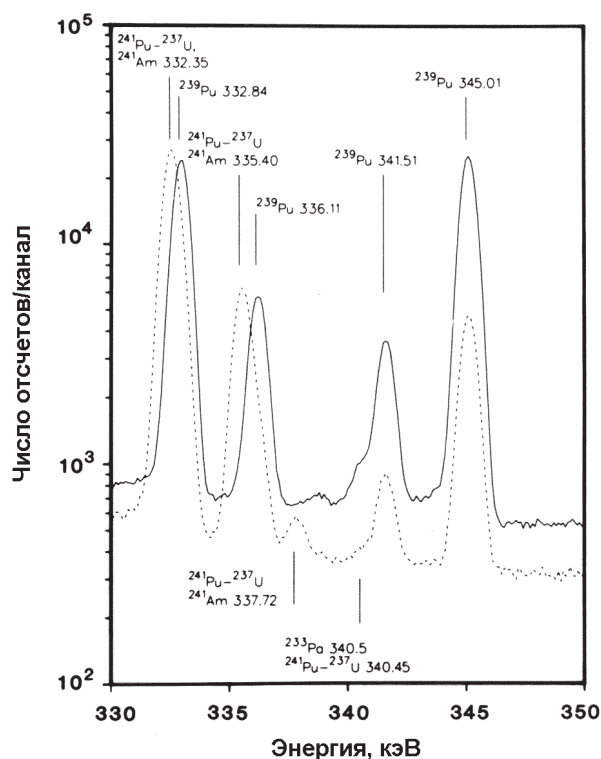


Рис. 8.11. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 332 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,0024 %; ^{239}Pu — 97,96 %; ^{240}Pu — 2,01 %; ^{241}Pu — 0,020 %; ^{242}Pu — 0,0030 %; ^{241}Am — 11 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu

Таблица 8.11 — Компоненты гамма-комплексов 332 и 336 кэВ (вклад ^{241}Am пренебрежимо мал)

Изотоп Pu	Содержание, вес. %	Вклад в комплекс 332 кэВ от данного изотопа	Вклад в комплекс 336 кэВ от данного изотопа
239	93,5	76,1	89,9
241	0,3	23,9	10,1
239	86,0	36,9	62
241	1,5	63,1	38
239	67,0	7,9	19,3
241	8,0	92,1	80,7

8.3.8 Область энергии 375 кэВ

Область энергии 375 кэВ, показанная в табл. 8.12 и на рис. 8.12, состоит из пиков тех же изотопов, что и область 332 кэВ: ^{241}Pu - ^{237}U , ^{241}Am и ^{239}Pu . Для всех изотопов, кроме ^{239}Pu , выход гамма-квантов ниже, чем в области 332 кэВ, поэтому информация о содержании изотопов будет менее точной. Сильный пик 375,04 кэВ от ^{239}Pu часто используется для определения относительной эффективности детектора. Интерференция линии 376,59 кэВ изотопа ^{241}Am становится существенной при содержании выше нескольких тысяч микрограммов на грамм плутония.

Таблица 8.12 – Энергии пиков в области 375 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	367,050	$8,650 \times 10^{-7}$	0,30	$1,9844 \times 10^3$
^{239}Pu	368,550	$9,030 \times 10^{-7}$	0,30	$2,0716 \times 10^3$
^{237}U	338,605	$1,055 \times 10^{-8}$	2,00	$4,0360 \times 10^4 *$
^{241}Am	338,605	$2,170 \times 10^{-6}$	0,30	$2,7462 \times 10^5$
^{237}U	370,934	$2,713 \times 10^{-8}$	1,40	$1,0377 \times 10^5 *$
^{241}Am	370,934	$5,230 \times 10^{-7}$	0,80	$6,6186 \times 10^4$
^{239}Pu	375,042	$1,570 \times 10^{-5}$	0,10	$3,6018 \times 10^4$
^{241}Am	376,595	$1,383 \times 10^{-6}$	0,70	$1,7502 \times 10^5$
^{239}Pu	380,166	$3,051 \times 10^{-6}$	0,20	$6,9995 \times 10^3$
^{239}Pu	382,751	$2,587 \times 10^{-6}$	0,20	$5,9350 \times 10^3$
^{241}Am	383,740	$2,820 \times 10^{-7}$	1,50	$3,5687 \times 10^4$

* Интенсивность ^{237}U рассчитана в предположении равновесия ^{241}Pu - ^{237}U . Выход для ^{237}U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ^{241}Pu в ^{237}U .

8.3.9 Область энергии 640 кэВ

На рис. 8.13 и в табл. 8.13 представлены спектральные характеристики в области энергии 640 кэВ. Это единственная область выше 160 кэВ, которая может быть использована для измерения ^{240}Pu . Эта область применяется только для больших образцов из-за низкой интенсивности гамма-линии 642,48 кэВ изотопа ^{240}Pu . Близко расположенные линии ^{239}Pu и ^{241}Am усложняют эту область. Для измерения ^{239}Pu и ^{241}Am используются пики 645,97 и 662,42 кэВ. Остальное гамма-излучение в этой области обычно не используется, но должно учитываться при анализе методами подгонки пика или функции соответствия.

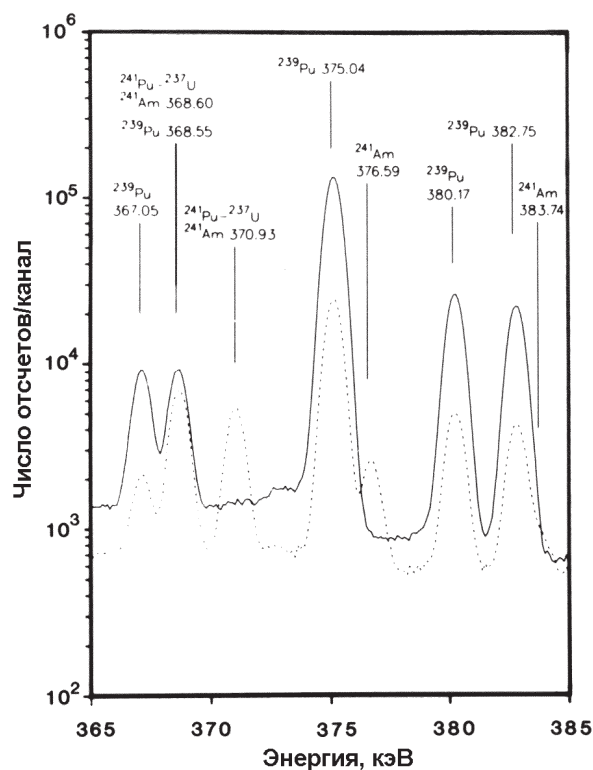


Рис. 8.12. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 375 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,0024 %; ^{239}Pu — 97,96 %; ^{240}Pu — 2,01 %; ^{241}Pu — 0,020 %; ^{242}Pu — 0,0030 %; ^{241}Am — 11 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu

В области 640 кэВ должен использоваться коаксиальный детектор большого объема (с относительной эффективностью 10 % или более). Аналитические схемы, которые также анализируют данные для областей энергии от 100 до 400 кэВ, должны использовать два детектора [20].

Если в образце присутствуют продукты деления, такие как ^{95}Zr - ^{95}Nb и ^{137}Cs , их гамма-излучение может усложнить анализ в области 640 кэВ. Концентрация продуктов деления, даже такая низкая, как 10 мкКи/г плутония, может сделать анализ в этой области невозможным.

Таблица 8.13 – Энергии пиков в области 640 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²⁴¹ Am	633,000	$1,260 \times 10^{-8}$	15,00	$1,5945 \times 10^3$
²³⁹ Pu	633,150	$2,530 \times 10^{-8}$	1,20	$5,8042 \times 10^1$
²³⁹ Pu	637,837	$2,560 \times 10^{-8}$	1,20	$5,8730 \times 10^1$
²³⁹ Pu	640,075	$8,200 \times 10^{-8}$	0,60	$1,8812 \times 10^2$
²⁴¹ Am	641,420	$7,100 \times 10^{-8}$	4,00	$8,9851 \times 10^3$
²⁴⁰ Pu	642,480	$1,245 \times 10^{-7}$	1,00	$1,0454 \times 10^3$
²³⁹ Pu	645,969	$1,489 \times 10^{-7}$	0,40	$3,4160 \times 10^2$
²³⁹ Pu	649,321	$7,120 \times 10^{-9}$	7,00	$1,6334 \times 10^1$
²³⁹ Pu	650,529	$2,700 \times 10^{-9}$	15,00	$6,1942 \times 10^0$
²³⁹ Pu	652,074	$6,550 \times 10^{-8}$	0,60	$1,5027 \times 10^2$
²⁴¹ Am	652,960	$3,770 \times 10^{-7}$	2,00	$4,7710 \times 10^4$
²³⁹ Pu	654,880	$2,250 \times 10^{-8}$	1,20	$5,1618 \times 10^1$
²³⁹ Pu	658,929	$9,690 \times 10^{-8}$	0,70	$2,2230 \times 10^2$
²⁴¹ Am	662,420	$3,640 \times 10^{-6}$	0,30	$4,6065 \times 10^5$
²³⁹ Pu	664,587	$1,657 \times 10^{-8}$	1,60	$3,8014 \times 10^1$
²³⁹ Pu	668,200	$3,930 \times 10^{-10}$	30,00	$9,0160 \times 10^{-1}$

8.4 ОСНОВЫ ИЗМЕРЕНИЙ

8.4.1 Измерение изотопных отношений

Площадь фотопика для одиночной гамма-линии может быть записана в виде

$$C(E_j^i) = \lambda^i N^i BR_j^i \varepsilon(E_j), \quad (8.1)$$

где $C(E_j^i)$ — площадь фотопика j -й гамма-линии с энергией E_j , испущенной i -м изотопом;

λ^i — постоянная распада i -го изотопа ($\lambda^i = \ln 2 / T_{1/2}^i$, где $T_{1/2}^i$ — период полураспада i -го изотопа;

N^i — число атомов i -го изотопа;

BR_j^i — выход гамма-квантов (число квантов/распад) j -й гамма-линии i -го изотопа;

$\varepsilon(E_j)$ — полная эффективность регистрации фотопика гамма-излучения с энергией E_j ; включает эффективность детектора, геометрические факторы, самопоглощение в образце и ослабление в материалах между образцом и детектором.

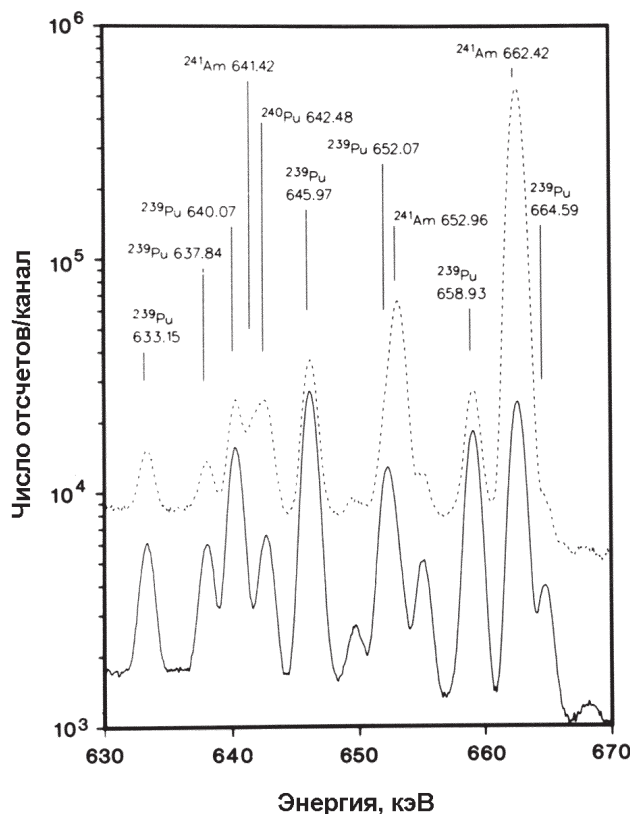


Рис. 8.13. Спектр гамма-излучения в области энергии 640 кэВ. Пунктирная линия: 530 г плутония в виде PuO_2 , измеренные с помощью коаксиального ОЧГ детектора (при энергии 1332 кэВ: эффективность — 10,2 %, ширина пика на полувысоте — 1,65 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,302 %; ^{239}Pu — 82,49 %; ^{240}Pu — 13,75 %; ^{241}Pu — 2,69 %; ^{242}Pu — 0,76 %; ^{241}Am — 11 800 мкг/г Pu . Сплошная линия: 500 г металлического плутония, измеренные с помощью коаксиального ОЧГ детектора (при энергии 1332 кэВ: эффективность — 11,7 %, ширина пика на полувысоте — 1,75 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,012 %; ^{239}Pu — 93,82 %; ^{240}Pu — 5,90 %; ^{241}Pu — 0,240 %; ^{242}Pu — 0,02 %; ^{241}Am — 630 мкг/г Pu

Площадь фотопика также может быть записана через массу изотопа в виде:

$$C(E_j^i) = \gamma_j^i M_i \epsilon(E_j), \quad (8.2)$$

где γ_j^i — интенсивность квантов j -й гамма-линии i -го изотопа, квант/с·г;
 M_i — масса i -го изотопа, г.

Эти два уравнения могут быть преобразованы таким образом, чтобы получить выражения для отношения масс и количеств атомов двух изотопов. Атомарное отношение дается выражением

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \times \frac{BR_m^k}{BR_j^i} \times \frac{RE(E_m)}{RE(E_j)}. \quad (8.3)$$

Аналогичное выражение для отношения масс составляет

$$\frac{M^i}{M^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{\gamma_m^k}{\gamma_j^i} \times \frac{RE(E_m)}{RE(E_j)}. \quad (8.4)$$

В уравнениях (8.3) и (8.4) площадь фотопика $C(E)$ измеряется, а период полураспада $T_{1/2}$, выход гамма-квантов BR и интенсивность квантов γ либо известны, либо могут быть рассчитаны из ядерных данных. Общая эффективность выражается через относительную эффективность RE . Геометрические факторы отбрасываются и отношение относительных эффективностей учитывает только самопоглощение в образце, ослабление в материалах между образцом и детектором и эффективность детектора. Использование отношения эффективностей избавляет от необходимости воспроизведения геометрии и делает метод изотопных отношений применимым к образцам произвольного размера, формы и состава.

График относительной эффективности должен быть построен при измерении спектра каждого образца. Уравнения (8.1) и (8.2) дают следующую пропорциональную зависимость для одиночной гамма-линии i -го изотопа:

$$\varepsilon(E_j) \propto RE(E_j) \propto \frac{C(E_j^i)}{BR_j^i} \propto \frac{C(E_j^i)}{\gamma_j^i}. \quad (8.5)$$

Поскольку в уравнениях (8.3) и (8.4) используется отношение эффективностей, важна только форма графика относительной эффективности. Поэтому может быть использовано любое из отношений, приведенных в формуле (8.5). Для построения кривой относительной эффективности используются площади пиков $C(E)$ сильных, свободных от интерференции гамма-линий одиночных изотопов. Для определения относительной эффективности при энергиях между точками измерения используются методики подгонки кривых [17] или интерполяции. Для лучшего построения кривой относительной эффективности могут быть использованы точки более чем одного изотопа путем нормировки одного изотопа на другой [17,18]. Наиболее часто для построения кривой относительной эффективности в диапазоне энергии от 130 до 450 кэВ используются гамма-линии изотопов ^{239}Pu и ^{241}Pu - ^{237}U . На рис. 8.14 показаны два примера измерения кривой относительной эффективности.

При измерении изотопных отношений выгодно использовать близко расположенные гамма-линии потому, что отношения соответствующих относительных эффективностей будут около единицы. Однако в области от 120 до 200 кэВ поправки к относительной эффективности необходимо применять даже для близко расположенных линий. Типичная поправка для отношения линий 152,7 кэВ/148,6 кэВ ($^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$) может составлять 10 %.

После того как измерены соответствующие изотопные отношения, обычно желательно вычислить абсолютные значения изотопных содержаний. Сумма всех изотопных содержаний должна равняться единице. Это подразумевает, что, если пренебречь ^{242}Pu , то:

$$1 = f_{238} + f_{239} + f_{240} + f_{241}, \quad (8.6)$$

где f_i — изотопное содержание i -го изотопа.

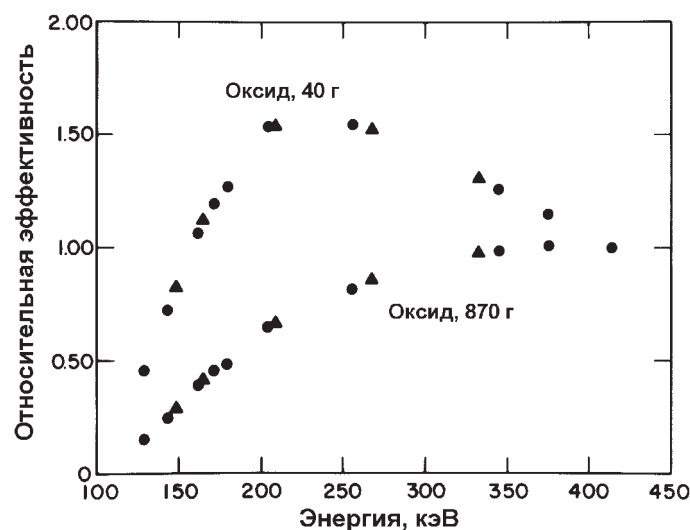


Рис. 8.14. Типичные кривые относительной эффективности для ОЧГ детектора площадью 200 мм^2 , толщиной 10 мм . Пикам ^{239}Pu соответствуют сплошные кружки, пикам ^{241}Pu – ^{237}U — сплошные треугольники. Обе кривые нормированы на $1,00$ при энергии 414 кэВ . Кривая для образца PuO_2 массой 870 г демонстрирует эффект сильного ослабления

Деление уравнения (8.6) на f_{241} дает

$$\frac{1}{f_{241}} = \frac{f_{238}}{f_{241}} + \frac{f_{239}}{f_{241}} + \frac{f_{240}}{f_{241}} + 1. \quad (8.7)$$

Формула (8.7) выражает содержание изотопа ^{241}Pu (f_{241}) через три измеряемые изотопные отношения f_{238}/f_{241} , f_{239}/f_{241} и f_{240}/f_{241} . Содержание остальных изотопов получается из формулы

$$f_i = f_{241} \times \left[\frac{f_i}{f_{241}} \right], \quad (8.8)$$

где $i = 238, 239, 240$.

Вклад ^{242}Pu в этот анализ рассматривается в разделе 8.5.3. Абсолютное содержание ^{241}Am может быть рассчитано по формуле (8.9), если может быть измерено отношение ^{241}Am к любому из изотопов плутония (обычно ^{239}Pu):

$$f_{\text{Am}} = f_i \times \frac{f_{\text{Am}}}{f_i}. \quad (8.9)$$

Заметим, что эта формула дает весовое или атомарное содержание ^{241}Am в образце по отношению к всему плутонию, а не ко всему образцу.

Метод изотопных отношений может быть применен к образцам произвольного размера, формы и состава. Метод работает, пока изотопный состав плутония и отношение Am/Pu однородны по всему образцу. Если выполняются указанные условия, плутоний по образцу может быть распределен неравномерно. В Маунд-

ской лаборатории метод был усовершенствован для измерения отходов электроочистки солей, которые имели неоднородное отношение Am/Pu [21].

8.4.2 Измерение абсолютной массы изотопа

Хотя метод отношений, рассмотренный в разделе 8.4.1, может применяться для любых образцов, для воспроизводимой геометрии образцов может быть использован более специализированный метод измерения. Абсолютное измерение массы изотопа было использовано Ганнинком и сотрудниками [4, 12, 16] для растворов. В этом методе используется уравнение

$$C(E_j^i) = K_j^i m^i, \quad (8.10)$$

где $C(E_j^i)$ — площадь фотопика j -й гамма-линии с энергией E_j , испущенной i -м изотопом;

K_j^i — градуировочная постоянная для j -й гамма-линии i -го изотопа;

m^i — масса i -го изотопа в образце.

Для определения градуировочных постоянных используются стандартные образцы, которые имеют ту же геометрию, что и исследуемые образцы. Для учета разницы, которая может быть между стандартными и исследуемыми образцами, могут потребоваться поправки на самопоглощение. Для сведения к минимуму (но не исключению) поправок на самопоглощение размеры и форма образцов тщательно подбираются. Когда известна масса каждого изотопа в образце, изотопные содержания могут быть получены из выражения

$$f_i = \frac{m^i}{\sum_{i=238}^{241} m^i}. \quad (8.11)$$

8.4.3 Изотопная корреляция ^{242}Pu

Изотоп плутония-242 не может быть измерен непосредственно ввиду его низкой активности, малого количества и слабости гамма-линий. Вместо этого для предсказания наличия ^{242}Pu по известным содержаниям других изотопов используется методика изотопной корреляции [8]. Хорошо известно, что между содержаниями изотопов плутония существуют корреляции вследствие природы реакций захвата нейтронов, которые приводят к образованию изотопов плутония. Очень трудно, если не невозможно, найти однозначную корреляцию, которая была бы оптимальной для любого материала, поскольку она зависит от типа реактора и детальной последовательности облучения. Ганнинк [8] предположил, что формула корреляции

$$f_{242} = \frac{K f_{240} f_{241}}{f_{239}^2} \quad (8.12)$$

линейна и относительно независима от типа реактора. Когда изотопное содержание дается в весовых процентах, постоянная K равна 52. Одно из замечаний к этой формуле состоит в том, что в ней имеется зависимость от содержания ^{241}Pu , которое уменьшается приблизительно на 5 % в год. Лучшее всего формула работает, если в содержание ^{241}Pu может быть введена поправка на время после извлечения

топлива из реактора. Если время после извлечения неизвестно, перед вычислением зависимости может быть сделана частичная поправка путем добавления к ^{241}Pu некоторого количества ^{241}Am . Общее количество дает содержание ^{241}Pu на время последнего химического разделения.

В работах [8, 22] была предложена зависимость, не включающая ^{241}Pu :

$$f_{242} = \frac{K f_{240}^2}{f_{239}^3}. \quad (8.13)$$

Эта формула корреляции линейна для заданного типа реактора, но коэффициент K зависит от типа реактора.

После того, как изотопное содержание ^{242}Pu будет определено с использованием подходящей формулы, известных величин или средних величин, остальные изотопные концентрации должны быть откорректированы, используя зависимость

$$f_i^c = f_i(1 - f_{242}), \quad (8.14)$$

где f_i^c — нормированное изотопное содержание, включающее ^{242}Pu . Эта формула перенормирует содержания так, что их сумма для всех изотопов плутония равна единице.

8.5 ПОЛУЧЕНИЕ ДАННЫХ

8.5.1 Электроника

Детальное обсуждение оборудования, используемого для спектрометрии гамма-излучения, приведено в главе 4. Системы изотопных измерений плутония используют общепринятые высококачественные модули ядерного приборостроения в стандарте NIM (Nuclear Instrumentation Modules). Для методов, использующих поканальное суммирование, или методов функции соответствия для оценки площадей пиков требуются цифровое усиление и стабилизация нулевой точки. Для большинства задач используется многоканальный анализатор импульсов с памятью на 4096 каналов. Системам, в которых используются два детектора, требуются два аналого-цифровых преобразователя и память на 8192 каналов.

Анализ больших объемов информации требует, чтобы многоканальный анализатор импульсов был сопряжен с компьютером. Подходящим является 16-рядный миникомпьютер с памятью 32 килобайт. Для хранения программ и файлов данных необходим магнитный диск. После определения площадей пиков простейший анализ может быть выполнен с помощью программируемого калькулятора.

8.5.2 Детекторы

Все аналитические методы выигрывают от использования детектора, который имеет наилучшие разрешение и форму пика. Эти параметры особенно важны, когда выбирается детектор для системы изотопного анализа плутония. В большинстве случаев используется планарный детектор из особо чистого германия (ОЧГ). Детектор с площадью торцевой поверхности от 200 мм² и толщиной от 10 до 13 мм дает хорошее соотношение между разрешением и эффективностью. До-

ступны детекторы с разрешением (полная ширина пика на полувысоте) лучше, чем 500 эВ при энергии 122 кэВ. Хорошую форму пика помогает обеспечить параметр формы пика (отношение ширины пика на высоте одна пятидесятая амплитуды к ширине на полувысоте), равный или более 2,55 при 122 кэВ. Лучшие детекторы имеют величину этого параметра 2,5 и менее. Низкая эффективность планарных детекторов ограничивает их использование областями энергии ниже 400 кэВ. Высококачественные коаксиальные детекторы могут быть использованы в области энергии от 100 до 400 кэВ, но их низкое разрешение осложняет анализ частично разрешенных пиков с использованием метода поканального суммирования.

Для измерений в области энергии 600 кэВ требуется коаксиальный детектор с относительной эффективностью 10 % и лучше. И снова важно разрешение. Отличное разрешение может избавить от необходимости подгонки пика во всей области энергии 600 кэВ [17]. Разрешение 1,7 кэВ или лучше при энергии 1332 кэВ является вполне доступным.

8.5.3 Фильтры

Для снижения фоновой скорости счета от линии 59,54 кэВ изотопа ^{241}Am , которая преобладает в неотфильтрованном спектре любого старого образца, почти во всех случаях необходимо использовать фильтры. Если детектор не имеет фильтра, пик америция суммируется с рентгеновским и гамма-излучением в области энергии 100 кэВ, что приводит к интерференции в области от 150 до 165 кэВ и требует поправки на мертвое время. В типичных фильтрах используют кадмий толщиной от 0,15 до 0,30 см и медь толщиной 0,025 см для селективного поглощения гамма-излучения с энергией 59,54 кэВ. Разумное эмпирическое правило состоит в том, что необходим такой фильтр, который уменьшает амплитуду пика 60 кэВ до уровня ниже амплитуды пиков в области энергии 100 кэВ. Толстый фильтр приведет к нежелательному ослаблению интенсивности важных пиков плутония в области энергии от 120 до 200 кэВ (см. раздел 8.3.3). Дополнительным критерием хорошего фильтра являются плоская форма области спектра между 153 и 160 кэВ и отсутствие суммарных пиков [20]. Более полное обсуждение вопросов разработки и применения фильтров приведено в главе 2.

В меньшей степени фильтрование необходимо для свежевыделенных образцов (отсутствует ^{241}Am или ^{237}U) при использовании области энергии 100 или 40 кэВ. Если детектор экранирован свинцом, экран часто покрывается слоем кадмия толщиной приблизительно 0,25 см для подавления рентгеновского излучения свинца с энергией от 72 до 87 кэВ, которое в противном случае появится в спектре.

8.5.4 Скорость счета и геометрия образец/детектор

Для достижения желаемой скорости счета изменяют расстояние от образца до детектора или применяют коллимирование детектора. Для увеличения разрешения скорость счета обычно поддерживают менее 20000 имп./с. Достижения в области спектрометрии [23, 24] могут вскоре позволить использовать более высокую скорость счета. При измерениях изотопного состава плутония была использована такая высокая скорость счета, как 60000 имп./с [25].

При измерении растворов используют фиксированную геометрию образца и одноразовую ампулу или многоразовую кювету. Толщина образца выбирается исходя из соображений оптимизации измерений с учетом концентрации материала и энергии излучения.

Если небольшой образец размещен слишком близко к детектору, то из-за большого телесного угла, под которым детектор наблюдает образец, гамма-излучение, возникающее при каскадных процессах, может образовывать в спектре суммарные пики [19]. В качестве примера этого эффекта можно привести сложение линий 129 и 203 кэВ изотопа ^{239}Pu ; этот суммарный пик может интерферировать с комплексом 332 кэВ от ^{241}Pu - ^{237}U . В области 332 кэВ был обнаружен эффект около 1,6 % при использовании планарного детектора и расстоянии от 3 до 4 см между образцом и детектором. Крупные образцы обычно помещают на большем расстоянии от детектора, что делает этот эффект менее значимым.

Большие образцы плутония имеют высокий выход нейтронов, так образец плутония массой 1 кг излучает $(1-2) \times 10^5$ нейтр./с. Известно, что высокая доза нейтронного излучения вызывает повреждение германиевых детекторов и снижение разрешения детекторов. Этот эффект трудно минимизировать, так как при увеличении расстояния между образцом и детектором должно быть увеличено время измерения и нейтронная доза остается практически постоянной.

8.5.5 Время измерения

Время измерения выбирается в результате изучения спектральной области, исходя из требуемой точности. В областях 40 и 100 кэВ обычно удовлетворяются временем измерения от 1000 с до 1 ч. Когда регистрируется гамма-излучение с энергией свыше 120 кэВ, для анализа массивных образцов часто требуется время измерения от 1 до 2 ч и более, хотя в некоторых случаях образцы массой меньше 10 г могут быть измерены за время менее 30 мин с погрешностью менее 1 %. Небольшие образцы (массой от 1 до 2 г и менее) могут потребовать измерения в течение всего дня. Для больших образцов простая проверка отношения $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ может составлять всего несколько минут. Конкретные примеры рассматриваются в разделе 8.7.

8.6 СПЕКТРАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ

В этом разделе обсуждаются спектральные аналитические методики, используемые для измерения изотопного состава плутония. Общее и более полное обсуждение методов, используемых для определения площади фотопиков, приведено в разделе 5.3.

8.6.1 Суммирование по рассматриваемой области

При измерении изотопного состава плутония для определения площади фотопиков часто используются методики суммирования по рассматриваемой области спектра или поканального суммирования ввиду простоты их реализации, понимания и использования. Применяются как линейная, так и ступенчатая функции сглаживания фона. Методика суммирования по рассматриваемой области спектра хорошо работает при определении площадей одиночных изолированных

пиков гамма-излучения, но менее удовлетворительна при анализе накладывающихся пиков, таких как пики спектра плутония, находящиеся в областях 125, 160, 332 и 375 кэВ. Когда методика суммирования по рассматриваемой области спектра используется для получения общей площади мультиплета, индивидуальные компоненты могут быть выделены методом интегрального вычитания, используя соседние пики и известную разницу относительных эффективностей. Такой анализ обычно приводит к потере точности.

В системы, которые используют методику суммирования по рассматриваемой области, часто включают электронные стабилизаторы спектра. Окна для определения фона должны быть выбраны так, чтобы не захватить ни одного из многочисленных слабых пиков плутония или америция-241. Это особенно важно, когда измеряется материал с высоким содержанием америция.

8.6.2 Подгонка пика

Детальное описание методики подгонки пиков приведено в разделе 5.3. Методика, разработанная Ганнинком с сотрудниками в Ливерморской лаборатории [26], широко используется как при измерении изотопов плутония, так и при обычной спектрометрии гамма-излучения. Специально для анализа множественных пиков в спектре плутония Ганнинк разработал программу GRPANL [27, 28]; им также сформулированы основы определения площадей пиков для программы GRPAUT [17], используемой в Маундской лаборатории.

Обе программы, GRPANL и GRPAUT, для описания фотопика используют функцию ступенчатого выравнивания фона и функцию Гаусса с экспоненциальным хвостом. Уравнение для функции фотопика выглядит следующим образом:

$$Y_i = Y_0 \left\{ \exp[\alpha(X_i - X_0)^2] + T(X_i) \right\}, \quad (8.15)$$

где Y — чистый счет в канале X_i для одиночного пика;

Y_0 — амплитуда пика;

$\alpha = -4 \ln 2 / (\text{FWHM})^2 = 1/2 \sigma^2$,

σ — стандартное отклонение для функции Гаусса;

X_0 — номер канала, соответствующего центру пика (центроида);

$T(X_i)$ — функция хвоста в канале X_i .

Функция хвоста дается выражением

$$T(X_i) = \left\{ A \exp[B(X_i - X_0)] + C \exp[\Delta(X_i - X_0)] T(X_i) \right\} \times \\ \times \left\{ 1 - \exp[0,4\alpha(X_i - X_0)^2] \right\} \delta, \quad (8.16)$$

где A и C — амплитуды короткой и длинной составляющих хвоста, соответственно;

B и D — наклоны короткой и длинной составляющих хвоста, соответственно;

$\delta = 1$ для $X_i < X_0$,

$\delta = 0$ для $X_i \geq X_0$.

Вторая составляющая часть функции хвоста плавно снижается до нуля при X_0 , как показано на рис. 8.15. Для многих задач длинным хвостом можно пренебречь ($C = 0$); но для множественных мультиплетов с мощными пиками его необходимо учитывать.

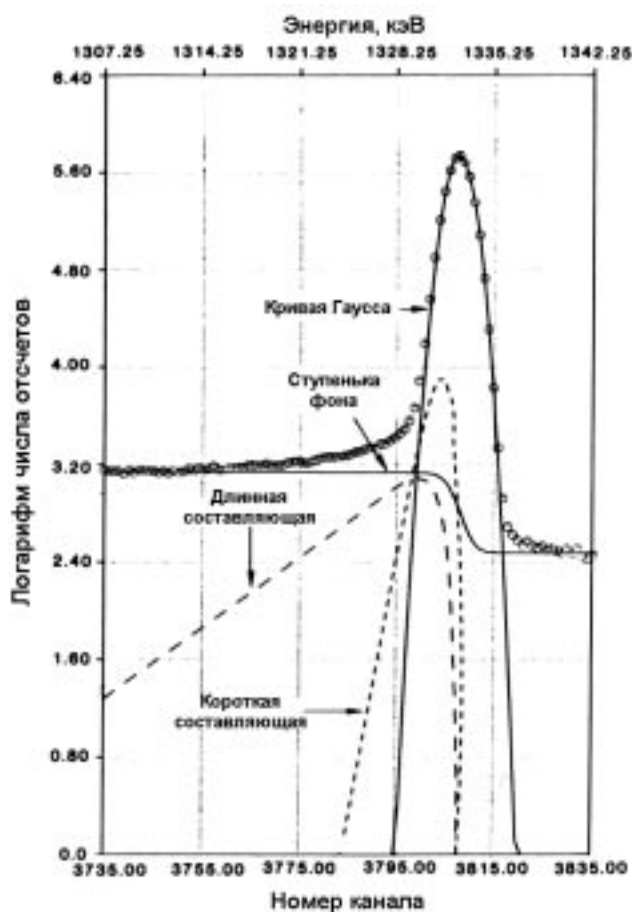


Рис. 8.15. Фотопик гамма-излучения, зарегистрированный с помощью детектора $Ge(Li)$, показывает составные части формы спектрального пика[28]: кривую Гаусса, короткую составляющую хвоста, длинную составляющую хвоста и пьедестал фона

Когда все семь параметров в уравнениях (8.15) и (8.16) рассматриваются как независимые, способ подгонки пиков занимает много времени, хотя современные компьютеры часто позволяют проводить достаточно быстрый анализ. К счастью, многие из параметров могут быть определены заранее (см. раздел 5.3). Положение пика X_0 и параметр ширины α могут быть определены с использованием двух сильных изолированных реперных пиков, таких как 148 и 208 кэВ от изотопов ^{241}Pu и ^{237}U . Поскольку отношение выходов гамма-излучения для них хорошо известно, могут быть установлены относительные интенсивности пиков для данного изотопа.

Опыт показывает [26], что наклон B короткой составляющей хвоста является постоянным для данной детекторной системы и может быть измерен на пике высокой энергии, где имеется большой хвост. Амплитуда A короткой составляющей хвоста определяется выражением

$$\ln A = k_1 + k_2 E. \quad (8.17)$$

После того как наклон B зафиксирован, амплитуда A может быть определена по двум пикам, которые использовались для определения центров и параметров ширины пиков.

Если длинная составляющая хвоста нулевая, единственным независимым параметром является амплитуда пика Y_0 , и тогда процедура подгонки пиков достаточно быстрая. В программе GRPANL остальные параметры тоже могут быть независимыми, но это увеличивает время анализа. Первой определяется ступенчатая функция фона и затем вычитается из полученного спектра. Программа GRPANL использует итерационный нелинейный метод наименьших квадратов [26, 27] для подгонки площади остаточного пика. Поскольку этот метод последовательный, время анализа зависит от числа пиков, числа независимых параметров и от типа используемого компьютера. Обычно анализ плутониевого спектра, содержащего более 50 пиков в 15 группах в области энергии от 120 до 450 кэВ занимает около 10 мин на компьютере PDP-11/23 фирмы "Диджитал Эквипмент" (Digital Equipment Corporation) или 3-4 мин на PDP-11/73. Время анализа обычно меньше времени набора данных.

Программа GRPANL может подгонять пики рентгеновского излучения, имеющие форму линий (функция Лоренца), отличающуюся от линий гамма-излучения [29]. Эта способность необходима при подгонке пиков в области энергии 100 кэВ.

8.6.3 Анализ по функции соответствия

Анализ по функции соответствия использует способы, рассмотренные в разделе 8.6.2, для расчета формы отклика детектора на определенный изотоп в определенной области энергии. Метод подгонки пиков предполагает для каждого пика в исследуемой области отдельное слагаемое в уравнении (8.15) и позволяет параметрам формы быть независимыми — одному или всем. Анализ по функции соответствия использует те же уравнения, но фиксирует все параметры формы и относительные амплитуды Y_0 всех пиков этих изотопов. Единственными независимыми параметрами в анализе по функции соответствия являются амплитуды изотопов, имеющих пики в анализируемой области энергии. Методика подгонки по функции соответствия сводится к линейному анализу методом наименьших квадратов, что позволяет быстро получить решение.

Характеристики формы пика детектора могут быть известны или определены из спектра исследуемого образца. Если параметры определяются непосредственно из каждого спектра, автоматически учитываются изменения, обусловленные различиями скоростей счета или от замены приборов. Методика, используемая для определения положения пика и параметров формы, рассматривается в разделах 5.3 и 8.6.2. Задав параметры формы и положение для всех пиков гамма-излучения, будет легче вычислить соответствующее распределение каждого изотопа в исследуемой области энергии. Анализ по функции соответствия используется для подгонки комплексов в области 100 кэВ [4, 12, 16], а также многих областей между 120 и 370 кэВ [30, 31]. Математический аппарат из работы [29] может быть использован для расчета формы линий рентгеновского излучения при анализе области энергии 100 кэВ.

8.7 ПРИБОРНОЕ ОСНАЩЕНИЕ

В этом разделе рассматриваются характеристики и показатели четырех систем измерений изотопного состава плутония, которые используются в США.

8.7.1 Компания Рокуэлл-Хэнфорд

Компания "Рокуэлл-Хэнфорд" (Rockwell-Hanford Company) использует систему измерения изотопного состава плутония совместно с калориметром для определения содержания плутония в твердых образцах оксида плутония, металла, смесей оксидов, загрязненных оксидов и скрапа (отбракованного материала) [32]. Описываемая здесь система использовалась до 1984 года; сейчас пользуются программой GRPAUT, разработанной Маундской лабораторией. Система, показанная на рис. 8.16, использует четыре планарных ОЧГ детектора площадью 300 мм^2 и толщиной 7 мм. Расстояние от образца до детектора подобрано так, что-



Рис. 8.16. Система для измерения плутония, действующая в Рокуэлл-Хэнфорде. (Фотография любезно предоставлена Гамильтоном, Рокуэлл-Хэнфорд)

бы давать скорость счета до 3000 имп./с; образец измеряют в течение 10000 с, при этом вращение образца не используется. Спектры, набранные многоканальным анализатором импульсов, анализируются на компьютере. Выбранные пики в области энергии от 120 до 400 кэВ анализируются с использованием метода изотопных отношений, описанного в работе [3]. В выражении для изотопного отношения используются только основные соотношения выходов и времен полураспада. Поправки на смещение не применяются и ^{242}Pu не учитывается.

В табл. 8.14 показана часть большого объема рабочих результатов, полученных при измерении 14 стандартных образцов, которые перекрывают область содержаний ^{240}Pu от 2 до 24 %. Измеренные содержания были использованы в табл. 8.14 для расчета мощности тепловыделения каждого образца. Определение удельной мощности и ее важность при калориметрии приведены в главе 21. Сходимость измерений удельной мощности составляет от 0,5 до 1 %, а величина смещения — того же порядка. Перед измерением удельной мощности иногда определяется изотопный состав плутония с помощью гамма-спектрометрии. Систематические отклонения результатов измерения содержания каждого изотопа частично компенсируются с помощью нормирования суммы содержаний всех изотопов на единицу.

Таблица 8.14 – Результаты, полученные системой измерения изотопов компании "Рокуэлл-Хэнфорд" при определении удельной мощности

Изотоп	Номер и состав образца						
	1 (оксид)	2 (металл)	3 (оксид)	4 (оксид)	5 (оксид)	6 (металл)	7 (металл)
Содержание изотопа в образце, вес. %							
^{238}Pu	0,0003	0,0008	0,028	0,14	0,064	0,069	0,089
^{239}Pu	97,56	93,73	91,64	87,87	86,50	80,77	73,81
^{240}Pu	2,40	6,03	7,65	10,23	11,78	17,10	22,83
^{241}Pu	0,038	0,21	0,569	1,49	1,42	1,66	2,26
^{241}Am	0,059	0,138	0,447	1,26	0,088	1,12	2,13
Число измерений							
	102	103	102	109	98	103	101
Погрешность определения удельной мощности, рассчитанная по воспроизводимости измерений, относительное стандартное отклонение, %							
	1,02 %	0,72 %	0,65 %	0,55 %	0,84 %	0,62 %	0,53 %
Смещение: Удельная мощность по неразрушающему анализу, деленная на удельную мощность из результатов масс-спектрометрии							
	0,9914	0,9921	1,003	1,008	1,016	1,0002	1,028

8.7.2 Лос-Аламосская национальная лаборатория

Плутониевая технологическая установка в Лос-Аламосе имеет систему измерений изотопного состава, которая также использует методику изотопных отношений [3, 18, 33]. Для получения спектров используется планарный детектор из особо чистого германия площадью 200 мм² и толщиной 10 мм. Расстояние от образца до детектора подобрано так, чтобы давать скорость счета более 20000 имп./с. Для использования методики суммирования в рассматриваемой области спектра применена цифровая стабилизация усиления. Для определения изотопных отношений анализируется область спектра от 120 до 400 кэВ. Все изотопные отношения измеряются относительно ²⁴¹Pu. Для старых и свежевыделенных материалов используются разные соотношения гамма-линий, приведенные в табл. 8.15. Для оценки ²⁴²Pu используется уравнение (8.12). Для материалов в широком диапазоне предшествующей реакторной истории облучения используется коэффициент поправки 90. Требуемые соотношения относительных эффективностей определяются по группе сильных чистых линий изотопов ²³⁹Pu и ²⁴¹Pu-²³⁷U, нормированных друг на друга. Для получения необходимых соотношений используются простые линейная и квадратичная интерполяция и экстраполяция. Анализ в потоке использовался для материалов с содержанием ²⁴⁰Pu от 2 до 18 % и ²⁴¹Am до 2 %. Составные части системы показаны на рис. 8.17. Два детектора могут получать данные от двух образцов одновременно. Существующая аналитическая программа может работать с четырьмя детекторами.

Таблица 8.15 – Отношения, используемые в системе измерения изотопного состава плутония в Лос-Аламосе

Изотопные отношения	Энергия гамма-излучения образцов, кэВ	
	Старые	Свежевыделенные
238/241	152,7/148,6	152,7/148,6
239/241*	345,0/332,4	129,3/148,6
	203,5/208,0	
240/241	160,3/164,6	160,3/148,6
Am/239*	125,3/129,3	125,3/129,3**
	169,6/171,3	

* Используется среднее взвешенное двух отношений

** Изотопа ²⁴¹Am обычно слишком мало для измерений

Поскольку методика суммирования по рассматриваемой области спектра не может разделить наложившиеся пики, для вычитания интерференции используют близко расположенные чистые пики. В табл. 8.16 приведены пики гамма-излучения, используемые для такого вычитания. Соотношение ²⁴¹Pu/²⁴¹Am определяется в области энергии 332 кэВ и используется для вычитания вклада ²⁴¹Am из наложившихся пиков с энергией 164,6, 208,0, 267,5 и 332,4 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U.



Рис. 8.17. Многодетекторная система для измерения изотопов плутония в Лос-Аламосе

Таблица 8.16 – Пики гамма-излучения, используемые для вычитания интерференции

Область энергии, кэВ	Интерферирующий изотоп	Пик, используемый для вычитания, кэВ
125	^{239}Pu	129,3
160	^{239}Pu	161,5
160	^{241}Pu	164,6 *
332	^{239}Pu	345,0

* Только для старых материалов

Основные постоянные для каждого уравнения изотопного соотношения легко подбираются с помощью измерения стандартных образцов материалов. Этот способ позволяет компенсировать возможные отклонения измеряемых площадей пиков, которые можно было ожидать при использовании метода поканального суммирования в областях энергии 125, 160 и 332 кэВ, где имеются тесно расположенные интерферирующие пики. Стандартные образцы включают широкий ряд образцов из оксида и металлического плутония с массой в диапазоне от менее чем 0,5 г до приблизительно 1 кг.

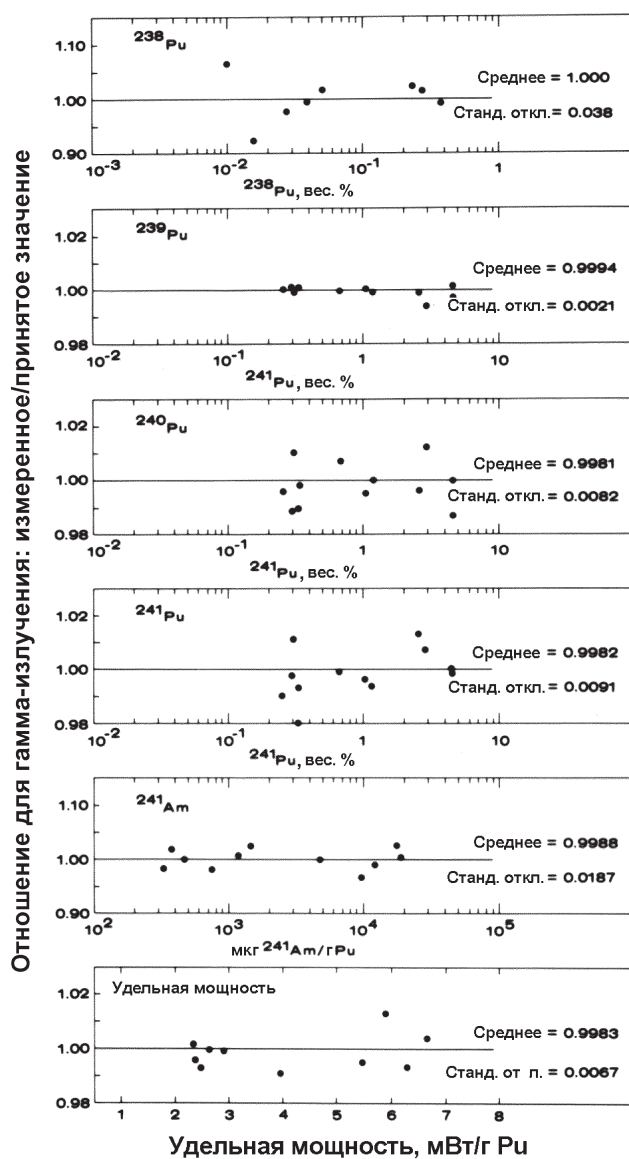


Рис. 8.18. Погрешность Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония для широкой области типов материалов и изотопного состава

На рис. 8.18 показана средняя погрешность Лос-Аламосской измерительной системы. Изотопы ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Pu измеряются с погрешностью лучше чем 0,2 %, а изотопы ^{238}Pu и ^{241}Am — несколько процентов. Эти значения ограничены точностью стандартных образцов. Сходимость измерений показана на рис. 8.19 в виде функции времени измерения. На рис. 8.20 приведена сходимость измерений удельной мощности, которая используется для определения общей массы плутония методом калориметрии. Удельная мощность может быть определена с погрешностью лучше чем 1 % при 30-минутном измерении и около 0,5 % при 2-часовом измерении.

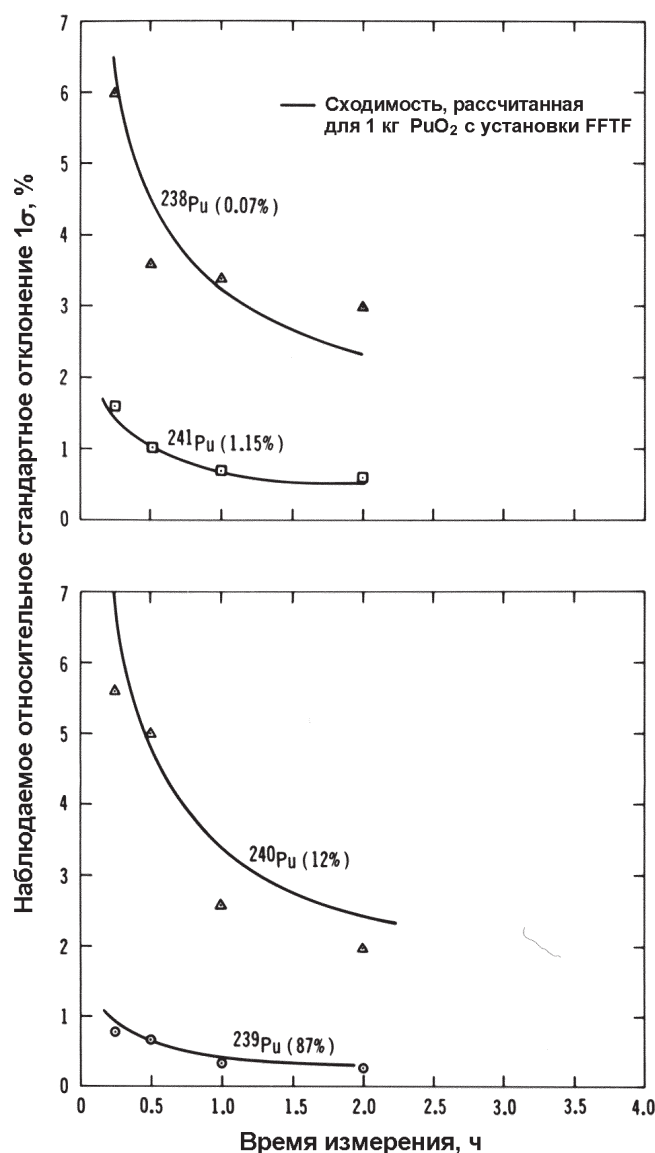


Рис. 8.19. Сходимость Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония, определенная по 30 измерениям образца PuO_2 массой 1 кг (^{240}Pu — 12 %). Сплошная линия — расчетная погрешность по статистике отсчетов

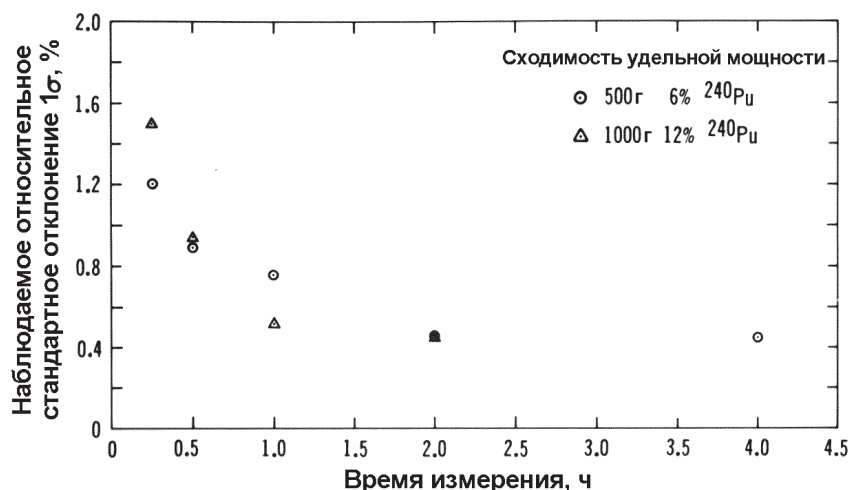


Рис. 8.20. Сходимость Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония при определении удельной мощности, используемой для интерпретации калориметрических измерений. Сходимость рассчитана по 30 измерениям. Круги относятся к образцу металлического плутония массой 500 г (^{240}Pu — 6 %); треугольники относятся к образцу PuO_2 массой 1 кг (^{240}Pu — 12 %)

8.7.3 Установка Маундской лаборатории

На установке Маундской лаборатории исследователи выполняют измерения изотопного состава плутония для калориметрических измерений, выполняемых в то же время. Используются программы подгонки пиков GRPANL и GRPAUT, описанные в разделе 8.6.2. Длинный хвост не используется. Наклон короткого хвоста В измеряется при начальной градуировке детектора. Параметры амплитуды пиков Y_0 и ширины α являются независимыми. В некоторых случаях независимым параметром является амплитуда короткого хвоста. Проводится подгонка более 50 пиков в области энергии от 120 до 450 кэВ; кроме того, анализируется область 640 кэВ. В табл. 8.17 приведены соотношения, используемые программой GRPAUT. График относительной эффективности определяется по пикам ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{237}U и ^{241}Am . Для подгонки измеренных точек к сплошной кривой используется взвешенный метод наименьших квадратов (см. уравнение (8.18)). Для оценки содержания ^{242}Pu используется уравнение (8.13):

$$\ln \epsilon_i = A_0 + \sum_{j=1}^2 A_j / E_i^j + \sum_{j=1}^3 A_{j+2} (\ln E_i)^j + A_6 \delta_6 + A_7 \delta_7, \quad (8.18)$$

где ϵ_i — относительная эффективность;

E_i — энергия гамма-излучения;

A_6, A_7 — константы нормировки пиков ^{241}Pu - ^{237}U и ^{241}Am на ^{239}Pu ;

$\delta_6, \delta_7 = 1$ для ^{241}Pu и ^{241}Am , $= 0$ для других изотопов.

Таблица 8.17 – Отношения пиков гамма-излучения, рассчитываемые программой GRPAUT

Отношение	Энергия, кэВ
241/239	208/203 *
241/239	148/144
241/239	165/161
241/239	148/129 *
238/239	153/144
238/241	153/148 *
240/239	160/161
240/241	160/165
240/241	160/148 *
Am/239	125/129
Am/239	335/345 *
Am/239	369/375 *
Am/239	662/646
Am/239	772/718

* Отношение используется для расчета содержания изотопов. В соответствующих случаях применяются взвешенные средние.

Программа GRPAUT используется в нескольких случаях. В работе [20] описан двухдетекторный метод, в котором используется планарный детектор в области энергии гамма-излучения от 120 до 300 кэВ и коаксиальный детектор в области энергии от 300 до 700 кэВ. Коаксиальный детектор применяется для измерения гамма-пиков 642,48 кэВ от ^{240}Pu и 662,42 кэВ от ^{241}Am . Детектор имеет тяжелый фильтр для поглощения гамма-излучения с энергией ниже 100 кэВ. При времени измерения 50 000 с сходимость составляет ~2 % как для отношения 160/148 $^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$, так и для отношения 642/646 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Для больших образцов отношение 662/646 $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ значительно более точное, чем отношение 125/129 для этих нуклидов.

На рис. 8.21 показана созданная в Маундской лаборатории система для одно-временного калориметрического и гамма-спектрометрического анализа плутония [34, 35]. Эта система снижает радиационное облучение оператора при загрузке образца за счет уменьшения ручных операций, а также снижает погрешность записи данных измерений. В табл. 8.18 приведены результаты измерений, полученные с помощью передвижной аналитической системы на трех ядерных установках. Измеряемые образцы содержали от нескольких сотен граммов до 2 кг оксида или металла плутония. Большинство образцов имели номинальное содержание ^{240}Pu около 6 %. Время измерения обычно составляло от 10 000 до 50 000 с. Общая масса плутония измерялась с погрешностью менее 1 % при сходимости от 1 до 3 %.



Рис. 8.21. Передвижной калориметр с возможностью одновременного проведения калориметрии/гамма спектрометрии. (Фотография любезно предоставлена Флейшнером, Маундская лаборатория)

Таблица 8.18 – Одновременный анализ с помощью передвижной установки из калориметра и гамма-спектрометрической системы [35]

Площадка	Номер образца	Среднее отношение измеренного количества общего плутония к принятому	Сходимость отношения, %
1	18	0,997	1,7
2	20	1,007	0,7
3	13	1,00	3,0

8.7.4 Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса

Анализ методом функции соответствия часто использует Ганнинк с сотрудниками в Ливерморской национальной лаборатории им. Лоуренса. В начале 1970-х годов они установили аппаратуру с использованием этого метода на заводе в Саванна-Ривер для измерений растворов низкой концентрации плутония низкого выгорания. В аппаратуре для измерения жидких образцов объемом 10 мл используется планарный германиевый детектор с высоким разрешением. Для образцов требуется только небольшая поправка на ослабление из-за низкой концентрации плутония и небольшой толщины (1 см). Поскольку америций был удален из раствора незадолго перед измерением, было возможно проводить анализ в области энергии 40 кэВ. Система анализировала как область энергии 40 кэВ, так и 100 кэВ; эти области дают более высокую точность измерений, чем достигается при использовании областей энергии выше 120 кэВ. При времени измерения только 10 мин точность измерения не более чем в 2 раза превышает достигаемую с помощью масс-спектрометра. В табл. 8.19 приведены некоторые результаты, полученные с помощью этой системы.

Таблица 8.19 – Характеристики системы для анализа изотопного состава плутония на заводе в Саванна-Ривер (анализ методом функции соответствия) [4]

Изотоп Pu	Содержание, %	Среднее смещение, %	Сходимость, %
1. Свежевыделенный раствор, время измерения 10 мин, концентрация плутония 3 г/л			
238	0,008	5,6	4,7
239	93,46	0,048	0,049
240	5,88	0,75	0,72
241	0,65	0,96	1,9
2. Старый раствор, время измерения 60 мин, концентрация плутония 4 г/л			
238	0,018	7,6	5,7
239	90,92	0,14	0,09
240	8,40	1,6	0,94
241	0,661	0,64	0,61
Am	- - -	0,08	0,26
Общий Pu	5,4 г/л	0,46	0,35

Ганнинк разработал аналогичную аппаратуру для измерения растворов ядерного топлива высокого выгорания (около 20 % ^{240}Pu) большой концентрации (около 250 г Pu/л) на заводе по переработке ядерного топлива [12]. Аппаратура установлена в Японии на заводе по переработке топлива в Токай-Мура. Когда измеряется свежевыделенный раствор, анализ проводится в области энергии 40 кэВ. Кроме того, для измерения ^{241}Pu используется пик гамма-излучения 148 кэВ и пик 94 кэВ рентгеновской $K_{\alpha 2}$ -линии урана, которая имеет вклад от всех изотопов плутония. Для измерения ^{239}Pu используется пик гамма-излучения

129 кэВ. Площади пиков определяются с помощью простой методики суммирования в рассматриваемой области энергии. Интерферирующие пики вычитаются поканально перед суммированием. Для старых растворов в области энергии 100 кэВ используется метод функции соответствия. Для проведения градуировки по энергии и определения параметров формы пика используются гамма-пики 208 и 59 кэВ. Перед подгонкой функции соответствия в области энергии 100 кэВ приходится разделять большое количество интерферирующих пиков. Для измерения абсолютной концентрации каждого изотопа аппаратура градуируется с помощью стандартных образцов растворов. Для оценки содержания ^{242}Pu используется уравнение (8.12).

Показанная на рис. 8.22 очень тонкая кювета (около 1 мм толщиной) позволяет детектору наблюдать образец объемом 0,25 мл. Кювета установлена на торце детектора, как показано на рис. 8.23, и плутониевый раствор закачивается в кювету из перчаточного бокса. Свежие растворы измеряются от 15 до 30 мин, а старые — от 30 мин до 1 ч. В табл. 8.20 представлены результаты измерений как свежих, так и старых технологических растворов в Токай-Мура.

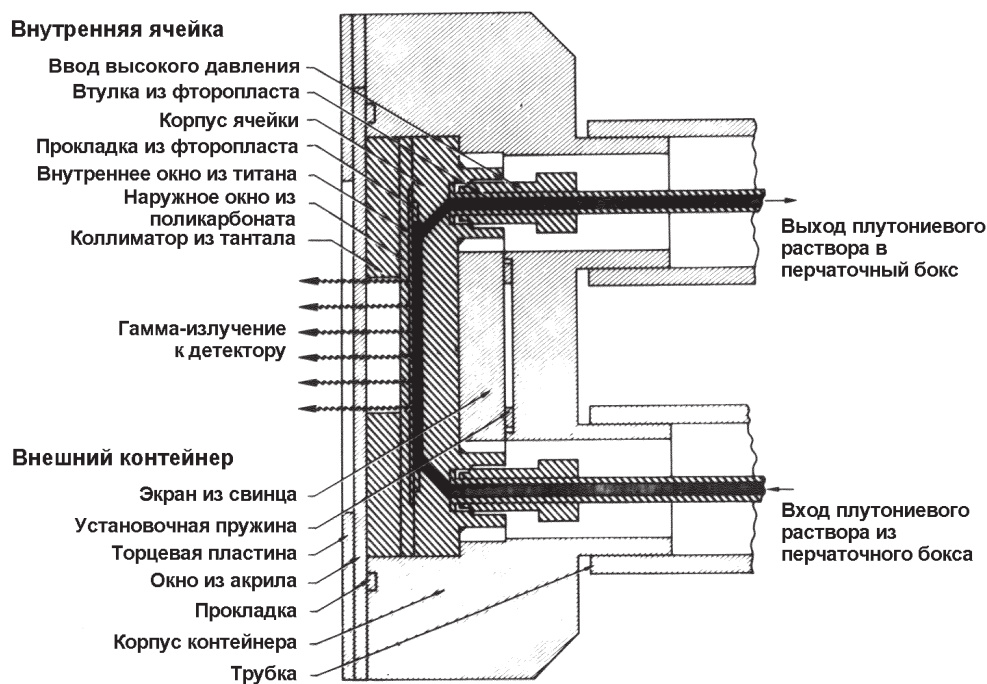


Рис. 8.22. Кювета для образца, используемая в системе для анализа изотопного состава плутония, установленной на заводе по переработке ядерного топлива в Токай-Мура, Япония [12]. Кювета пригнана к торцу детектора из особо чистого германия. Плутониевый раствор закачивается в кювету из перчаточного бокса в аналитической лаборатории. (Фотография любезно предоставлена Ганнинком, ЛЛНЛ)



Рис. 8.23. Детектор из особо чистого германия и ячейка для образца системы для анализа изотопного состава плутония, установленной на заводе по переработке ядерного топлива в Токай-Мура, Япония [12]. (Фотография любезно предоставлена Ганнинком, ЛЛНЛ)

Таблица 8.20 – Характеристики системы для анализа изотопного состава плутония на заводе в Токай-Мура (94 образца, концентрация плутония от 130 до 270 г/л) [12]

Изотоп Pu	Содержание, %	Смещение, %	Сходимость, %
238	0,5 – 1,0	0,1 – 0,8	0,4 – 0,7
239	60 – 75	0,01 – 0,3	0,08 – 0,4
240	17 – 23	0,02 – 0,4	0,2 – 1,3
241	5 – 11	0,02 – 0,8	0,2 – 0,8

Методика функции соответствия также была применена Рютером и Кэмпом [30, 31] для твердых образцов с использованием гамма-излучения в области энергии от 120 до 450 кэВ. Они создали портативную аппаратуру для инспекторов по гарантиям МАГАТЭ.

Другая система описана Ганнинком в работе [36]; она позволяет использовать все данные, имеющиеся в спектре, применяя два детектора (высокой и низкой энергии) и анализируя данные с помощью методик как функции соответствия, так и суммирования в рассматриваемой энергетической области. Эта система может достигать большей точности, чем другие системы при измерении про-

извольных образцов, поскольку ее функция соответствия анализирует область энергии 100 кэВ.

8.7.5. Обзор погрешностей измерений

Для всех рассмотренных методик на погрешности измерений в большой степени влияет анализируемый участок спектра. Наиболее высокая точность получается, когда измеряются области низких энергий гамма-излучения, которые имеют высокую скорость испускания гамма-квантов. В табл. 8.21 представлены сходимости измерений, достижимые для различных областей энергии гамма-излучения. Погрешность измерения обычно соответствует сходимости.

Таблица 8.21 – Типовые сходимости измерения, %

Область энергии, кэВ	Время измерения	Изотоп					Удельная мощность
		238	239	240	241	Am	
40	10 – 30 мин	0,3-5	0,05-0,5	0,2-1,0	0,2-1,0	---	---
100	30 – 60 мин	0,3-5	0,05-0,5	0,2-1,0	0,2-0,8	0,1-1,0	0,1-1,0
>120	1 – 4 ч *	>1-10	0,1-0,5	1-5	0,3-0,8	0,2-10	0,3-2

* Для систем с высокой скоростью счета эти сходимости могут быть реализованы за время менее 30 мин.

ЛИТЕРАТУРА

1. Francis X. Haas and Walter Strohm, "Gamma-Ray Spectrometry for Calorimetric Assay of Plutonium Fuels," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-22, 734 (1975).
2. T. Dragnev and K. Scharf, "Nondestructive Gamma Spectrometry Measurement of $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ and $\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ Ratios," *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 26, 125 (1975).
3. J. L. Parker and T. D. Reilly, "Plutonium Isotopic Determination by Gamma-Ray Spectroscopy," in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, January-April 1974," G. Robert Keepin, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5675-PR (1974).
4. R. Gunnink, J. B. Niday, and P. D. Siemens, "A System for Plutonium Analysis by Gamma-Ray Spectrometry. Part 1: Techniques for Analysis of Solutions," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51577, Part I (April 1974).
5. R. Gunnink, "A Simulation Study of Plutonium Gamma-Ray Groupings for Isotopic Ratio Determinations," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51605 (June 1974).
6. "Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectrometry," ASTM Standard Test Method C1030-84, in *1985 Annual Book of ASTM Standards* (American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1985), Section 12, pp. 788-796.

7. R. D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw Hill, New York, 1955), p. 484.
8. R. Gunnink, "Use of Isotope Correlation Techniques to Determine ^{242}Pu Abundance," *Nuclear Materials Management* 9 (2), 83-93 (1980).
9. R. Gunnink, J. E. Evans, and A. L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energies and Absolute Branching Intensities of ^{237}U , $^{238, 239, 240, 241}\text{Pu}$, and ^{241}Am ," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (October 1976).
10. J. F. Lemming and D. A. Rakel, "Guide to Plutonium Isotopic Measurements Using Gamma-Ray Spectrometry," Mound Facility report MLM-2981 (August 1982).
11. P. A. Russo, S.-T. Hsue, J. K. Sprinkle, Jr., S. S. Johnson, Y. Asakura, I. Kando, J. Masui, and K. Shoji, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Fractions in Product Solutions," Los Alamos National Laboratory report LA-9440-MS (PNCT 841-82-10) (1982).
12. R. Gunnink, A. L. Prindle, Y. Asakura, J. Masui, N. Ishiguro, A. Kawasaki, and S. Kataoka, "Evaluation of TASTEX Task H: Measurement of Plutonium Isotopic Abundances by Gamma-Ray Spectrometry," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-52950 (October 1981).
13. H. Umezawa, T. Suzuki, and S. Ichikawa, "Gamma-Ray Spectrometric Determination of Isotopic Ratios of Plutonium," *Journal of Nuclear Science and Technology* 13, 327-332 (1976).
14. J. Bubemak, "Calibration and Use of a High-Resolution Low-Energy Photon Detector for Measuring Plutonium Isotopic Abundances," *Analytica Chimica Acta* 96, 279-284 (1978).
15. J. K. Li, T. E. Sampson, and S. Johnson, "Plutonium Isotopic Measurement for Small Product Samples," Proceedings of Fifth Annual ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Versailles, France, April 19-21, 1983, paper 4.23.
16. R. Gunnink, "Gamma Spectrometric Methods for Measuring Plutonium," Proceedings of the American Nuclear Society National Topical Meeting on Analytical Methods for Safeguards and Accountability Measurements of Special Nuclear Material, Williamsburg, Virginia, May 15-17, 1978.
17. J. G. Fleissner, "GRPAUT: A Program for Pu Isotopic Analysis (A User's Guide)," Mound Facility report MLM-2799 (January 1981).
18. J. E. Sampson, S. Hsue, J. L. Parker, S. S. Johnson, and D. F. Bowersox, "The Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy," *Nuclear Instruments and Methods* 193, 177-183 (1982).
19. H. Ottmar, "Results from an Interlaboratory Exercise on the Determination of Plutonium Isotopic Ratios by Gamma Spectrometry," Kernforschungszentrum Karlsruhe report KfK 3149 (ESARDA 1/81) (July 1981).
20. J. G. Fleissner, J. F. Lemming, and J. Y. Jarvis, "Study of a Two-Detector Method for Measuring Plutonium Isotopes," in *Measurement Technology for Safeguards and Materials Control* Proceedings of American Nuclear Society Topical Meeting, Kiawah Island, South Carolina, November 26-30, 1979, pp. 555-567.

21. J. G. Fleissner, "Nondestructive Assay of Plutonium in Isotopically Heterogeneous Salt Residues," Proceedings of Conference on Safeguards Technology, Hilton Head Island, Department of Energy publication CONF-831106 (1983).
22. H. Umezawa, H. Okashita, and S. Matsuura, "Studies on Correlation Among Heavy Isotopes in Irradiated Nuclear Fuels," Symposium on Isotopic Correlation and Its Application to the Nuclear Fuel Cycle held by ESARDA, Stresa, Italy, May 1978.
23. K. Kandiah and G. White, "Status at Harwell of Opto-Electronic and Time Variant Signal Processing for High Performance Nuclear Spectrometry with Semiconductor Detectors," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-28 (1), 1-8 (1981).
24. F. J. G. Rogers, "The Use of a Microcomputer with In-Held Nondestructive Assay Instruments," International Symposium on Recent Advances in Nuclear Materials Safeguards, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, November 8-12, 1982.
25. J. G. Fleissner, "A High Count Rate Gamma-Ray Spectrometer for Pu Isotopic Measurements," Proceedings of Institute of Nuclear Materials Management 26th Annual Meeting, Albuquerque, New Mexico (1985).
26. R. Gunnink and J. B. Niday, "Computerized Quantitative Analysis by Gamma-Ray Spectrometry. Vol. I. Description of the GAMANAL Program," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51061, Vol. I (March 1972).
27. R. Gunnink and W. D. Ruhter, "GRPANL: A Program for Fitting Complex Peak Groupings for Gamma and X-Ray Energies and Intensities," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52917 (January 1980).
28. J. G. Fleissner and R. Gunnink, "GRPNL2: An Automated Program for Fitting Gamma and X-Ray Peak Multiplets," Monsanto Research Corporation Mound Facility report MLM-2807 (March 1981).
29. R. Gunnink, "An Algorithm for Fitting Lorentzian-Broadened K-Series X-Ray Peaks of the Heavy Elements," *Nuclear Instruments and Methods* 143, 145 (1977).
30. W. D. Ruhter and D. C. Camp, "A Portable Computer to Reduce Gamma-Ray Spectra for Plutonium Isotopic Ratios," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-53145 (May 1981).
31. W. D. Ruhter, "A Portable Microcomputer for the Analysis of Plutonium Gamma-Ray Spectra," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-53506, Vols. I and II (May 1984).
32. R. A. Hamilton, Rockwell-Hanford letter R83-0763, to T. E. Sampson (February 24, 1983).
33. S. -T. Hsue, T. E. Sampson, J. L. Parker, S. S. Johnson, and D. F. Bowersox, "Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8603-MS (November 1980).
34. D. A. Rakel, "Gamma-Ray Measurements for Simultaneous Calorimetric Assay," *Nuclear Material Management* X, 467 (1981).
35. D. A. Rakel, J. F. Lemming, W. W. Rodenburg, M. F. Duff, and J. Y. Jarvis, "Results of Field Tests of a Transportable Calorimeter Assay System," 3rd Annual

ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, May 6-8, 1981, p. 73.

- 36.** R. Gunnink, "Plutonium Isotopic Analysis of Nondescript Samples by Gamma-Ray Spectrometry," Conf. on Analytical Chemistry in Energy Technology, Gatlinburg, Tennessee, October 6-8, 1981.

Глава 9

Плотнометрия

*Хэйстингс А. Смит, мл. и Филлис А. Руссо
(Переводчик Н. В. Мошкина)*

9.1 ВВЕДЕНИЕ

Термин “плотнометрия” относится к измерению плотности материала путем определения степени ослабления этим материалом электромагнитного излучения заданной энергии. В главе 2 подробно описано взаимодействие электромагнитного излучения (в частности, рентгеновских и гамма-квантов) с веществом. Поскольку электромагнитное излучение взаимодействует с атомными электронами, характеристики плотности являются специфическими для элементов, а не изотопов. Во время измерений плотности происходят два явления: первое — часть энергии падающего излучения поглощается, второе — ионизированные атомы испускают характеристическое рентгеновское излучение при возвращении в стабильные основные атомные состояния. Последний процесс, известный как рентгеновская флуоресценция, является мощным методом элементного анализа (см. главу 10 с подробным изложением методики рентгенофлуоресцентного анализа (РФА)). В некоторых случаях измерение коэффициента пропускания гамма-излучения может предоставить информацию не только об объемной плотности образца, но также по его составу. Поскольку поглощение фотонов с низкой энергией (в основном путем фотоэлектрического эффекта) есть возрастающая функция атомных номеров Z элементов в образце, оно является характеристикой, на измерении которой может быть основан анализ.

В этой главе описываются различные методики плотнометрии, включая измерение поглощения фотонов при одном или нескольких значениях энергии и измерение дифференциального ослабления фотонов вдоль краев поглощения. Кроме того, обсуждаются прикладные задачи, использующие эти методики, и описываются процедуры измерений с представлением типичных результатов работы.

Все измерения плотности, обсуждаемые в этой главе, основаны на определении степени пропускания электромагнитного излучения данной энергии материалом образца. Математической основой для измерения является характеризующая поглощение экспоненциальная связь между интенсивностью I_0 фотонного излучения с энергией E , падающего на материал, и интенсивностью I излучения, прошедшего толщину x материала:

$$I = I_0 \exp(-\mu x), \quad (9.1)$$

где ρ — массовая плотность материала;

μ — массовый коэффициент ослабления, который оценивается при энергии фотона E .

Измеряемыми величинами являются интенсивности падающего и прошедшего излучений. Их отношение I/I_0 называется коэффициентом пропускания T материала для рассматриваемой энергии излучения. Если любые две из трех величин в выражении для экспоненты известны из других данных, третья величина может быть определена измерением коэффициента пропускания. Большим преимуществом процедуры, с помощью которой измеряется коэффициент пропускания фотонов, является то, что данные обрабатываются как отношение двух величин, измеренных в одинаковых условиях, тем самым устраняя множество мешающих систематических эффектов, которые часто усложняют измерение абсолютной интенсивности фотонов.

Источником измеряемого электромагнитного излучения может служить искусственный источник рентгеновских квантов, испускающий фотоны с непрерывным энергетическим спектром, или естественный источник гамма-излучения, который испускает гамма-кванты с дискретными энергиями. Материал образца помещается между фотонным источником и фотонным детектором (см. рис. 9.1). Коэффициент пропускания образца определяется путем измерения интенсивности фотонов источника как при наличии (I), так и в отсутствие (I_0) материала образца.

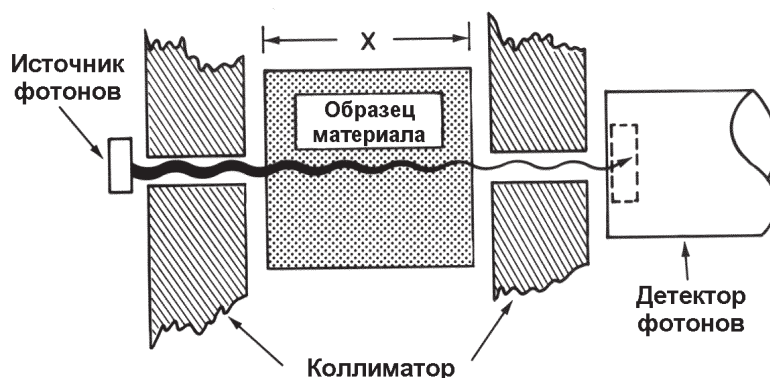


Рис. 9.1. Основные составляющие измерения плотности

9.2 МОНОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ПЛОТНОМЕТРИЯ

9.2.1 Измерение концентрации и толщины

Если образец состоит из одного типа материала или смеси материалов, состав которых тщательно контролируется, кроме одного из компонентов, то коэффициент пропускания образца при одной энергии гамма-излучения может быть использован для измерения концентрации (плотности ρ) изменяющегося компонента. Обычно используются источники гамма-излучения дискретной энергии. Например, рассмотрим двухкомпонентную систему — раствор урана в азотной кислоте, компоненты которой имеют соответствующие плотности ρ и ρ_0 и массовые коэффициенты ослабления μ и μ_0 при данной энергии гамма-излучения. Натуральный

логарифм коэффициента пропускания фотонов при этой энергии дается выражением

$$\ln T = -(\mu\rho + \mu_0\rho_0)x. \quad (9.2)$$

Для неизвестной концентрации (плотности ρ) имеем

$$\rho = -\left(\frac{1}{\mu x}\right) \ln T - \frac{\mu_0\rho_0}{\mu}. \quad (9.3)$$

Уравнение (9.3) может применяться для измерения концентрации неизвестного количества вещества ρ при известной, тщательно контролируемой концентрации растворителя ρ_0 .

При измерении концентрации ядерных материалов (урана и плутония) в растворах крайне необходимо, чтобы коэффициенты массового ослабления для растворителя μ_0 и ядерного материала μ были определены корректно, и чтобы состав растворителя (ρ_0) был хорошо известен и постоянен от образца к образцу. Образцы растворов должны быть защищены от загрязнений, поскольку они вызвали бы изменения в эффективных значениях ρ_0 и μ_0 .

Моноэнергетическое измерение коэффициента пропускания T может также применяться для определения толщины материалов известного и тщательно контролируемого состава. Непрерывное измерение интенсивности прошедших фотонов одной энергии через металлы и другие твердые вещества при постоянной геометрии измерения является непосредственной мерой толщины этих материалов. Такая информация является полезной для оперативного контроля некоторых промышленных технологических процессов.

9.2.2 Точность измерений

Рассмотрим случай моноэнергетического измерения концентрации, при котором отсутствуют значительные флуктуации в составе растворителя. Точность измерения неизвестной величины ρ определяется статистической дисперсией коэффициента пропускания T . Относительная погрешность измерения плотности получается путем дифференцирования уравнения (9.3):

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \left(\frac{1}{\ln T}\right) \left[\frac{\sigma(T)}{T}\right]. \quad (9.4)$$

Это выражение показывает, что существует диапазон значений коэффициента пропускания, вне которого относительная погрешность измерения плотности больше, чем относительная погрешность измерения коэффициента пропускания (наилучший режим точности: $|\ln T| > 1$ или $T < 0,37$). Для больших значений коэффициента пропускания относительная погрешность определения плотности больше, чем относительная погрешность определения коэффициента пропускания, и, соответственно, ухудшается измерение. Отметим, что когда T приближается к 1, выражение для относительной погрешности расходится из-за коэффициента $1/(\ln T)$. Поскольку материал образца не поглощает падающее излучение, то аналитический сигнал отсутствует.

Диапазон оптимальных значений коэффициента пропускания может также быть отнесен к характеристической концентрации $\rho_c = 1/\mu x$. Когда $\ln T > 1$, $\rho > \rho_c$,

то измерение проходит в подходящем режиме точности; но когда $\rho < \rho_c$ — аналитический сигнал слишком мал и точность является наихудшей. Путем определения наилучшего рабочего диапазона с точки зрения этой характеристической концентрации, можно выбрать приемлемую толщину образца x , которая задает собственные свойства материала образца (μ), подлежащие измерению, и ожидаемый диапазон концентраций.

Вследствие симметрии ρ и x в уравнениях (9.1) — (9.3), уравнение (9.4) выражает также относительную погрешность измерения толщины. При измерении толщины точность может быть повышена путем разумного выбора энергии фотонов.

Существуют ограничения на то, насколько высоким или низким должен быть коэффициент пропускания образца для оптимальной точности измерений. Поскольку $T = I/I_0$, а интенсивности представляют собой статистически изменяющиеся величины, уравнение (9.4) можно переписать в виде

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \frac{1}{\ln T} \left(\frac{T+1}{I_0 T} \right)^{1/2}. \quad (9.5)$$

График этого соотношения на рис. 9.2 показывает ухудшение точности измерения при высокой и низкой концентрациях. В согласии с определением ρ_c оптимальный диапазон T находится ниже точки, в которой $\ln T = 1$. Диапазон значений T , выше которого величина $\sigma(\rho)/\rho$ находится близко к минимуму, определяет характеристики конструкции прибора (толщину образца, диапазон измеряемых концентраций и энергию фотонов). Эти характеристики также важны в более сложных измерениях плотности, описываемых в разделах 9.3 и 9.4.

Отметим, что вышеприведенное обсуждение связано с погрешностью измерений, определяемой только счетной статистикой. В общем случае дополнительные флуктуации результатов измерений могут вызвать и другие факторы, вклю-

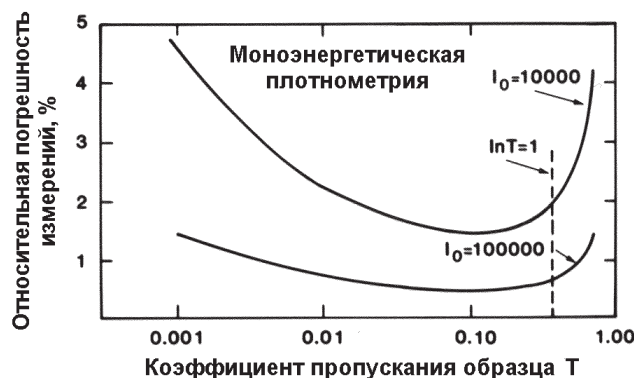


Рис. 9.2. Зависимость погрешности измерения методом моноэнергетической плотнометрии от коэффициента пропускания образца для двух значений полного числа отсчетов падающих фотонов (из уравнения (9.5)). Оптимальным коэффициентом пропускания является коэффициент, который дает наименьшую относительную погрешность измерения. Он соответствует концентрации, большей, чем характеристическая концентрация ρ_c , при которой $\ln T = 1$. (Обратите внимание, что горизонтальная ось имеет логарифмический масштаб)

чая изменения в материале матрицы (растворителя) и возможные инструментальные флуктуации. В результате, погрешность средств измерения должна определяться путем выполнения дополнительных (повторных) измерений известных стандартных образцов, представляющих полный диапазон свойств образца и растворителя.

9.3 МНОГОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ПЛОТНОМЕТРИЯ

Измерение коэффициента пропускания фотонов при одной энергии позволяет проводить анализ только одного вещества или только одного компонента смеси; концентрация других компонентов должна оставаться постоянной. Измерение коэффициента пропускания фотонов при двух значениях энергии позволяет проводить анализ двух компонентов смеси. Такое комплексное измерение будет тем успешнее, чем больше отличаются друг от друга коэффициенты ослабления двух компонентов. Анализ концентрации элемента с высоким Z в растворителе с низким Z является превосходным примером двухэнергетического плотнометрического измерения.

9.3.1 Анализ двухэнергетического случая

Рассмотрим смесь двух компонентов с неизвестными концентрациями ρ_1 и ρ_2 . Пусть массовый коэффициент ослабления i -го компонента, измеренный при j -й энергии, дается выражением

$$\mu_i^j = \mu_i(E_j), \quad (9.6)$$

и определим коэффициент пропускания при j -й энергии как

$$T_j = \exp[-(\mu_1^j \rho_1 + \mu_2^j \rho_2)x]. \quad (9.7)$$

Измерение двух коэффициентов пропускания дает два уравнения для двух неизвестных концентраций:

$$\begin{aligned} (-\ln T_1) / x &= M_1 = \mu_1^1 \rho_1 + \mu_2^1 \rho_2, \\ (-\ln T_2) / x &= M_2 = \mu_1^2 \rho_1 + \mu_2^2 \rho_2. \end{aligned} \quad (9.8)$$

Приписывая измеренное поглощение двум компонентам образца, мы фактически определяем значение интенсивности падающего излучения, которая является интенсивностью, прошедшей пустой контейнер для образца. Решениями указанных выше уравнений являются:

$$\begin{aligned} \rho_1 &= (M_1 \mu_2^2 - M_2 \mu_2^1) / D, \\ \rho_2 &= (M_2 \mu_1^1 - M_1 \mu_1^2) / D, \\ D &= \mu_1^1 \mu_2^2 - \mu_2^1 \mu_1^2. \end{aligned} \quad (9.9)$$

Чтобы уравнения (9.8) имели решение, знаменатель D в выражениях (9.9) должен быть ненулевым. Это условие фактически обеспечивается, если массовые коэффициенты ослабления для двух компонентов имеют существенно различающиеся энергетические зависимости. Физически это означает, что анализ является выполнимым, если компоненты могут отличаться друг от друга по поглощающим свойствам. Этот критерий предполагает в дальнейшем два возможных варианта

выбора энергий фотонов. Первый, если используются две значительно отличающиеся энергии, то различия в наклоне кривой зависимости μ от E для компонентов с высоким Z и низким Z являются достаточными, чтобы провести различие между ними. Второй, если для более тяжелого компонента (с более высоким Z) выбрать близлежащие энергии фотонов, находящиеся на обеих сторонах края поглощения, то окажется, что энергетическая зависимость для массового коэффициента ослабления материала с более высоким Z будет иметь противоположный наклон по отношению к коэффициенту ослабления компонента с низким Z , что делает два компонента легко различимыми. Такой подход наиболее перспективен для анализа ядерных материалов в матрицах с низкой плотностью или для анализа двухкомпонентных ядерных материалов.

9.3.2 Точность измерения

Основным источником случайной неопределенности измерения является статистическая дисперсия результатов измерений коэффициента пропускания. Выражение для относительной погрешности концентрации каждого компонента имеет следующий вид:

$$\frac{\sigma(\rho_1)}{\rho_1} = \frac{1}{\mu_2^1 \ln T_2 - \mu_2^2 \ln T_1} \left\{ \left[\mu_2^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[\mu_2^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2},$$

$$\frac{\sigma(\rho_2)}{\rho_2} = \frac{1}{\mu_1^2 \ln T_1 - \mu_1^1 \ln T_2} \left\{ \left[\mu_1^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[\mu_1^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2}. \quad (9.10)$$

Отметим, что поскольку результат анализа изменяется обратно пропорционально толщине образца (см. уравнение (9.8)), то толщина образца x должна быть очень хорошо известна или оставаться постоянной в пределах небольшого допуска.

9.3.3 Распространение на случай большего числа значений энергий

В принципе, методика многоэнергетической плотнометрии может быть расширена до трех или более значений энергий с целью измерения трех или большего числа компонентов образца. На практике такое расширение методики ухудшает чувствительность измерения для некоторых компонентов образца, поскольку чрезвычайно трудно выбрать энергии гамма-квантов, которые могут представлять различные энергетические зависимости поглощения каждого компонента. Поэтому многоэнергетическая плотнометрия редко выходит за рамки двухэнергетического варианта.

9.4 ПЛОТНОМЕТРИЯ ПО КРАЮ ПОГЛОЩЕНИЯ

Плотнометрия по краю поглощения представляет собой частный случай применения двухэнергетической плотнометрии. Энергии фотонов при каждом измерении коэффициентов пропускания выбираются как можно ближе по значению и

одновременно на противоположных сторонах края кривой поглощения в энергетической зависимости массового коэффициента ослабления для неизвестного материала [1]. В неразрушающем анализе ядерных материалов используются как К-, так и L-III-края поглощения (см. раздел 9.7 по специальным применениям). На рис. 9.3 показаны коэффициенты ослабления для плутония, урана и некоторых материалов с низким Z, включая К- и L-края для тяжелых элементов.

Плотнометрия по краю поглощения включает измерение коэффициента пропускания хорошо коллимированного пучка фотонов через материал образца. Коллимация определяет геометрию измерений, а также снижает интерференцию от излучения, испускаемого материалом образца. Поскольку коллимация выделяет только небольшую часть объема образца, он должен быть очень однородным для того, чтобы анализ был представительным для всего объема материала. Поэтому методика плотнометрии по краю поглощения чаще всего применяется для анализа растворов, хотя используется и для анализа твердых веществ [2-4].

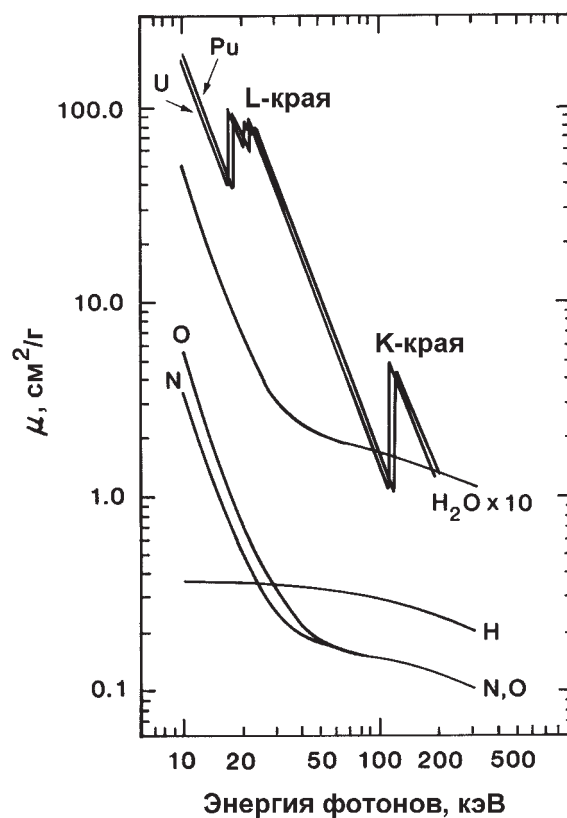


Рис. 9.3. Энергетическая зависимость массовых коэффициентов ослабления фотонов для урана, плутония и некоторых материалов с низким Z. Следует отметить разрывы кривой поглощения (края поглощения) для урана и плутония в энергетических диапазонах от 17 до 20 кэВ (L-край) и от 115 до 122 кэВ (K-край)

9.4.1 Описание методики измерений

Рассмотрим типичный случай ядерного материала — компонента с высоким Z в матрице (растворителе) с низким Z . На рис. 9.4 приведены коэффициенты ослабления и энергии измерения выше (U) и ниже (L) края поглощения. (В обсуждении основной упор делается на измерения по К-краю, однако, этот анализ аналогичен анализу по L-краю). Нижний индекс s относится к измеряемому элементу, а индексы M и m относятся к элементам матрицы с высоким и низким Z , соответственно. Величины скачков коэффициентов поглощения $\Delta\mu$ и рассматриваемые энергии краев поглощения даны в табл. 9.1.

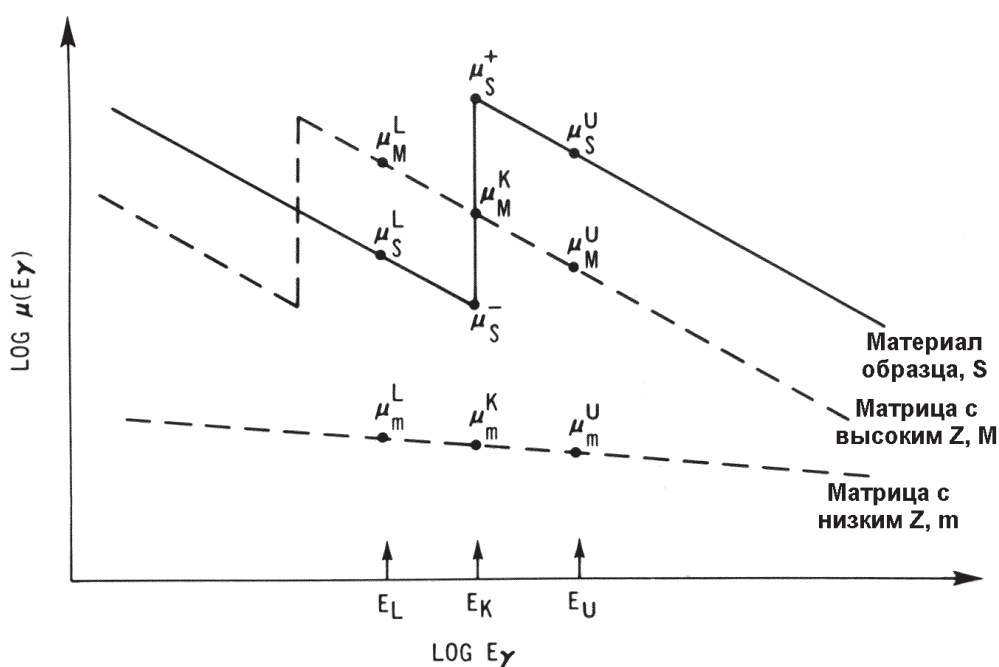


Рис. 9.4. Увеличенное схематическое изображение массового коэффициента ослабления в виде функции энергии фотонов. Показаны кривые для материала образца (S), предположительно тяжелого элемента, компонента матрицы (M), являющегося тяжелым элементом, и компонента матрицы (m), являющегося легким элементом

Таблица 9.1 – Энергии краев поглощения и скачки кривой поглощения для отдельных компонентов ЯМ

Характеристика	Уран	Плутоний
$E(K)$	115,6 кэВ	121,8 кэВ
$E(L_{III})$	17,2 кэВ	18,0 кэВ
$\Delta\mu(K)$	3,7 см ² /г	3,4 см ² /г
$\Delta\mu(L_{III})$	55,0 см ² /г	52,0 см ² /г

Уравнение (9.11) дает коэффициент пропускания фотонов через раствор при двух энергиях измерения E_U и E_L :

$$\begin{aligned}\ln T_L &= -(\mu_s^L \rho_s + \mu_m^L \rho_m) x, \\ \ln T_U &= -(\mu_s^U \rho_s + \mu_m^U \rho_m) x.\end{aligned}\quad (9.11)$$

Решением для концентрации измеряемого элемента является:

$$\rho_s = \frac{1}{\Delta\mu x} \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) + \rho_m \left(\frac{\Delta\mu_m}{\Delta\mu}\right), \quad (9.12)$$

где $\Delta\mu = \mu_s^U - \mu_s^L > 0$,

$$\Delta\mu_m = \mu_m^L - \mu_m^U > 0. \quad (9.13)$$

Второй член в уравнении (9.12) выражает вклад от матрицы растворителя. Поскольку коэффициенты пропускания измеряются относительно пустого контейнера для образца, коэффициент пропускания самого контейнера для образца не влияет на уравнение (9.12). Отметим схожесть уравнения (9.12) с одноэнергетическим случаем (уравнение (9.3)), при замене μ на $\Delta\mu$.

Поскольку член матрицы в уравнении (9.12) не зависит от концентрации ядерного материала и геометрии измерительной ячейки для образца, он может быть применен к любому измерению плотности по краю поглощения, для которого коэффициент пропускания раствора измеряется относительно пустого контейнера для образца. В идеале, если $E_L = E_U = E_K$, то $\Delta\mu_m = 0$, и измерение является полностью нечувствительным к каким-либо эффектам матрицы. На практике, однако, два значения энергии измерения отличаются на конечную величину, поэтому может понадобиться некоторая остаточная поправка на матрицу. В случаях, когда вклад матрицы может оказаться значительным, он может быть определен эмпирическим путем, анализируя раствор, который содержит только материал матрицы, или этот эффект может быть рассчитан аналитически. Для дальнейшего обсуждения поправок на матрицу для плотнометрии по краю поглощения см. раздел 9.4.4.

Отношение двух коэффициентов пропускания при двух значениях энергии измерения $R = T_L/T_U$ является измеряемой величиной, а $\Delta\mu$ и x — постоянными, которые могут быть оценены из измерений коэффициента пропускания с градуировочными стандартными образцами точно определенных концентраций. Совместно с тщательно подобранными энергиями фотонов эта методика обеспечит очень достоверный, практически независимый от матрицы анализ отдельных эле-

ментов, края поглощения которых лежат между энергиями фотонов источника излучения пропускания.

9.4.2 Точность измерения

Дифференцирование уравнения (9.12) дает относительную погрешность измерения плотности:

$$\frac{\sigma(\rho_s)}{\rho_s} = \left(\frac{1}{\Delta\mu\rho_s x} \right) \left[\frac{\sigma(R)}{R} \right] = \left(\frac{1}{\ln R} \right) \left[\frac{\sigma(R)}{R} \right]. \quad (9.14)$$

Частично погрешность в R определяется статистикой измерений коэффициента пропускания. По аналогии с обсуждением уравнения (9.4), выбор параметров измерения может быть сделан путем сравнения с характеристической концентрацией $\rho_c = 1/\Delta\mu x$. Когда $\rho > \rho_c$, измерение проводится в наилучшем режиме, в котором $\sigma(\rho)/\rho < \sigma(R)/R$. Но если концентрация ядерного материала намного выше ρ_c , избыточное поглощение ухудшает точность измерения в основном из-за возросшего поглощения пропускаемого гамма-излучения над краем поглощения. Статистические флуктуации очень небольшой интенсивности прошедших фотонов при энергии E_U подавляются статистическими флуктуациями фона в этой энергетической области.

В табл. 9.2 приведены значения этих характеристических концентраций для 1 см длины пути прохождения излучения ($x = 1$ см). Предполагается, например, что для измерительной ячейки для образца толщиной 1 см, анализ по К-краю концентраций плутония, превышающих 300 г/л, будет находиться в оптимальном по точности режиме. Для анализа растворов с концентрациями 30 г/л толщина ячейки для образца должна быть больше 0,5 см для анализа по L_{III} -краю и больше 9 см для анализа по К-краю.

Таблица 9.2 – Характеристические концентрации для урана и плутония

Характеристическая концентрация	Уран, г/л	Плутоний, г/л
$\rho_c(K)$	270	294
$\rho_c(L_{III})$	18	19

Для оптимизации параметров измерения может быть использован более аналитический подход. На рис. 9.5 показана расчетная статистическая погрешность измерения (уравнение (9.14)) в зависимости от длины пути прохождения излучения x для различных концентраций ядерного материала. На рисунке показано, например, что плотномер, разработанный для анализа растворов ядерного материала с концентрацией 30 г/л, должен иметь толщину измерительной ячейки для образца от 7 до 10 см.

Последняя проверка при оценивании конструкции плотномера состояла в эмпирическом определении точности анализа. На рис. 9.6 показана погрешность серии измерений с плотномером по К-краю, разработанным для анализа растворов плутония с низкими и средними концентрациями, при толщине ячейки для

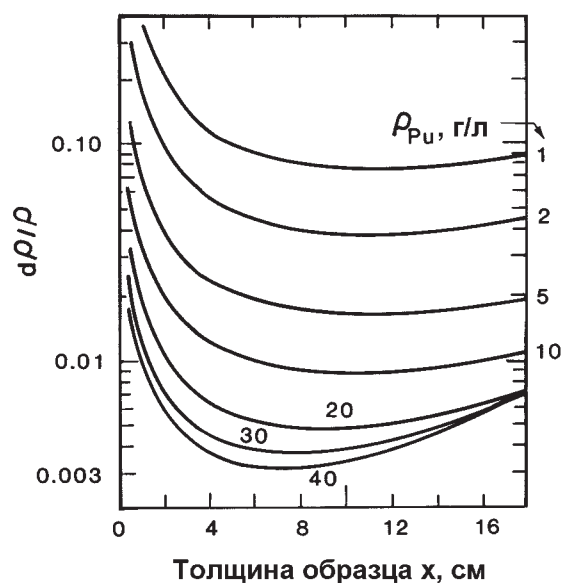


Рис. 9.5. Зависимость расчетной относительной статистической неопределенности концентрации плутония, полученной методом плотнометрии по К-краю, от толщины ячейки для образца (длины пути прохождения излучения). Пропускание в области фотопика с энергией 121,1 кэВ пустой ячейки ниже К-края (I_{02}) было взято равным 2×10^6 отсчетов

образца 7 см [5]. Рис. 9.6 хорошо согласуется с теоретической кривой, представленной на рис. 9.5.

Расчеты погрешности измерения полезны при определении оптимальных параметров конструкции прибора. На рис. 9.7 показаны результаты таких расчетов как для плотномеров по К-краю, так и для плотномеров по L_{III} -краю [6]. Диапазоны концентраций плутония, при которых относительная погрешность измерения меньше 1%, показаны для различных толщин образца x .

9.4.3 Чувствительность измерения

Полезным параметром в технических характеристиках измерительного устройства неразрушающего анализа является его “минимальный порог обнаружения”, который представляет собой такое количество ядерного материала, которое создает сигнал, превышающий фон за приемлемое время измерения [7, 8]. Для измерений ядерных отходов, где минимальный порог обнаружения является важной технической характеристикой прибора, сигнал считается значимым, если он превышает фоновый сигнал на три стандартных отклонения (доверительная вероятность 99 %) [9]. Этот порог также можно рассматривать как чувствительность измерения, в этом случае он характеризует нижний предел количества ядерного материала, которое может быть обнаружено с некоторым доверительным уровнем.

Поскольку плотнометры по краю поглощения обычно выполняются для конкретных задач анализа в точно определенных диапазонах концентраций растворов ядерных материалов, минимальный порог обнаружения практически не важен.

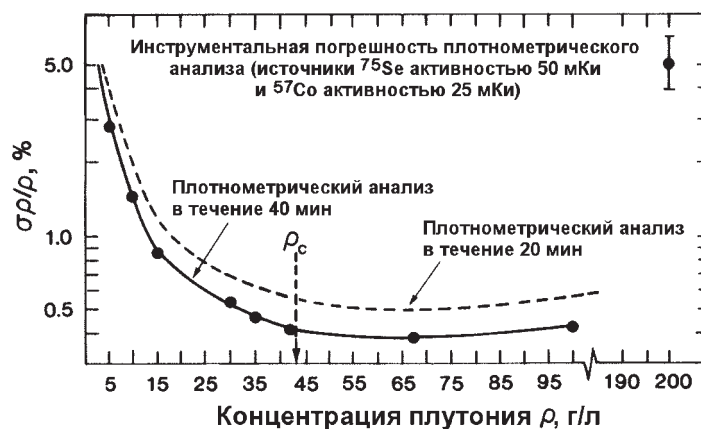


Рис. 9.6. Зависимость относительной статистической погрешности, достижимой в измерении концентрации плутония методом плотнометрии по К-краю, от концентрации образца для толщины измерительной ячейки, равной 7 см. Обратите внимание на разрыв шкалы выше 100 г/л. Показаны кривые для двух времен измерения [5]

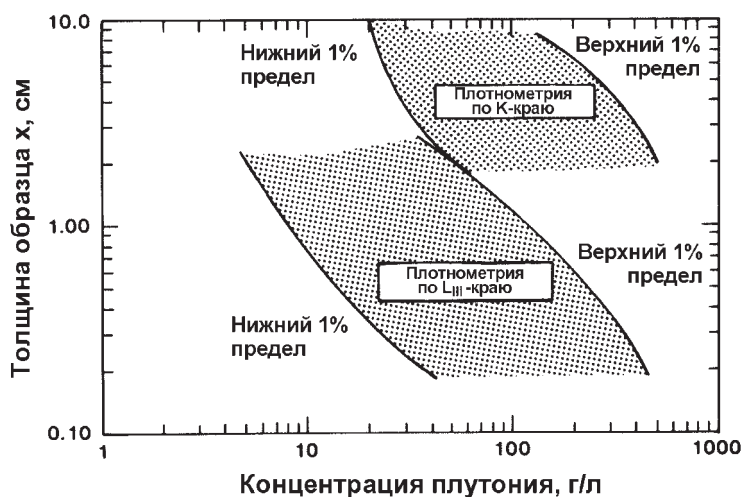


Рис. 9.7. Показатели толщины пропускания образца x , в диапазоне которых анализ концентрации плутония может быть выполнен методом плотнометрии по краю поглощения с погрешностью меньше, чем 1 % статистической погрешности. Затрихованные области для методик по К- и L_{III}-краю показывают диапазоны концентраций, в которых эта погрешность достигается

Однако чувствительность измерения может служить в качестве удобной величины для сравнения конструктивных подходов и других факторов, влияющих на работу средства измерения.

Чтобы получить выражение для чувствительности измерения плотномера по краю поглощения, фон должен быть определен таким образом, чтобы можно было выделить минимальный обнаруживаемый измеряемый сигнал. Статистическая неопределенность измеренной плотности дается уравнением (9.14). Отношение R двух коэффициентов пропускания выше и ниже края поглощения складывается из интенсивностей фотонов исходного гамма- (или рентгеновского) излучения, которые изменяются согласно обычным статистическим распределениям. Когда концентрация ядерного материала равна нулю, раствор целиком представляет собой материал матрицы (как правило, кислоту) и

$$T_U \approx T_L = T = \exp(-\mu_m \rho_m x). \quad (9.15)$$

Когда концентрация ядерного материала равна нулю, $R = 1$, и из определения T получаем:

$$\sigma(\rho) = \frac{1}{\Delta\mu x} \left(\frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} + \frac{1}{TI_{0U}} + \frac{1}{TI_{0L}} \right)^{1/2}. \quad (9.16)$$

Уравнение (9.16) выражает неопределенность значения фона. Критерий “трех сигм” дает выражение для минимального порога обнаружения (или чувствительности s) для плотномера по краю поглощения:

$$s = \frac{3}{\Delta\mu x} \left[\left(\frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} \right) \left(\frac{T+1}{T} \right) \right]^{1/2}, \text{ г/л}, \quad (9.17)$$

где $\Delta\mu x$ измеряется в $\text{см}^3/\text{г}$.

Уравнение (9.17) показывает, что чувствительность плотномера подвержена влиянию нескольких параметров измерения:

- чувствительность ухудшается в образцах с низким коэффициентом пропускания;
- длительные времена счета неослабленных интенсивностей фотонов I_0 повышают чувствительность измерения;
- измерения по L-краю (с более высоким $\Delta\mu$) более чувствительны, чем измерения по K-краю, если все другие параметры измерения остаются теми же самыми;
- увеличение толщины ячейки для образца может повысить чувствительность измерения, но сопутствующее снижение T будет конкурировать с этим улучшением.

9.4.4 Эффекты матрицы

Методика плотнометрии по краю поглощения нечувствительна к влиянию материалов матрицы, если оба коэффициента пропускания измеряются на краю поглощения. Однако, при конечной разнице в энергиях пропускаемых гамма-квантов, вклад матрицы не равен нулю и представлен вторым членом в уравнении (9.12). Этот член может стать существенным для низких концентраций

ядерного материала ρ_s или когда разность между значениями энергий анализа E_L и E_U становится большой; оба условия нарушают неравенство $\Delta\mu_m\rho_m < \Delta\mu\rho_s$.

При использовании фотонов с близкими энергиями с целью минимизации эффектов ослабления в матрице при конструировании измерительного средства внутренними ограничениями являются естественная ширина пика поглощения (менее 130 эВ) и энергетическое разрешение детектирующей системы (обычно 500 эВ или больше). Ограниченная доступность полезных радиоизотопов естественного происхождения также приводит к необходимости компромиссов при выборе источников излучения.

Одной из очень полезных методик снижения эффекта матрицы является процедура экстраполяции, применяемая к результатам измерения коэффициента пропускания [2, 5]. Процедура заключается в попытках экстраполировать измеренные коэффициенты пропускания к энергии края поглощения. Эта экстраполяция возможна потому, что энергетическая зависимость массовых коэффициентов ослабления в узких энергетических диапазонах, как известно, подчиняется степенному закону:

$$\log\mu(E) = k \log E + B. \quad (9.18)$$

Коэффициент наклона k обычно одинаков для элементов с $Z > 50$, со средним значением приблизительно -2,55 вблизи К-краев урана и плутония [2]. В табл. 9.3 представлены выбранные значения коэффициентов наклона и пересечения прямой с осью для нескольких веществ, представляющих интерес для анализа ядерного материала [10].

В качестве примера общего случая анализа рассмотрим раствор ядерного материала в растворителе с низким Z с возможными дополнительными загрязнениями матрицы тяжелыми элементами ($Z > 50$). Уравнение (9.12) обобщается до выражения

$$\rho_s = \left(\frac{1}{\Delta\mu_x} \right) \ln \left(\frac{T_L}{T_U} \right) + \rho_M \left(\frac{\Delta\mu_M}{\Delta\mu} \right) + \rho_m \left(\frac{\Delta\mu_m}{\Delta\mu} \right). \quad (9.19)$$

Нижний индекс M относится к загрязнению матрицы с высоким Z , а индекс m представляет матрицу с низким Z (растворитель); и по аналогии с уравнением (9.13) $\Delta\mu_M = \mu_M^L - \mu_M^U$ (см. рис. 9.4). Затем измеренные коэффициенты пропускания экстраполируются к К-краю ядерного материала с использованием энергетической зависимости $\mu(E)$ для тяжелых элементов. Поскольку коэффициенты наклона k для $Z > 50$ практически одни и те же, коэффициенты поглощения ядерного материала и матрицы с высоким Z могут быть преобразованы с тем же k (например, среднее значение -2,55). В итоге преобразованный $\Delta\mu_M$ обращается в нуль, и результат анализа становится следующим:

$$\rho_s = \left(\frac{1}{\Delta\mu_{\pm x}} \right) \ln \left(\frac{T_L^a}{T_U^b} \right) + \left(\frac{c\mu_m^K \rho_m}{\Delta\mu_{\pm}} \right), \quad (9.20)$$

где $\Delta\mu_{\pm}$ (который равен $\mu_s^+ - \mu_s^-$, см. рис. 9.4) теперь определяется вдоль края поглощения (в данном случае К-края), а не между энергиями E_L и E_U . Постоянные a , b и c определяются как:

$$\begin{aligned}
 a &= (E_K / E_L)^k, \\
 b &= (E_K / E_U)^k, \\
 c &= (E_K / E_L)^{k-k'} - (E_K / E_U)^{k-k'},
 \end{aligned}
 \tag{9.21}$$

где $k = -2,55$, а $k' = -0,33$ (среднее значение k для элементов с атомными номерами меньше 10). Эта процедура делает анализ по существу независимым от матрицы с тяжелым элементом, но все еще оставляет остаточную поправку для матрицы с легким элементом. Невозможно устранить эффекты обоих матричных материалов как с легким, так и тяжелым элементом, поскольку $k \neq k'$. Коэффициенты пропускания должны быть откорректированы на вклад матрицы кислоты, поскольку коэффициенты пропускания измеряются относительно пустой ячейки для образца. Если бы эталонный спектр (интенсивности I_0) был получен с ячейкой, заполненной представительным раствором кислоты, то не понадобилась бы поправка на матрицу кислоты. Однако любое отклонение в молярности кислоты внесло бы смещение в результат измерения реального образца. Плотность азотной кислоты ρ_m и молярность кислоты M связаны между собой отношением [11]:

$$\rho_m = 1 + 0,33M. \tag{9.22}$$

Таблица 9.3 – Коэффициенты наклона k и пересечения B для линейной зависимости десятичных логарифмов $\log \mu(E)$ от $\log E$ для различных анализируемых материалов в энергетической области от 100 до 150 кэВ [10]

Компонент раствора	k	B
Плутоний (выше К-края)	-2,48	5,83
(ниже К-края)	-2,56	5,42
Уран (выше К-края)	-2,49	5,82
(ниже К-края)	-2,71	5,65
Вольфрам	-2,50	5,65
Олово	-2,45	5,12
Железо	-1,57	2,70
Алюминий	-0,500	0,227
Вода	-0,306	-0,153
Азотная кислота	-0,314	-0,171

Для анализа по К-краю плутония, для которого значение энергии К-края близко к значениям энергий гамма-излучения ^{57}Co и ^{75}Se (см. раздел 9.4.6), эта поправка на матрицу с низким Z мала, однако может оказаться значимой при низких концентрациях плутония. Например, поправочный член в уравнении (9.20) для 3 М азотной кислоты эквивалентен приблизительно 0,87 г Pu/л [5]. Уравнение (9.22) показывает, что флуктуации в молярности кислоты вызывают флуктуации

в поправке на матрицу кислоты, которая максимально равна 3 %; такой тщательный контроль молярности кислоты важен только при очень низких концентрациях ядерного материала.

Для анализа урана по К-краю с источником излучения ^{169}Yb ($E_L = 109,8$ кэВ, $E_U = 130,5$ кэВ) процедура экстраполяции значительно улучшает качество результатов анализа. Это графически представлено в работе [2], где показано, что анализ растворов урана с изменяющимися концентрациями олова является независимым от матрицы при использовании экстраполяционной поправки. Результаты исследований некоторых других эффектов матрицы описаны в работе [12].

9.4.5 Выбор методики измерений

Из-за различий в значениях $\Delta\mu$ на К-крае и L_{III} -крае, чувствительность измерения (определенная в уравнении (9.17)) по L_{III} -краю более чем на порядок выше чувствительности измерения по К-краю при других равных параметрах (см. также табл. 9.1). Однако, вследствие более высокой проникающей способности фотонов с энергиями в области К-края, для измерений по К-краю могут использоваться более толстые образцы, тем самым повышая чувствительность измерения.

Если в образце присутствуют значительные количества элементов с более низкими Z (такие, как иттрий и цирконий), то К-края этих элементов обусловят дискретные интерференции, смещающие результаты анализа урана и плутония по L_{III} -краю [12]. Более того, разрешение детектора для энергий L_{III} -края ограничивает возможность проведения анализов по L_{III} -краю при наличии значительных количеств соседних элементов (урана с протактинием или нептунием; плутония с нептунием или америцием). Измерения по К-краю не подвержены таким интерференциям. Кроме того, более высокие энергии фотонов, необходимые для измерений коэффициентов пропускания по К-краю, допускают использование более толстых материалов или материалов с более высоким Z для окон измерительных ячеек для образцов, что представляет собой важный практический вопрос при измерениях на производстве. Наконец, для измерений по К-краю имеет место большая гибкость при использовании дискретных источников гамма-излучения.

9.4.6 Источники излучения

Самым универсальным источником излучения является непрерывный спектр тормозного излучения, создаваемый рентгеновским генератором. Интенсивность этого источника можно менять с целью оптимизации скорости счета для различных геометрий, концентраций и толщин образца.

Напряжение рентгеновского генератора (которое определяет энергетический диапазон анализа) можно настраивать, а спектр специально подбирать для анализа конкретных элементов. Кроме того, можно минимизировать матричные эффекты путем экстраполяции измеренных коэффициентов пропускания к краю поглощения. Для долговременной надежной работы в энергетических диапазонах как К-краев, так и L_{III} -краев, доступны коммерческие устройства с высокостабильными источниками питания и рентгеновскими трубками, имеющими большой срок службы.

В нескольких измерительных устройствах было успешно продемонстрировано применение дискретных линий гамма-излучения, которые окружают край поглощения, являющихся альтернативой непрерывным источникам излучения пропускания. Эта методика подходит для анализа по К-краю. Дискретные гамма-кванты не подходят в качестве первичного излучения в энергетическом диапазоне L_{III} -края. Это зависит от доступности относительно медленно распадающихся радиоизотопов, которые испускают гамма-кванты с соответствующими энергиями и достаточными интенсивностями. Например, удобной комбинацией для анализа плутония по К-краю ($E_K = 121,8$ кэВ) является гамма-излучение с энергией 121,1 кэВ от ^{75}Se (период полураспада 120 дней) и гамма-излучение с энергией 122,1 кэВ от ^{57}Co (период полураспада 270 дней). Близость обоих значений энергий к краю поглощения плутония минимизирует эффекты матрицы и повышает чувствительность анализа [1]. Из-за разных периодов полураспада требуются точные поправки на радиоактивный распад или частые измерения неослабленных интенсивностей I_0 . Применение ^{169}Yb (период полураспада 32 дня) для анализа урана по К-краю [2, 3] обладает тем преимуществом, что не требуется поправка на распад, поскольку оба гамма-кванта идут от одного и того же источника. Однако большая разница в значениях энергий ($E_L = 109,8$ кэВ, $E_K = 115,6$ кэВ, $E_U = 130,5$ кэВ) приводит к большей чувствительности к матрице (большой $\Delta\mu_m$) и меньшей чувствительности анализа (меньший $\Delta\mu$). Кроме того, чтобы поддерживать приемлемую счетную статистику, источник должен часто заменяться вследствие короткого периода полураспада ^{169}Yb . Методика экстраполяции, рассматриваемая в разделе 9.4.4, особенно эффективна для снижения чувствительности к матрице. Подробное обсуждение удобных радиоактивных источников для плотнометрии по краю поглощения приведено в [1]. Несколько вариантов конфигураций этих двух основных источников излучения обсуждаются в [12].

9.5 МОНОЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ПЛОТНОМЕРЫ

Для анализа ядерных материалов в растворе и в топливных стержнях реактора применялось измерение коэффициента пропускания фотонов с одной энергией при использовании детекторов низкого разрешения. В этих измерительных устройствах применяются источники низкоэнергетического гамма-излучения с целью минимизации отношения μ_0/μ (см. уравнение (9.3)) и, таким образом, снижения чувствительности к изменениям в матрице с низким Z .

В одном из измерительных устройств используется источник излучения ^{241}Am , установленный в центре круглой измерительной ячейки, содержащей раствор ЯМ [13, 14]. Ячейка окружена пластмассовым сцинтиллятором с 4π -геометрией. Устройство отделяет пропускаемое гамма-излучение с энергией 60 кэВ от фонового излучения образца путем модулирования источника с вращающейся щелевой вольфрамовой защитой. Разработанный для анализа высоких концентраций ЯМ (>200 г/л), этот прибор чувствителен к изменениям концентрации ядерного материала в 1 % с доверительной вероятностью 95 %.

Моноэнергетические плотномеры используются для определения плотности ядерных материалов в таблетированных и спрессованных керамических топливных элементах [15]. Гамма-кванты ^{171}Tm с энергиями 67 и 76 кэВ и гамма-кванты ^{170}Tm с энергией 84 кэВ регистрируются детектором NaI(Tl) диаметром 2,5 см.

Для получения профиля плотности ядерного материала суммарные сигналы детектора подсчитываются в многоканальном пересчетном режиме по мере того, как сканируются топливные элементы. Чувствительность прибора к ядерным материалам равна $0,2 \text{ г/см}^3$ при доверительной вероятности 95 %.

9.6 ДВУХЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ПЛОТНОМЕРЫ

Двухэнергетическая плотнометрия применяется для твердых веществ (топливных элементов) и растворов. Используются гамма-спектрометры высокого и низкого разрешения, которые применяются для анализа компонентов с высоким и низким Z , а также для анализа двух компонентов с высоким Z .

Двухэнергетический плотномер используется для определения плотностей компонентов с низким Z (кремний и углерод) и с высоким Z (торий и уран) в топливных таблетках высокотемпературного реактора с газовым охлаждением [16 и 17]. Источник излучения обеспечивает гамма-излучение с двумя сильно отличающимися энергиями (122 кэВ от ^{57}Co и 1173 и 1332 кэВ от ^{60}Co), так что чувствительность к двум компонентам базируется на разных коэффициентах наклона зависимости μ от E при низких и высоких Z . В этом случае применяется уравнение (9.9). Спеченные топливные таблетки, содержащие от 92 до 95 % тория и от 5 до 8 % ^{238}U с весовым отношением компонентов с низким Z относительно тяжелых элементов, находящимся в диапазоне от 1,6 до 2,4, анализировались с временами измерения 2 мин. Чувствительность к изменениям в весе каждого компонента составила 3 % или лучше при доверительной вероятности 95 %.

Двухэнергетическая плотнометрия растворов также применяется для анализа двух ЯМ компонентов путем измерения коэффициентов пропускания при двух низких энергиях гамма-излучения [18, 19]. Энергии пропускаемого излучения выбирались таким образом, чтобы охватить L-края поглощения компонента с более высоким Z (элемент 2) и чтобы в уравнении (9.8) выполнялись условия: $\mu_1^1 > \mu_1^2$ и $\mu_2^1 = \mu_2^2$. Таким образом, уравнение (9.8) можно решить, получив концентрацию элемента 1 независимо от элемента 2:

$$\rho_1 = \left(\frac{1}{\Delta\mu_1 x} \right) \ln \left(\frac{T_1}{T_2} \right), \quad (9.23)$$

где $\Delta\mu_1 = \mu_1^1 - \mu_1^2$. Затем измеренные величины T_2 и ρ_1 используются для получения концентрации элемента 2:

$$\rho_2 = \left(\frac{\ln T_2}{\mu_2^2} \right) - \frac{\rho_1 \mu_1^2}{\mu_2^2}. \quad (9.24)$$

Двухэнергетическая плотнометрия применяется к анализу тория и урана с использованием вторичных источников рентгеновского излучения K_α -серии ниобия и йода (с энергиями 16,6 и 28,5 кэВ, соответственно), возбуждаемого источником ^{241}Am активностью 100 мКи. Это рентгеновское излучение охватывает L-края урана. Однако энергия 16,6 кэВ находится как раз над L_{III} -краем поглощения тория (16,3 кэВ). Измерения проводились с использованием гамма-спектрометрии низкого [18] и высокого разрешения [19]. В экспериментах с высоким разрешением использовались эталонные растворы, содержащие смеси тория и урана

с полными концентрациями ядерных материалов в диапазоне от 35 до 70 г/л. В диапазоне $0,25 \leq \rho_{\text{Th}}/\rho_{\text{U}} \leq 4,0$ относительная погрешность анализа концентраций тория и урана составила 1 % или лучше для времени измерения 4000 с.

9.7 ПЛОТНОМЕРЫ ПО КРАЮ ПОГЛОЩЕНИЯ

Анализ растворов урана и плутония с помощью методики плотнометрии по краю поглощения был продемонстрирован в полевых испытаниях нескольких измерительных устройств, которые осуществляли измерения по К-краю или L_{III} -краю. Устройства были разработаны для применений в технологических процессах извлечения ЯМ из растворов скрапа или переработки. В каждом измерительном устройстве используется гамма-спектрометр высокого разрешения (обычно с детектором из особо чистого германия (ОЧГ) для анализов по К-краю и Si(Li) — для анализов по L_{III} -краю) и многоканальный анализатор на базе процессора. Погрешность измерения, достигаемая в каждом случае, приближается к статистически прогнозируемому значению, обычно равному 0,5 % или менее для коротких времен измерения (≤ 30 мин).

Источники излучения, используемые в измерительных системах по К-краю, представляют собой источники дискретного гамма-излучения или источники непрерывного тормозного излучения (рентгеновского излучения). Для дискретного анализа урана по К-краю используются гамма-кванты ^{169}Yb с энергиями 109,8 и 130,5 кэВ, а для дискретного анализа плутония по К-краю — гамма-кванты ^{75}Se и ^{57}Co с энергиями 121,1 и 122,1 кэВ. В измерительных системах по L_{III} -краю используются только рентгеновские генераторы.

Анализ по краю поглощения основан на уравнении (9.12). Точность анализа (уравнение (9.14)) зависит от нескольких переменных, включая $\Delta\mu$, x , концентрацию раствора, время измерения и интенсивность падающего пучка. Поэтому удобно при сравнении разных измерительных систем использовать параметр характеристической концентрации $\rho_c = (1/\Delta\mu x)$ для каждой измерительной системы. Относительная погрешность измерительной системы определяется как погрешность, измеренная за фиксированное время измерения при оптимальной концентрации, которая представляет собой концентрацию, для которой относительная погрешность $[\sigma(\rho)/\rho]$ является минимальной (см. рис. 9.5 и 9.6).

В табл. 9.4 и 9.5 перечислены плотномеры по К-краю и L_{III} -краю, которые подверглись полевым испытаниям. Для каждого измерительного устройства приводится характеристическая концентрация ρ_c и оптимальная концентрация $\rho_{\text{опт.}}$, определенная эмпирическим путем (указана в скобках под ρ_c). В таблицах указаны растворы, использованные для получения данных, и представлены измеренные погрешности при оптимальных концентрациях и заданных временах измерения. Подробное обсуждение измерительных устройств, перечисленных в табл. 9.4 и 9.5, представлено в разделах 9.7.1 и 9.7.2.

9.7.1 Плотномеры по К-краю поглощения

Ниже приведены описания нескольких плотномеров по К-краю, которые испытывались и аттестовывались в реальных или в модельных производственных условиях эксплуатации. В табл. 9.4 сведены рабочие характеристики приборов.

Таблица 9.4 – Плотномеры по К-краю поглощения

Место испытаний	ρ_c ($\rho_{\text{опт.}}$), г/л	Ядерный материал	Тип раствора	Погреш- ность $1\sigma, \%$	Время измере- ния, с	Лите- ратура
1. Лос-Аламос	135 (300)	U	БОУ из ВС*, смеш.	0,5	1000	[12, 20, 21]
2. Ок-Ридж, завод Y-12	55 (100)	U	БОУ из ВС*, смеш.	0,5	600	[22, 23]
3. Барнуэлл, AGNS	80 (200)	Pu	Приготов- ленный (свежий, выдержан- ный)	0,2	1200	[12, 24, 25]
4. Токай (Япония), PNC	150 (300)	Pu	Продукт с ЗП** (свежий, выдержан- ный)	0,2	2000	[12, 26, 27, 28]
5. Саванна-Ривер, SRP	40 (60)	Pu	Продукт с ЗП** (свежий)	0,2	2000	[5, 12, 29]
6. Сейберсдорф (Австрия), МАГАТЭ (портативный)	150 (300)	Pu	Приготов- ленный	0,3	500	[30]
7. Карлсруэ (ФРГ), центр KfK (непрерывный источник)	150 (300)	U	Приготов- ленный	0,2	1000	[12, 31, 32]
		Pu	Продукт с ЗП**	0,2	1000	
		U(+Pu)	Исходный продукт с ЗП** U:Pu = 3:1	0,2	1000	33
		Pu(+U)		1,0	1000	

*ВС — восстановленный скрап.

**ЗП — завод по переработке топлива.

Таблица 9.5 – Плотномеры по L_{III} -краю поглощения

Место испытаний	ρ_c ($\rho_{\text{орг.}}$), г/л	Ядерный материал	Тип раствора	Погрешность 1σ , %	Время измерения, с	Литература
1. Саванна-Ривер, SNL	16 (50)	U или Pu	Продукт с ЗП*	0,3	1000	[12, 21, 34]
		U(+Pu)	[Продукт с ЗП* U:Pu = 2:1]	0,2	2000	
		Pu(+U)		1,0	2000	
2. Аргонн, NBL	16 (50)	U или Pu	Приготовленный	0,3	1000	[35]
		U(+Pu)	[приготовленный U:Pu = 2:1]	0,2	2000	
		Pu(+U)		0,9	2000	
3. Барнуэлл, AGNS	19 (55)	U	Уран природного обогащения (проточный)	0,7	250	[36]
4. Лос-Аламос (компактный)	16 (60)	U	Уран природного обогащения	0,2	1000	[37]

*ЗП — завод по переработке топлива

1. Лос-Аламосская национальная лаборатория [12, 20, 25]. Лос-Аламосская система анализа растворов урана USAS (Uranium Solution Assay System) представляет собой гибридное измерительное устройство, используемое в автономном режиме на Лос-Аламосской установке по восстановлению скрапа высокообогащенного урана (BOU). Измерительная головка USAS показана на рис. 9.8 и 9.9.

В системе USAS для анализа концентраций урана в образцах растворов урана объемами 20 или 30 мл (в одноразовых пластмассовых ампулах для образцов) в трех диапазонах концентраций используются три разных гамма-метода. Растворы отходов с концентрациями урана от 0,001 до 0,5 г/л измеряются в течение 2000 с без поправки на коэффициент пропускания. Технологические растворы с концентрациями в диапазоне от 1 до 50 г/л измеряются с использованием источника излучения ^{169}Yb . Диапазон наивысших концентраций от 50 до 400 г/л, соответствующий технологическим растворам, анализируется методом по К-краю с применением источника излучения ^{169}Yb . Используя времена измерения от 400 до 2000 с, можно достичь погрешностей анализа от 0,7 до 1,5 %.

Результаты анализа используются для контроля технологического процесса и учета ядерных материалов. Измерительная система эксплуатировалась на установке по восстановлению скрапа с января 1976 г. по август 1984 г., когда установка была закрыта.



Рис. 9.8. Измерительная головка системы USAS

2. Ок-Риджский завод Y-12 [22, 23]. На установке по восстановлению скрапа высокообогащенного урана (BOY) на Ок-Риджском заводе Y-12 используется система анализа растворов SAS (Solution Assay System), аналогичная USAS. Для анализа образцов растворов урана объемом 50 мл в диапазоне концентраций от 50 до 200 г/л используется метод анализа по К-краю. В состав образцов входит определяемый продукт, но состав обычно не ограничен только им. В системе SAS используется источник излучения ^{169}Yb и одноразовые пластмассовые ампулы с пробами. Система запущена в эксплуатацию на заводе Y-12 в октябре 1981 г. для контроля технологического процесса и учета ядерных материалов.

3. Объединенные ядерные службы AGNS (Allied General Nuclear Services) [12, 24, 25]. Плотномер по К-краю с дискретным источником был аттестован для анализа плутония на установке AGNS в Барнуэлле, штат Южная Каролина, в 1977-1978 гг. Гибридное измерительное устройство выполняло пассивные измерения гамма-излучения и измерения по К-краю на приготовленных образцах растворов типичного плутония легководных реакторов объемом 10 мл в стационарных кварцевых ячейках для образцов. Источник излучения — комбинация ^{75}Se и ^{57}Co . Были представлены результаты для ячеек с разной длиной пути прохождения излучения (толщиной ячейки).

4. Корпорация энергетических реакторов и разработки ядерного топлива PNC (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) [12, 26-28]. Плотномер по К-краю с дискретным источником работает в аналитической лаборатории перерабатывающего завода Токай-Мура при "Корпорации энергетиче-

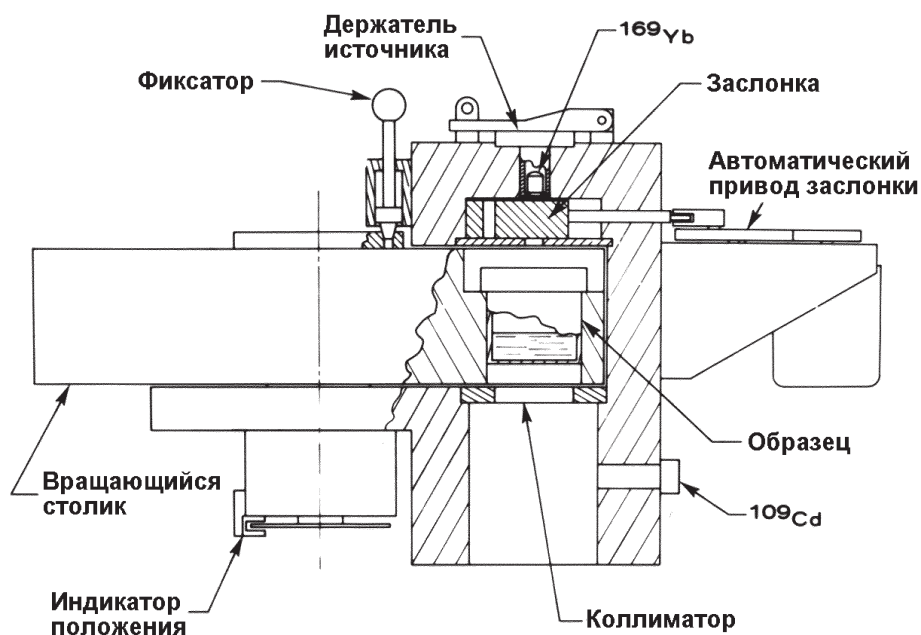


Рис. 9.9. Масштабированный чертеж измерительной головки системы USAS. Толщина раствора на пути прохождения излучения равна 2 см

ских реакторов и разработки ядерного топлива" в Японии. Образцы растворов свежевыделенного и выдержанного плутония, являющегося продуктом переработки топлива реакторов на кипящей воде и с водой под давлением, анализируются с помощью метода по К-краю в двухциклическом анализе (сначала с источником излучения ^{75}Se , затем — ^{57}Co). На рис. 9.10 показано расположение измерительной станции под перчаточным боксом в заводской лаборатории Токай-Мура. Рис. 9.11 представляет собой масштабированный чертеж измерительной головки, которая включает в себя колодец, спускающийся вниз от пола перчаточного бокса. Прибор выполняет анализ изотопов свежих растворов в третьем цикле. Образцы растворов анализируются в колодце, который является продолжением перчаточного бокса. Детектор гамма-излучения и источники излучения находятся снаружи перчаточного бокса. Ячейки для образцов представляют собой одноразовые пластмассовые ампулы, в которые помещается приблизительно 10 мл раствора.

Токайская измерительная система была установлена в ноябре 1979 г. и эксплуатировалась в течение 1980 г. в режиме аттестации. С начала 1981 г. измерительная система перешла в обычную эксплуатацию. На рис. 9.12 представлен график разности в процентах между результатами анализа по К-краю и эталонными значениями (из разрушающего анализа), полученными в течение 1981 г. во время текущего использования на установке [28]. Плотномер был допущен для использования установкой с 1982 г. после аттестации инспекторами МАГАТЭ.

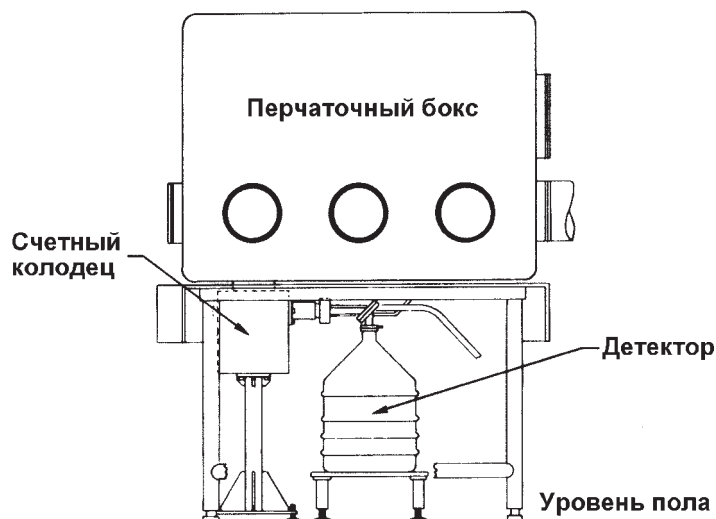


Рис. 9.10. Измерительная станция плотнмера по К-краю из Токай-Мура под лабораторным перчаточным боксом

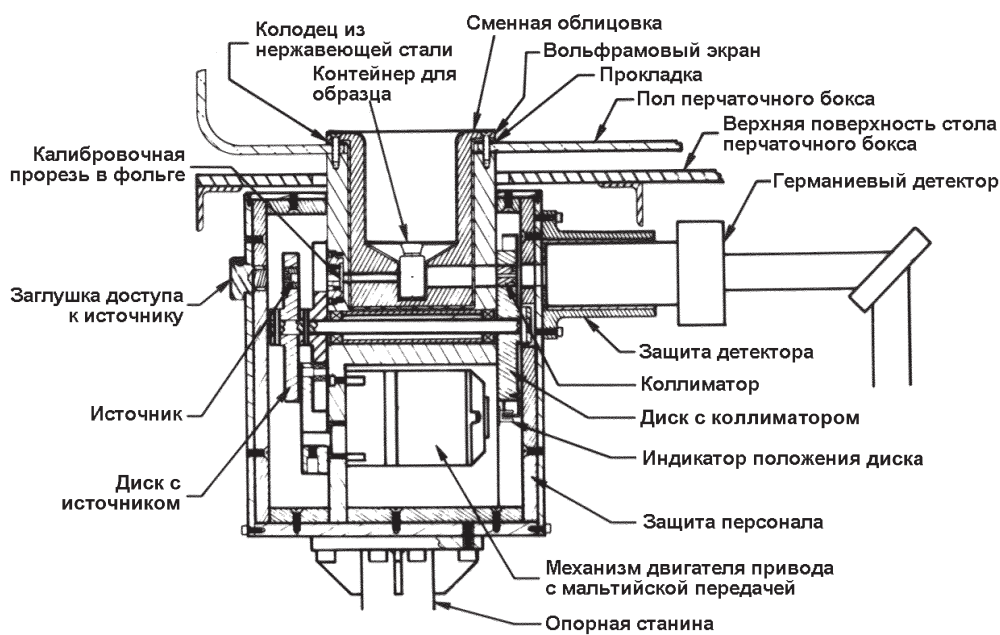


Рис. 9.11. Масштабированный чертеж измерительной головки плотнмера по К-краю из Токай-Мура. Толщина раствора на пути прохождения излучения равна 2 см

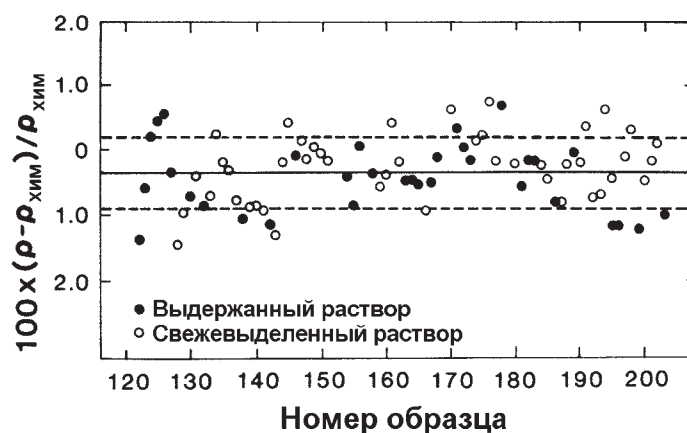


Рис. 9.12. Разность в процентах между результатами анализа по К-краю и разрушающего анализа по определению концентрации плутония, построенная в виде функции идентификационного номера образца. Сплошная линия представляет средний относительный результат, равный 0,36 %. Это очевидное смещение является результатом градуировки (в 1979 г.) с использованием лишь небольшого числа стандартных образцов [27]

5. Завод в Саванна-Ривер SRP (Savannah River Plant) [5, 12, 29]. Плотномер по К-краю с дискретным источником для растворов плутония был разработан для производственных испытаний на заводе в Саванна-Ривер. Проточная кювета из нержавеющей стали была установлена в обводную петлю на резервуарах для хранения технологических растворов и находилась в выступе технологического герметизированного отсека. Детектор и источники излучения размещались снаружи герметизированного отсека на обеих сторонах выступа для измерения коэффициента пропускания гамма-излучения через кювету, наполненную раствором. Рис. 9.13 представляет собой подробное изображение измерительной станции для этого плотномера. На рис. 9.14 представлена установка измерительной системы на технологических трубопроводах. Измерения проводились на статическом растворе объемом 100 мл после циркуляции раствора в резервуаре через отводную петлю (свежевыделенный плутоний в растворах производится во время переработки топлива низкого выгорания). Измерения коэффициента пропускания по К-краю проводились в два цикла, как и в Токайской измерительной системе, а в третьем цикле определялся изотопный состав плутония. Измерительная система также использовалась для исследования измерений концентрации плутония в присутствии примесей урана. К растворам с отношением урана к плутонию выше чем 2:1, применялась процедура экстраполяции, описанная в разделе 9.4.4 [5]. Автономное тестирование измерительной системы проходило на заводе с апреля 1980 г. по декабрь 1981 г. На рис. 9.6 (см. раздел 9.4.2) представлен график погрешности измерения в зависимости от концентрации (в диапазоне от 5 до 200 г/л), полученный при этих испытаниях [5]. Производственные испытания начались в декабре 1982 г. и закончились в июне 1983 г.

6. Аналитическая лаборатория гарантий Международного агентства по Атомной энергии (МАГАТЭ) [30]. Портативный плотномер по К-краю был раз-

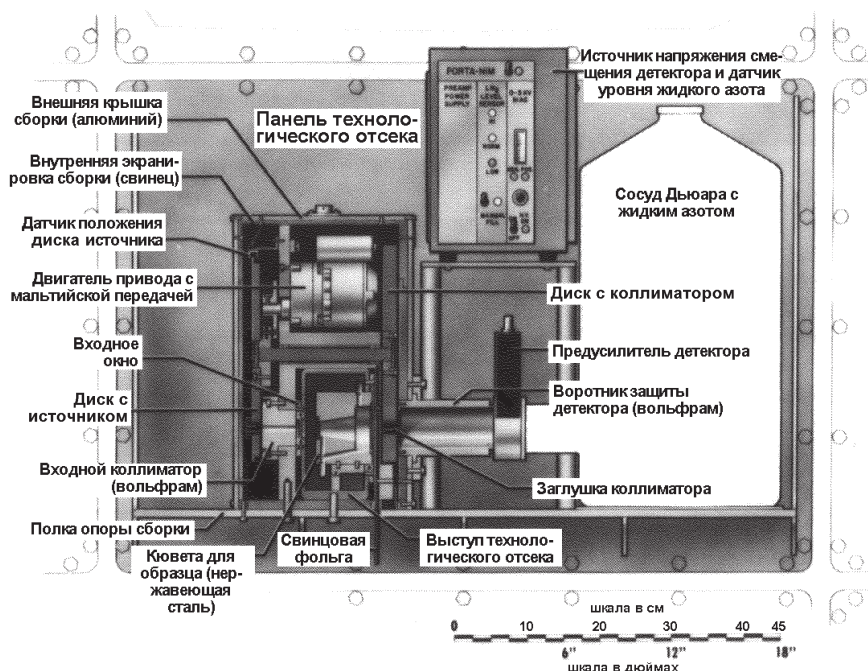


Рис. 9.13. Измерительная станция для плотномера SRP на потоке растворов плутония. Механизм размещения диска с источником и диск с коллиматором (показан слева) охватывают с двух сторон выступ технологического отсека таким образом, что кювета для образца (внутри технологического герметизированного отсека) находится между источниками излучения и детектором, в стандартной геометрии измерения коэффициента пропускания. Толщина кюветы равна 7 см

работан для проведения испытаний в качестве инспекционного инструмента для подтверждения подлинности концентраций образцов плутония внутри перчаточных боксов. Плотномер состоит из корпуса, который поддерживает и защищает детектор и источники излучения пропускания, и портативного многоканального анализатора, оснащенного электроникой для обработки аналогового сигнала. Корпус скользит внутри перчатки перчаточного бокса таким образом, чтобы образец раствора плутония в одноразовой пластмассовой ампуле мог быть установлен и закреплен в держателе между детектором и источником излучения для двухциклического анализа по К-краю. На рис. 9.15 и 9.16 показана измерительная головка портативной измерительной системы по К-краю, вставленная в перчатку перчаточного бокса.

Портативный плотномер испытывался в аналитической лаборатории гарантий МАГАТЭ в Сейберсдорфе (Австрия) с ноября 1983 г. Второй прибор планируется использовать для полевых испытаний инспекторами МАГАТЭ в Японии.

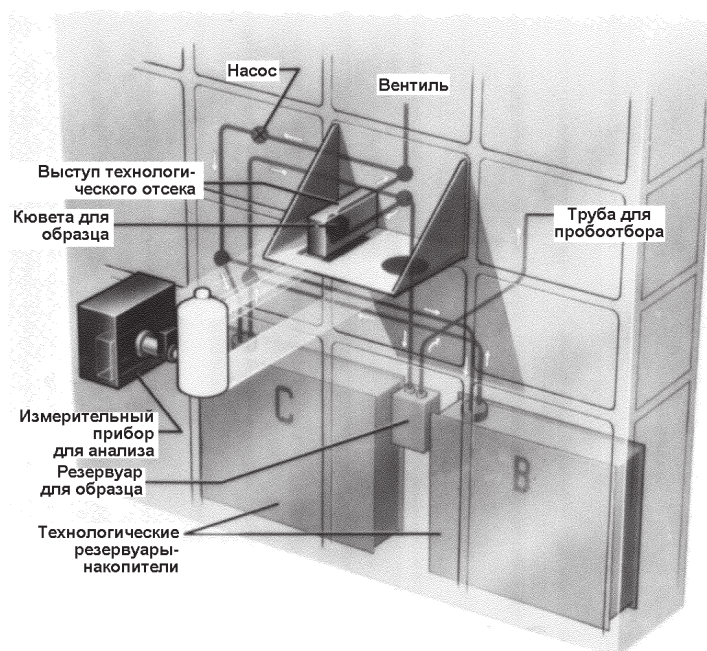


Рис. 9.14. Установка SRP плотномера на потоке растворов плутония. Обводная петля трубопровода подает раствор плутония от одного из резервуаров-накопителей к измерительной кювете. Имеется приспособление для слива содержимого кюветы в промежуточный резервуар, чтобы только что проанализированные образцы материала могли быть изъяты для автономной проверки методами разрушающего анализа

7. Исследовательский ядерный центр в Карлсруэ KfK (Kernforschungszentrum Karlsruhe) [12, 31-33]. Плотномер по К-краю с непрерывным источником излучения испытывался в исследовательском ядерном центре в Карлсруэ, в Федеративной Республике Германии (ФРГ) с 1978 г. Детектор и источник рентгеновского излучения размещены снаружи перчаточного бокса, а образцы и коллиматоры находятся внутри перчаточного бокса. Измерительная система используется для анализа концентраций урана и плутония в растворах продуктов переработки и поступающих на переработку растворах топлива реактора-размножителя на быстрых нейтронах. Гибридная модификация этой измерительной системы использовалась для проведения анализа поступающих на переработку растворов топлива реактора на легкой воде, в которых содержание плутония составляет приблизительно 1% от содержания урана. Непрерывный источник излучения служил как в качестве источника излучения для анализа урана по К-краю, так и в качестве источника флюоресценции для рентгенофлюоресцентного анализа отношения концентрации плутония к концентрации урана. Интенсивность излучения непрерывного источника предусматривает сильную коллимацию образца, необходимую для анализа по К-краю и рентгенофлюоресцентного анализа, при существенном уменьшении скорости пассивного счета от образцов, содержащих высокие концентрации продуктов деления.

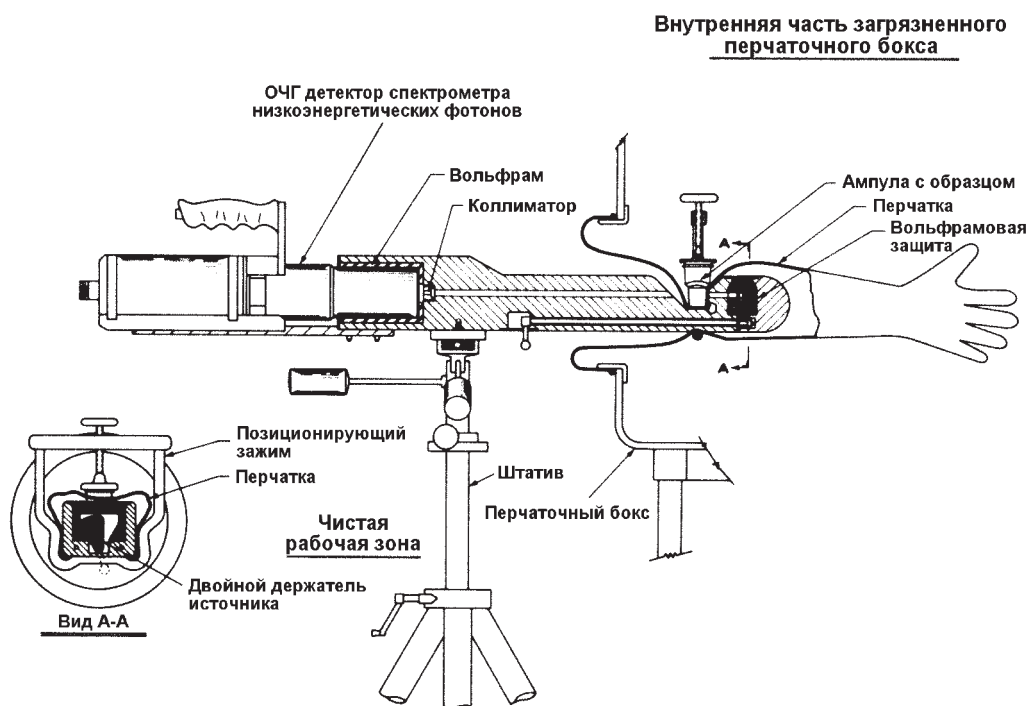


Рис. 9.15. Масштабированный чертеж измерительной головки портативного плотномера по К-краю, вставленной в перчатку перчаточного бокса. Толщина ячейки для образца на пути прохождения излучения равна 2 см

На рис. 9.17 представлен чертеж измерительной головки гибридной измерительной системы. На рис. 9.18 показан плотномер по К-краю в Карлсруэ.

9.7.2 Плотномеры по L_{III} -краю поглощения

Ниже приводятся описания нескольких плотномеров по L_{III} -краю, которые прошли испытания и аттестацию в реальных или смоделированных внутризаводских условиях эксплуатации. Первые три описанных плотномера по L_{III} -краю были разработаны одинаковыми как в механической, так и в электронной части. Фотография измерительной системы AGNS (рис. 9.19) представляет все три измерительные системы. На рис. 9.20 приведен чертеж измерительной головки для всех трех систем. Характеристики этих измерительных систем содержатся в табл. 9.5.

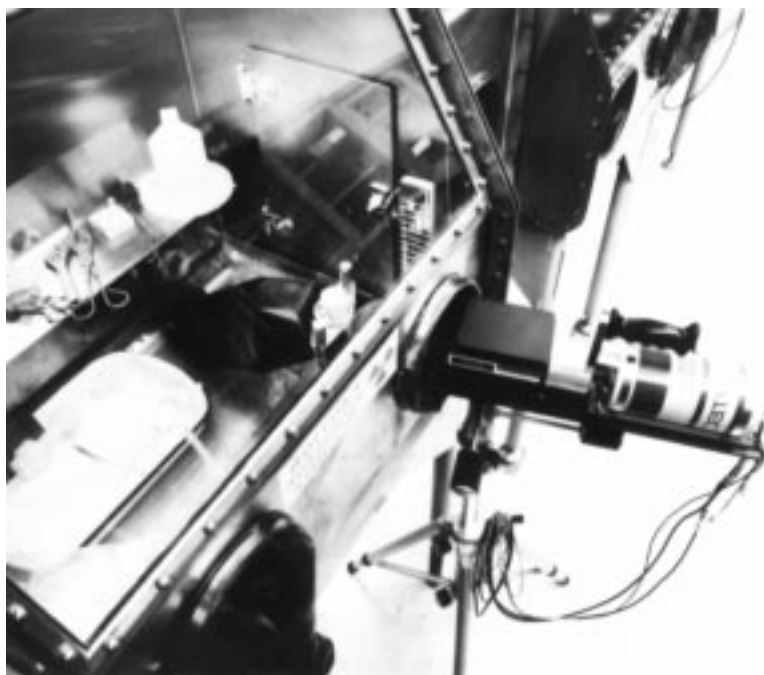


Рис. 9.16. Портативный плотномер по К-краю, установленный для проведения измерений

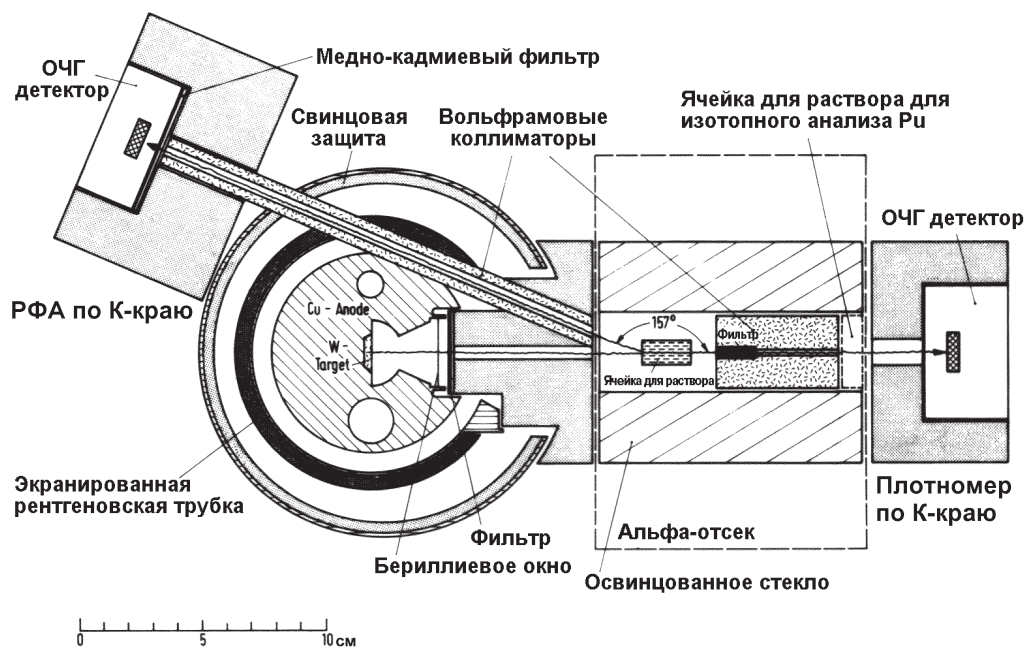


Рис. 9.17. Поперечный разрез комбинированной системы К/К по К-краю и РФА. Размер альфа-отсека стандартного перчаточного бокса показан не в масштабе. Толщина ячейки для образца на пути прохождения излучения равна 2 см



Рис. 9.18. Плотномер KfK по К-краю, аттестуемый по программе ФРГ поддержки МАГАТЭ

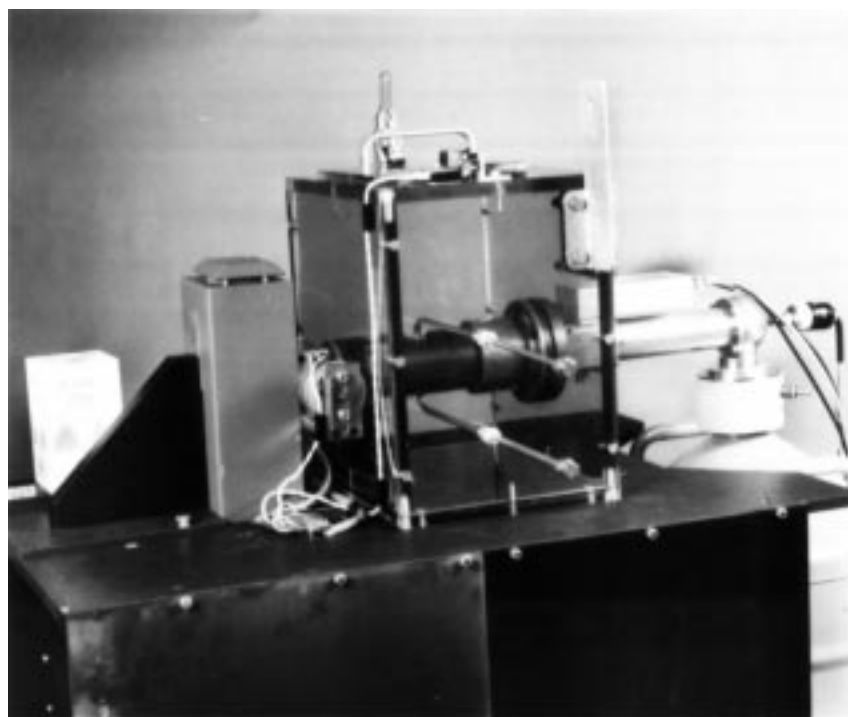


Рис. 9.19. Плотномер AGNS по L_{III} -краю. Слева направо показаны электроника внутри защитного кожуха, измерительная станция и терминал для распечатки

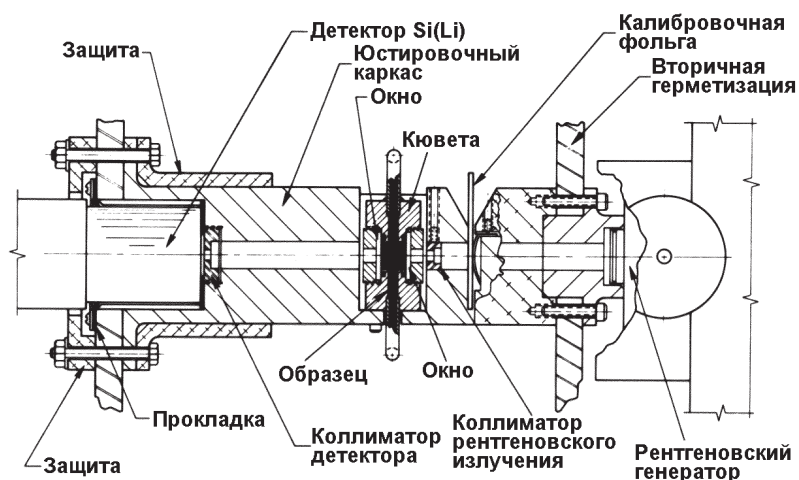


Рис. 9.20. Масштабированный чертеж измерительной головки плотномера по L_{III} -краю для измерительных систем SRL, NBL и AGNS. Проточная кювета показана обрезанной со стороны входной и выходной труб. Закрашенная область показывает раствор в кювете (длина пути прохождения излучения равна 1 см). Материалами для вторичной герметизации, защиты, каркаса, кюветы для образца и коллиматора являются поликарбонат (LexanTM), нержавеющая сталь, алюминий, нержавеющая сталь (с окнами Kel-FTM) и латунь, соответственно

1. Саванна-Риверская лаборатория SRL (Savannah River Laboratory) [12, 21, 34]. Плотномер по L_{III} -краю в Саванна-Риверской лаборатории испытывался вместе с демонстрационной установкой для переработки растворов. Проточная кювета из нержавеющей стали (подогнанная к пластмассовым окнам) была установлена в перчаточном боксе, в котором размещалось устройство совместной обработки, таким образом, чтобы раствор из разных точек технологического процесса мог быть введен в ячейку для анализа по L_{III} -краю либо урана, либо плутония, либо обоих вместе. Прибор измерял статические растворы объемом 15 мл в кювете; перед каждым анализом прибор несколько раз промывался раствором. Графики зависимости погрешности анализа, полученной для растворов чистого урана или плутония, от концентрации показаны на рис. 9.21. Система эксплуатировалась на заводе в Саванна-Ривер с 1978 г. по 1980 г.

2. Нью-Брансвикская лаборатория NBL (New Brunswick Laboratory) [35]. Плотномер по L_{III} -краю в Нью-Брансвикской лаборатории Министерства энергетики США в Аргонне был разработан для воспроизведения геометрии измерения и метода анализа измерительной системы Саванна-Риверской лаборатории. Для тщательно контролируемой оценки сходимости и погрешности этой измерительной системы использовались специально приготовленные эталонные растворы урана, плутония и их смеси. На рис. 9.22 сравниваются результаты анализа NBL с эталонными значениями для чистых урановых растворов. Чувствительность к загрязнению матрицы элементами с низким, средним и высоким атомным номером Z проверялась для уровней загрязнения до 10 % по весу ядерного материала. Эта аттестация проходила с 1980 г. по 1981 г.

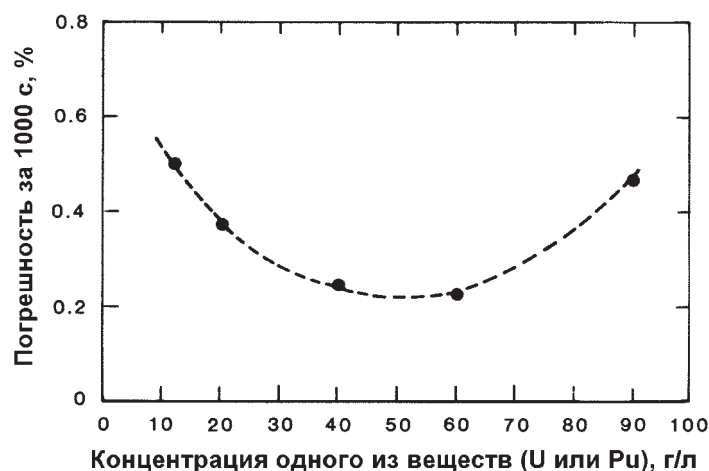


Рис. 9.21. График зависимости погрешности (1σ), полученной измерительной системой SRL за время анализа урана или плутония по L_{III} -краю, равное 1000 с, от концентрации. Пунктирная линия представляет собой стандартное отклонение, рассчитанное на основе счетной статистики с использованием уравнения (9.14)

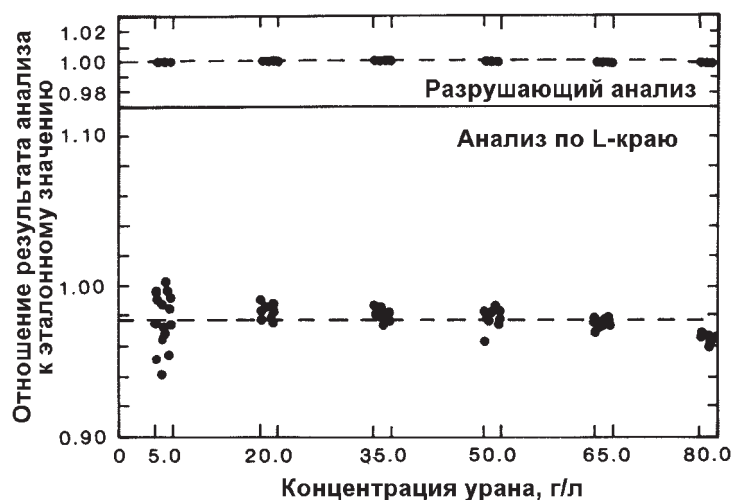


Рис. 9.22. Сравнение результатов анализа по L_{III} -краю за 1000 с образцов растворов, введенных в кювету для образца системы NBL, с результатами разрушающего анализа. Группы из трех точек данных, построенных вертикально, представляют результаты повторных анализов одного и того же образца. Эти данные использовались для градуировки системы NBL

3. Объединенные ядерные службы AGNS (Allied General Nuclear Services) [36]. Плотномер по L_{III} -краю, разработанный для проведения непрерывного анализа концентрации урана в протекающих технологических растворах, испытывался в 1981 г. на Барнуэллской установке AGNS. Проточная кювета из нержавеющей стали была вставлена в трубу, которая непрерывно отбирала пробы потока продукта из экстракционной колонны. Измерительная система работала в течение семи дней без перерыва, выдавая каждые 5 мин результаты измерения кон-

центрации урана и анализируя протекающий раствор от начального уровня (обычно нулевая концентрация урана) до установившегося уровня приблизительно в 40 г/л. Измерительная система автоматически обеспечивала распечатку результатов измерения в реальном масштабе времени компьютера контроля и учета материалов, запрограммированного для подведения баланса материалов в реальном масштабе времени путем снятия показаний с оборудования контроля технологического процесса.

4. Лос-Аламосская национальная лаборатория [37]. Компактный плотномер по L_{III} -краю был испытан в 1984 г. в Лос-Аламосе в группе Q-1 лаборатории гарантий. В этом приборе использовался промышленный генератор рентгеновского излучения, разработанный для портативных применений. На рис. 9.23 по-

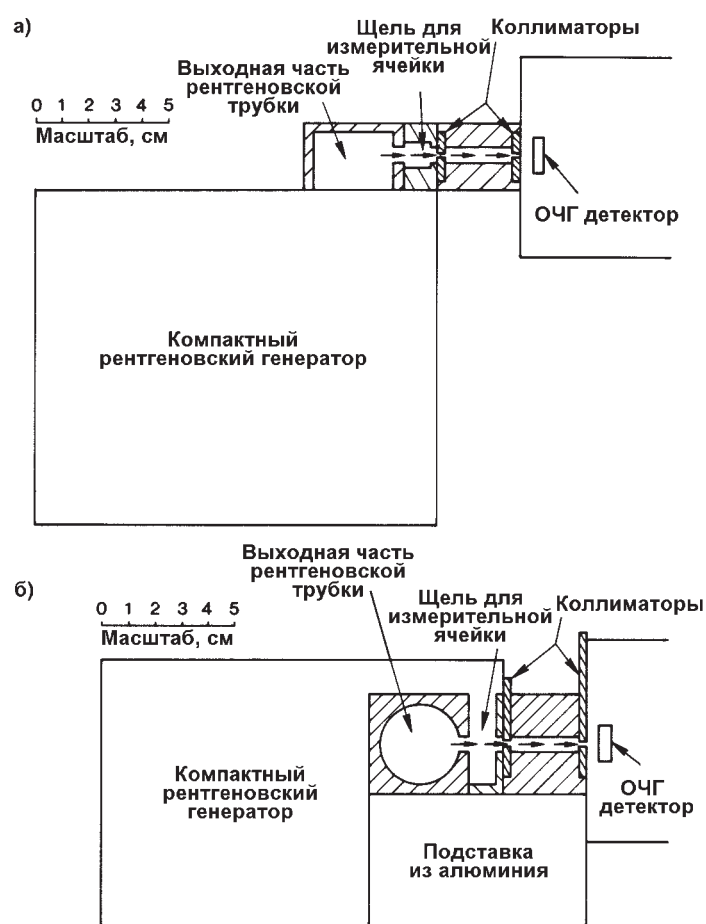


Рис. 9.23. Масштабированный чертеж измерительной головки компактного плотнера по L_{III} -краю: (а) вид сверху в горизонтальной плоскости пути пропускания рентгеновского излучения; (б) вид сбоку. Толщина раствора на пути пропускания равна 1 см

казана измерительная головка плотномера. Хотя для обработки аналогового сигнала, сбора и анализа данных использовался стандартный блок электроники, в Лос-Аламосском плотномере по L-краю мог бы использоваться и портативный многоканальный анализатор, используемый в компактном плотномере по K-краю в Сейберсдорфе (см. раздел 9.7.1). Это позволяет проводить измерения по L_{III}-краю с использованием портативных приборов. Функционирование компактного плотномера с приготовленными эталонными растворами урана было аналогично работе измерительной системы по L_{III}-краю, испытанной ранее.

ЛИТЕРАТУРА

1. T.R. Canada, J.L. Parker, and T.D. Reilly, "Total Plutonium and Uranium Determination by Gamma-Ray Densitometry," *Transactions of the American Nuclear Society* 22,140 (1975).
2. T.R. Canada, D.G. Langner, and J.W. Tape, "Nuclear Safeguards Applications of Energy-Dispersive Absorption-Edge Densitometry," in *Nuclear Safeguards Analysis*, E.A. Hakkila, Ed. (American Chemical Society, Washington, DC, 1978), Series №.79, p.96.
3. T.R. Canada, S.-T. Hsue, D.G. Langner, D.R. Martin, J.L. Parker, T.D. Reilly, and J.W. Tape, "Applications of the Absorption-Edge Densitometry Technique to Solutions and Solids," *Nuclear Materials Management* 6 (3), 702 (1977).
4. R.L. Bramblett, "Passive and Active Measurements of SNM in 55-Gallon Drums," *Nuclear Materials Management* 4, 137 (1975).
5. H.A. Smith, Jr., T. Marks, S.S. Johnson, L.R. Cowder, J.K. Sprinkle, Jr., C.O. Shonrock, R.W. Slice, D.L. Garcia, K.W. MacMurdo, R.L. Pollard, L.B. Baker, P. Christie, and J.P. Clark, "Test and Evaluation of the In-Line Plutonium Solution K-Absorption-Edge Densitometer at the Savannah River Plant: Phase I, Off-Line Testing," Los Alamos National Laboratory report LA-9124-MS (1982).
6. S.-T. Hsue to R.B. Walton, "Densitometry Design," Los Alamos document Q-1-80-243 (May 1980).
7. L.A. Currie, "Limits for Quantitative Detection and Quantitative Determination," *Analytical Chemistry* 40, 586 (1968).
8. C.E. Crouthamel et al., "A Compilation of Gamma-Ray Spectra (NaJ Detector)," in *Applied Gamma-Ray Spectrometry*, F. Adams and R. Dams, Eds. (Pergamon Press, Braunschweig, Hungary, 1970).
9. T.W. Crane, "Detectability Limits and Precision for Shufflers," Los Alamos National Laboratory report LA-10158-MS (1984).
10. E. Storm and H.I. Israel, "Photon Cross Sections from 0.001 to 100 MeV for Elements 1 through 100," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-3753 (1967).
11. Handbook of Chemistry and Physics, 55th ed., R.C. Weast, Ed. (Chemical Rubber Company Press, Cleveland, Ohio, 1975).
12. P.A. Russo, S.-T. Hsue, D.G. Langner, and J.K. Sprinkle, Jr., "Nuclear Safeguards Applications of Energy-Dispersive Absorption-Edge Densitometry," *Nuclear Materials Management* 9, 730 (1981).

13. F. Brown, D.R. Terry, J.B. Hornsby, R.G. Monk, F. Morgan, J. Herrington, P.T. Good, K.C. Steed, and V.M. Sinclair, "Application of Instrumental Methods to the Determination of Nuclear Fuel Materials for Safeguards," in *Safeguards Techniques*, Proc. IAEA Karlsruhe Symp. (IAEA, Vienna, Austria, July 1970), Vol. II, p. 125.
14. D.R. Terry and A.P. Dixon, "A Portable Gamma Absorptiometer for Safeguards Use in Nuclear Fuel/Reprocessing Plants," Atomic Weapons Research Establishment report AWRE/44/88/28 Cos 28, Aldermaston, England (1975).
15. J.E. Ayer and D.R. Schmitt, "A Gamma-Ray Absorptiometer for Nuclear Fuel Evaluation," *Nuclear Technology* 27, 442 (1975).
16. T. Gozani, H. Weber, and Y. Segal, "A Gamma-Ray Transmission Gauge for Determination of Heavy and Light Metal Loading of Fuel Elements," *Nuclear Materials Management* 2 (3), 139 (1973).
17. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602, (US Nuclear Regulatory Commission, Washington DC, 1981), p. 118.
18. G. Bardone, M. Aparo, and F.V. Frazzoli, "Dual-Energy X-Ray Absorptiometry for the Assay of Mixed Special Nuclear Material in Solution," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 270.
19. M. Aparo, B. Mattia, F.V. Frazzoli, and P. Zeppa, "Dual-Energy X-Ray Absorptiometer for Nondestructive Assay of Mixed Special Nuclear Material in Solution," in *Proc. Fifth Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Versailles, France, April 19-21, 1983 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1983), p. 271.
20. J.K. Sprinkle, Jr., H.R. Baxman, D.G. Langner, T.R. Canada, and T.E. Sampson, "The In-Plant Evaluation of a Uranium NDA System," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control*, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards, Washington, DC, 1980), p. 324.
21. T.R. Canada, J.L. Parker, and P.A. Russo, "Computer-Based In-Plant Nondestructive Assay Instrumentation for the Measurement of Special Nuclear Materials," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Computers in Activation Analysis in Gamma-Ray Spectroscopy*, Mayaguez, Puerto Rico. April 30-May 4, 1978 (US DOE Technical Information Center), p. 746.
22. H.H. Hogue and S.E. Smith, "Off-Line Nondestructive Analysis at a Uranium Recovery Facility," in *Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface*, Proc. American Nuclear Society-INMM Topical Conference, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (Conf. 831106, 1984).
23. H.H. Hogue and S.E. Smith, "Nondestructive Analysis at the Oak Ridge Y-12 Plant," Oak Ridge Y-12 Plant report Y-2297 (1984).
24. K.J. Hofstetter, G.A. Huff, R. Gunnink, J.E. Evans, and A.L. Prindle, "On-Line Measurement of Total and Isotopic Plutonium Concentrations by Gamma-Ray Spectrometry," in *Analytical Chemistry in Nuclear Fuel Reprocessing*,

- W. S. Lyon, Ed. (Science Press, Princeton, New Jersey, 1978), p. 266, and University of California report UCRL-52220 (1977).
25. K.J. Hofstetter and G.A. Huff, "On-Line Isotopic Concentration Monitor," Allied General Nuclear Services report AGNS-1040-2.3-52 (1978).
 26. L.R. Cowder, S.-T. Hsue, S.S. Johnson, J.L. Parker, P.A. Russo, J.K. Sprinkle, Jr., Y. Asakura, T. Fukuda, and I. Kondo, "An Instrument for the Measurement of Pu Concentration and Isotopics of Product Solutions at Tokai-Mura," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 119.
 27. P.A. Russo, S.-T. Hsue, J.K. Sprinkle, Jr., S.S. Johnson, Y. Asakura, I. Kondo, J. Masui, and K. Shoji, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Fractions in Product Solutions," Los Alamos National Laboratory report LA-9440-MS (1982).
 28. Y. Asakura, I. Kondo, J. Masui, K. Shoji, P.A. Russo, S.-T. Hsue, J.K. Sprinkle, Jr., and S.S. Johnson, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Abundances in Product Solutions at the Tokai Reprocessing Plant," *Nuclear Materials Management II*, 221 (1982).
 29. H.A. Smith, Jr., T. Marks, L.R. Cowder, C.O. Shonrock, S.S. Johnson, R.W. Slice, J.K. Sprinkle, Jr., K.W. MacMurdo, R.L. Pollard, and L.B. Baker, "Development of In-Line Plutonium Solution NDA Instrumentation at the Savannah River Plant," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 123.
 30. L.R. Cowder, S.F. Klosterbuer, R.H. Augustson, A. Esmailpour, R. Hawkins, and E. Kuhn, "A Compact K-Edge Densitometer," in *Proc. Sixth Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Venice, Italy, May 14-18, 1984 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1984), p. 261.
 31. H. Eberle, P. Matussek, H. Ottmar, I. Michel-Piper, M.R. Iyer, and P.P. Chakraborty, "Nondestructive Elemental and Isotopic Assay of Plutonium and Uranium in Nuclear Materials," *Nuclear Safeguards Technology 1978* (International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1979), Vol. II, p. 27.
 32. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, and H. Ottmar, "Assay of Uranium and Plutonium in Solution by K-Edge Photon Absorptiometry Using a Continuous X-Ray Beam," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 372.
 33. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, and H. Ottmar, "Operational Experience with K-Edge Photon Absorptiometry for Reprocessing Feed and Product Solution Analysis," in *Proc. Third Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Karlsruhe. Fed. Rep. Germany, May 6-8, 1981 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1981), p. 109.

34. P.A. Russo, T.R. Canada, D.G. Langner, J.W. Tape, S.-T. Hsue, L.R. Cowder, W.C. Moseley, L.W. Reynolds, and M.C. Thompson, "An X-Ray L_{III} -Edge Densitometer for Assay of Mixed SNM Solutions," in *Proc. First Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Brussels, Belgium, April 25-27, 1979 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1979), p. 235.
35. W.J. McGonnagle, M.K. Holland, C.S. Reynolds, N.M. Trahey, and A.C. Zook, "Evaluation and Calibration of a Los Alamos National Laboratory L_{III} -Edge Densitometer," US Department of Energy New Brunswick Laboratory report NBL-307 (1983).
36. P.A. Russo, T. Marks, M.M. Stephens, A.L. Baker, and D.D. Cobb, "Automated On-Line L-Edge Measurement of SNM Concentration for Near-Real-Time Accounting," Los Alamos National Laboratory report LA-9480-MS (1982).
37. M.L. Brooks, P.A. Russo, and J.K. Sprinkle, Jr., "A Compact L-Edge Densitometer for Uranium Concentration Assay", Los Alamos National Laboratory report LA-10306-MS (1985).

Глава 10

Рентгенофлюоресцентный анализ

М. С. Миллер
(Переводчик Н.В. Мошкина)

10.1 ВВЕДЕНИЕ

Возможность использования рентгеновского излучения для качественного и количественного элементного анализа была оценена вскоре после его открытия. В начале для регистрации рентгеновских лучей использовали счетчики Гейгера-Мюллера и тщательно подобранные наборы поглотителей или кристаллические дифракционные решетки. Позднее преимущества полупроводниковых детекторов и соответствующей электроники открыли возможности для широкого использования дисперсионно-энергетического рентгенофлюоресцентного анализа (РФА) для общего элементного анализа.

РФА основан на том, что рентгеновские лучи, испускаемые ионизированным атомом, обладают энергиями, которые являются характерной особенностью элемента. Интенсивность рентгеновского излучения пропорциональна как концентрации элемента, так и мощности ионизирующего источника. Для неразрушающего анализа ядерных материалов наиболее применима фотонная ионизация, которая достигается использованием рентгеновской трубки или радиоизотопного источника. Другие методы ионизации трудно реализуемы из-за больших размеров установок и сложной конструкции источников ионизации.

РФА представляет собой дополнительную методику к плотнометрии (глава 9). В плотнометрии регистрируются фотоны, прошедшие через образец без взаимодействия, в то время как при РФА регистрируется излучение, образованное фотонами, провзаимодействовавшими с материалом образца. Как показано на рис. 10.1, плотнометрия наиболее применима для анализа образцов с высокими концентрациями определяемого элемента, в то время как РФА наиболее пригоден для измерения образцов с более низкими концентрациями элементов.

Литература по РФА включает несколько основных работ [1-4], которые рассматривают основы метода с обширными ссылками на первоисточники и информацией по процедурам поправок на ослабление, а также основы дисперсионно-энергетической и дисперсионно-волновой реализации РФА.

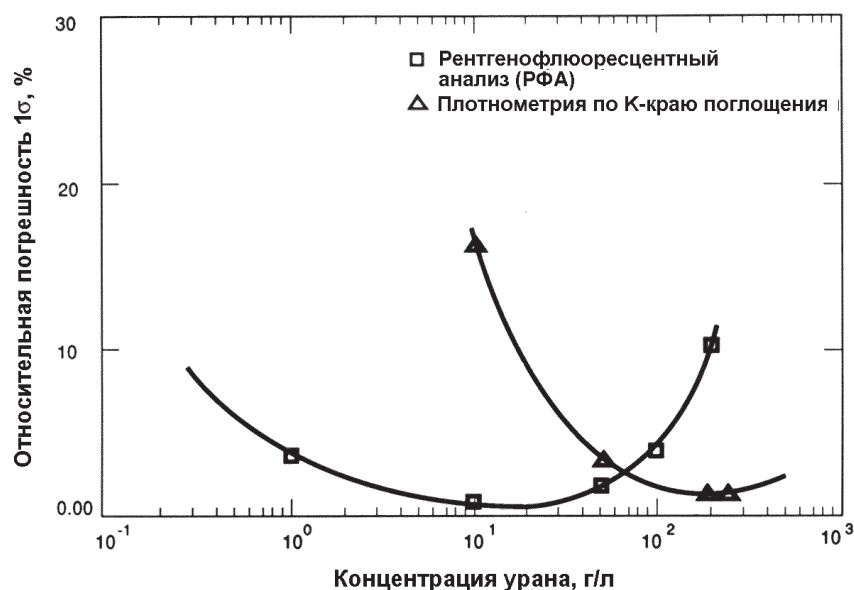


Рис. 10.1. Зависимость погрешности анализа растворов от концентрации урана для типичных измерений РФА (отмечена квадратами) и измерений методом плотнометрии по краю поглощения (отмечена треугольниками)

10.2 ТЕОРИЯ

10.2.1 Образование рентгеновского излучения

Образование рентгеновского излучения кратко описано в разделе 1.3 главы 1. Рентгеновское излучение возникает в результате переходов атомных электронов и является характеристикой элемента. В стабильном атоме электроны занимают дискретные энергетические уровни, которые обозначаются (в порядке убывания энергии связи) К, L_1 , L_2 , L_3 , M_1 , ..., M_5 , N_1 , ..., N_7 и так далее. Энергия связи представляет собой энергию, которая должна быть затрачена для удаления электрона с данной орбиты. Образовавшаяся таким образом вакансия заполняется электроном с внешней орбиты. Результирующая потеря потенциальной энергии может проявиться в виде рентгеновского кванта, энергия которого равна разности энергий связи двух состояний электрона. Например, если из атома урана удаляется К-электрон, а на его место переходит электрон с уровня L_3 , энергия испущенного рентгеновского кванта составляет 98,428 кэВ (111,591 кэВ минус 17,163 кэВ). Рентгеновский квант, образованный при этом переходе, обозначается как $K_{\alpha 1}$. Рентгеновские кванты К-серии образуются заполнением внешними электронами вакансий на К-оболочке. Каждый рентгеновский переход имеет соответствующую вероятность или интенсивность. Переход с L_3 -уровня на К является самым вероятным, поэтому другие интенсивности обычно выражаются относительно $K_{\alpha 1}$. На рис. 10.2 показаны переходы, в которых образуются рентгеновские кванты наиболее распространенных К- и L-серий. В табл. 10.1 представлены основные К-

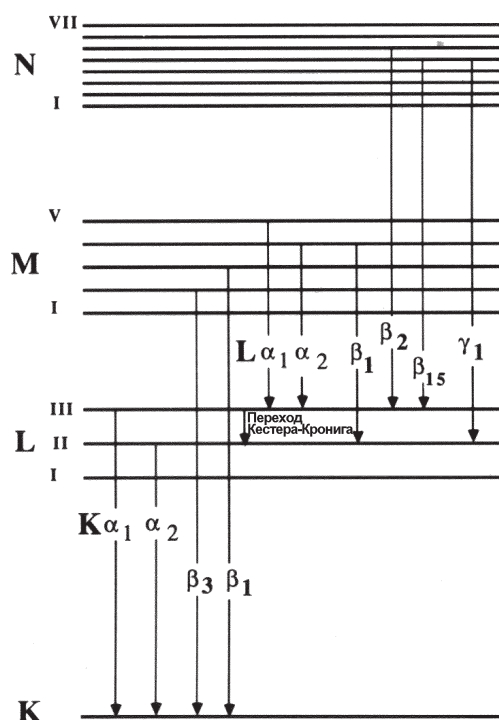


Рис. 10.2. Диаграмма энергетических уровней, показывающая переходы электронов атома с испусканием рентгеновских квантов K- и L-серий

и L-линии урана и плутония вместе с их относительными интенсивностями. На рис. 10.3 и 10.4 показаны K- и L-рентгеновские спектры урана.

10.2.2 Выход флуоресценции

Не всякая ионизация приводит к испусканию рентгеновских квантов. Конкурирующим процессом является эффект Оже. В этом процессе возбужденный атом вновь обретает энергетическую стабильность за счет испускания электрона с внешней оболочки. Отношение числа испущенных рентгеновских квантов к общему числу возбужденных атомов называется выходом флуоресценции ω_i , где i обозначает оболочку, с которой испускается квант. Выход флуоресценции возрастает с атомным номером и составляет более 95 % для рентгеновского излучения K-серии элементов с $Z > 78$ (см. рис. 10.5). Для данного элемента выход флуоресценции уменьшается при переходе от K-серий к L- и M-сериям. Выход флуоресценции может быть приближенно описан следующим выражением [1]:

$$\omega_i = Z^4 / (A_i + Z^4), \quad (10.1)$$

где A_i приблизительно равно 10^6 для K-оболочки и 10^8 для L-оболочки.

10.2.3 Пропускание фотонов

Чтобы удалить электрон с оболочки атома, энергия падающего фотона должна быть больше или равна энергии связи электрона. Например, чтобы возбудить К-электроны плутония, энергия возбуждающего фотона должна быть не менее 121,82 кэВ.

Таблица 10.1 – Энергии и относительные интенсивности основных линий рентгеновского излучения К- и L-серий для урана и плутония

Линия	Переход (конец — начало)	Энергия, кэВ*	
		уран (%)**	плутоний (%)
$K_{\alpha 1}$	$K - L_3$	98,44 (100)	103,76 (100)
$K_{\alpha 2}$	$K - L_2$	94,66 (61,9)	99,55 (62,5)
$K_{\beta 1}$	$K - M_3$	111,31 (22,0)	117,26 (22,2)
$K_{\beta 3}$	$K - M_2$	110,43 (11,6)	116,27 (11,7)
$K_{\beta 2}$	$K - N_{2,3}$	114,34; 114,57 (12,3)	120,44; 120,70 (12,5)
$L_{\alpha 1}$	$L_3 - M_5$	13,62 (100)***	14,28 (100)
$L_{\alpha 2}$	$L_3 - M_4$	13,44 (10)	14,08 (10)
$L_{\beta 2}$	$L_3 - N_5$	16,43 (20)	17,26 (20)
L_{ϵ}	$L_3 - M_1$	11,62 (1-3)	12,12 (1-3)
$L_{\beta 1}$	$L_2 - M_4$	17,22 (50)	18,29 (50)
$L_{\gamma 1}$	$L_2 - N_4$	20,17 (1-10)	21,42 (1-10)
$L_{\beta 3}$	$L_1 - M_3$	17,45 (1-6)	18,54 (1-6)
$L_{\beta 4}$	$L_1 - M_2$	16,58 (3-5)	17,56 (3-5)

* Вычислены по “Таблицам изотопов”, приложение III (L-линии) (C.M. Lederer, and V.S. Shirley, Eds., Table of isotopes, 7th ed. [John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978]).

** Отношение интенсивностей либо к $K_{\alpha 1}$, либо к $L_{\alpha 1}$ в процентах.

*** Только приблизительно (из [4]).

Доля фотонов F , которые взаимодействуют с атомными электронами данного материала, определяется по формуле

$$F = 1 - \exp(-\mu x), \quad (10.2)$$

где μ — массовый коэффициент ослабления;

ρ — плотность образца;

x — толщина образца.

Если построить график зависимости массового коэффициента ослабления от энергии фотона для данного элемента, то на нем будут наблюдаться ярко выраженные разрывы, известные, как “края поглощения”. На рис. 10.6 показана зави-

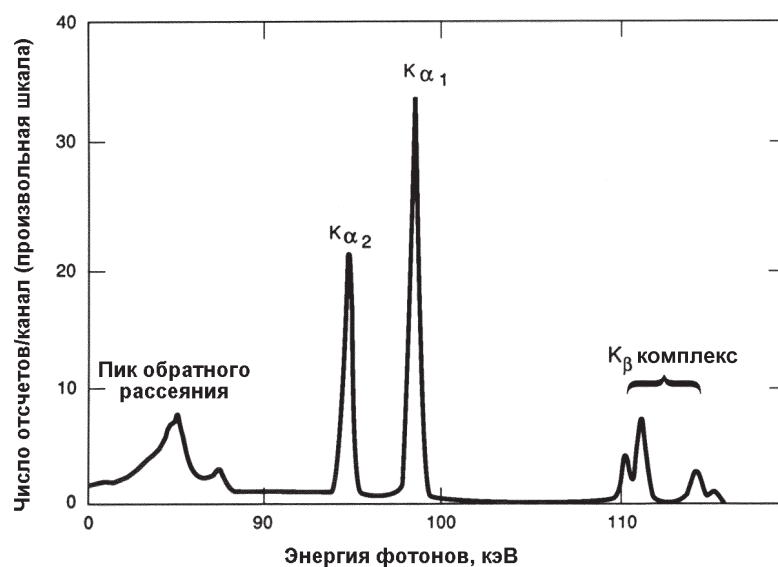


Рис. 10.3. Спектр рентгеновского излучения урана K-серии. Источник возбуждения ^{57}Co

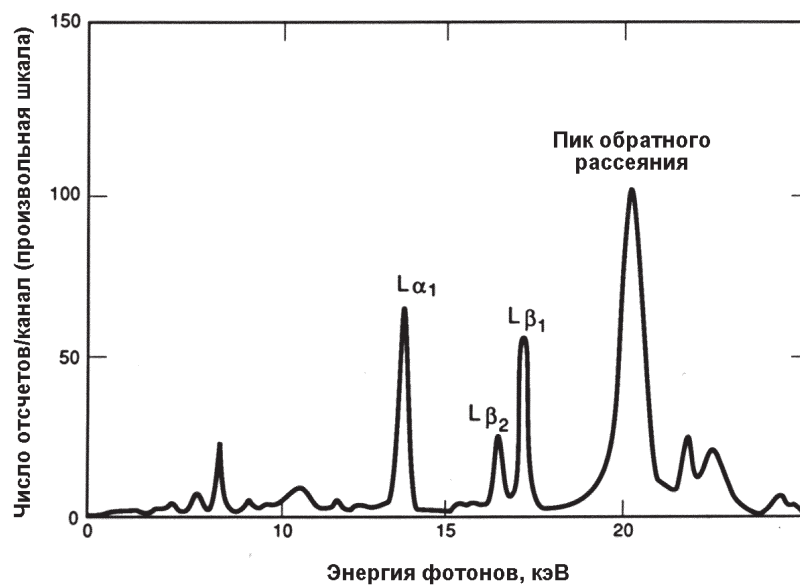


Рис. 10.4. Спектр рентгеновского излучения урана L-серии. Источник возбуждения ^{109}Cd

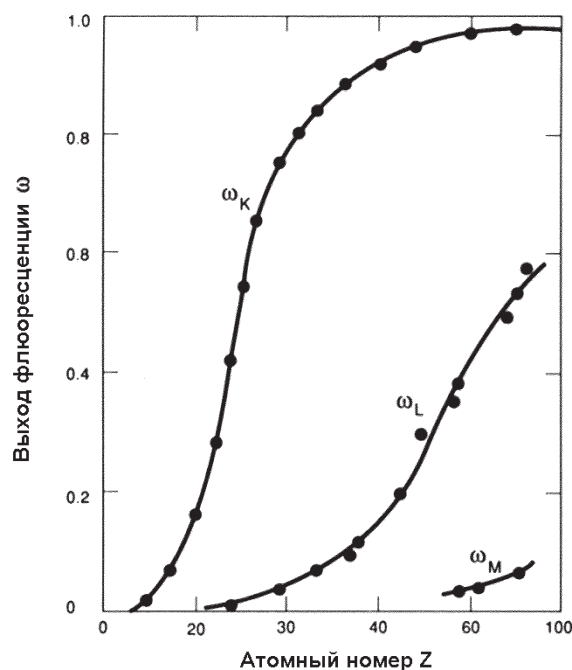


Рис. 10.5. Зависимость выхода флуоресценции для рентгеновского излучения K-, L- и M-серий от атомного номера

симось массового коэффициента ослабления от энергии фотонов для урана и плутония. Наличие края поглощения указывает на резкое уменьшение сечения фотоэффекта для энергий падающих фотонов в области ниже энергии связи данного состояния электрона. Фотоэлектрическое взаимодействие является основным процессом, приводящим к образованию рентгеновского излучения при возбуждении фотонным излучением.

Ослабление ограничивает размер образца, который может быть проанализирован методиками пропускания рентгеновского излучения. На рис. 10.7 показаны средние длины свободного пробега фотонов с энергиями 400, 100 и 20 кэВ в воде и в растворе урана с концентрацией 50 г/л. В основном методики пропускания применимы для образцов, толщина которых меньше 4 или 5 средних длин свободного пробега.

Уравнение (10.2) полезно для сравнения K- и L-рентгенофлуоресценции. Для L-рентгенофлуоресценции μ больше, и потому взаимодействие возбуждающего потока с образцом сильнее. Для K-рентгенофлуоресценции μ меньше и, следовательно, ослабление как возбуждающих фотонов, так и рентгеновского излучения меньше (относительно L-рентгенофлуоресценции). Эта разность в эффектах ослабления приводит к тому, что L-рентгенофлуоресценция обладает большей чувствительностью (образуется больше рентгеновских квантов на единицу возбуждающего потока и площади поперечного сечения), чем K-рентгенофлуоресценция. С другой стороны, K-рентгенофлуоресценция допускает большую гибкость в отношении выбора контейнера для образца и примесных поглотителей.

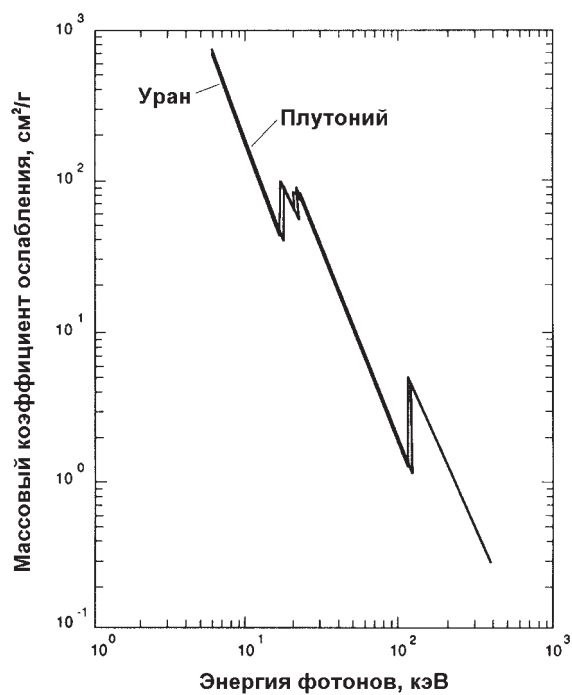


Рис. 10.6. Зависимость массового коэффициента ослабления от энергии для урана и плутония

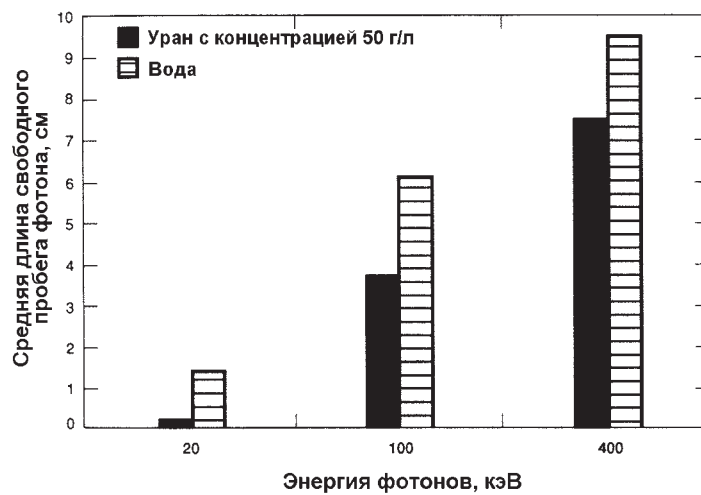


Рис. 10.7. Средняя длина свободного пробега фотонов с энергиями 400, 100 и 20 кэВ в воде ($\rho = 1 \text{ г/см}^3$) и растворе урана с концентрацией 50 г/л

10.2.4 Геометрия измерений

Выбор геометрии очень важен для систем РФА. Хотя основной интерес представляют фотоэлектрические взаимодействия возбуждающих фотонов с атомами анализируемого элемента, необходимо рассмотреть и другие процессы, в частности, эффект обратного комптоновского рассеяния. Энергия гамма-кванта, рассеянного за счет комптоновского эффекта, равна (см. раздел 2.3.2 главы 2 и [5])

$$E' = \frac{511}{(1 - \cos \phi + 511 / E)}, \quad (10.3)$$

где E' , E — энергия рассеянного и падающего фотона, соответственно, кэВ;
 ϕ — угол между падающим и рассеянным фотонами.

Энергия E' минимальна при $\phi = 180^\circ$, и фотоны, рассеянные под этим углом или с небольшим отклонением от этого угла, могут образовать в измеренном спектре пик обратного рассеяния. Для фотонов с энергией 122 кэВ от ^{57}Co (подходящий источник для К-РФА урана или плутония) пик обратного рассеяния находится при энергии 82,6 кэВ. Если угол рассеяния ϕ равен 90° , E' равна 98,5 кэВ и находится в середине спектра рентгеновского излучения К-серии урана и плутония. Если в качестве источника возбуждения используется ^{57}Co , геометрию измерения следует выбирать таким образом, чтобы угол ϕ был близок к 180° для большинства рассеянных гамма-квантов, достигающих детектора. При такой геометрии пик обратного рассеяния и непрерывный комптоновский спектр рассеянных фотонов находятся ниже области характеристического рентгеновского излучения, что минимизирует фон под фотопиками рентгеновского излучения (см. рис. 10.3). Такую геометрию измерений обеспечивает использование кольцевого источника, описанного ниже в этой главе. Для рентгеновских квантов L-серии геометрия измерений не так критична, поскольку энергия $E'(180^\circ)$ равна 20,3 кэВ для рентгеновских квантов серебра с энергией 22 кэВ от источника ^{109}Cd (хороший L-РФА источник для урана), и пик обратного рассеяния находится выше рассматриваемой области рентгеновского излучения. Для минимизации величины пика обратного рассеяния необходимо тщательно контролировать рассеивающие материалы вблизи детектора. Некоторые исследователи [6] используют источники возбуждения с энергиями, значительно превышающими рассматриваемую энергию связи, минимизируя посредством этого эффекты рассеяния в спектральной области падающих рентгеновских квантов. Такой подход требует использования источников возбуждения с более высокой интенсивностью (на порядок или больше) для создания достаточной активности рентгеновского излучения.

Для уменьшения потерь за счет мертвого времени и наложений импульсов детектор должен быть экранирован от источника возбуждения и другого фонового излучения. Для ограничения влияния нежелательных источников обычно используется коллимация детектора. Для стабилизации отклика рентгеновского излучения относительные положения источника, образца и детектора должны быть жестко фиксированы; часто эти компоненты объединены в единую конструкцию. На рис. 10.8 показана возможная геометрия для проведения РФА с поправкой на пропускание.

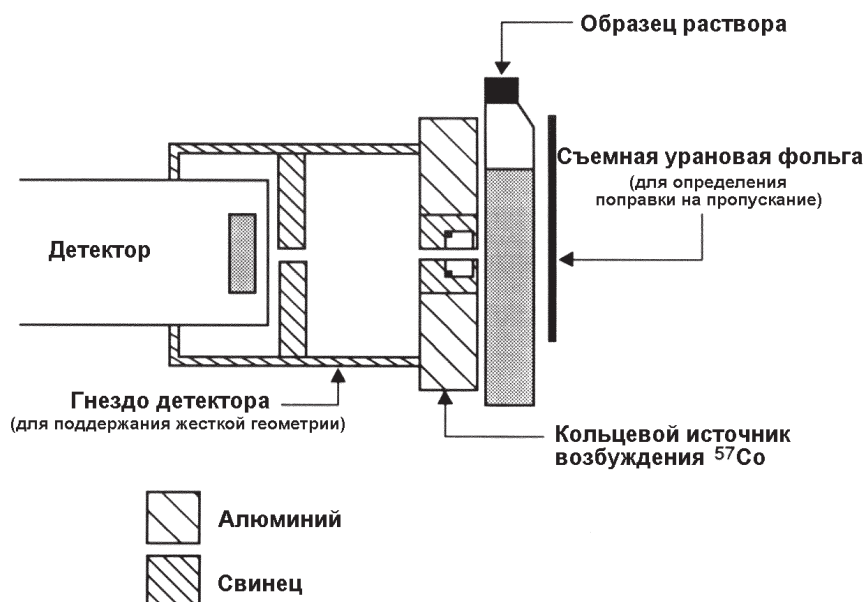


Рис. 10.8. Поперечный разрез установки для анализа с поправкой на пропускание при использовании кольцевого источника возбуждения

10.3 ТИПЫ ИСТОЧНИКОВ

Обычно используются два типа источников: дискретные источники гамма- или рентгеновского излучения или непрерывные источники, такие как генераторы рентгеновского излучения. Каждый из них имеет свои преимущества и недостатки. При выборе подходящего источника учитываются тип, энергия и мощность. Наиболее эффективно выбрать источник, энергия которого выше, но, насколько возможно, близка к рассматриваемому краю поглощения. Как видно из графика зависимости μ от энергии фотона на рис. 10.6, значение коэффициента массового ослабления является наибольшим сразу над краем поглощения.

Кобальт-57 испускает гамма-кванты с энергией 122 кэВ, которая является наиболее эффективной для ионизации К-оболочки урана или плутония. Рентгеновские генераторы пригодны для К-РФА урана и плутония, но они слишком громоздки для задач, в которых требуется портативное оборудование. Хорошим дискретным источником для L-РФА урана и плутония является ^{109}Cd , который испускает рентгеновские кванты К-линии серебра (энергия $K_{\alpha 1} = 22$ кэВ). Для задач с портативным оборудованием, в которых требуются фотоны в области энергий 25 кэВ, имеются малогабаритные рентгеновские генераторы.

Дискретные линейные источники имеют небольшие размеры, чрезвычайно стабильны и просты в эксплуатации, что делает их привлекательными для множества различных применений РФА. Основным их недостатком является то, что с течением времени они распадаются и требуют периодической замены. Двумя

наиболее широко используемыми источниками являются ^{57}Co и ^{109}Cd , которые имеют периоды полураспада 272 и 453 дня, соответственно. Другим недостатком является то, что дискретные радиоизотопные источники нельзя отключить, что вызывает трудности при их транспортировке и обращении с ними. Так как активность источника часто бывает равной 1 мКи или выше, персонал и детектор должны быть тщательно защищены. В табл. 10.2 перечислены некоторые радиоизотопы, которые могут использоваться для РФА урана и плутония. Обычно используется геометрия кольцевого источника, показанного на рис. 10.9, поскольку она экранирует детектор от источника возбуждения и минимизирует влияние обратного рассеяния.

Таблица 10.2 – Источники возбуждения, применяемые для анализа урана и плутония

Радиоизотоп	Период полураспада	Способ распада	Используемые излучения	
			тип	энергия, кэВ
^{57}Co	270 дней	Электронный захват	Гамма-кванты	122
			Гамма-кванты	136
^{109}Cd	453 дня	Электронный захват	Рентгеновские кванты К-линии Ag	22
^{75}Se	120 дней	Электронный захват	Гамма-кванты	121
^{144}Ce	285 дней	Бета-распад	Гамма-кванты	136
			Рентгеновские кванты К-линии Pt	36
			Гамма-кванты	134
^{125}I	60 дней	Электронный захват	Рентгеновские кванты К-линии Te	27
			Гамма-кванты	35
$^{147}\text{Pm-Al}$	2,6 лет	Бета-распад	Непрерывный спектр	12-45*

* Конечная точка тормозного спектра.

Рентгеновские генераторы образуют тормозное излучение в процессе испарения электронов (термоэлектронной эмиссии) с нити накаливания, ускорения и бомбардировки электронами мишени. Из-за необходимости высоковольтного питания и устройств отвода образующегося в мишени тепла, рентгеновские генераторы могут быть довольно громоздкими, особенно при высоких рабочих напряжениях. Имеются небольшие генераторы, работающие в области энергий ниже 70 кэВ, и портативные генераторы с номинальной мощностью до 50 Вт, которые не требуют сложных охлаждающих систем. Для заданной номинальной мощно-

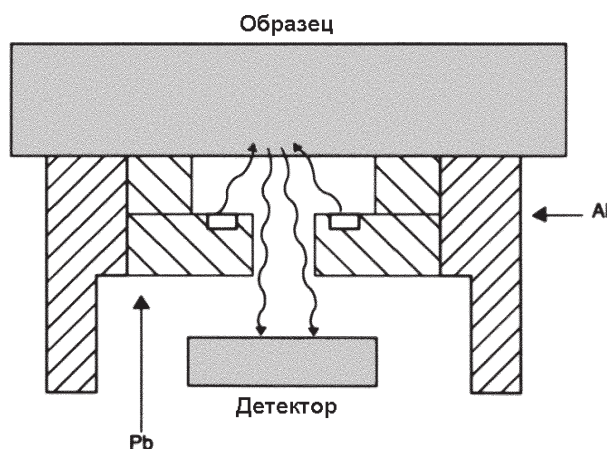


Рис. 10.9. Кольцевой источник возбуждения

сти максимальное рабочее напряжение достигается использованием более низкого тока.

Спектр рентгеновского генератора охватывает область энергий от значения ускоряющего потенциала генератора до края пропускания окна рентгеновского излучения. Форма этого распределения $I(E)$ и полная интенсивность I приводятся в работе [4]:

$$\begin{aligned} I(E) &\propto iZ(V - E)E, \\ I &\propto iZV^2, \end{aligned} \quad (10.4)$$

где i — ток трубки;

V — рабочее напряжение;

Z — атомный номер мишени.

На рис. 10.10 показан выходной спектр рентгеновского генератора. В дополнение к непрерывному спектру образуется характеристическое рентгеновское излучение материала мишени. Эти рентгеновские кванты могут вызывать интерференцию, которая может быть устранена с помощью фильтров. Выбранный фильтр должен иметь край поглощения чуть ниже энергии, которая должна быть ослаблена.

Рентгеновские генераторы могут включаться и отключаться, а их энергетическое распределение и интенсивность — изменяться по желанию. Обычно они представляют более интенсивный источник фотонов, чем радиоизотопные источники ($\sim 10^{12}$ фотонов/с или более). Однако их использование возможно только в случае простоты и компактности. Поскольку рентгеновский генератор представляет собой электрический прибор, возможны проблемы обслуживания и некоторые неполадки в системе. Точность анализа определяется стабильностью рентгеновской трубки. Современные генераторы имеют нестабильность менее 0,1 % в течение короткого срока работы и от 0,2 до 0,3 % в течение длительного срока ра-

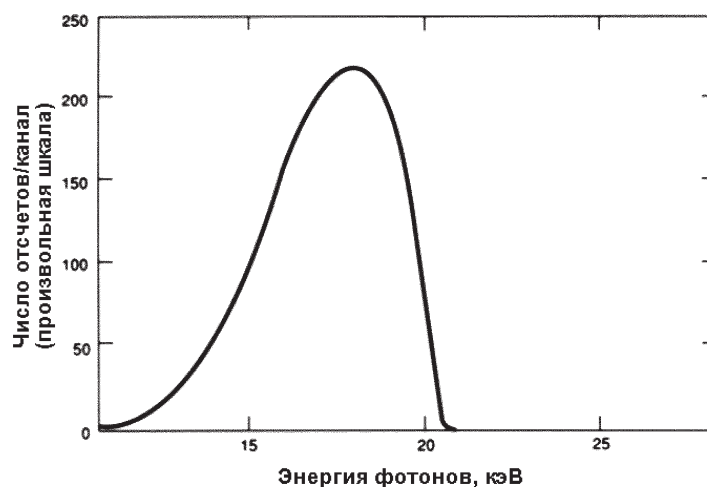


Рис. 10.10. Типичный спектр рентгеновского генератора. Материал мишени генератора — вольфрам, рабочее напряжение — 20,4 кэВ

боты. На рис. 10.11 показаны два различных портативных рентгеновских генератора.

Для РФА могут использоваться и другие источники. Источники вторичной флюоресценции используют первичный источник фотонов для возбуждения характеристических рентгеновских квантов мишени, а затем рентгеновские кванты мишени, в свою очередь, используются для возбуждения анализируемого образца. Первичный источник возбуждения может быть дискретным или непрерывным. По этой схеме может быть получено большое разнообразие моноэнергетических возбуждающих фотонов, в зависимости от материала мишени. Основным недостатком является необходимость высокой интенсивности первичного источника. Если первичный источник является радиоизотопом, очень важным может оказаться вопрос радиационной безопасности. Возможно создавать источник

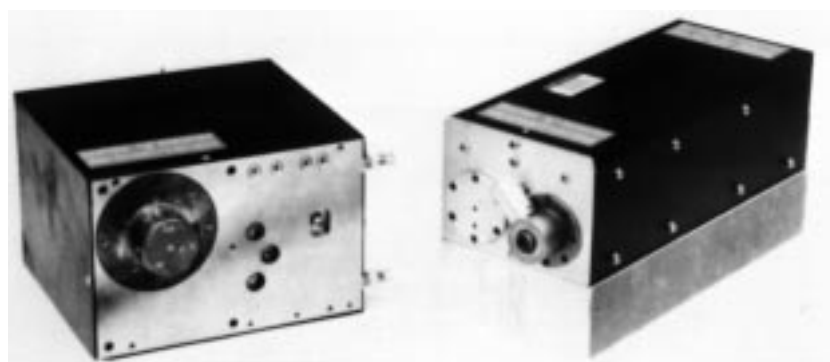


Рис. 10.11. Портативные рентгеновские генераторы

тормозного излучения, используя радиоизотопы, а не рентгеновский генератор. Такой источник состоит из изотопа, распадающегося с испусканием бета-излучения, смешанного с материалом мишени (например, $^{147}\text{Pm-Al}$, где алюминий — материал мишени).

10.4 ПОПРАВКА НА ОСЛАБЛЕНИЕ В ОБРАЗЦЕ

10.4.1 Эффекты ослабления в образце

Как и в пассивном гамма-анализе, основным ограничением точности рентгенофлуоресцентного анализа является ослабление в образце. Для рентгеновских квантов, покидающих образец, а также для гамма- или рентгеновских квантов от источника возбуждения требуется поправка на ослабление. Рентгенофлуоресцентный анализ не подходит для твердых образцов больших размеров, поскольку ослабление слишком велико для точной обработки с помощью какой-либо процедуры коррекции. Например, средняя длина свободного пробега гамма-квантов с энергией 122 кэВ в металлическом уране составляет приблизительно 0,013 см. Низкая проникающая способность этого излучения означает, что с приемлемой точностью РФА может применяться только в случае гомогенного образца. Это ограничение еще более справедливо для L-РФА, использующего фотоны с энергией 22 кэВ. Рентгеновская флуоресценция может применяться для точного анализа разбавленных растворов урана, т.к. средняя длина свободного пробега фотонов в воде приблизительно равна 6,4 см при энергии 122 кэВ и 1,7 см при энергии 22 кэВ. Поскольку энергия источника возбуждения выше края поглощения, а

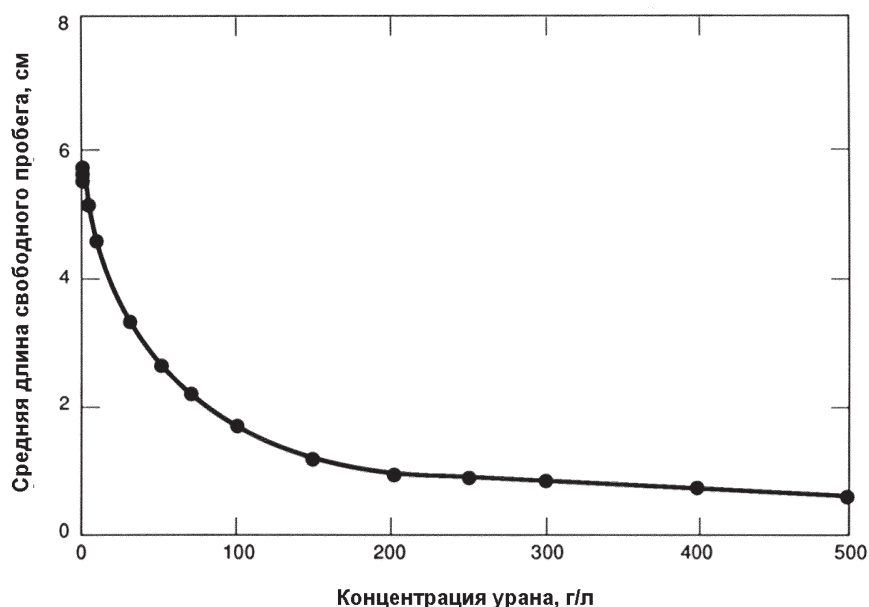


Рис. 10.12. Зависимость длины свободного пробега фотонов с энергией 122 кэВ от концентрации урана (уранилнитрат в 4-молярном растворе азотной кислоты)

энергии характеристических рентгеновских квантов чуть ниже края поглощения, ослабление возбуждающего излучения сильнее и определяет диапазон толщин образца, которые могут быть точно проанализированы. На рис. 10.12 построена зависимость средней длины свободного пробега гамма-квантов с энергией 122 кэВ от концентрации урана (уранилнитрат в 4-молярном растворе азотной кислоты).

Ослабление также влияет на выбор контейнеров для образцов. Поскольку энергия рентгеновских квантов К-линии урана и плутония находится в области 100 кэВ, допустимо использование металлических контейнеров, и К-РФА может применяться для измерений на потоке. Однако рентгеновские кванты L-серии сильно ослабляются контейнерами даже из тонкого металла и могут быть измерены только в контейнерах из элементов с низким атомным номером, таких как пластмасса или стекло.

10.4.2 Основное уравнение анализа

Для осуществления количественного анализа необходимо установить связь между скоростью испускания рентгеновских квантов и концентрацией элемента. Требуемым соотношением, как показано в разделе 5.4.1 главы 5, является:

$$\rho = \frac{RR \times CF(RL) \times CF(AT)}{K}, \quad (10.5)$$

где ρ — концентрация элемента;

RR — исходная скорость регистрации рентгеновских квантов;

$CF(RL)$ — коэффициент поправки на просчеты;

$CF(AT)$ — коэффициент поправки на ослабление;

K — градуировочная постоянная.

Коэффициент $CF(RL)$ может быть определен нормировкой с использованием импульсного генератора или радиоизотопа (см. раздел 5.4 главы 5). Поправка на ослабление имеет две составные части, одна — для возбуждающего излучения, а другая — для флюоресцентных рентгеновских квантов.

Рассмотрим дальнюю геометрию измерения, при которой образец аппроксимируется пластиной, а источник возбуждения является моноэнергетическим (см. рис. 10.13). Значение потока F_γ возбуждающих фотонов на глубине x дается выражением

$$F_\gamma = I_\gamma \exp(-\mu^\gamma x / \cos \phi). \quad (10.6)$$

Переменные в уравнениях (10.6) — (10.10) приведены в табл. 10.3. Число возбуждающих фотонов, взаимодействующих в объеме dx и создающих рентгеновское излучение $K_{\alpha 1}$ -серии, равно

$$F_x dx = F_\gamma \tau \rho \omega B \frac{dx}{\cos \phi}. \quad (10.7)$$

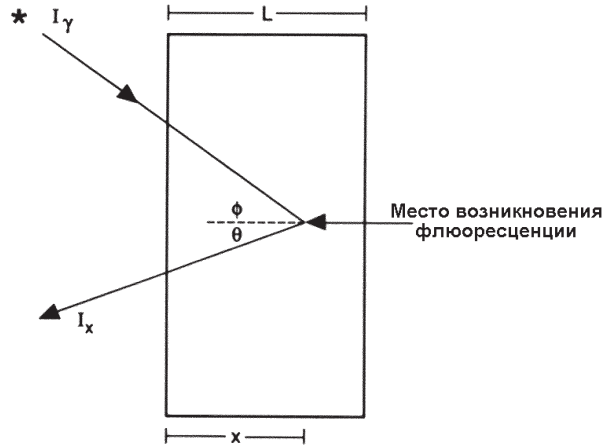


Рис. 10.13. Плоская геометрия РФА

Рентгеновские кванты флюоресценции ослабляются в образце согласно формуле

$$F_x (\text{выход}) = F_x \exp(-\mu^x x / \cos \theta). \quad (10.8)$$

Объединение и интегрирование уравнений (10.6) – (10.8) дает следующее выражение для интенсивности рентгеновского излучения на поверхности детектора:

$$I_x = \frac{I_\gamma \tau \rho \omega B \Omega}{4\pi[(\cos \theta / \cos \phi) \mu^\gamma + \mu^x]} \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\frac{\mu^\gamma}{\cos \phi} + \frac{\mu^x}{\cos \theta} \right) L \right] \right\}. \quad (10.9)$$

Коэффициент $(\Omega/4\pi) \cos \phi / \cos \theta$ является нормировочным. Если в качестве источника возбуждения используется генератор рентгеновского излучения, уравнение (10.9) должно быть проинтегрировано от энергии края поглощения до максимальной энергии генератора.

Когда образец является бесконечно толстым для рассматриваемого излучения, уравнение (10.9) принимает вид

$$I_x = \frac{I_\gamma \tau \rho \omega B \Omega}{4\pi[(\cos \theta / \cos \phi) \mu^\gamma + \mu^x]}. \quad (10.10)$$

Данное уравнение аналогично уравнению для измерителя обогащения (см. главу 7). Этот результат очень важен для РФА, т.к. он предполагает, что интенсивность рентгеновского излучения прямо пропорциональна концентрации флюоресцирующего элемента.

В плутонии и высокообогащенном уране самовозбуждение рентгеновского излучения пассивными гамма-квантами может затруднять проведение анализа. Для смешанных уран/плутониевых материалов преобладающим откликом детектора являются пассивные рентгеновские кванты от альфа-распада плутония. Когда возбуждающий источник может воздействовать как на плутоний, так и на

уран (как, например, ^{57}Co и ^{109}Cd), дополнительная флюоресценция урана вызывается рентгеновским излучением плутония. Для введения поправки на эту интерференцию обычно необходим отдельный пассивный счет.

Таблица 10.3 – Переменные в уравнениях (10.6) – (10.10)

I_0	поток возбуждающего излучения на поверхности образца
τ	сечение фотоэлектрического эффекта на К-оболочке для энергии γ -кванта
ρ	концентрация элемента s
ω	выход К-флюоресценции
B	коэффициент ветвления для $K_{\alpha 1}$
Ω	телесный угол детектора
$\mu^\gamma = \sum \mu_i^\gamma \rho_i$	линейный коэффициент ослабления энергии γ -кванта для i-го элемента
$\mu^x = \sum \mu_i^x \rho_i$	линейный коэффициент ослабления энергии рентгеновского кванта для i-го элемента
ϕ	угол падения возбуждающего излучения
θ	угол выхода рентгеновского кванта
L	толщина пластины

10.4.3 Методы поправки на ослабление

Наиболее точные методы РФА учитывают ослабление в образце. Простейший подход использует градуировочные кривые, полученные с использованием стандартных образцов со сходным химическим составом. Метод эффективен только, если стандартные образцы хорошо охарактеризованы, химически совпадают с исследуемыми образцами и охватывают анализируемую область концентраций в достаточном количестве для построения градуировочной кривой. Изменения в составе матрицы могут потребовать переградуировку с новыми стандартными образцами.

Процедурой, менее чувствительной к изменениям матрицы, является анализ с поправкой на пропускание [7-9], в котором для поправки на ослабление производится измерение коэффициента пропускания для каждого образца. Рассмотрим поправку на ослабление для ситуации, представленной на рис. 10.13 (предполагая, что $\theta = 0$). Выражение для CF(AT) имеет функциональную зависимость для пластины, которая обсуждалась в главе 6:

$$\text{CF(AT)} = \frac{-\ln \alpha}{1 - \alpha}, \quad (10.11)$$

где $\alpha = \exp \left[- \left(\frac{\mu^\gamma}{\cos \phi} + \mu^x \right) L \right]$.

Измерение коэффициента пропускания возбуждающего и флюоресцентного рентгеновского излучения может быть использовано для определения α . В этом методе фольга из измеряемого элемента помещается сзади образца и измеряется сигнал возбужденного рентгеновского излучения в присутствии и при отсутствии образца. Проводится дополнительное измерение (см. рис. 10.14) только с образцом (без фольги), и вычисляется α по формуле

$$\alpha = \frac{I_T - I_S}{I_0}, \quad (10.12)$$

где I_T — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения с фольгой и образцом;

I_S — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения только с образцом;

I_0 — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения только с фольгой.

В этом измерении определяется ослабление излучения возбуждающего источника и сигнал от возбужденного рентгеновского излучения. Хотя существуют некоторые преимущества использования в пропускающей фольге того же элемента, что и анализируемый, возможно использование и других элементов, если их характеристическое рентгеновское излучение достаточно близко к характери-

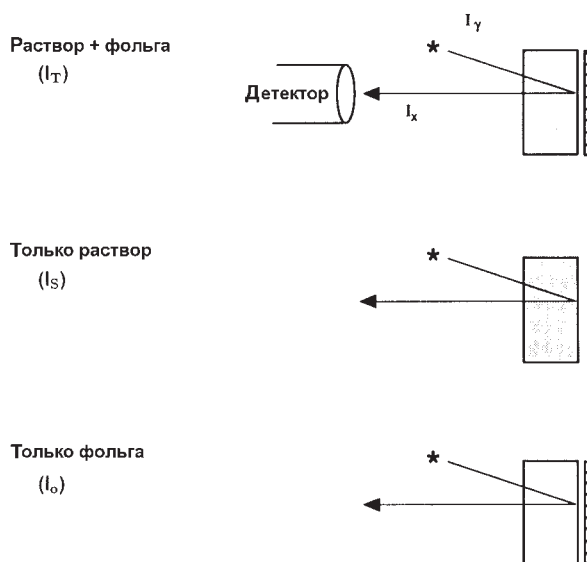


Рис. 10.14. Схема трех измерений, необходимых для определения коэффициента пропускания для РФА растворов урана

стическому рентгеновскому излучению анализируемого элемента. Например, при измерении растворов урана успешно используется металлический торий.

Для оценки градуировочной постоянной K в уравнении (10.5) необходимо соответствующее число стандартных образцов. Уравнения (10.11) и (10.12) точны только для дальней геометрии, а большинство измерений РФА выполняются в ближней геометрии. Следовательно, даже с введением поправок на просчеты и ослабление в образце, для оценки градуировочной постоянной важно использовать несколько стандартных образцов.

10.5 ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ И АППАРАТУРА

Аппаратура, используемая в РФА, подобна аппаратуре других систем анализа гамма-излучения: детектор, соответствующая электроника, многоканальный анализатор и источник возбуждения. Это оборудование подробно обсуждается в главе 4.

РФА используется в лабораториях аналитической химии в течение многих лет. В большинстве случаев в качестве источника возбуждения используется рентгеновский генератор, а не радиоизотопы. Измеряются элементы с атомными номерами от низких до средних, и ключевым фактором в анализе является подготовка образца. Во многих методиках необходимо, чтобы образец был гомогенизирован и спрессован перед анализом. В случаях, когда существует возможность оптимизации образца, чувствительность РФА может быть очень высока. Правильные и точные результаты с чувствительностью в несколько наногرامмов [1] могут быть получены при малых временах измерения (<1000 с). Коммерчески доступны полностью укомплектованные системы РФА.

Для материалов, содержащих уран или плутоний, используются несколько методик измерений РФА. Джон и др. [10] используют для возбуждения рентгеновских квантов урана в растворах источник ^{57}Co и одновременно регистрируют гамма-кванты ^{235}U с энергией 185,7 кэВ в качестве меры обогащения. Было обнаружено, что отношение интенсивности испускания флюоресцентного рентгеновского излучения к интенсивности гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ не зависит от концентрации урана в диапазоне от 8 до 20 г/л для ряда обогащений по ^{235}U в диапазоне от 0,4 до 4,5 %. Сообщалось о погрешности меньше 1 %.

Роусон и Гонтзеас [11] предложили использовать для измерения урановых руд поправку на ослабление в образце, основанную на комптоновском рассеянии. Для возбуждения характеристических рентгеновских квантов от молибденовой фольги ($\sim 17,4$ кэВ), использовался кольцевой источник ^{241}Am с активностью 50 мКи, который может возбуждать в уране только L_{III} -подоболочку. Это значительно упрощает L -рентгеновский спектр. Поправки на матрицу были определены из отношения обратного рассеяния излучения молибдена K_{α} -серии к рентгеновскому излучению урана L_{α} -серии. Канада и Сью [12] представили хорошее теоретическое описание этого метода и предложения по его улучшению, включающие дополнительные отношения с использованием K_{β} - или L_{β} -линий для дальнейшей минимизации эффектов матрицы.

Баба и Муто [13] использовали рентгеновский генератор для возбуждения L -рентгеновского спектра растворов, содержащих уран и плутоний. Для определения поправки на ослабление в матрице был использован метод внутреннего

стандарта. Известное и постоянное количество нитрата свинца было добавлено ко всем растворам, а интенсивность рентгеновского излучения L-серии урана или плутония была нормирована на интенсивность рентгеновского излучения свинца L_α-серии. Была получена линейная градуировка (в пределах 1 % для урана и 2 % для плутония) для времени измерения 200 с. Концентрации растворов варьировались от 0,1 до 200 г/л для урана и до 50 г/л для плутония. Также измерялись смешанные уран-плутониевые растворы.

Караманова [14] исследовала использование рентгеновской флуоресценции, вызванной бета-частицами, в дополнение к возбуждению гамма-излучением при К-РФА урана и смешанных оксидов урана с торием. Для возбуждения гамма-излучением был применен источник ⁵⁷Co, а для флуоресценции, вызванной бета-частицами, использовался источник ⁹⁰Sr-⁹⁰Y. Поскольку сечения ослабления для матрицы и тяжелого элемента при возбуждении бета-частицами примерно равны, то объем образца постоянен, а результирующий рентгеновский сигнал пропорционален концентрации анализируемого элемента. Сходимость результатов измерений образцов с концентрациями урана от 0,5 до 88 % составила около 0,1 %.

Несколько исследователей провели измерения растворов предприятий по переработке отработавшего ядерного топлива. Эти растворы могут содержать продукты деления и иметь высокие отношения U/Pu, затрудняя их анализ пассивными методиками. Для них необходимо либо химическое разделение, либо чувствительная методика, такая как РФА. Пиклес и Кейт [15] использовали РФА с применением рентгеновского генератора. Образцы с отношениями U/Pu до 400 и активностями продуктов деления 2 Ки/г были проанализированы со сходимостью результатов около 1 % и с погрешностью 2 % в диапазоне масс от 1 до 58 мкг при времени измерения 10 мин. Для минимизации ослабления в образце, образцы растворов были выпарены на тонкую поликарбонатную пленку. На рис. 10.15 показана компоновка оборудования. В измерительной полости титановые пластины размещались на обеих сторонах подложки образца. Рентгеновские кванты титана обеспечивали поправку на потери скорости счета. Для уменьшения пассивного сигнала на детекторе использовались магнитные ловушки бета-частиц и свинцовый коллиматор.

Кемп и др. [16 и 17] использовали источник ⁵⁷Co для возбуждения рентгеновских квантов K-серии урана и плутония в технологических потоках продукта радиохимического производства. Полные концентрации тяжелых элементов от 1 до 200 г/л были проанализированы с использованием нелинейной градуировки в виде полинома. Для поправки на самоослабление используются некогерентно рассеянные гамма-кванты с энергией 122 кэВ от ⁵⁷Co [16] или реальные измерения коэффициента пропускания с использованием гамма-квантов с энергией 122 кэВ [17]. Для определения поправки на пассивное (фоновое) испускание рентгеновского излучения (излучения, возбуждаемого гамма-квантами, образующимся в результате альфа-распада, — прим. ред.) в образцах, содержащих как уран, так и плутоний, осуществляется пассивное измерение.

Эндрю и др. [18] исследовали возможность измерения растворов урана и урана с торием с концентрациями урана от 10 до 540 г/л. Для растворов, содержащих как уран, так и торий, погрешность определения отношения концентраций U/Th составляла 0,4 %. Неопределенности в измерениях концентраций составили 0,5 % для растворов с одним элементом и 1 % — для смешанных растворов. В этой рабо-

использованием плотнометрии по краю поглощения, в то время как отношение U/Pu определяется посредством РФА. При времени измерений 1000 с получены погрешность определения концентрации урана, равная 0,25 %, и погрешность определения отношения U/Pu , равная 1 %. Использовались две ячейки для образцов: двухсантиметровые стеклянные кюветы (размеры которых известны с погрешностью ± 2 мкм) для плотнометрических измерений и полиэтиленовый пузырек диаметром 1 см для измерений РФА. Для достижения максимального

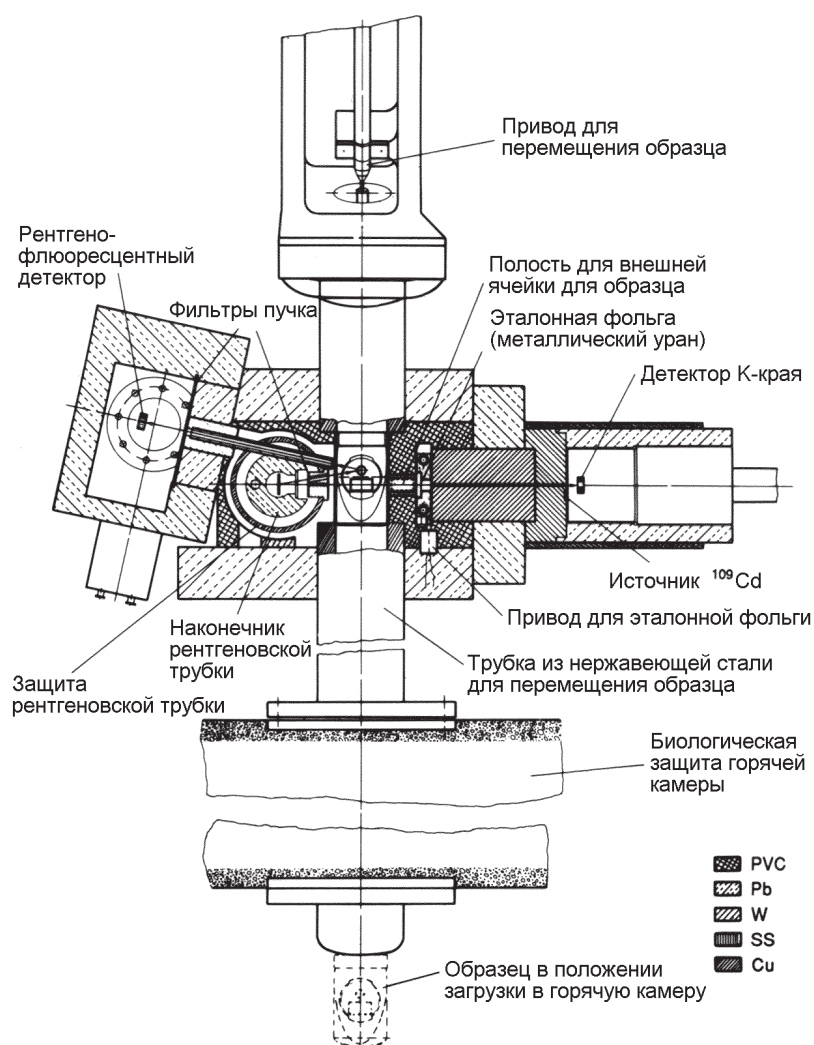


Рис. 10.16. Блок-схема гибридной системы плотнометрии по К-краю поглощения и рентгеновской флуоресценции К-серии ([21]) (Благодарность Х. Оттмару)

отношения сигнал/фон РФА измерения проводятся при угле обратного рассеяния $\sim 157^\circ$. Такая гибридная система показана на рис. 10.16.

Ламберт и др. [23] для измерения отношения U/Pu в таблетках смешанного оксидного топлива использовали вторичное возбуждение рентгеновской флюоресценции L-серии. Погрешность анализа таблеток с 25 % PuO₂ и 75 % UO₂ составила 0,5 % при времени измерения 3 мин. Для возбуждения требуемого рентгеновского излучения использовалась селективная фольга для вторичных мишеней (родий). В этом методе необходима хорошая гомогенность образца, т.к. анализируемая часть образца относительно мала (глубина анализа ~ 30 мкм).

ЛИТЕРАТУРА

1. E.P. Bertin, *Principles and Practice of X-Ray Spectrometric Analysis* (Plenum Press, New York, 1975).
2. R. Jenkins, R. W. Gould, and D. Gedcke, *Quantitative X-Ray Spectrometry* (Marcel Dekker, Inc., New York, 1981).
3. R. Tertian and F. Claisse, *Principles of Quantitative X-Ray Fluorescence Analysis* (Heyden & Son, Inc., Philadelphia, Pennsylvania, 1982).
4. R. Woldseth, *All You Ever Wanted to Know About XES* (Kevex Corp., Burlingame, California, 1973).
5. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979), p. 310.
6. P. Martinelli, "Possibilities of Plutonium Analysis by Means of X-Ray Fluorescence with an Iridium-192 Radioactive Source," *Analysis* 8 (10), 499-504 (1980).
7. R. Strittmatter, M. Baker, and P. Russo, "Uranium Solution Assay by Transmission-Corrected X-Ray Fluorescence," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1978," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7616-PR (1979), pp. 23-24.
8. T. R. Canada, D. C. Camp, and W. D. Ruhter, "Single-Energy Transmission-Corrected Energy-Dispersive XRF for SNM-Bearing Solutions," Los Alamos National Laboratory document LA-UR-82-557.
9. P. Russo, M. P. Baker, and T. R. Canada, "Uranium-Plutonium Solution Assay by Transmission-Corrected X-Ray Fluorescence," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December, 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7211-PR (1978), pp. 22-28.
10. J. John, F. Sebesta, and J. Sedlacek, "Determination of Uranium Isotopic Composition in Aqueous Solutions by Combined Gamma Spectrometry and X-Ray Fluorescence," *Journal of Radioanalytical Chemistry* 78 (2), 367-374 (1983).
11. J.W. Rowson and S. A. Hontzeas, "Radioisotopic X-Ray Analysis of Uranium Ores Using Compton Scattering for Matrix Correction," *Canadian Journal of Spectroscopy* 22 (1), 24-30 (1977).
12. T.R. Canada and S. T. Hsue, "A Note on the Assay of Special Nuclear Materials in Solution by X-Ray Fluorescence," *Nuclear Materials Management* XI (2), 91 (1982).

13. Y. Baba and H. Muto, "Determination of Uranium and Plutonium in Solution by Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis," *Bunseki Kagaku* 32, T99-T104 (1983).
14. J. Karamanova, "Development of an Express NDA Technique (using radioisotopic sources) for the Concentration Measurements of Nuclear Materials, 1 November 1974-30 June 1977," International Atomic Energy Agency report IAEA-R-1557R (1977).
15. W.L. Pickles and J. L. Cafe, Jr., "Quantitative Nondispersive X-Ray Fluorescence Analysis of Highly Radioactive Samples for Uranium and Plutonium Concentrations," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-7417 (1973).
16. D.C. Camp and W. D. Ruhter, "Nondestructive, Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis of Product Stream Concentrations from Reprocessed Nuclear Fuels," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control*, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards, Washington, DC, 1980), p. 584.
17. D.C. Camp, W. D. Ruhter, and K. W. MacMurdo, "Determination of Actinide Process- and Product-Stream Concentrations Off-line or At-line by Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis," in *Proc. Third Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, May 6-8, 1981 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1981), p. 155.
18. G. Andrew, B. L. Taylor, and B. Metcalfe, "Estimation of Special Nuclear Materials in Solution by K X-ray Fluorescence and Absorption Edge Densitometry," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-R9707 (1980).
19. G. Andrew and B. L. Taylor, "The Measurement of Pu and U in Reprocessing Plant Solutions by Tube-Excited K X-Ray Fluorescence," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-R9864 (1980).
20. G. Andrew and B. L. Taylor, "The Feasibility of Using K-XRF for the On-line Measurement of Pu/U Ratios of Highly Active Dissolver Solutions," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-M3134 (1980).
21. H. Ottmar, H. Eberle, P. Matussek, and I. Michel-Piper, "Qualification of K-Absorption Edge Densitometry for Applications in International Safeguards," International Atomic Energy report IAEA-SM-260/34 (1982).
22. H. Ottmar, H. Eberle, P. Matussek, and I. Michel-Piper, "How to Simplify the Analytics for Input-Output Accountability Measurements in a Reprocessing Plant," Kernforschungszentrum Karlsruhe report KfK 4012 (1986).
23. M.C. Lambert, M. W. Goheen, M. W. Urie, and N. Wynhoff, "An Automated X-Ray Spectrometer for Mixed-Oxide Pellets," Hanford Engineering Development Laboratory report HEDL-SA1492 (1978).

Глава 11

Природа нейтронного излучения

Н. Энслин
(Переводчик Г. В. Орлова)

11.1 ВВЕДЕНИЕ

Ядерные материалы, используемые в ядерном топливном цикле, излучают как нейтроны, так и гамма-кванты. Для большинства изотопов интенсивность нейтронного излучения чрезвычайно низка по сравнению с интенсивностью гамма-излучения. Но есть изотопы, для которых интенсивность нейтронного излучения достаточно высока для образования легко измеримого сигнала. Если анализируемый образец слишком плотный и не позволяет гамма-квантам покинуть его, то в этом случае анализ с использованием пассивной регистрации нейтронов, возможно, будет более предпочтительным методом.

Ядерные материалы излучают нейтроны в широком диапазоне энергий. При прохождении через вещество нейтроны взаимодействуют с ним и изменяют свою энергию сложным путем (см. главу 12). Однако нейтронные детекторы (см. главу 13) обычно не сохраняют информацию об энергии регистрируемых нейтронов. Поэтому метод нейтронного анализа заключается в регистрации количества испущенных нейтронов, причем их энергия неизвестна. Этим метод и отличается от анализа по гамма-излучению, при котором гамма-кванты с дискретной энергией испускаются определенными радиоактивными изотопами. Как же в таком случае получить нейтронный сигнал, пропорциональный количеству измеряемого изотопа?

В этой главе описано, как нейтроны возникают в результате спонтанного и вынужденного деления, а также в результате реакций с альфа-частицами или фотонами. Во многих случаях такие процессы характеризуются выходом нейтронов с низкой или высокой интенсивностью излучения, характерными временными распределениями или явно разными энергетическими спектрами. Эти виды информации могут быть использованы для получения количественных результатов анализа определенного изотопа, если изотопный состав образца известен и в образце присутствуют только лишь несколько изотопов.

В данной главе при обсуждении нейтронного излучения особое внимание уделяется тем характеристикам, которые могут быть использованы для анализа. В главах 14 и 15 центральное место отведено методикам регистрации полного потока нейтронов, использующим высокую интенсивность излучения или необычные энергетические спектры нейтронов. В главах 16 и 17 описаны методы регистрации совпадений, основанные на временных распределениях нейтронов.

11.2 СПОНТАННОЕ И ВЫНУЖДЕННОЕ ДЕЛЕНИЕ ЯДЕР

Спонтанное деление ядер урана, плутония или других тяжелых элементов является источником нейтронов и играет важную роль. Понять такой сложный процесс можно путем представления ядра в виде капли жидкости (рис. 11.1). Ко-

роткодействующие ядерные силы сильного взаимодействия действуют подобно поверхностному натяжению и удерживают каплю таким образом, чтобы она могла противодействовать электростатическому отталкиванию протонов. В наиболее тяжелых элементах силы отталкивания настолько велики, что жидкая капля может удержаться с трудом. Имеется небольшая, но конечная вероятность того, что капля будет деформироваться в две капли, соединенные узким перешейком (седловой точкой). Эти две капли могут спонтанно отделиться (расщепиться), образуя два осколка. За временной интервал 10^{-13} с, в течение которого происходит деление, каждый из осколков излучает некоторое количество мгновенных нейтронов и гамма-квантов. Осколки обычно неодинаковы по размеру, а их массы распределяются относительно массовых чисел 100 и 140 (см. рис. 18.2 в главе 18). Эти осколки деления уносят большую часть энергии, выделяющуюся при делении (обычно 170 МэВ) в виде кинетической энергии. Кроме того, за интервал времени, равный нескольким миллисекундам или секундам, многие осколки деления испытывают бета-распад с образованием других изотопов, которые могут излучать запаздывающие нейтроны или гамма-кванты.

Спонтанное деление — это квантово-механический процесс, включающий в себя прохождение сквозь потенциальный барьер. Высота барьера и, соответственно, интенсивность деления сильно зависит от атомного номера Z и массового числа A . Выходы нейтронов деления некоторых тяжелых изотопов приведены в табл. 11.1 [1-6]. Для тория, урана и плутония интенсивность деления низка по

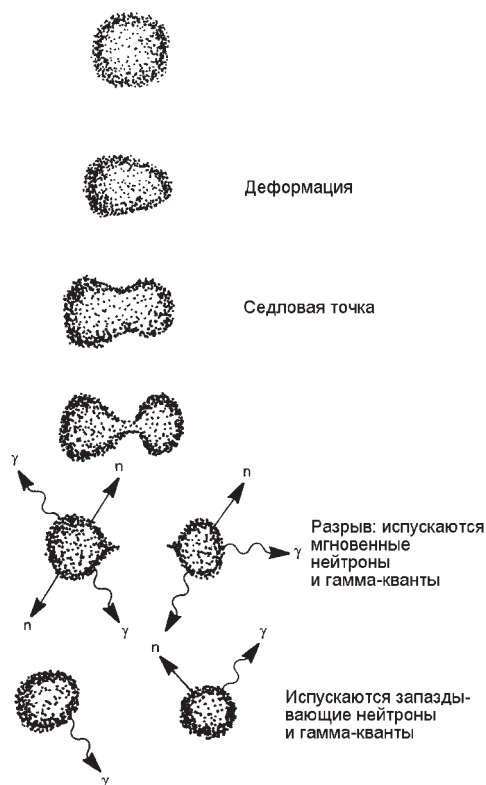


Рис. 11.1. Спонтанное деление ядра, представленное как разрыв жидкой капли

сравнению со скоростью альфа-распада, который вносит основной вклад в полный период полураспада. Для калифорния и более тяжелых четных элементов интенсивность деления может достигнуть скорости альфа-распада. Выход нейтронов деления для ^{240}Pu , составляющий 1020 нейтр./с-г [4, 5], является самым важным удельным выходом при пассивном нейтронном анализе, поскольку ^{240}Pu — обычно основной нейтронно-излучающий изотоп плутония.

Таблица 11.1 – Выход нейтронов спонтанного деления

Изо- топ A	Число прото- нов Z	Число нейт- ронов N	Полный период полураспада [1]	Период полураспада спонтанного деления [2]*, лет	Выход нейтронов спонтанного деления [2]*, нейтр./с-г	Множест- венность нейтронов спонтанного деления [2*, 6]	Множест- венность нейтронов вынужден- ного деле- ния на теп- ловых ней- тронах [6]
^{232}Th	90	142	$1,41 \times 10^{10}$ года	$>1 \times 10^{21}$	$>6 \times 10^{-8}$	2,14	1,9
^{232}U	92	140	71,7 года	8×10^{13}	1,3	1,71	3,13
^{233}U	92	141	$1,59 \times 10^5$ года	$1,2 \times 10^{17}$	$8,6 \times 10^{-4}$	1,76	2,4
^{234}U	92	142	$2,45 \times 10^5$ года	$2,1 \times 10^{16}$	$5,02 \times 10^{-3}$	1,81	2,4
^{235}U	92	143	$7,04 \times 10^8$ года	$3,5 \times 10^{17}$	$2,99 \times 10^{-4}$	1,86	2,41
^{236}U	92	144	$2,34 \times 10^7$ года	$1,95 \times 10^{16}$	$5,49 \times 10^{-3}$	1,91	2,2
^{238}U	92	146	$4,47 \times 10^9$ года	$8,20 \times 10^{15}$	$1,36 \times 10^{-2}$	2,01	2,3
^{237}Np	93	144	$2,14 \times 10^6$ года	$1,0 \times 10^{18}$	$1,14 \times 10^{-4}$	2,05	2,70
^{238}Pu	94	144	87,74 года	$4,77 \times 10^{10}$	$2,59 \times 10^3$	2,21	2,9
^{239}Pu	94	145	$2,41 \times 10^4$ года	$5,48 \times 10^{15}$	$2,18 \times 10^{-2}$	2,16	2,88
^{240}Pu	94	146	$6,56 \times 10^3$ года	$1,16 \times 10^{11}$	$1,02 \times 10^3$	2,16	2,8
^{241}Pu	94	147	14,35 года	$(2,5 \times 10^{15})$	(5×10^{-2})	2,25	2,8
^{242}Pu	94	148	$3,76 \times 10^5$ года	$6,84 \times 10^{10}$	$1,72 \times 10^3$	2,15	2,81
^{241}Am	95	146	433,6 года	$1,05 \times 10^{14}$	1,18	3,22	3,09
^{242}Cm	96	146	163 дня	$6,56 \times 10^6$	$2,10 \times 10^7$	2,54	3,44
^{244}Cm	96	148	18,1 года	$1,35 \times 10^7$	$1,08 \times 10^7$	2,72	3,46
^{249}Bk	97	152	320 дней	$1,90 \times 10^9$	$1,0 \times 10^5$	3,40	3,7
^{252}Cf	98	154	2,646 года	85,5	$2,34 \times 10^{12}$	3,757	4,06

*Значения в круглых скобках взяты из [3] и имеют точность в два порядка величины. Интенсивность излучения ^{240}Pu взята из [4 и 5].

Сильная зависимость интенсивности спонтанного деления от числа протонов и нейтронов весьма важна для рассмотрения анализа. Интенсивность деления нечетно-четных изотопов обычно на 3 порядка меньше, а интенсивность деления нечетно-нечетных изотопов обычно на 5 порядков меньше интенсивности деления четно-четных изотопов. Такое большое различие обусловлено ядерными спин-эффектами [7]. Когда делящееся ядро начинает деформироваться, полный спин основного состояния ядра должен сохраняться. Однако с возрастанием деформации квантованные угловые орбиты отдельных нейтронов или протонов приобретают разные энергии. Самая низкая энергетическая орбита недеформированного ядра может не быть самой низкой энергетической орбитой в деформированном ядре. В случае тяжелых четно-четных ядер, для которых полный спин основного квантового состояния равен нулю, спины наиболее удаленных пар нейтронов и протонов могут складываться и давать нуль в процессе их смещения к самым низким энергетическим орбитам. В случае нечетных ядер один нейтрон или протон должен занимать такую орбиту, которая сохраняет полный спин ядра, даже если требуется избыточная энергия [8, 9]. Данный эффект повышает барьер деления и делает нечетно-четные и нечетно-нечетные изотопы более устойчивыми к спонтанному делению по сравнению с четно-четными изотопами.

Среди четно-четных изотопов с высоким выходом нейтронов спонтанного деления выделяются ^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm и ^{252}Cf . Как описано выше, изотопы с нечетным числом нейтронов или протонов не имеют высокого выхода нейтронов спонтанного деления. Однако изотопы с нечетным числом нейтронов можно без труда заставить делиться, если бомбардировать их низкоэнергетическими нейтронами; в результате поглощения дополнительного нейтрона создается несвязанная нейтронная пара, энергия которой теперь достаточна для возбуждения составного ядра до энергии, близкой к порогу деления. К четно-нечетным изотопам, которые могут делиться нейтронами нулевой энергии, но имеют низкий выход нейтронов спонтанного деления, относятся ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu . Эти изотопы называются "делящимися". Четно-четные изотопы, такие как ^{238}U и ^{240}Pu , которые не делятся нейтронами низких энергий, называются "воспроизводящими". Данный термин заимствован из теории реакторов и обязан тому, что захватывая нейтроны, эти изотопы воспроизводят делящиеся изотопы. Примеры сечений вынужденного деления воспроизводящих и делящихся изотопов приведены в главе 12.

11.3 НЕЙТРОНЫ И ГАММА-КВАНТЫ ДЕЛЕНИЯ

Наиболее полезными для пассивного анализа являются испускаемые при расщеплении мгновенные нейтроны и гамма-кванты, благодаря их интенсивности и проникающей способности. Многие приборы пассивного анализа, например, счетчики совпадений, предназначены для регистрации мгновенных нейтронов деления. Они часто также чувствительны к гамма-излучению. Поэтому в данном разделе описывается как нейтронное, так и гамма-излучение.

На рис. 11.2 показан энергетический спектр нейтронов, испускаемых при спонтанном делении ^{252}Cf [10, 11]. Средняя энергия равна 2,14 МэВ. Спектр зависит от многих переменных, например, таких как энергия возбуждения осколков деления и выделяемая средняя энергия полного деления. Он может быть аппрок-

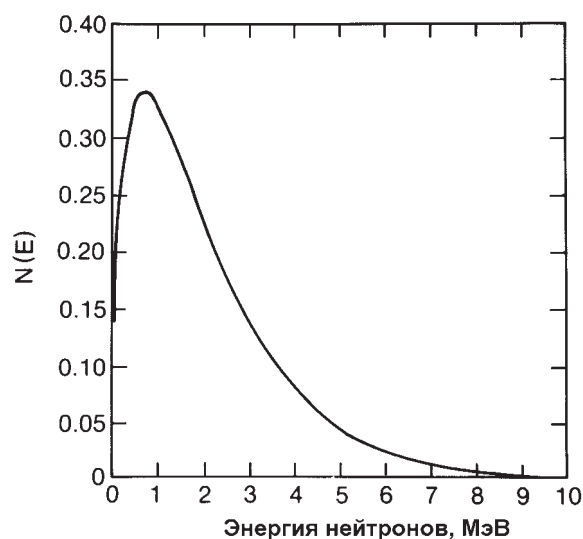


Рис. 11.2. Спектр мгновенных нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf , рассчитанный из распределения Максвелла с "температурой" $T = 1,43$ МэВ

симирован распределением Максвелла $N(E)$, где $N(E)$ изменяется, как $\sqrt{E} \exp(-E / 1,43 \text{ МэВ})$. Этот спектр пропорционален $\sqrt{E}$ при низких энергиях и экспоненциально уменьшается при высоких энергиях. Спектры нейтронов спонтанного деления ^{240}Pu и вынужденного деления ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu , вызванного тепловыми нейтронами, также могут быть аппроксимированы распределениями Максвелла с параметрами спектра 1,32; 1,31; 1,29 и 1,33 МэВ, соответственно [12, 13].

Число нейтронов, испускаемых при спонтанном или вынужденном делении, называется множественностью нейтронов. Средняя множественность нейтронов $\bar{\nu}$ включена в последние два столбца табл. 11.1. При вынужденном делении нейтронов множественность медленно и линейно увеличивается с ростом энергии нейтрона [14]. Множественность, приведенная в последнем столбце табл. 11.1, приблизительно верна для тепловых или низкоэнергетических нейтронов.

В разных актах деления множественность нейтронов может изменяться от 0 до 6 или более в зависимости от распределения энергии возбуждения между осколками деления. В табл. 11.2 [15-17] приведены измеренные распределения множественности мгновенных нейтронов $P(\nu)$ некоторых важных изотопов при спонтанном делении или вынужденном делении тепловыми нейтронами. Неопределенности при конкретных вероятностях изменяются от 1-5 % в области максимума до 30-50 % в области крайних точек. Террелл [18] показал, что распределения множественности нейтронов как при спонтанном делении, так и при вынужденном делении тепловыми нейтронами, можно аппроксимировать распределением Гаусса с центром на средней множественности нейтронов $\bar{\nu}$ в виде

$$P(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-(\nu-\bar{\nu})^2 / 2\sigma^2}. \quad (11.1)$$

Ширина распределения σ , равная 1,08, может использоваться при аппроксимации для всех изотопов, за исключением ^{252}Cf , для которого следует использовать σ , равную 1,21.

Таблица 11.2 – Измеренные распределения множественности мгновенных нейтронов деления

Распределение вероятностей	Вынужденное деление ^{235}U [15]	Спонтанное деление ^{238}Pu [16, 17]	Вынужденное деление ^{239}Pu [15]	Спонтанное деление ^{240}Pu [15]	Спонтанное деление ^{242}Pu [15]	Спонтанное деление ^{252}Cf [15]
P(0)	0,033	0,054	0,011	0,066	0,068	0,002
P(1)	0,174	0,205	0,101	0,232	0,230	0,026
P(2)	0,335	0,380	0,275	0,329	0,334	0,127
P(3)	0,303	0,225	0,324	0,251	0,247	0,273
P(4)	0,123	0,108	0,199	0,102	0,099	0,304
P(5)	0,028	0,028	0,083	0,018	0,018	0,185
P(6)	0,003		0,008	0,002	0,003	0,066
P(7)						0,015
P(8)						0,002
$\bar{v}$	2,406	2,21	2,879	2,156	2,145	3,757
$\bar{v}(\bar{v} - 1)$	4,626	3,957	6,773	3,825	3,794	11,962
$\bar{v}(\bar{v} - 1)(\bar{v} - 2)$	6,862	5,596	12,630	5,336	5,317	31,812

Данные о распределении множественности нейтронов в процессе деления используются при анализе совпадений (см. главу 16). Здесь возникает вопрос, взаимосвязаны ли множественность нейтронов и их средняя энергия. Другими словами, если число нейтронов, испускаемых при делении, выше среднего, будет ли их средняя энергия ниже средней? Имеющиеся экспериментальные данные показывают, что средняя энергия испущенных нейтронов приблизительно постоянна, и что число испускаемых нейтронов увеличивается вместе с количеством имеющейся энергии [19]. Таким образом, средняя энергия почти не зависит от множественности.

После деления ядра мгновенные нейтроны испускаются из осколков деления до тех пор, пока остающаяся в них энергия возбуждения не станет меньше энергии связи нейтрона. Начиная с этого момента, мгновенное гамма-излучение уносит остающуюся энергию и момент количества движения. В среднем излучается от 7 до 10 мгновенных гамма-квантов с полной энергией от 7 до 9 МэВ [7]. На рис. 11.3 показан спектр мгновенного гамма-излучения при спонтанном делении ^{252}Cf , зарегистрированный детектором на основе кристалла NaI [20]. Спектр, полученный при использовании детектора с высоким разрешением, возможно, обнаружил бы много дискретных переходов, хотя они имели бы доплеровское расширение вследствие отдачи осколков деления. Интенсивность мгновенного гам-

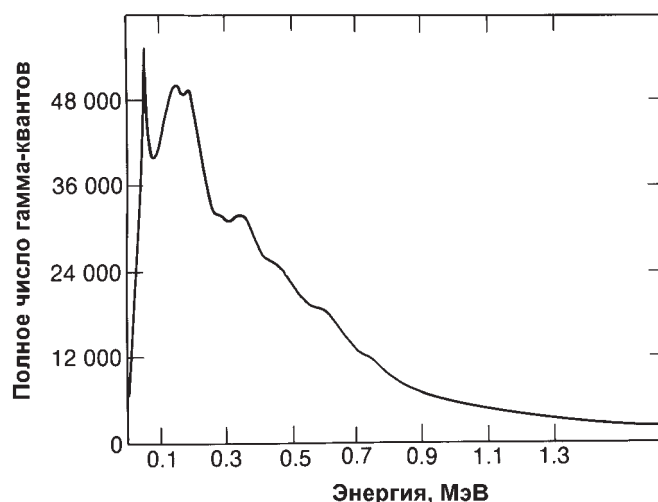


Рис. 11.3. Спектр мгновенных гамма-квантов спонтанного деления ^{252}Cf , зарегистрированный детектором NaI [20]

ма-излучения при делении намного ниже, чем интенсивность гамма-излучения, сопровождающего альфа-распад (см. главу 1). Поэтому оно не используется для пассивного анализа, несмотря на его относительно высокую энергию. Однако мгновенное гамма-излучение при делении можно использовать при регистрации совпадений, где его высокая множественность может привести к появлению сильного сигнала.

В этот раздел включено краткое описание запаздывающих нейтронов и гамма-квантов, испускаемых после деления. В системах пассивного анализа запаздывающие нейтроны и гамма-излучение обычно маскируются более интенсивным мгновенным излучением. Однако в системах активного анализа часто используется временная задержка, чтобы отделить сигнал внешнего источника подсветки от сигнала вынужденного деления. Более подробная информация по сигналам запаздывающего излучения приводится в работе [21].

Запаздывающие нейтроны испускаются некоторыми изотопами, возникающими в результате бета-распада осколков деления. Они излучаются сильно возбужденными изотопами по мере их образования. Таким образом, запаздывающие нейтроны появляются в соответствии с периодами полураспада, характерными для изотопов-предшественников. Хотя имеется много таких изотопов, запаздывающие нейтроны можно разделить на шесть групп с периодами полураспада от 200 мс до 55 с [22]. Выход нейтронов каждой группы разный для каждого изотопа урана или плутония. В принципе, системы активного анализа могут использовать это различие как признак изотопного состава облучаемого образца [21], но на практике это трудно реализовать. Энергетические спектры запаздывающих нейтронов сильно структурированы в отличие от гладких максвелловских спектров мгновенных нейтронов. Кроме того, средняя энергия запаздывающих нейтронов составляет только 300–600 кэВ, а не 2 МэВ, как у мгновенных нейтронов. Самым важным является то, что число запаздывающих нейтронов, как правило, составляет только 1 % от числа мгновенных нейтронов. Таким образом, хотя запаздыва-

ющие нейтроны влияют на пассивные измерения нейтронов, это влияние невелико.

Запаздывающее гамма-излучение при делении имеет более высокую интенсивность и меньшую скорость испускания, чем запаздывающие нейтроны. Их средняя множественность и энергия сравнимы со средней множественностью и энергией мгновенного гамма-излучения: 6-8 гамма-квантов, каждый из которых имеет среднюю энергию, близкую к 1 МэВ. Между временем испускания мгновенных и запаздывающих гамма-квантов не существует четкого различия в отличие от мгновенных и запаздывающих нейтронов. Гозани [21] использовал в качестве подходящего разграничения время после деления, равное 10^{-9} с. Запаздывающие гамма-кванты, определенные таким образом, испускаются в течение нескольких секунд или минут. Интенсивность этих гамма-квантов на два порядка превышает интенсивность запаздывающих нейтронов.

11.4 НЕЙТРОНЫ, ИСПУСКАЕМЫЕ В РЕАКЦИЯХ (α, n)

Ядра могут спонтанно распадаться как с испусканием альфа- или бета-частиц, так и при делении. Альфа-частицы — это ядра гелия с двумя протонами и двумя нейтронами, а бета-частицы — это энергетически свободные электроны. В принципе, все ядра с массовым числом больше 150 склонны к альфа-распаду. Однако альфа-распад является процессом прохождения сквозь квантово-механический барьер, подобным спонтанному делению. Кулоновский барьер является достаточно высоким, что делает альфа-распад маловероятным для всех элементов, кроме самых тяжелых. В табл. 11.3 [1, 2, 23-25] представлены вероятности альфа-распада некоторых тяжелых элементов. Полные периоды полураспада изотопов, перечисленных в таблице, почти такие же, как для альфа-распада, за исключением ^{241}Pu и ^{249}Bk , для которых доминирует бета-распад, и ^{252}Cf , интенсивность спонтанного деления которого составляет около 3 % от интенсивности альфа-распада.

Процесс альфа-распада ведет к испусканию гамма-квантов неустойчивыми дочерними ядрами (см. главу 1). Кроме того, альфа-частицы могут приводить к образованию нейтронов, вступая в реакции (α, n) с некоторыми элементами. Этот источник нейтронов можно сравнить по интенсивности со спонтанным делением при наличии изотопов с высокими вероятностями альфа-распада, таких, например, как ^{233}U , ^{234}U , ^{238}Pu или ^{241}Am . В данном разделе описано образование нейтронов в результате реакций (α, n) и даны общие правила для расчета ожидаемого выхода нейтронов.

Далее представлены два примера реакций (α, n), происходящих во многих материалах ядерного топливного цикла:

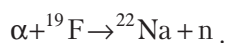
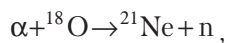


Таблица 11.3 – Выходы нейтронов (α, n)-реакции

Изо- топ A	Полный период полураспада [1]	Период полупаспада для альфа-распада [1]	Выход альфа- частиц, $\alpha/\text{с}\cdot\text{г}$ [1]	Средняя энергия альфа-час- тиц, МэВ [1]	Выход нейтронов в реакции (α, n) в оксиде, нейтр./с-г [2]	Выход нейтронов в реакции (α, n) в UF_6/PuF_4 , нейтр./с-г [23, 24 / 25]
^{232}Th	$1,41 \times 10^{10}$ года	$1,41 \times 10^{10}$ года	$4,1 \times 10^3$	4,00	$2,2 \times 10^{-5}$	
^{232}U	71,7 года	71,7 года	$8,0 \times 10^{11}$	5,30	$1,49 \times 10^4$	$2,6 \times 10^6$
^{233}U	$1,59 \times 10^5$ года	$1,59 \times 10^5$ года	$3,5 \times 10^8$	4,82	4,8	$7,0 \times 10^2$
^{234}U	$2,45 \times 10^5$ года	$2,45 \times 10^5$ года	$2,3 \times 10^8$	4,76	3,0	$5,8 \times 10^2$
^{235}U	$7,04 \times 10^8$ года	$7,04 \times 10^8$ года	$7,9 \times 10^4$	4,40	$7,1 \times 10^{-4}$	0,08
^{236}U	$2,34 \times 10^7$ года	$2,34 \times 10^7$ года	$2,3 \times 10^6$	4,48	$2,4 \times 10^{-2}$	2,9
^{238}U	$4,47 \times 10^9$ года	$4,47 \times 10^9$ года	$1,2 \times 10^4$	4,19	$8,3 \times 10^{-5}$	0,028
^{237}Np	$2,14 \times 10^6$ года	$2,14 \times 10^6$ года	$2,6 \times 10^7$	4,77	$3,4 \times 10^{-1}$	
^{238}Pu	87,74 года	87,74 года	$6,4 \times 10^{11}$	5,49	$1,34 \times 10^4$	$2,2 \times 10^6$
^{239}Pu	$2,41 \times 10^4$ года	$2,41 \times 10^4$ года	$2,3 \times 10^9$	5,15	$3,81 \times 10^1$	$5,6 \times 10^3$
^{240}Pu	$6,56 \times 10^3$ года	$6,56 \times 10^3$ года	$8,4 \times 10^9$	5,15	$1,41 \times 10^2$	$2,1 \times 10^4$
^{241}Pu	14,35 года	$5,90 \times 10^5$ года	$9,4 \times 10^7$	4,89	1,3	$1,7 \times 10^2$
^{242}Pu	$3,76 \times 10^5$ года	$3,76 \times 10^5$ года	$1,4 \times 10^8$	4,90	2,0	$2,7 \times 10^2$
^{241}Am	433,6 года	433,6 года	$1,3 \times 10^{11}$	5,48	$2,69 \times 10^3$	
^{242}Cm	163 дня	163 дня	$1,2 \times 10^{14}$	6,10	$3,76 \times 10^6$	
^{244}Cm	18,1 года	18,1 года	$3,0 \times 10^{12}$	5,80	$7,73 \times 10^4$	
^{249}Bk	320 дней	$6,1 \times 10^4$ года	$8,8 \times 10^8$	5,40	$1,8 \times 10^1$	
^{252}Cf	2,646 года	2,731 года	$1,9 \times 10^{13}$	6,11	$6,0 \times 10^5$	

Альфа-частица, испускаемая ураном или плутонием, имеет энергию в диапазоне от 4 до 6 МэВ. Поскольку ^{234}U является доминирующим альфа-излучателем в обогащенном уране, средняя энергия альфа-частиц, испускаемых ураном, составляет 4,7 МэВ (см. табл. 11.3). Для плутония средняя энергия альфа-частиц составляет 5,2 МэВ. Длина пробега альфа-частиц урана в воздухе равна 3,2 см, плутония — 3,7 см. Длину пробега в других материалах можно оценить по формуле Брэгга-Климана [26]:

$$\text{Длина пробега} = 0,00032 \frac{\sqrt{A}}{\text{плотность, г / см}^3} \times \text{длина пробега в воздухе,} \quad (11.2)$$

где A — массовое число элемента.

Длина пробега в оксиде урана и плутония составляет приблизительно 0,006 и 0,007 см, соответственно. Таким образом, проходя через материал, альфа-частицы очень быстро теряют энергию. Во многих случаях эта малая длина пробега означает, что альфа-частица никогда не достигнет соседних материалов, в которых могли бы проходить реакции (α, n) . Однако, если такие элементы, как кислород или фтор, смешаны с альфа-излучающим ядерным материалом, реакция (α, n) возможна, поскольку альфа-частица может достигнуть этих элементов до того, как потеряет всю свою энергию.

Когда альфа-частица достигнет другого ядра, вероятность реакции зависит от значения энергии реакции Q , пороговой энергии и высоты кулоновского барьера. Значение энергии реакции Q — это разница в энергиях связи между двумя начальными ядрами и двумя конечными продуктами реакции. Если величина Q положительная, то в результате реакции освобождается энергия. Если величина Q отрицательная, то альфа-частица должна иметь, по крайней мере, столько же энергии в системе координат центра масс, чтобы реакция произошла. Если эту требуемую минимальную энергию преобразовать в лабораторную систему координат, она будет называться пороговой энергией:

$$\begin{aligned} \text{Пороговая энергия} &= -Q(1 + 4/A), & \text{если } Q \text{ отрицательная,} \\ \text{Пороговая энергия} &= 0, & \text{если } Q \text{ положительная.} \end{aligned} \quad (11.3)$$

Кулоновский барьер — это сила электростатического отталкивания, которую альфа-частица должна преодолеть для того, чтобы войти в ядро-мишень и взаимодействовать с ним.

$$\text{Кулоновский барьер (МэВ)} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})}, \quad (11.4)$$

где $Z_1 = 2$, $A_1 = 4$, $e^2 = 1,44$ МэВ·ферми, $r_0 = 1,2$ ферми, а Z_2 и A_2 относятся к ядру мишени [27]. Таким образом, реакция (α, n) энергетически возможна только в том случае, если альфа-частица обладает достаточной энергией, чтобы, во-первых, преодолеть или пройти сквозь кулоновский барьер, и, во-вторых, превысить пороговую энергию. (Обратите внимание на то, что потребности в этих двух энергиях не аддитивны). В табл. 11.4 [26, 28] эти свойства обобщаются для ядер изотопов с малой массой.

Таблица 11.4 – Значения энергии реакции Q, пороговой энергии и кулоновского барьера реакции (α, n)

Ядро	Распространенность в природе, %	Значение энергии реакции Q, МэВ [28]	Пороговая энергия, МэВ [28]	Кулоновский барьер, МэВ	Максимальная энергия нейтронов для альфа-частиц с энергией 5,2 МэВ, МэВ [26]
⁴ He	100	–18,99	38,0	1,5	
⁶ Li	7,5	–3,70	6,32	2,1	
⁷ Li	92,5	–2,79	4,38	2,1	1,2
⁹ Be	100	+5,70	0	2,6	10,8
¹⁰ B	19,8	+1,06	0	3,2	5,9
¹¹ B	80,2	+0,16	0	3,2	5,0
¹² C	98,9	–8,51	11,34	3,7	
¹³ C	1,11	+2,22	0	3,7	7,2
¹⁴ N	99,6	–4,73	6,09	4,1	
¹⁵ N	0,4	–6,42	8,13	4,1	
¹⁶ O	99,8	–12,14	15,2	4,7	
¹⁷ O	0,04	+0,59	0	4,6	5,5
¹⁸ O	0,2	–0,70	0,85	4,6	4,2
¹⁹ F	100	–1,95	2,36	5,1	2,9
²⁰ Ne	90,9	–7,22	8,66	5,6	
²¹ Ne	0,3	+2,55	0	5,5	7,6
²² Ne	8,8	–0,48	0,57	5,5	4,5
²³ Na	100	–2,96	3,49	6,0	1,8
²⁴ Mg	79,0	–7,19	8,39	6,4	
²⁵ Mg	10,0	+2,65	0	6,4	7,7
²⁶ Mg	11,0	+0,03	0	6,3	5,0
²⁷ Al	100	–2,64	3,03	6,8	2,2
²⁹ Si	4,7	–1,53	1,74	7,2	3,4
³⁰ Si	3,1	–3,49	3,96	7,2	1,4
³⁷ Cl	24,2	–3,87	4,29	8,3	1,0

Из табл. 11.4 видно, что реакции (α, n) с альфа-частицами, обладающими энергией 5,2 МэВ, возможны в 11 элементах с низким атомным номером. Для всех элементов с атомным номером больше, чем у хлора, реакция энергетически невозможна. В табл. 11.5 приведен наблюдаемый выход нейтронов в результате реакций (α, n) [29-33] для толстых мишеней. Толстая мишень — такой материал, толщина которого намного больше длины пробега альфа-частицы и в котором альфа-частицы теряют энергию только в элементе-мишени. Как видно из уравнения (11.2), длина пробега альфа-частиц в твердых телах составляет примерно 0,01 см.

Реакции (α, n) могут иметь место в таких соединениях урана или плутония, как, например, оксиды или фториды, и в таких элементах, как магний или бериллий, которые могут присутствовать в виде примесей. Выход нейтронов на грамм нуклида источника в чистых оксидах и фторидах приведен в двух последних столбцах табл. 11.3. Для других материалов выход нейтронов будет во многом зависеть от альфа-активности ядерных изотопов, энергии альфа-частиц, значений энергии реакции Q , концентрации примесей и степени смешивания (из-за короткого пробега альфа-частицы).

Уравнения (11.5)–(11.7) предусматривают оценку выхода нейтронов (α, n) -реакции в оксидах урана или плутония с примесями (предполагается, что смешивание безупречно). Выход в оксиде выглядит следующим образом:

$$Y_{\text{оксида}} = \sum_i M_i Y_i, \quad (11.5)$$

где M_i — масса i -го изотопа в граммах;

Y_i — выход нейтронов на грамм каждого альфа-излучающего изотопа, как показано в табл. 11.3.

Суммирование по i должно включать ^{241}Am , который является сильным альфа-излучателем. Выходы для соединений также можно оценить, умножая выходы из толстой мишени по табл. 11.5 на коэффициент K [34, 35]:

$$K = \frac{S_t N_t}{S_t N_t + S_\alpha N_\alpha}, \quad (11.6)$$

где S_t и S_α — скорости, при которых альфа-частица теряет энергию в материале мишени и в альфа-излучающем изотопе, соответственно;

N_t и N_α — плотности атомов мишени и альфа-излучающего изотопа, соответственно.

Некоторые значения отношения S_α/S_t приведены в [34].

Выходы из элементов, существующих в виде примесей в оксиде, могут быть оценены путем вычисления выхода нейтронов (α, n) -реакции в примесных элементах относительно выхода нейтронов (α, n) -реакции в оксиде. Аппроксимация в уравнении (11.7) пренебрегает различиями в энергиях альфа-частиц между изотопами и различиями в плотностях мишеней, которые являются результатом наличия примесей:

$$Y_{\text{примеси}} \approx Y_{\text{оксида}} \sum_j \frac{P_j A_o I_j S_j}{P_o A_j I_o S_o}, \quad (11.7)$$

где P_j — выход нейтронов (α, n)-реакции на примесном элементе из табл. 11.5;
 P_o — выход нейтронов (α, n)-реакции на кислороде: 0,059 нейтронов на 10^6 альфа-частиц плутония или 0,040 нейтронов на 10^6 альфа-частиц урана;
 A_j — массовое число примесного элемента;
 $A_o = 16$ — массовое число кислорода;
 I_j — концентрация примесей, выраженная в млн.⁻¹ (по весу) оксида;
 I_o — концентрация кислорода, выраженная таким же образом, например, 118 000 млн.⁻¹ для PuO_2 или 154 000 млн.⁻¹ для высокообогащенной U_3O_8 .

Полный выход нейтронов (α, n)-реакций представляет собой сумму уравнений (11.5) и (11.7).

Таблица 11.5 – Выходы нейтронов из толстой мишени при реакциях (α, n) (диапазон погрешностей определен разбросом данных различных публикаций)

Элемент (природный изотопный состав)	Выход нейтронов на 10^6 альфа- частиц с энергией 4,7 МэВ (^{234}U)	Выход нейтронов на 10^6 альфа-частиц с энергией 5,2 МэВ (средн. Pu)	Публи- кации	Средняя энер- гия нейтронов для альфа- частиц с энер- гией 5,2 МэВ, МэВ [29]
Li	$0,16 \pm 0,04$	$1,13 \pm 0,25$	30	0,3
Be	44 ± 4	65 ± 5	31	4,2
B	$12,4 \pm 0,6$	$17,5 \pm 0,4$	29, 30, 33	2,9
C	$0,051 \pm 0,002$	$0,078 \pm 0,004$	29, 30, 31	4,4
O	$0,040 \pm 0,001$	$0,059 \pm 0,002$	29, 30, 31	1,9
F	$3,1 \pm 0,3$	$5,9 \pm 0,6$	29, 30, 33	1,2
Na	$0,5 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,5$	32	
Mg	$0,42 \pm 0,03$	$0,89 \pm 0,02$	29, 30, 31	2,7
Al	$0,13 \pm 0,01$	$0,41 \pm 0,01$	29, 30, 31	1,0
Si	$0,028 \pm 0,002$	$0,076 \pm 0,003$	29, 30, 31	1,2
Cl	$0,01 \pm 0,01$	$0,07 \pm 0,04$	32	

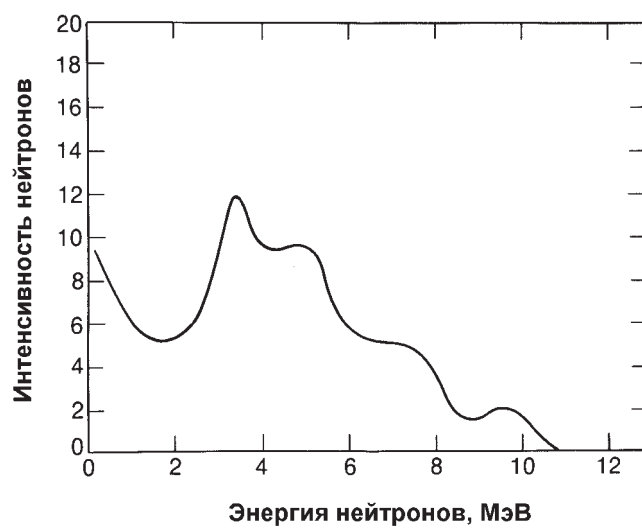


Рис. 11.4. Энергетический спектр нейтронов источника AmBe

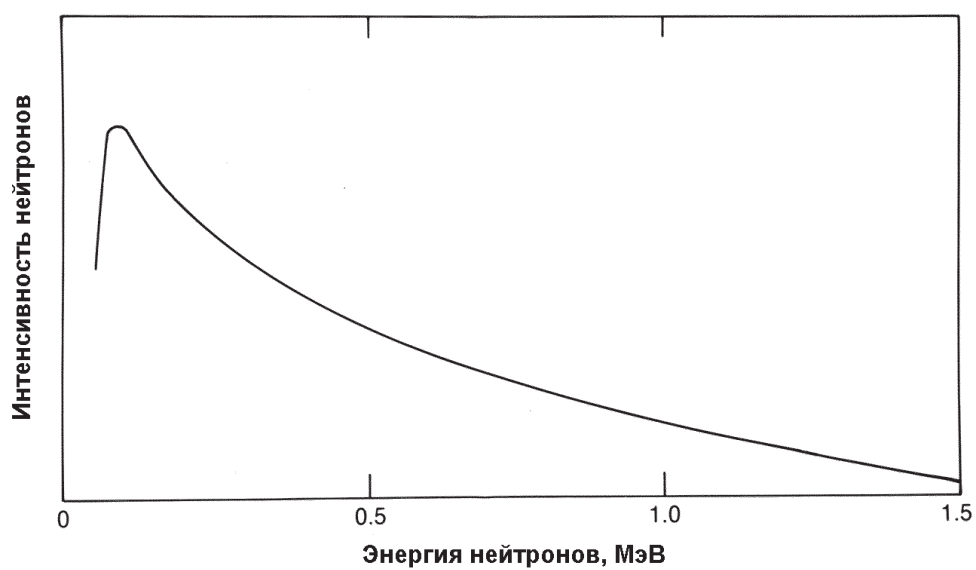


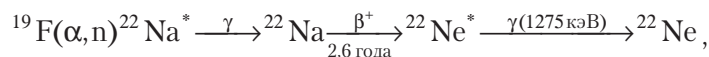
Рис. 11.5. Энергетический спектр нейтронов источника AmLi

Для наиболее точных измерений значения выходов нейтронов (α, n)-реакции из табл. 11.5 имеют погрешность от 5 до 10 %. Выходы нейтронов (α, n)-реакции на кислороде из табл. 11.3 имеют погрешность, не превышающую 10 %. Таким образом, даже при безупречном смешивании расчеты выхода нейтронов имеют погрешность, в лучшем случае, 10 %. Для влажных соединений, жидкостей или газов приведенные здесь оценки неправомерны.

Энергия нейтрона, испущенного при реакции (α, n), зависит от энергии, которую альфа-частица имеет в момент реакции, и от значения энергии реакции Q . Средняя энергия нейтронов толстой мишени приведена в табл. 11.5. Максимальная энергия нейтронов представлена в последнем столбце табл. 11.4. Нейтронные спектры некоторых источников показаны на рис. 11.4 и 11.5.

Еще одной важной характеристикой реакций (α, n) является то, что в каждой реакции излучается только один нейтрон. Эти события характеризуют нейтронный источник, который случаен во времени и имеет множественность, равную 1. Эта характеристика используется счетчиками нейтронных совпадений (главы 16, 17) для достижения избирательности между нейтронами спонтанного деления и нейтронами (α, n)-реакций.

Обратите внимание на то, что как реакции (α, n), так и реакции (α, p), могут оставить ядро в возбужденном состоянии; оно распадается, переходя в основное состояние и испуская один или более гамма-квантов. Например:



Здесь звездочкой обозначено ядро в возбужденном состоянии. Поскольку многие гамма-кванты этих реакций обладают высокой энергией и часто испускаются почти одновременно с нейтроном, они влияют на сигналы счетчиков полного потока нейтронов или нейтронных совпадений, в которые входят детекторы, чувствительные к гамма-излучению.

11.5 НЕЙТРОНЫ ДРУГИХ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Спонтанное деление, вынужденное деление и реакции (α, n) являются первичными источниками нейтронов, наблюдаемых при пассивных измерениях. Однако другие реакции, например, такие как (γ, n), (n, n') и ($n, 2n$), могут иметь место в образце или детекторной сборке и влиять на наблюдаемую скорость счета. В данном разделе вкратце описаны эти реакции. Примеры таких реакций даны в табл. 11.6. Такие реакции более важны для активных измерений неразрушающего анализа; подробную информацию об этом можно найти в [21].

Таблица 11.6 – Другие ядерные реакции, которые могут влиять на пассивный счет нейтронов

Источник излучения	Пороговая энергия, МэВ [28]	Материал мишени	Реакция	Испускаемое излучение	Выделяемая энергия [28]
Гамма-квант	1,665	Бериллий	(γ, n)	Нейтрон	$8(E_\gamma - 1,665)/9$ МэВ
Гамма-квант	2,224	Дейтерий	(γ, n)	Нейтрон	$(E_\gamma - 2,224)/2$ МэВ
Нейтрон	0	Водород	(n, γ)	Гамма-квант	2,224 МэВ
Протон	1,880	Литий-7	(p, n)	Нейтрон	≥ 30 кэВ
Протон	1,019	Тритий	(p, n)	Нейтрон	≥ 0 кэВ
Нейтрон	0,1-1,0	Свинец	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	0,1-1,0	Вольфрам	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	0,1-1,0	Уран	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	1,851	Бериллий	$(n, 2n)$	Нейтроны	
Нейтрон	3,338	Дейтерий	$(n, 2n)$	Нейтроны	
Нейтрон	5,340	Вольфрам	$(n, 2n)$	Нейтроны	

Реакция (γ, n) может образовывать нейтроны в любом элементе, если энергия гамма-излучения достаточно высока. Обычно минимальная пороговая энергия (~8 МэВ) гораздо больше, чем энергия гамма-квантов, излучаемых радиоактивными нуклидами. Однако пороговые энергии реакции (γ, n) для бериллия (1,66 МэВ) и дейтерия (2,22 МэВ) аномально низкие. Таким образом, можно создать фотонейтронный источник, окружая относительно интенсивные, долгоживущие гамма-источники большой энергии, такие как ^{124}Sb или ^{226}Ra , оболочкой из бериллия или D_2O . Подробный список фотонейтронных источников приведен в табл. 4.3 работы [21]. При использовании пассивного анализа необходимо помнить, что мгновенные гамма-кванты деления или гамма-кванты некоторых реакций (α, n) могут образовывать дополнительные нейтроны, если конструкция детектора содержит бериллий или дейтерий. Или, наоборот, нейтроны могут захватываться в водороде, образуя дейтерий и гамма-кванты с энергией 2,22 МэВ. Эти случаи включены в табл. 11.6.

Неупругое рассеяние нейтронов (n, n') может иметь место на тяжелых ядрах при энергии нейтронов приблизительно от 0,1 до 1,0 МэВ или больше. Эта реакция возможна, если ядро мишени имеет уровни энергии достаточно низкие для того, чтобы возбудиться нейтроном. Вероятность такой реакции невысока, и число присутствующих нейтронов не меняется. Тем не менее средняя энергия нейт-

ронов в материале будет уменьшаться быстрее, чем можно было бы ожидать только при упругом рассеянии.

Реакция $(n,2n)$ может увеличить число присутствующих нейтронов, но пороговая энергия в большинстве элементов находится в области 10 МэВ. Для дейтерия, бериллия и вольфрама пороги ниже, однако число дополнительно образовавшихся нейтронов скорее всего будет невелико. Вероятность реакций $(n,2n)$ следует принимать во внимание только в том случае, если известно, что нейтроны обладают высокой энергией при наличии дейтерия, бериллия или вольфрама и если измеряемые скорости счета совпадений очень низкие. В таких случаях наблюдаемый отклик может усиливаться.

11.6 ИЗОТОПНЫЕ НЕЙТРОННЫЕ ИСТОЧНИКИ

В лабораторной практике используют компактные переносные нейтронные источники с целью проверки работы приборов, предназначенных для анализа, или с целью облучения образцов для получения других наведенных сигналов. Для целей учета или безопасности важно иметь источники, не содержащие плутоний или уран, или содержащие их в малом количестве. Такие источники могут быть изготовлены с использованием других изотопов, излучающих нейтроны в результате спонтанного деления или реакции (α, n) между мощными альфа-излучающими изотопами и веществами, состоящими из элементов с низким атомным номером.

Таблица 11.7 – Характеристики ^{252}Cf

Полный период полураспада	2,646 года
Период полураспада для альфа-распада	2,731 года
Период полураспада для спонтанного деления	85,5 года
Выход нейтронов	$2,34 \times 10^{12}$ нейтр./с·г
Выход гамма-квантов	$1,3 \times 10^{13}$ γ/с·г
Выход альфа-частиц	$1,9 \times 10^{13}$ α/с·г
Средняя энергия нейтронов	2,14 МэВ
Средняя энергия гамма-квантов	1 МэВ
Средняя энергия альфа-частиц	6,11 МэВ
Нейтронная активность	$4,4 \times 10^9$ нейтр./с·Ки
Мощность дозы нейтронного излучения	2300 бэр/ч·г на расстоянии 1 м
Мощность дозы гамма-излучения	140 бэр/ч·г на расстоянии 1 м
Конверсия	558 Ки/г
Удельная тепловая мощность	38,5 Вт/г
Средняя множественность нейтронов спонтанного деления	3,757
Средняя множественность гамма-квантов спонтанного деления	8

Калифорний-252 является наиболее широко используемым источником нейтронов спонтанного деления; он может иметь очень маленькие размеры и все же быть мощным источником в течение длительного периода времени. В табл. 11.7 приведены некоторые свойства ^{252}Cf ; спектры испускаемых им мгновенных нейтронов и гамма-квантов показаны на рис. 11.2 и 11.3. В некоторых практических случаях важно помнить, что нейтроны ^{252}Cf испускаются со средней множественностью, равной 3,757. Поэтому они сильно коррелированы во времени и будут генерировать события совпадений.

Источники, излучающие случайные, некоррелированные нейтроны, могут быть изготовлены путем смешивания таких альфа-излучателей, как ^{238}Pu или ^{241}Am , с бериллием, литием, фтором или другими элементами, с которыми возможны реакции (α, n) .

В табл. 11.8 [1, 26, 36] обобщены характеристики наиболее распространенных источников нейтронов на основе реакции (α, n) . Одной из наиболее важных характеристик при практическом применении является период полураспада тяжелого элемента, испускающего альфа-частицы. Источники, перечисленные в табл. 11.8, имеют длительные периоды полураспада, за исключением $^{210}\text{PoBe}$.

Другой важной характеристикой является энергетический спектр нейтронов конкретного источника. В некоторых случаях важно иметь источник, испускающий нейтроны высокой энергии, которые обладают высокой проникающей способностью. В других случаях может оказаться важным избежать энергий нейтронов, достаточно высоких для деления изотопов плутония или урана (то есть такой источник должен обеспечивать "подпороговую" подсветку) или для возбуждения реакции $(n, 2n)$.

В настоящее время чаще других используются нейтронные источники $^{241}\text{AmBe}$ и $^{241}\text{AmLi}$, типичные нейтронные энергетические спектры которых показаны на рис. 11.4 и 11.5. Энергетические спектры могут в какой-то степени изменяться из-за наличия примесных элементов или неравномерного смешивания. (Кроме того, спектры нейтронов могут слегка изменять свою форму во времени, в зависимости от конструкции источника и его состава). Обратите внимание на то, что источники AmLi обычно изготавливаются путем смешивания $^{241}\text{AmO}_2$ с оксидом лития и что реакции (α, n) на кислороде дают вклад в спектр в виде высокоэнергетического "хвоста".

Источники $^{241}\text{AmBe}$ компактны, относительно недороги и не нуждаются в громоздкой защите от гамма-излучения. Однако высокоэнергетический спектр нейтронов вызывает реакции $(n, 2n)$, которые будут давать вклад в скорость счета совпадений. Источники $^{241}\text{AmLi}$ менее компактны, стоят дороже и требуют вольфрамовой защиты.

Таблица 11.8 – Характеристики некоторых изотопных источников на основе реакции (α, n)

Источник	Период полурас- пада, лет [1]	Средняя энергия альфа- частиц, МэВ [1]	Средняя энергия нейтро- нов, МэВ [1]	Макси- мальная энергия нейтро- нов, МэВ [26]	Доза гамма- излучения на рассто- янии 1 м от 10^6 н/с, мбэр/ч [36]	Кюри на грамм*	Выход, 10^6 н/с·Ки [36]
$^{210}\text{PoBe}$	0,38	5,3	4,2	10,9	0,01	4490	2-3
$^{226}\text{RaBe}$	1600	4,8	4,3	10,4	60	1	0-17
$^{238}\text{PuBe}$	87,74	5,49	4,5	11,0	0,006	17	2-4
$^{238}\text{PuLi}$	87,74	5,49	0,7	1,5	~1	17	0,07
$^{238}\text{PuF}_4$	87,74	5,49	1,3	3,2	~1	17	0,4
$^{238}\text{PuO}_2$	87,74	5,49	2,0	5,8	~1	17	0,003
$^{239}\text{PuBe}$	24 120	5,15	4,5	10,7	6	0,06	1-2
$^{239}\text{PuF}_4$	24 120	5,15	1,4	2,8	~1	0,06	0,2
$^{241}\text{AmBe}$	433,6	5,48	5,0	11,0	6	3,5	2-3
$^{241}\text{AmLi}$	433,6	5,48	0,3	1,5	2,5	3,5	0,06
^{241}AmB	433,6	5,48	2,8	5,0		3,5	
^{241}AmF	433,6	5,48	1,3	2,5		3,5	

*(Выход альфа-частиц/с·г) / ($3,7 \times 10^{10}$ Бк/Ки)

Из-за своего низкоэнергетического нейтронного спектра они находят широкое применение в качестве источников подпороговой подсветки при активном анализе, а также как контрольные источники случайных нейтронов при пассивной регистрации совпадений. В последнем случае важно знать о возможности присутствия примесей плутония в америции, что может вызвать появление нейтронов совпадений от его спонтанного деления.

Источники на основе реакции (α, n) испускают также гамма- и бета-излучение, и во многих случаях доза, наблюдаемая за пределами контейнера, определяется этим гамма-излучением. (Для сравнения: мощность эквивалентной дозы нейтронного излучения от источника с потоком 10^6 нейтр./с составляет примерно 1 мбэр/ч на расстоянии 1 м). Поэтому важным критерием выбора источника

может быть выход нейтронов источника на основе реакции (α, n) относительно его полного радиационного выхода в кюри. Это отношение приведено в последнем столбце табл. 11.8. Из-за высокого выхода гамма-квантов некоторые источники на основе реакции (α, n) следует упаковывать, используя защитный материал. Например, источники $^{241}\text{AmLi}$ помещаются в вольфрам толщиной 0,64-0,95 см для защиты от интенсивных гамма-квантов с энергией 60 кэВ, образующихся при альфа-распаде америция.

11.7 ВЫВОДЫ

Какие же свойства нейтронного излучения могут быть использованы для измерения количества отдельных изотопов? Ниже в обобщенном виде приведены некоторые важные характеристики.

1. Нечетно-четный эффект при спонтанном делении означает, что только воспроизводящие изотопы, такие, например, как ^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu являются сильными излучателями высокоэнергетических нейтронов (со средней энергией 2 МэВ). Для металлических образцов плутония полная интенсивность испускания нейтронов обычно непосредственно связана с массами присутствующих четных изотопов (без учета эффектов саморазмножения в образце — прим. пер.). Это также верно для металлического урана, хотя для практического анализа требуются килограммовые количества урана из-за более низкой интенсивности испускания нейтронов.

2. Множественность мгновенных нейтронов ($\nu = 2-3$) означает, что метод счета совпадений может обеспечить почти уникальную возможность обнаружения четных изотопов. Однако различие их множественности не настолько велико, чтобы провести дискриминацию между ними.

3. Регистрация мгновенных гамма-квантов деления вместе с нейтронами позволяет значительно увеличить чувствительность прибора. Однако разное поведение нейтронов и гамма-квантов в матрице образца и в детекторе создает дополнительные трудности связи измеренного отклика с массой образца. Поэтому такой подход не рекомендуется для широкого применения. Использование только мгновенного гамма-излучения — почти нетронутая область исследований, но связь измеренного отклика с массой образца является, вероятно, такой же сложной проблемой.

4. Выходы запаздывающих нейтронов слишком низки для пассивного анализа. Запаздывающие гамма-кванты обычно не регистрируются нейтронными детекторами, но вносят вклад в отклик сцинтилляторов. Как запаздывающие нейтроны, так и запаздывающие гамма-кванты очень важны для активного, но не пассивного анализа.

5. Делящиеся изотопы, например, такие как ^{235}U и ^{239}Pu , можно анализировать либо с помощью активных методов, либо косвенно с помощью пассивного анализа смежных воспроизводящих изотопов, если изотопный состав образца известен.

6. Реакции (α, n) позволяют проводить качественные пассивные анализы таких соединений, как $^{238}\text{PuO}_2$ и $^{234}\text{UF}_6$. И снова, вклад других изотопов может быть учтен из известного изотопного состава. Реакции (α, n) могут привести также к нежелательному пассивному излучению, усложняющему анализ. Для дискриминации нейтронов (α, n)-реакций часто используется счет нейтронных совпадений. Принципы и способы применения этих методов описаны в главах 14-17.

ЛИТЕРАТУРА

1. C.M. Lederer and V.S. Shirley, Eds., *Table of Isotopes*, 7th ed. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
2. R.T. Perry and W.B. Wilson, "Neutron Production from (α, n) Reactions and Spontaneous Fission in ThO_2 , UO_2 , and (U,Pu) O_2 Fuels," Los Alamos National Laboratory report LA-8869-MS (June 1981).
3. D.L. Johnson, "Evaluation of Neutron Yields from Spontaneous Fission of Transuranic Isotopes," *Transactions of the American Nuclear Society* 22, 673 (1975).
4. P. Fieldhouse, D.S. Mather, and E.R. Culliford, "The Spontaneous Fission Half-Life of ^{240}Pu ," *Journal of Nuclear Energy* 21, 749 (1967).
5. C. Budtz-Jorgensen and H.H. Knitter, "Neutron-Induced Fission Cross Section of Plutonium-240 in the Energy Range from 10 keV to 10 MeV," *Nuclear Science and Engineering* 79, 380 (1981).
6. Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-V (available from and maintained by the National Nuclear Data Center at Brookhaven National Laboratory).
7. E.K. Hyde, *The Nuclear Properties of the Heavy Elements, III, Fission Phenomena* (Dover Publications, New York, 1971).
8. J.O. Newton, "Nuclear Properties of the Very Heavy Elements," *Progress in Nuclear Physics* 4, 234 (1955).
9. J.A. Wheeler, in *Niels Bohr and the Development of Physics* (Pergamon Press, London, 1955), p.166.
10. J.W. Boldeman, D. Culley, and R. Cawley, "The Fission Neutron Spectrum from the Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Transactions of the American Nuclear Society* 32, 733 (1979).
11. W.P. Poenitz and T. Tamura, "Investigation of the Prompt Neutron Spectrum for Spontaneously-Fissioning ^{252}Cf ," Proc. Int. Conf. Nucl. Data Sci. Technol., Antwerp, Belgium, Sept. 1982, p.465.
12. D.G. Madland and J.R. Nix, "New Calculation of Prompt Fission Neutron Spectra and Average Prompt Neutron Multiplicities," *Nuclear Science and Engineering* 81, 213 (1982).
13. J. Terrell, "Neutron Yields from Individual Fission Fragments," *Physical Review* 127, 880 (1962).
14. W.G. Davey, "An Evaluation of the Number of Neutrons Per Fission for the Principal Plutonium, Uranium, and Thorium Isotopes," *Nuclear Science and Engineering* 44, 345 (1971).

15. J.W. Boldeman and M.G. Hines, "Prompt Neutron Emission Probabilities Following Spontaneous and Thermal Neutron Fission," *Nuclear Science and Engineering* 91, 114 (1985).
16. D.A. Hicks, J. Ise, and R. Pyle, *Physical Review* 101, 1016 (1956).
17. M.S. Zucker and N. Holden, "Parameters for Several Plutonium Nuclides and ^{252}Cf of Safeguards Interest," Proc. Sixth Annual Symp. ESARDA, Venice, 1984, p.341.
18. J. Terrell, "Distribution of Fission Neutron Numbers," *Physical Review* 108, 783 (1957).
19. A. Gavron and Z. Fraenkel, "Neutron Correlations in Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Physical Review C* 9, 623 (1974).
20. H.R. Bowman, S.G. Thompson, and J.O. Rasmussen, "Gamma-Ray Spectra from Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Physical Review Letters* 12 (8),195 (1964).
21. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
22. G.R. Keepin, *Physics of Nuclear Kinetics* (Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1965).
23. T.E. Sampson, "Neutron Yields from Uranium Isotopes in Uranium Hexafluoride," *Nuclear Science and Engineering* 54, 470 (1974).
24. W.B. Wilson, J.E. Stewart, and R.T. Perry, "Neutron Production in UF_6 from the Decay of Uranium Nuclides," *Transactions of the American Nuclear Society* 38, 176 (1981).
25. W.B. Wilson, Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1432, to N.Ensslin (1983).
26. R.D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1955).
27. J.B. Marion and F.C. Young, *Nuclear Reaction Analysis* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1968), p.108.
28. R.J. Howerton, "Thresholds and Q-Values of Nuclear Reactions Induced by Neutrons, Protons, Deuterons, Tritons, ^3He Ions, Alpha Particles, and Photons," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-50400, V24 (1981).
29. G.J.H. Jacobs and H. Liskien, "Energy Spectra of Neutrons Produced by Alpha Particles in Thick Targets of Light Elements," *Annals of Nuclear Energy* 10, 541 (1983).
30. J.K. Bair and J. Gomez del Campo, "Neutron Yields from Alpha-Particle Bombardment," *Nuclear Science and Engineering* 71, 18 (1979).
31. D. West and A.C. Sherwood, "Measurements of Thick-Target (α ,n) Yields from Light Elements," *Annals of Nuclear Energy* 9, 551 (1982).
32. J. Roberts, "Neutron Yields of Several Light Elements Bombarded with Polonium Alpha Particles," U.S. AEC report MDCC-731 (1947).
33. W.B. Wilson and R.T. Perry, "Thick-Target Neutron Yields in Boron and Fluorine," Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1835 to N.Ensslin (1987).

34. M.E. Anderson and J.F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
35. D. West, "The Calculation of Neutron Yields in Mixtures and Compounds from the Thick Target (α ,n) Yields in the Separate Constituents," *Annals of Nuclear Energy* 6, 549 (1979).
36. Joint Publication Research Center, *Neutron Sources*, JPRS-48421 (Washington, DC, July 1969).

Глава 12

Взаимодействие нейтронов с веществом

*Ф. Ринард
(Переводчик Т. С. Лим)*

12.1 ВВЕДЕНИЕ

Методы анализа ядерных материалов с помощью нейтронов основаны на их взаимодействии с веществом. Взаимодействие нейтронов с исследуемым веществом влияет на интерпретацию результатов нейтронных измерений и ограничивает количество делящегося материала, которое может безопасно содержаться в измерительном средстве. Регистрация нейтронов основана на некотором определенном типе взаимодействия нейтрона с веществом детектора. Кроме того, неизбежны взаимодействия нейтронов с материалом внешней защиты, которая применяется для обеспечения радиационной безопасности персонала.

В этой главе даны основные сведения по нейтронным взаимодействиям, которые представляют интерес для измерения ядерных материалов. В первой части описываются взаимодействия на микроскопическом уровне, когда отдельные нейтроны взаимодействуют с ядрами. Затем эти понятия обобщаются на макроскопические процессы взаимодействия нейтронов с материалами сложного химического состава.

12.2 МИКРОСКОПИЧЕСКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

12.2.1 Понятие сечения взаимодействия

Вероятность какого-то конкретного события, происходящего между нейтроном и ядром, характеризуется сечением взаимодействия. Если большое число нейтронов одинаковой энергии падает на тонкий слой вещества, то одна часть нейтронов пройдет через тонкий слой без взаимодействия, другая — сможет испытать взаимодействия, изменяющие их направление и энергию, а остальные нейтроны не смогут выйти из рассматриваемого образца. Каждое из этих событий имеет определенную вероятность. Например, вероятность того, что нейтрон останется в образце (т.е., нейтрон будет поглощен или захвачен), представляет собой отношение числа нейтронов, которые остались в нем, к числу нейтронов, первоначально падающих на слой вещества. Сечение взаимодействия, в результате которого нейтроны поглощаются в слое вещества, представляет собой вероятность поглощения нейтронов, деленную на поверхностную плотность атомов (число атомов мишени на единицу площади слоя). Таким образом, сечение взаимодействия имеет размерность площади, причем величина сечения взаимодействия составляет очень малую долю одного квадратного сантиметра из-за большого числа

атомов, находящихся на этой площади вещества. Так как этот тип сечения взаимодействия описывает вероятность взаимодействия нейтрона с одним ядром, то оно называется микроскопическим сечением взаимодействия и обозначается символом σ . (Макроскопическое сечение, описывающее взаимодействия нейтронов с массой вещества, определено в разделе 12.3).

Другой подход к пониманию концепции микроскопического сечения взаимодействия заключается в рассмотрении вероятности прохождения нейтрона через тонкий слой вещества с площадью A и числом ядер N в мишени, причем каждое ядро имеет площадь поперечного сечения s . Суммарная площадь всех ядер равна Ns . Вероятность столкновения одного нейтрона с одним ядром приблизительно равна отношению полной площади мишени Ns к площади слоя A . Другими словами, вероятность того, что один нейтрон испытает столкновение с ядром, равна Ns/A или $(N/A)s$, т.е. произведению поверхностной плотности ядер в мишени на площадь поперечного сечения s . Однако на атомном уровне сечение взаимодействия нейтрона представляет собой не просто геометрическую площадь поперечного сечения мишени. Заменяя это сечение s символом σ из предыдущего абзаца, величину σ можно рассматривать как эффективную площадь поперечного сечения данного взаимодействия. Это сечение взаимодействия имеет ту же размерность площади, что и величина площади поперечного сечения s .

Физическая площадь поперечного сечения s одного тяжелого ядра равна приблизительно 2×10^{-24} см². Значения сечений взаимодействия для большинства ядер обычно находятся в интервале между 10^{-27} и 10^{-21} см². Для того чтобы избежать неудобства в работе с такими малыми числами, применяется другая единица площади — барн. По определению, 1 барн = 10^{-24} см², поэтому физическая площадь поперечного сечения одного тяжелого ядра равна приблизительно 2 барна. Многие сечения нейтронных взаимодействий находятся в интервале значений от 0,001 до 1000 барн.

Каждый тип события имеет свои собственные вероятность и сечение взаимодействия. Вероятность каждого типа события не зависит от вероятности других. Поэтому полная вероятность любого события равна сумме отдельных вероятностей каждого типа взаимодействия. Аналогично, сумма всех отдельных сечений взаимодействий равна полному сечению взаимодействия.

12.2.2 Соотношение энергия-скорость для нейтронов

Величина сечения взаимодействия сильно зависит от энергии нейтрона (см. раздел 12.2.4). В данном разделе описывается соотношение между энергией и скоростью нейтрона. Эта связь между ними важна не только для понимания термина сечения взаимодействия, но также и для оценки времени, в течение которого нейтроны могут быть зарегистрированы соответствующими измерительными средствами.

Классическое выражение для кинетической энергии $E = mv^2/2$ является достаточно точным, потому что даже кинетическая энергия 100 МэВ составляет приблизительно одну десятую энергии массы покоя нейтрона (939,55 МэВ). Если скорость выражена в метрах в секунду, а энергия E — в мегаэлектронвольтах (МэВ), то

$$E = 5,227 \times 10^{-15} v^2 \quad (12.1)$$

$$\text{и } v = 1,383 \times 10^7 E^{1/2}. \quad (12.2)$$

График этой зависимости, представленный на рис. 12.1, можно применять на практике. Например, график показывает, что нейтрон с энергией 1 МэВ имеет скорость $1,383 \times 10^7$ м/с и, следовательно, приблизительно за 11 нс пересечет 15 см рабочей области детектора, применяемого для анализа. Тепловой нейтрон с энергией 0,025 эВ (см. раздел 12.2.3) имеет скорость 2187 м/с и пересечет ту же область приблизительно за 70 мкс.

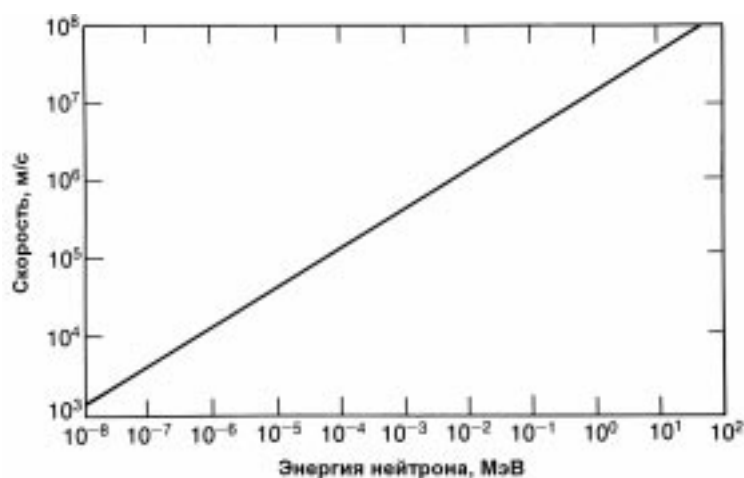


Рис. 12.1. Соотношение между скоростью и кинетической энергией нейтрона

12.2.3 Типы взаимодействий

Существует много типов взаимодействия нейтрона с ядром. На рис. 12.2 показаны типы взаимодействий и их сечения. На этом рисунке каждый тип взаимодействия состоит из всех взаимодействий, которые находятся ниже и соединены с ним. Полное сечение взаимодействия σ_t выражает вероятность того, что имеет место какое-то из этих взаимодействий.

Можно пользоваться простой системой обозначений, чтобы кратко указать нужный тип взаимодействия. Если нейтрон n падает на ядро мишени T , в результате чего образуется ядро R и вылетает частица g , то это взаимодействие обозначается как $T(n,g)R$. Снаружи скобок показаны тяжелые ядра. Для обозначения типа взаимодействия безотносительно к участвующим в реакции ядрам указывается только часть обозначения в скобках. Например, реакция (n,p) описывает конкретное взаимодействие $^{10}\text{B}(n,p)^{10}\text{Be}$.

Взаимодействие может быть одним из двух основных типов: рассеянием или поглощением. Когда нейтрон рассеивается на ядре, его скорость и направление изменяются, но ядро остается с тем же самым числом протонов и нейтронов, которое оно имело до взаимодействия. Ядро может перейти в возбужденное состоя-

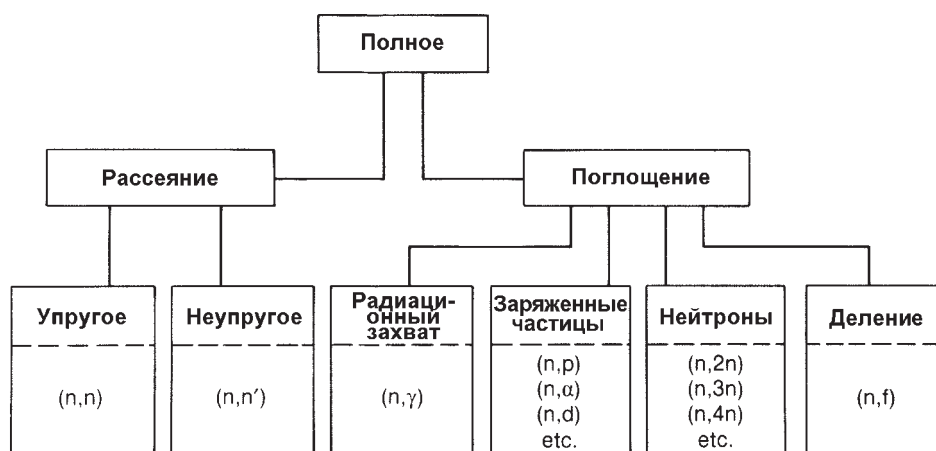


Рис. 12.2. Классификация типов нейтронных взаимодействий. Буквы, разделенные запятыми в скобках, показывают вызывающие реакцию и образующиеся частицы

ние, что приведет в конечном итоге к испусканию излучения. Если нейтрон поглощается ядром, то может испускаться широкий спектр излучения или произойти деление ядра.

Рассеяние может быть упругим и неупругим. При упругом рассеянии суммарная кинетическая энергия нейтрона и ядра не изменяется. В процессе взаимодействия часть кинетической энергии нейтрона передается ядру. Для нейтрона с кинетической энергией E , который сталкивается с ядром с массовым числом A , в среднем энергетические потери равны $2EA/(A+1)^2$. Это соотношение показывает, что для уменьшения скорости нейтронов (т.е., для их замедления) при наименьшем числе упругих столкновений следует применять ядра мишени с относительно небольшим массовым числом A . При использовании водорода, $A = 1$, средние энергетические потери имеют самое большое значение, равное $E/2$. Нейтрон с начальной кинетической энергией 2 МэВ после одного упругого рассеяния будет иметь (в среднем) кинетическую энергию 1 МэВ, после второго такого рассеяния — 0,5 МэВ, и так далее. Для получения кинетической энергии со значением 0,025 эВ должно было бы произойти 27 упругих рассеяний. (Нейтрон с кинетической энергией 0,025 эВ находится почти в тепловом равновесии со своей окружающей средой и считается "тепловым нейтроном". Энергия $E = 0,025$ эВ соответствует температуре $T = 20^\circ\text{C}$, как это следует из соотношения $E = kT$, где k — постоянная Больцмана). После n упругих столкновений кинетическая энергия нейтрона изменится от E_0 до E_n , где $E_n = E_0[(A^2 + 1)/(A + 1)^2]^n$. Таким образом, для достижения значения кинетической энергии E_n нейтрону с первоначальной энергией E_0 требуется в среднем n столкновений, где $n = \log(E_n/E_0)/\log[(A^2 + 1)/(A + 1)^2]$. Примеры среднего числа столкновений, которое требуется для "термализации" нейтрона с кинетической энергией 2 МэВ в некоторых материалах, приведены в табл. 12.1.

Неупругое рассеяние похоже на упругое рассеяние, за исключением того, что ядро переходит в дискретное возбужденное состояние, которое снимается, в конечном счете, в результате испускания излучения. В результате неупругого рассе-

яния полная кинетическая энергия вылетающего нейтрона и ядра меньше кинетической энергии падающего нейтрона. Часть первоначальной кинетической энергии идет на переход ядра в возбужденное состояние. Средние энергетические потери зависят от энергетических уровней ядра. Простым результатом таких взаимодействий нейтрона с веществом является уменьшение скорости нейтрона и изменение направления его движения. Если все возбужденные состояния ядра имеют слишком высокую энергию по сравнению с энергией падающего нейтрона, то неупругое рассеяние невозможно. В частности, ядро водорода не имеет возбужденных состояний, поэтому в случае водорода могут происходить только упругие рассеяния. Вообще говоря, процесс рассеяния замедляет или уменьшает энергию нейтронов. На этом принципе основаны некоторые нейтронные детекторы (например, детекторы протонов отдачи).

Таблица 12.1 – Среднее число столкновений, необходимое для снижения энергии нейтрона от 2 МэВ до 0,025 МэВ в результате упругого рассеяния

Элемент	Массовое число	Число столкновений
Водород	1	27
Дейтерий	2	31
Гелий	4	48
Бериллий	9	92
Углерод	12	119
Уран	238	2175

Наряду с рассеянием на ядре, нейтрон может испытать поглощение или захват. Различные типы испускаемых вслед за этим частиц показаны на рис. 12.2. Ядро может изменить свою внутреннюю структуру и испустить несколько гамма-квантов. Могут также испускаться заряженные частицы, чаще всего - протоны, дейтоны и альфа-частицы. Кроме того, ядра могут избавляться от избыточных нейтронов. Эмиссия только одного нейтрона ничем не отличается от события рассеяния. Если испускаются несколько нейтронов, причем число нейтронов, присутствующих в веществе, больше, чем было до взаимодействия, то, говорят, что имело место размножение нейтронов. Наконец, возможно деление ядра, приводящее к образованию двух и более осколков деления (ядер с промежуточными массовыми числами) и нескольких нейтронов (см. главу 11).

Многие приборы, используемые для контроля ядерных материалов, содержат нейтронные детекторы, основанные на реакции поглощения. Отсутствие электрического заряда у нейтрона затрудняет его непосредственное обнаружение. Нейтрон должен сначала поглотиться ядром материала детектора, которое затем испускает заряженную частицу (такую, как протон или дейтон). Обычно в детекторах используются гелий-3, уран-235 и бор-10, поскольку они имеют большие сечения взаимодействия с образованием заряженных частиц под действием медленных нейтронов.

В случае, если требуется только замедлить нейтроны, то следует избегать их поглощения. Например, водород является лучшим замедлителем, чем дейтерий (т.е., в случае водорода требуется меньше столкновений для достижения заданной низкой скорости). Однако водород обладает большим сечением поглощения нейтронов. В результате дейтерий дает больше тепловых нейтронов, чем водород, и он более предпочтителен в качестве замедляющего материала.

Сечения взаимодействия, связанные с различными типами взаимодействий, описанными выше, можно обозначить следующим образом:

- σ_t — полное сечение взаимодействия ($\sigma_s + \sigma_a$);
- σ_s — полное сечение рассеяния ($\sigma_{el} + \sigma_i$);
- σ_{el} или $\sigma_{n,n}$ — сечение упругого рассеяния;
- σ_i или $\sigma_{n,n'}$ — сечение неупругого рассеяния (с возбуждением уровней ядра);
- σ_a или σ_c — сечение поглощения или захвата;
- σ_{ne} — полное сечение неупругих процессов взаимодействия (кроме сечения упругого рассеяния), $\sigma_t - \sigma_{el}$;
- $\sigma_{n,g}$ — сечение поглощения или радиационного захвата;
- σ_f или $\sigma_{n,f}$ — сечение деления;
- $\sigma_{n,p}$ — сечение реакции (n,p).

12.2.4 Зависимость сечения взаимодействия от энергии

Все сечения взаимодействия, описанные выше, изменяются в зависимости от энергии нейтрона и типа ядра мишени, причем иногда очень существенно. В этом разделе рассмотрены некоторые обобщения, касающиеся зависимости сечения взаимодействия от энергии, и приведены данные для нескольких важных изотопов [1].

На рис. 12.3 представлено полное сечение ^{239}Pu для падающих нейтронов с энергией от 0,001 эВ до 10 МэВ. Заметим, что, как правило, сечение взаимодействия уменьшается с увеличением энергии. При низких значениях энергии, ниже 1 эВ, сечение упругого рассеяния приблизительно постоянно, тогда как сечение поглощения нейтрона обратно пропорционально скорости нейтрона, т.е. $1/v$. Поэтому при низких энергиях полное сечение взаимодействия может быть приблизительно постоянным или может уменьшаться с ростом энергии в зависимости от того, какой тип событий является доминирующим. Например, в случае ядра ^{239}Pu преобладает взаимодействие с поглощением нейтронов, поэтому полное сечение взаимодействия уменьшается по закону $1/v$. Аналогичное поведение наблюдается для большинства ядер с малыми и промежуточными массовыми числами. На рис. 12.4 и 12.5 показано поведение полного сечения взаимодействия для бора и кадмия при низких энергиях нейтрона. Необычно высокие значения сечений взаимодействия с поглощением нейтрона для этих двух веществ делают их полезными в качестве поглотителей тепловых нейтронов.

При более высоких энергиях в сечении взаимодействия могут иметь место резкие пики, которые накладываются на общую тенденцию поведения по закону $1/v$. Эти пики называются резонансами и соответствуют энергиям, при которых возрастает сечение взаимодействия нейтрона с ядрами. Например, резонанс происходит, если ядро и захваченный нейтрон образуют "компаунд"-ядро (составное ядро), а энергия, которую вносит в ядро нейтрон, близка к энергии возбужденного состояния составного ядра.

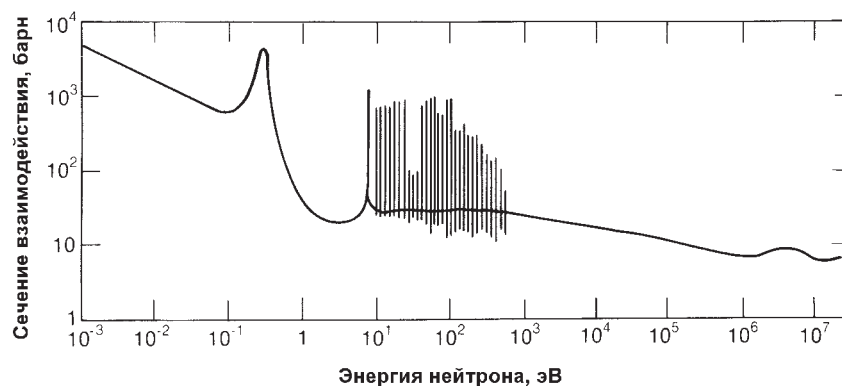


Рис. 12.3. Полное сечение взаимодействия нейтронов с ^{239}Pu

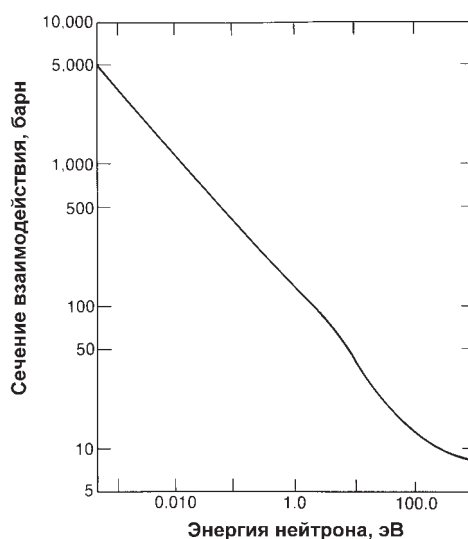


Рис. 12.4. Полное сечение взаимодействия нейтронов с бором в области низких энергий [1]

Для тяжелых ядер в области энергий нейтронов, составляющих несколько электронвольт, появляются высокие и узкие резонансы. Для энергий в области килоэлектронвольт резонансы могут быть слишком близкими и трудноразрешимыми. В мегаэлектронвольтной области резонансы более редкие и очень широкие, в результате чего сечения взаимодействия становятся гладкими и плавными. Для легких ядер резонансы появляются только в мегаэлектронвольтной области, они широкие и относительно небольшие. Для ядер с промежуточными массовыми числами (такими, как кадмий, никель, железо) резонансы можно обнаружить ниже 1 кэВ. Эти резонансы имеют амплитуду и ширину в промежуточном диапа-

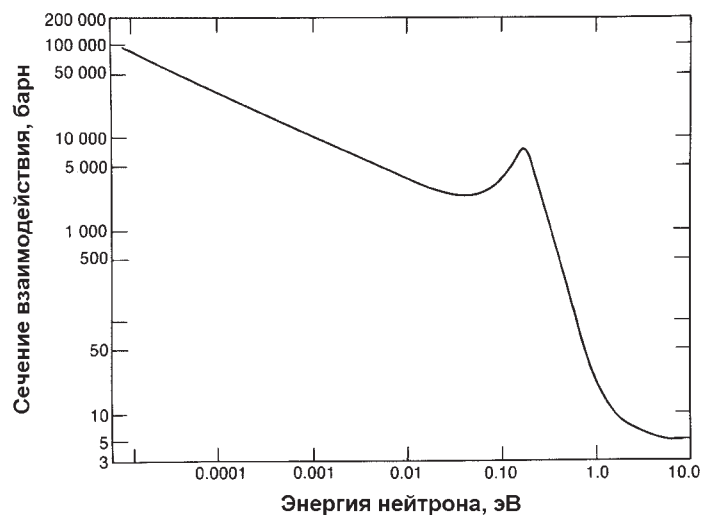


Рис. 12.5. Полное сечение взаимодействия нейтронов с кадмием в области низких энергий [1]

зоне значений по сравнению с соответствующими величинами для легких и тяжелых ядер.

Некоторые исключения из общих тенденций имеются в ядрах ^1H и ^2H , у которых вообще нет резонансов, а также в ядрах с магическими числами протонов или нейтронов, поведение которых может быть таким же, как у легких ядер, несмотря на фактическое различие массовых чисел. На практике необходимо пользоваться таблицами сечений взаимодействия для рассматриваемых ядер, поскольку не существует надежного метода вычисления сечений взаимодействия. Некоторые микроскопические сечения взаимодействия представлены в табл. 12.2 раздела 12.3.

Некоторые сечения для нейтронных реакций вынужденного деления ядер, важные для неразрушающего контроля, показаны на рис. 12.6. Делящиеся изотопы ^{235}U и ^{239}Pu имеют большие сечения деления (приблизительно 1000 барн) при делении тепловыми или надтепловыми нейтронами. Для быстрых нейтронов с энергиями от 10 кэВ до 10 МэВ эти сечения уменьшаются до 1-2 барн. Воспроизводящие изотопы ^{238}U и ^{240}Pu имеют пренебрежимо малые сечения реакции деления в области низких энергий нейтронов, но обладают порогом взаимодействия при кинетической энергии нейтрона около 1 МэВ. Выше 1 МэВ сечения деления быстрыми нейтронами воспроизводящих изотопов (^{238}U и ^{240}Pu) сравнимы с аналогичными величинами для делящихся изотопов (^{235}U и ^{239}Pu).

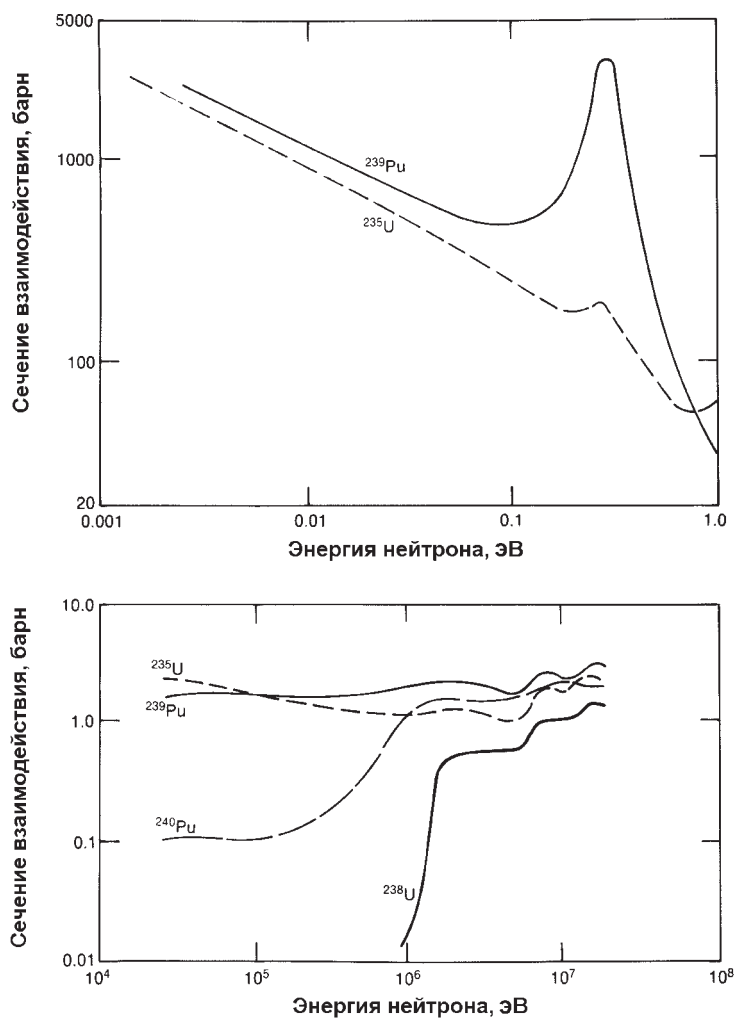


Рис. 12.6. Сечения деления некоторых важных делящихся (^{235}U и ^{239}Pu) и воспроизводящих (^{238}U и ^{240}Pu) изотопов [1]

12.3 МАКРОСКОПИЧЕСКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

12.3.1 Макроскопические сечения

Несмотря на то, что изучение рассмотренных типов взаимодействия нейтрона с отдельным ядром на микроскопическом уровне позволяет понять процесс взаимодействия, на самом деле измерения выполняются на образцах значительной толщины, которые часто содержат смесь элементов. Эти дополнительные особенности описываются с помощью макроскопических сечений, соответствующих реальным образцам материалов.

Определение макроскопического сечения взаимодействия можно получить, рассматривая прохождение параллельного пучка нейтронов через толстый образец. Толстый образец можно рассматривать как ряд атомных слоев, для каждого из которых можно применить результаты, полученные на основе понятия микроскопического сечения. Интегрируя по количеству слоев, которые содержатся в толщине x образца, получаем выражение для интенсивности $I(x)$ нейтронов, прошедших слой толщиной x без взаимодействия:

$$I(x) = I_0 e^{-N\sigma_t x}, \quad (12.3)$$

где I_0 – интенсивность первоначального падающего пучка;

N – плотность атомов;

σ_t – полное сечение взаимодействия (выводящее нейтроны из первичного пучка в результате процессов рассеяния или поглощения).

На рис. 12.7 показана интенсивность нейтронов, прошедших слой вещества толщиной x без взаимодействий. Заметим, что отношение $I(x)/I_0$ зависит от энергии нейтронов через зависимость от энергии микроскопического полного сечения взаимодействия σ_t .

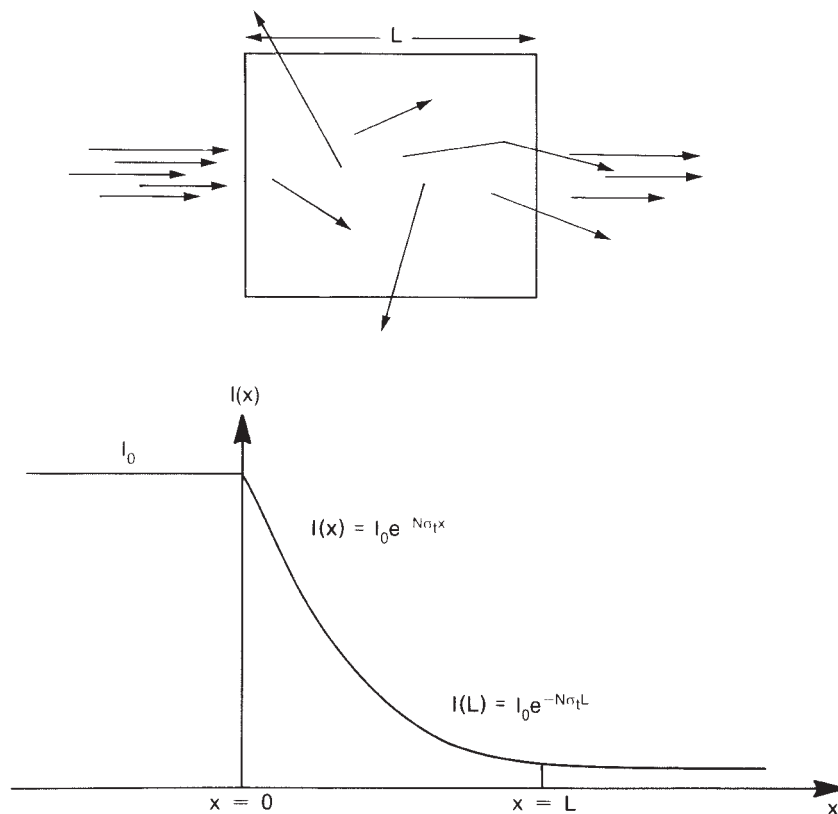


Рис. 12.7. Экспоненциальное ослабление интенсивности параллельного пучка при прохождении слоя вещества без взаимодействий

Выражение, аналогичное уравнению (12.3), применяется также для вычисления ослабления гамма-квантов. В этом случае достаточно одного акта взаимодействия, чтобы гамма-кванты были поглощены и, таким образом, удалены из параллельного пучка. Для низкоэнергетических нейтронов наиболее вероятным событием является упругое рассеяние. Хотя уравнение (12.3) дает интенсивность нейтронов, не испытавших взаимодействия при прохождении слоя толщиной x , реальное число нейтронов, которые можно обнаружить, может быть значительно больше вследствие многократного рассеяния, размножения или конечности входной угловой апертуры детектора.

Полное макроскопическое сечение взаимодействия $\Sigma_t = N\sigma_t$. Эта величина имеет размерность см^{-1} (см. выше уравнение (12.3)) и аналогична линейному коэффициенту ослабления гамма-квантов. Если интерес представляет только один определенный тип взаимодействия, то макроскопическое сечение можно определить только для этого одного типа взаимодействия, заменив полное сечение микроскопическим сечением этого типа взаимодействия. Для количественных расчетов понятие макроскопического сечения взаимодействия нейтронов с веществом используется реже, чем аналогичное понятие линейного коэффициента ослабления гамма-квантов, из-за сложности процесса многократного рассеяния и других эффектов, о которых было рассказано в предыдущем параграфе.

Если образец представляет собой химическое соединение из нескольких элементов, то полное макроскопическое сечение взаимодействия является суммой макроскопических сечений отдельных элементов:

$$\Sigma = \Sigma_1 + \Sigma_2 + \Sigma_3 + \dots \quad (12.4)$$

Плотность атомов N_i для каждого i -го элемента задается следующим образом:

$$N_i = \rho N_a n_i / M, \quad (12.5)$$

где ρ — плотность соединения;

M — молекулярная масса соединения;

$N_a = 6,022 \times 10^{23}$ атом/моль — число Авогадро;

n_i — число атомов i -го элемента в одной молекуле.

Из уравнений (12.4) и (12.5) общее выражение для макроскопического сечения взаимодействия можно записать следующим образом:

$$\Sigma = \frac{\rho N_a}{M} (n_1 \sigma_1 + n_2 \sigma_2 + n_3 \sigma_3 + \dots). \quad (12.6)$$

В качестве иллюстрации этих уравнений приведем пример расчетов по данным табл. 12.2. Полное макроскопическое сечение взаимодействия для нейтронов с энергией 1 МэВ в диоксиде урана природного обогащения (плотность 10 г/см^3 , молекулярная масса 270) равно

$$\Sigma_t = \frac{(10)(0,6022)}{270} [0,007(6,84) + (0,993)(7,10) + 2(8,22)] = 0,525 \text{ см}^{-1}. \quad (12.7)$$

Степени 10^{24} и 10^{-24} в уравнении для значений числа Авогадро и сечений взаимодействия были сокращены. Значения сечений взаимодействия были взяты из табл. 12.3 [2], в которой собраны микроскопические и макроскопические сечения

взаимодействия для двух энергий нейтрона: 0,025 эВ (тепловые нейтроны) и 2 МэВ.

Таблица 12.2 – Ядерные данные для диоксида урана природного обогащения

Изотоп	n_i	σ_i при энергии нейтрона 1 МэВ, барн
^{235}U	0,007	6,84
^{238}U	0,993	7,10
^{16}O	2,000	8,22

12.3.2 Длина свободного пробега и скорость реакции

Очень информативной характеристикой прохождения нейтронов через реальные образцы вещества является средняя длина свободного пробега. Она представляет собой среднее расстояние, которое нейтрон проходит между взаимодействиями, и может быть вычислена из уравнения (12.3), в котором $N\sigma_i$ заменяется полным макроскопическим сечением Σ_t . В результате этого получаем, что средняя длина свободного пробега является величиной, обратной макроскопическому сечению взаимодействия:

$$\lambda = 1 / \Sigma_t. \quad (12.8)$$

В случае нейтронов с кинетической энергией 1 МэВ для диоксида урана UO_2 и вычисленного выше значения макроскопического сечения $0,525 \text{ см}^{-1}$ получаем по формуле (12.8) значение средней длины свободного пробега, равное 1,91 см.

Средняя длина свободного пробега применяется для многих количественных оценок в приборостроении и при проектировании защитных экранов:

а) если в приборе пассивного анализа средняя длина свободного пробега нейтронов, испущенных образцом, сравнима с его размерами, то вероятно, что большинство нейтронов вылетят из образца и попадут в область детектирования;

б) если известно число столкновений, необходимых для термализации нейтронов, то можно получить оценку требуемой толщины замедлителя;

в) если толщина защитного экрана в несколько раз превышает среднюю длину свободного пробега нейтрона, то защитный экран соответствует своему назначению. (Поскольку средняя длина свободного пробега является функцией энергии нейтрона, точный расчет достаточно сложен).

С понятием средней длины свободного пробега тесно связано понятие скорости реакции. Если нейтрон движется со скоростью v , то среднее время между его взаимодействиями равно отношению λ/v . Скорость реакции представляет собой частоту, с которой происходят взаимодействия: v/λ или $v\Sigma_t$. Например, для оксида урана при энергии нейтрона 1 МэВ скорость реакции равна $7,26 \times 10^8$ взаимодействий в секунду (в соответствии с уравнениями (12.2) и (12.7)). Однако это не означает, что за секунду произойдет столько столкновений. При каждом столкновении энергия нейтрона уменьшается, и сечение взаимодействия изменяется, в связи с чем изменяется и скорость реакции.

Путь нейтронов в веществе можно смоделировать, используя метод Монте-Карло. На рис. 12.8 показаны несколько траекторий для нейтронов с кинетической энергией 1 МэВ, взаимодействующих с цилиндрами из различных материа-

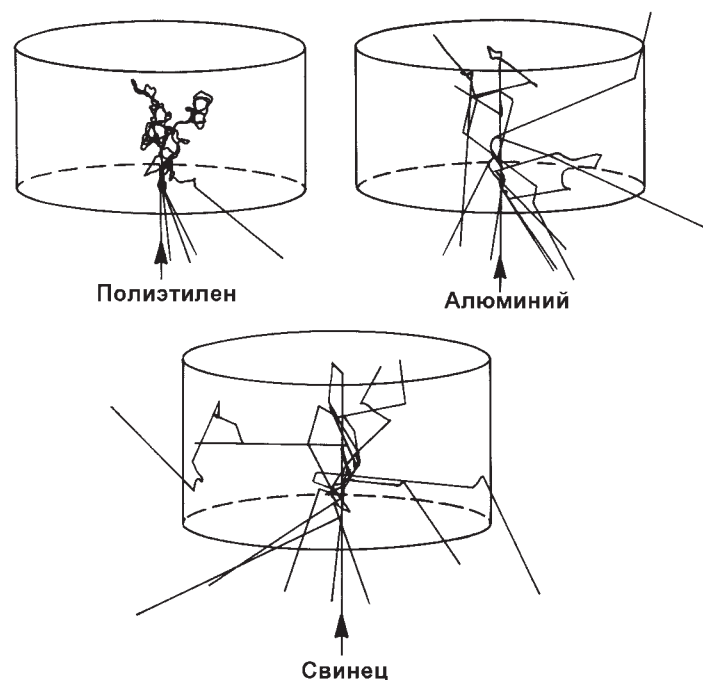


Рис. 12.8. Схема траекторий нейтронов с начальной кинетической энергией 1 МэВ, входящих в цилиндр вещества снизу и затем испытавших рассеяние или поглощение (результаты получены моделированием методом Монте-Карло)

лов. Средняя длина свободного пробега зависит как от типа материала, так и от энергии нейтрона. После каждого столкновения энергия нейтрона уменьшается и, соответственно, изменяется средняя длина свободного пробега нейтрона. Как видно из рис. 12.8, цилиндр из полиэтилена более эффективно препятствует переносу нейтронов, чем цилиндр из тяжелых металлов. Нейтрон теряет большую часть своей энергии при столкновении с легкими ядрами в полиэтилене, вследствие чего средняя длина свободного пробега нейтрона уменьшается, а сечения взаимодействия увеличиваются. Важное свойство полиэтилена заключается в том, что он накапливает большую часть нейтронов на определенной глубине; эти нейтроны испытали достаточное количество столкновений и потеряли почти всю свою кинетическую энергию. Если детектор тепловых нейтронов помещается в эту область, вероятность обнаружения нейтронов становится оптимальной.

12.4 ЭФФЕКТЫ ЗАМЕДЛЕНИЯ В БОЛЬШОМ ОБЪЕМЕ ВЕЩЕСТВА

Часто задачей проектирования является уменьшение или замедление скорости нейтронов в объеме образца, или в объеме детектора, или в них обоих. Напомним, что сечения взаимодействия изменяются по общему закону $1/v$ (см. рис. 12.3 — 12.6). Поэтому задача обычно сводится к увеличению вероятности

взаимодействия. В других случаях, наоборот, необходимо уменьшить взаимодействия, выбрав материал, являющийся плохим замедлителем, либо удалить нейтроны после их замедления, добавив материалы-поглотители, которые поглощают низкоэнергетические нейтроны.

Таблица 12-3 – Нейтронные сечения для распространенных материалов [2]

Материал	Массовое число или молекулярная масса	Плотность, г/см ³	Сечение взаимодействия*							
			E = 0,0253 эВ				E = 1 МэВ			
			σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹	σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹
Al	27	2,7	1,61	0,232	0,097	0,014	2,37	0,000	0,143	0,000
B	10	2,3	3845	3843	533	532	2,68	0,189	0,371	0,0262
B	11	2,3	5,28	0,005	0,665	0,0006	2,13	0,000	0,268	0,000
Be	9	9,0	6,35	0,010	3,82	0,0060	3,25	0,003	1,96	0,0018
C	12	1,9	4,95	0,003	0,472	0,0003	2,58	0,000	0,246	0,000
Прир. Са	40,08	1,55	3,46	0,433	0,081	0,101	1,14	0,004	0,027	0,0001
Cd	112	8,7	2470	2462	115,5	115,2	6,50	0,058	0,304	0,0027
Прир. Cl	35,45	Газ	50,2	33,4	Газ	Газ	2,30	0,0005	Газ	Газ
Прир. Cu	63,55	8,94	12,5	3,80	1,06	0,322	3,40	0,011	0,288	0,0009
F	19	Газ	3,72	0,010	Газ	Газ	3,15	0,000	Газ	Газ
Fe	56	7,9	14,07	2,56	1,19	0,217	5,19	0,003	0,441	0,0003
Прир. Gd	157,25	7,95	49153	48981	1496	1491	7,33	0,223	0,223	0,0068
H	1	Газ	30,62	0,33	Газ	Газ	4,26	0,000	Газ	Газ
H	2	Газ	4,25	0,000	Газ	Газ	2,87	0,000	Газ	Газ
He	3	Газ	5337	5336	Газ	Газ	2,87	0,879	Газ	Газ
He	4	Газ	0,86	0,000	Газ	Газ	7,08	0,000	Газ	Газ
Li	6	0,534	938	937	50,3	50,2	1,28	0,230	0,069	0,0123
Li	7	0,534	1,16	0,036	0,053	0,0017	1,57	0,000	0,072	0,0000
Прир. Mg	24,31	1,74	3,47	0,063	0,150	0,0027	2,66	0,001	0,115	0,0000
Mn	55	7,2	14,5	13,2	1,14	1,04	3,17	0,003	0,250	0,0002
N	14	Газ	12,22	1,9	Газ	Газ	2,39	0,021	Газ	Газ
Na	23	0,971	3,92	0,529	0,100	0,0134	3,17	0,000	0,081	0,0000
Ni	59	8,9	23,08	4,58	2,10	0,416	3,66	0,0008	0,322	0,0001
O	16	Газ	3,87	0,000	Газ	Газ	8,22	0,000	Газ	Газ
Pb	204	11,34	11,40	0,18	0,381	0,0060	4,39	0,0033	0,147	0,0001

Окончание таблицы 12.3

Материал	Массовое число или молекулярная масса	Плотность, г/см ³	Сечение взаимодействия*							
			E = 0,0253 эВ				E = 1 МэВ			
			σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹	σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹
Pu	238,05	19,6	599,3	562,0	29,72	27,87	6,66	0,190	0,330	0,0094
Pu	239,05	19,6	1021	270	50,4	13,3	7,01	0,026	0,346	0,0013
Pu	240,05	19,6	294	293	14,5	14,4	7,15	0,108	0,352	0,0053
Pu	241,06	19,6	1390	362	68,1	17,7	7,98	0,117	0,391	0,0057
Pu	242,06	19,6	26,7	18,9	1,30	0,922	7,31	0,098	0,357	0,0048
Прир. Si	28,09	2,42	2,24	0,161	0,116	0,0084	4,43	0,001	0,230	0,0001
Th	232	11,3	20,4	7,50	0,598	0,220	7,00	0,135	0,205	0,0040
U	233,04	19,1	587	45,8	29,0	2,26	6,78	0,069	0,335	0,0034
U	234,04	19,1	116	103	5,70	5,07	8,02	0,363	0,394	0,0178
U	235,04	19,1	703	96,9	34,3	4,74	6,84	0,117	0,335	0,0057
U	236,05	19,1	13,3	5,16	0,648	0,251	7,73	0,363	0,377	0,0177
U	237,05	19,1	487,5	476,4	23,6	23,1	6,72	0,135	0,326	0,0066
U	238,05	19,1	11,63	2,71	0,562	0,131	7,10	0,123	0,343	0,0059
Прир. U	238,03	19,1	16,49	3,39	0,797	0,1637	7,01	0,120	0,343	0,0058
Прир. W	183,85	19,3	23,08	18,05	1,459	1,141	6,95	0,057	0,439	0,0036
CH ₂	14	0,94			2,68	0,027			0,449	0,0000
H ₂ O	18	1,0			2,18	0,022			0,560	0,0000
D ₂ O	20	1,1			0,410	0,000			0,420	0,0000
Среднее продуктов деления:										
²³⁵ U	117		4496	4486			7,43	0,00036		
²³⁹ Pu	119		2087	2086			7,48	0,00093		

* Нули означают нулевое значение для нескольких показанных цифр.

Например, при анализе плутония замедление в объеме образца дает нежелательный эффект. Высокоэнергетические нейтроны способны глубже проникать в образец и имеют меньшие сечения деления, поэтому размножение для высокоэнергетических нейтронов меньше, чем для низкоэнергетических. С другой стороны, замедление нейтронов в рабочем объеме детектора повышает эффективность регистрации для таких детекторов, как пропорциональные газонаполненные

счетчики с ^3He -наполнением. Размещая водородосодержащее вещество (например, полиэтилен) вокруг детекторов, можно регистрировать нейтроны более эффективно. Также необходим фильтр, пропускающий высокоэнергетические нейтроны в объем детектора, в котором они замедляются. В то же время такой фильтр не должен позволить замедленным нейтронам снова вернуться в объем образца, в котором они могли бы вызвать дополнительные деления. Очень эффективен для этой цели слой вещества с большим сечением поглощения медленных нейтронов (такого как кадмий, см. рис. 12.5), помещенный между рабочей полостью детектора и объемом замедлителя.

Для сравнения замедляющих свойств различных веществ используется замедляющая способность. Если одно вещество имеет большую замедляющую способность, чем другое, то потребуется меньшее количество этого вещества для получения той же степени замедления. При этом важны два фактора: вероятность взаимодействия посредством рассеяния (вероятность рассеяния) и среднее изменение кинетической энергии нейтрона после такого взаимодействия. Для того чтобы вещество было эффективным замедлителем, необходимо, чтобы вероятность взаимодействия и средние энергетические потери были бы высокими. Замедляющая способность определяется как $\xi\Sigma_s$, где Σ_s — макроскопическое сечение взаимодействия, а ξ — средний логарифмический декремент энергии (или потеря энергии в одном акте рассеяния). Этот декремент равен $\ln(E_{\text{до}}) - \ln(E_{\text{после}})$, где $E_{\text{до}}$, $E_{\text{после}}$ — энергии до и после рассеяния, соответственно. Когда в веществе с массовым числом A преобладает процесс упругого рассеяния, средний логарифмический декремент энергии равен

$$\xi = 1 - \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \frac{(A+1)}{(A-1)}. \quad (12.9)$$

Для $A > 2\xi$ средний логарифмический декремент можно аппроксимировать выражением $2/(A + 0,67)$ [3]. Замедляющая способность вещества со сложным химическим составом определяется как

$$\xi N_s = \frac{\rho N_a}{M} (n_1 \sigma_1 \xi_1 + n_2 \sigma_2 \xi_2 + n_3 \sigma_3 \xi_3 + \dots), \quad (12.10)$$

где ρ — плотность соединения;

M — молекулярная масса соединения;

N_a — число Авогадро;

n_i — количество атомов i -го элемента в одной молекуле;

σ_i — макроскопическое сечение рассеяния для i -го элемента;

ξ_i — логарифмический декремент энергии для i -го элемента.

Тем не менее материал с большой замедляющей способностью может оказаться бесполезным в качестве замедлителя, если он имеет большое сечение поглощения. Такой замедлитель будет эффективно уменьшать скорость непоглощенных нейтронов, однако доля оставшихся нейтронов может оказаться слишком незначительной для практического использования. Более полной мерой замедляющих свойств материалов является коэффициент замедления $\xi\Sigma_s/\Sigma_a$. Если необходимо, чтобы коэффициент замедления был большим, то имеется ввиду не только

хорошая замедляющая способность вещества, но и низкая вероятность поглощения. Для вещества со сложным элементным составом коэффициент замедления определяется уравнением (12.10), если каждый символ σ_i заменить отношением σ_s/σ_a для i -го элемента.

В табл. 12.4 даны значения замедляющей способности и коэффициента замедления некоторых распространенных материалов-замедлителей в диапазоне энергий от 1 эВ до 100 кэВ [4]. Обычная вода имеет более высокую замедляющую способность, чем тяжелая вода, потому что массовое число водорода вдвое меньше, чем у дейтерия. Но ядра водорода (протоны) поглощают нейтроны и образуют ядра дейтерия более эффективно, чем ядра дейтерия поглощают нейтроны и образуют ядра трития. Вследствие этой разницы в сечениях поглощения тяжелая вода имеет существенно более предпочтительный коэффициент замедления. Однако из соображений доступности и низкой стоимости часто предпочтение отдается обычной воде. Твердые вещества, приведенные в таблице, имеют более высокие коэффициенты замедления, чем обыкновенная вода, и они могут иметь преимущества при их изготовлении. Обычно в качестве замедлителя выбирается полиэтилен, благодаря высоким значениям его замедляющей способности и коэффициента замедления.

Таблица 12.4 – Замедляющая способность и коэффициент замедления различных материалов [4]

Замедлитель	Замедляющая способность (от 1 эВ до 100 кэВ)	Коэффициент замедления (аппроксимация)
Вода	1,28	58
Тяжелая вода	0,18	21 000
Гелий (при нормальных условиях)	0,00001	45
Бериллий	0,16	130
Графит	0,064	200
Полиэтилен (CH ₂)	3,26	122

12.5 ЭФФЕКТЫ РАЗМНОЖЕНИЯ В МАССИВНЫХ ОБРАЗЦАХ ВЕЩЕСТВА

Эффект размножения наблюдается, если при нейтронном взаимодействии образуется больше одного нейтрона. В результате такого взаимодействия число нейтронов в веществе возрастает. Наиболее известное событие — деление ядер, хотя другие взаимодействия с поглощением нейтрона также могут давать заметный вклад в процесс размножения нейтронов, например, реакция (n,2n).

Из всех нейтронов, присутствующих в веществе в данный момент времени, часть их в конечном итоге покинет его, а другие поглотятся. Дополнительные нейтроны могут образоваться в веществе как продукты реакций с поглощением нейтронов. По определению, умножение M представляет собой отношение полного числа нейтронов в веществе к числу первоначальных нейтронов. Если в образце первоначально было 100 нейтронов и обнаружено, что в результате событий с размножением образовано дополнительно 59 нейтронов, то умножение равно 1,59. Только часть первоначального поколения из 100 нейтронов дает дополнительные нейтроны в событиях с размножением, другие нейтроны покидают образец или поглощаются в нем вследствие других типов взаимодействий. Некоторая часть второго поколения вызовет следующее поколение и т.д. Число нейтронов, остающихся в образце, в каждом новом поколении постоянно уменьшается до нуля, однако в целом полное число нейтронов, образованных в результате всех событий с размножением, равно 59.

Соответствующее наиболее часто используемое понятие называется коэффициентом размножения. Это понятие связывает числа нейтронов в последовательных поколениях. Есть два типа коэффициентов размножения, которые относятся к различным физическим размерам рассматриваемого материала.

Если материал имеет бесконечные размеры, то коэффициент размножения обозначается символом k_{∞} и определяется как отношение числа нейтронов одного поколения к числу нейтронов в предыдущем поколении. Ввиду бесконечных размеров материала все нейтроны любого поколения поглощаются. Таким образом, для материала с бесконечными размерами коэффициент размножения k_{∞} равен также отношению числа нейтронов, образовавшихся в одном поколении, к числу нейтронов, поглотившихся в предыдущем поколении.

Если материал имеет конечные размеры, то некоторые нейтроны одного поколения могут выйти через поверхность из объема, занимаемого веществом, и не поглотиться в нем. Такие нейтроны называются нейтронами "утечки". Коэффициент размножения для этой более реалистической ситуации называется эффективным коэффициентом размножения $k_{\text{эфф}}$. Этот коэффициент определяется как отношение числа нейтронов одного поколения к числу нейтронов, которые были либо поглощены, либо покинули образец (нейтроны утечки) в предыдущем поколении. Коэффициент размножения $k_{\text{эфф}}$ более применим для целей контроля ядерных материалов, так как соответствующие инструментальные средства часто имеют малые размеры, на которые накладываются ограничения по габаритам и массе.

В качестве примера $k_{\text{эфф}}$ и его взаимосвязи с умножением M , рассмотрим случай, описанный ранее. Первоначальные 100 нейтронов будут составлять первое поколение. Если эти нейтроны образуют в результате реакций 37 нейтронов, то эти 37 нейтронов составят следующее поколение. Таким образом, эффективный коэффициент размножения в этом случае равен 0,37. Если коэффициент размножения $k_{\text{эфф}}$ меньше единицы, то число нейтронов в последующих поколениях уменьшается, последовательно стремясь к нулю. Как показано в табл. 12.5, для того чтобы число первоначальных 100 нейтронов уменьшилось до приблизительно нулевого значения, потребуется 7 поколений.

Число нейтронов в одном поколении можно вычислить, умножив число нейтронов предыдущего поколения на коэффициент размножения $k_{\text{эфф}}$, который в рассматриваемом примере равен 0,37. Этот процесс носит вероятностный харак-

тер, и действительное число нейтронов любого поколения точно определить невозможно. Однако при большом числе нейтронов отношение количеств нейтронов, которые находятся в последовательных поколениях, приблизительно постоянно.

Таблица 12.5 – Пример спадающей популяции нейтронов

Поколение	Среднее число нейтронов при $k_{эфф} = 0,37$
1	100
2	37
3	14
4	5
5	2
6	1
7	0
	159

Величину умножения M легко связать с коэффициентом размножения $k_{эфф}$, если $k_{эфф}$ меньше единицы. Складывая все количества нейтронов, образующихся в каждом поколении, можно найти сумму членов геометрической прогрессии:

$$M = 1 / (1 - k_{эфф}), \quad k_{эфф} < 1. \quad (12.11)$$

Умножению 1,59 в табл. 12.5, соответствует эффективный коэффициент размножения 0,37, показывающий, что число нейтронов в последующих поколениях уменьшается.

При приближении коэффициента размножения $k_{эфф}$ к единице, значение величины умножения M неограниченно возрастает, как показано на рис. 12.9. Когда

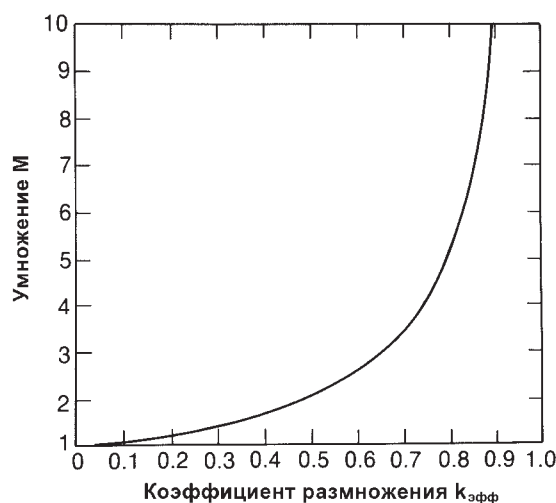


Рис. 12.9. Соотношение между умножением M и эффективным коэффициентом размножения $k_{эфф}$. Включены только подкритические значения ($k_{эфф} < 1$)

$k_{\text{эфф}} = 1$, формула показывает, что число образуемых нейтронов не имеет предельного значения (стремится к бесконечности). Фактически, число ядер, которые могут образовать нейтроны, имеет предельное значение, поэтому число образующихся нейтронов является величиной конечной, но чрезвычайно большой. Говорят, что критичность достигается при коэффициенте размножения $k_{\text{эфф}} = 1$, если коэффициент размножения $k_{\text{эфф}}$ больше единицы, то образец надкритический, если коэффициент размножения $k_{\text{эфф}}$ меньше единицы, то образец подкритический.

12.6 ЗАЩИТА ОТ НЕЙТРОНОВ

Для защиты персонала от биологического воздействия нейтронов и уменьшения скорости счета детектора от внешнего нейтронного фона часто необходима защита от нейтронов. Выбор и размещение защитных материалов зависят от конкретной ситуации. Некоторые общие принципы можно получить, исходя из нейтронных взаимодействий с веществом, которые описаны в этой главе.

Тепловые нейтроны с кинетической энергией 0,025 эВ очень эффективно поглощаются тонким слоем бора или кадмия, вследствие больших сечений взаимодействия, показанных на рис. 12.4 и 12.5. Борная защита часто применяется в форме карбида бора (B_4C) или насыщенных бором растворов. Обычно используемый материал — бораль или боракс (смесь карбида бора и алюминия), который доступен в виде тонкостенных пластин различной толщины. Недостаток кадмия заключается в испускании высокоэнергетических гамма-квантов вследствие реакции радиационного захвата, в результате чего может понадобиться дополнительная защита от гамма-излучения. Сравнение рис. 12.4 и 12.5 показывает, что кадмий более эффективно, чем бор, поглощает тепловые нейтроны, тогда как бор более эффективно поглощает надтепловые нейтроны (область энергии нейтронов от 0,1 до 10 эВ).

Защита от высокоэнергетических нейтронов трудно выполнима, так как сечения поглощения существенно ниже. Поэтому сначала необходимо замедлить высокоэнергетические нейтроны посредством упругих и неупругих рассеяний. Неупругое рассеяние и поглощение могут сопровождаться образованием потенциально опасных гамма-квантов, например, при захвате нейтрона ядром водорода испускается гамма-квант с энергией 2,224 МэВ. Поэтому эффективная защита от излучения состоит из комбинации следующих материалов: водородосодержащих веществ или других материалов с низкими значениями A для замедления нейтронов, поглотителей тепловых нейтронов, материалов с большими значениями Z для поглощения гамма-квантов. Примерами материалов комбинированной защиты являются полиэтилен и свинец, бетон, содержащий железный лом, и более экзотические материалы, такие как гидрид лития.

В целях безопасной работы с небольшими образцами делящихся веществ и слабыми источниками нейтронов можно ограничиться защитой в несколько сантиметров полиэтилена. Защитные свойства полиэтилена представлены на рис. 12.10, на котором показана мощность дозы излучения на поверхности сферы из полиэтилена при размещении в центре источника с изотопом ^{252}Cf . Этот источник испускает высокоэнергетические нейтроны, спектр которых подобен спектрам спонтанного деления большинства изотопов урана и плутония. Кроме того,

образуются гамма-кванты в реакциях деления и дополнительные гамма-кванты с энергией 2,224 МэВ в реакции радиационного захвата нейтрона в полиэтилене. Вклад нейтронов в суммарную дозу преобладает для сфер с радиусами меньше 22 см. Гамма-кванты, генерируемые источниками, дают меньший вклад в дозу. Захватное гамма-излучение дает еще меньший вклад в дозу. Увеличивая радиус с 5 до 12 см или с 20 до 37 см, можно уменьшить суммарную мощность дозы в десять раз. Практический метод уменьшения суммарной мощности дозы состоит в том, что слой полиэтилена толщиной в 10 см уменьшает мощность дозы нейтронов приблизительно в 10 раз.

Иногда можно получить более эффективные защитные экраны, добавляя к полиэтилену бор, литий или свинец. Добавки бора или лития приводят к меньшей дозе от гамма-квантов, образованных в реакциях радиационного захвата, чем в случае только полиэтиленовой защиты. Свинец сильно ослабляет интенсивность гамма-излучения источников и гамма-излучения, образованного в результате реакций радиационного захвата, так как свинец — тяжелый элемент. Однако, поскольку нейтроны дают большую часть вклада в дозу для сфер с радиусом, меньшим 22 см, добавки этих веществ малоэффективны, если толщина защиты меньше 22 см. На рис. 12.11 показано влияние на суммарную дозу добавок других веществ к полиэтилену. Как видно, эти добавки играют существенную роль только для защиты с толщиной больше 30 см. Полиэтилен, содержащий добавки бора, лития или свинца, значительно дороже чистого полиэтилена, поэтому при разработке защиты следует принимать во внимание ее стоимость.

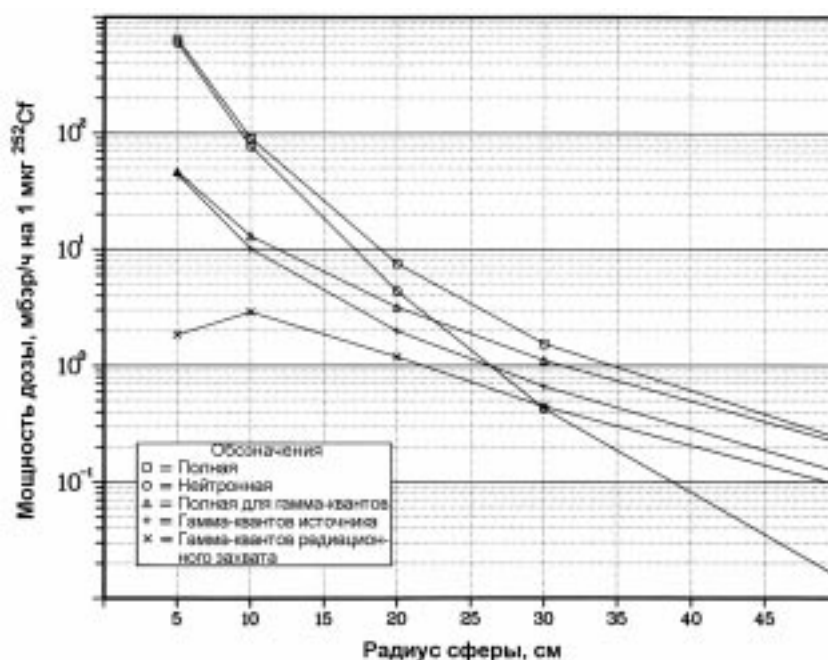


Рис. 12.10. Мощности дозы на поверхности полиэтиленовой сферы для точечного источника нейтронов на основе изотопа ^{252}Cf . (По данным Г. Е. Бослера, Лос-Аламос)

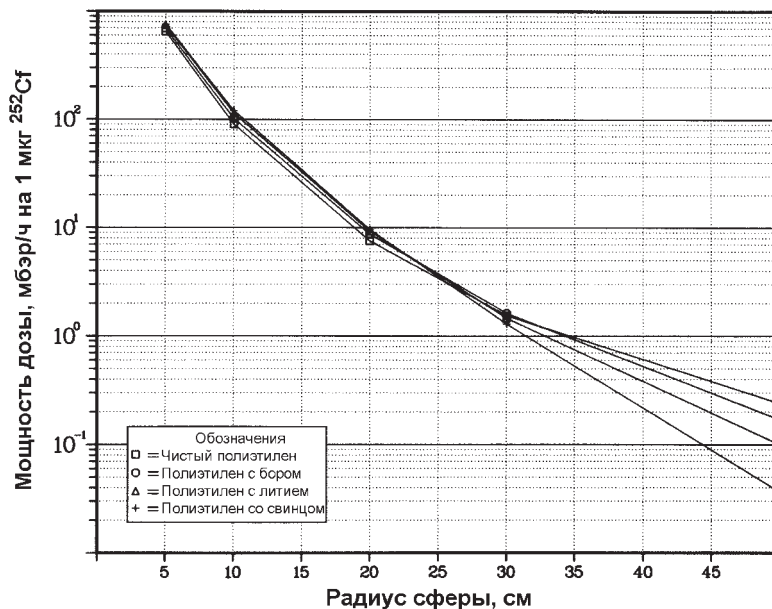


Рис. 12.11. Полная мощность дозы на поверхности сферы из различных материалов для точечного источника нейтронов на основе изотопа ^{252}Cf . (По данным Г.Е. Бослера, Лос-Аламос)

12.7 МЕТОДЫ РАСЧЕТА ПЕРЕНОСА НЕЙТРОНОВ

Историю нейтрона в веществе трудно проследить из-за большого числа возможных процессов взаимодействий нейтрона. Эта задача еще более усложняется, когда состав материала на пути нейтрона часто меняется, что обычно имеет место в приборах контроля. Методы расчета переноса нейтронов и гамма-квантов в таких сложных условиях важны для проектирования приборов, интерпретации результатов измерений и разработки конфигурации защиты. Два метода расчета переноса нейтронов в веществе кратко представлены в разделах 12.7.1 и 12.7.2.

12.7.1 Метод Монте-Карло

Вероятность взаимодействия нейтрона является важной характеристикой для описания переноса нейтрона в веществе. Вместо того, чтобы предсказывать поведение отдельного нейтрона, можно использовать программы для прогнозирования того, какая доля из большого числа нейтронов поведет себя определенным, интересующим исследователя, образом. Метод вычисления, который основан на розыгрыше вероятностей взаимодействия нейтронов, упрощенно говоря, с помощью рулетки или игральные костей (фактически, генерации случайных чисел в компьютере), называется методом Монте-Карло. Отклик анализируемой системы можно часто вычислить на основе моделирования переноса многих нейтронов, рассмотренных по отдельности, несмотря на рассмотрение маловероят-

ных и редких историй, которые могут давать аномальное отклонение от среднего поведения.

Метод Монте-Карло позволяет построить подробный трехмерный геометрический блок для имитации физического объекта средствами математического моделирования. Нейтрон может быть запущен из определенной заданной точки в выбранном направлении с заданной энергией. Длина пробега нейтрона выбирается, исходя из розыгрыша, случайным образом в соответствии со средней длиной свободного пробега нейтрона в рассматриваемых материалах. В конце каждого шага вычисляемого отрезка пути нейтрона на основе данных о сечении взаимодействия разыгрывается определенный тип взаимодействия нейтрона с заданной кинетической энергией в веществе. После выбора типа взаимодействия моделируются все последующие события и результаты такого взаимодействия. В конце концов достигается момент, когда нейтрон полностью теряет свою энергию и розыгрыш его истории заканчивается. Это может произойти, когда нейтрон вылетает из рассматриваемого геометрического объема или замедляется до очень низкой кинетической энергии. Нейтрон может поглотиться с последующим испусканием гамма-кванта, не представляющего интерес, или может вызвать размножение нейтронов. В последнем случае прослеживаются истории всех вновь образованных нейтронов. В принципе, нейтронное моделирование представляет собой историю, которая могла бы на самом деле произойти с реальным нейтроном.

Повторяя эту процедуру для многих тысяч нейтронов и накапливая информацию о том, сколько нейтронов вошло в объем детектора, сколько произошло делений, сколько вышло нейтронов через защиту, или определяя другие интересные процессы, постепенно вычисляются разные физические характеристики. Существует множество специальных методов получения хороших оценок средних значений с наименьшим числом нейтронов, но есть случаи, когда даже самый быстрый компьютер не в состоянии разыграть достаточное количество историй из-за ограничений по времени. Тем не менее, метод Монте-Карло существенно помогает при проектировании, благодаря моделированию реальной геометрии рассматриваемой задачи, реального переноса нейтронов и их взаимодействия с веществом. Примеры результатов расчетов, полученных методом Монте-Карло, которые можно применить для проектирования защиты и счетчиков совпадений, описанных в главах 14 и 17, представлены на рис. 12.10 и 12.11.

12.7.2 Метод дискретных ординат

Существуют дифференциальные уравнения для решения задачи переноса нейтронов, которые описывают точное поведение нейтронов в веществе в аналитическом виде. Однако для сложных систем они дают только приближенные численные решения. К числу подобных процедур получения численных решений относятся методы дискретных ординат (или дискретных направлений потока излучения).

Имеется несколько важных отличий метода дискретных ординат от метода Монте-Карло. Как правило, в расчетах методом дискретных ординат используются только одномерная или двумерная геометрии. При этом считается, что нейтроны локализованы внутри конечного объема, а не перемещаются свободно в пространстве. Например, в случае метода двумерных дискретных ординат считается, что материал поверхности разбивается пространственной сеткой на отдель-

ные элементы, а перенос нейтронов производится только между узлами этой сетки. Кроме того, энергия нейтрона в любой момент должна выбираться из фиксированного набора значений, в отличие от непрерывного изменения энергии нейтрона в методе Монте-Карло.

Несмотря на эти недостатки, метод дискретных ординат может давать во многих случаях полезные результаты. Для задач, в которых рассматриваются большие объемы и количества материалов (например, активные зоны реакторов), расчет методом Монте-Карло может быть слишком сложным и длительным. В этих случаях вполне приемлем метод дискретных ординат.

ЛИТЕРАТУРА

1. D.I. Garber, and R.R. Kinsey, "Neutron Cross Sections, Vol. II, Curves," Brookhaven National Laboratory report BNL 325 (1976).
2. Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-V (поддерживается и может быть получен из Национального Центра Ядерных Данных Брукхейвенской Национальной Лаборатории).
3. J.R. Lamarsh, *Introduction to Nuclear Reactor Theory* (Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, 1966).
4. S. Glasstone and A. Sesonske, *Nuclear Reactor Engineering* (D. Van Nostrand Co., Inc., Princeton, New Jersey, 1967).

Глава 13

Детекторы нейтронов

*Т. В. Крейн и М. П. Бейкер
(Переводчик Н. В. Бабкина)*

13.1 МЕХАНИЗМЫ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

Механизмы регистрации нейтронов в веществе основаны на косвенных методах. Нейтроны, как видно из их названия, нейтральны. Они не вступают, как гамма-кванты, в непосредственное взаимодействие с электронами вещества. Процесс регистрации нейтронов начинается тогда, когда при взаимодействии с ядрами нейтроны инициируют образование одной или нескольких заряженных частиц. Электрические сигналы, образованные этими заряженными частицами, могут затем обрабатываться детектирующей системой.

Существуют два основных типа взаимодействия нейтронов с веществом. Во-первых, может иметь место рассеяние нейтрона на ядре с передачей последней части кинетической энергии нейтрона. Если при этом передается достаточное количество энергии, ядро отдачи ионизирует вещество вокруг точки взаимодействия. Данный механизм эффективен лишь при взаимодействии нейтронов с легкими ядрами. Для практического использования в детекторах достаточно легкими являются только ядра водорода и гелия. Во-вторых, нейтрон может вызвать ядерную реакцию. Продукты этих реакций, такие как протоны, альфа-частицы, гамма-кванты и осколки деления, могут регистрироваться детектором. Условием протекания некоторых реакций является наличие минимальной энергии нейтронов (энергетического порога), но большинство реакций могут происходить и на тепловых нейтронах. Детекторы, регистрирующие тепловые нейтроны, как правило, окружены материалом-замедлителем нейтронов, что позволяет добиться максимальной эффективности регистрации.

Детекторы, использующие либо механизм отдачи, либо механизм ядерной реакции, могут иметь твердое, жидкое или газообразное наполнение. Хотя выбор реакций и ограничен, детектирующая среда может быть достаточно разнообразна, что создает множество вариантов. В настоящей главе описываются пропорциональные счетчики, сцинтилляторы, камеры деления, камеры с покрытием из ^{10}B и другие типы нейтронных детекторов. Газонаполненные детекторы рассматриваются в разделах 13.4.1 — 13.4.4, пластмассовые и жидкие сцинтилляторы — в разделе 13.5, другие типы детекторов — в разделе 13.6.

Информация об энергии нейтронов, получаемая с помощью детектирующих систем, как правило, скудна из-за ограниченного числа возможных нейтронных реакций. Счетчики на ядрах отдачи регистрируют только первый акт взаимодействия. При этом энергия нейтрона, как правило, полностью не поглощается в детекторе; единственная информация об энергии, которая может быть получена, это информация о том, инициировано ли это взаимодействие нейтроном высокой или низкой энергии. В счетчиках на ядерных реакциях используется преимуще-

ство более высокой вероятности реакции при низких энергиях нейтронов путем предварительного замедления нейтронов. Но информация о начальной энергии нейтронов до замедления при этом теряется. Энергия, регистрируемая детектором, — это энергия реакции (и, возможно, остаточная начальная энергия нейтронов). В целом, таким образом нейтронные детекторы позволяют получить информацию только о количестве зарегистрированных нейтронов, но не об их энергии. Данные об энергетическом диапазоне зарегистрированных нейтронов обычно могут быть получены из сведений о типе детектора и окружающих материалах. Если требуются данные по энергетическому спектру нейтронов, они могут быть иногда получены косвенными методами, представленными в разделе 13.7.

13.2 ОСНОВНЫЕ СВОЙСТВА ГАЗОНАПОЛНЕННЫХ ДЕТЕКТОРОВ

Газонаполненные детекторы были одними из первых приборов, использовавшихся для регистрации излучений. Они могут применяться для регистрации либо тепловых нейтронов за счет ядерных реакций, либо быстрых нейтронов посредством ядер отдачи. После того, как произошло начальное взаимодействие, регистрация нейтронов осуществляется с помощью однотипной вторичной аппаратуры, в которой для подключения различных детекторов предусмотрено регулирование напряжения высоковольтного питания и усиления. На рис. 13.1 представлена типовая блок-схема газонаполненного детектора для регистрации нейтронов. На рис. 13.2 показаны некоторые наиболее распространенные детекторы.

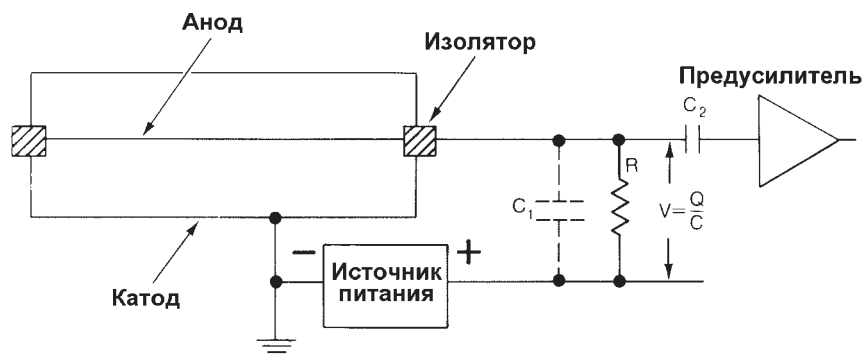


Рис. 13.1. Типовая блок-схема включения газонаполненных детекторов нейтронов

По внешнему виду газонаполненный детектор представляет собой металлический цилиндр с электрическим разъемом на одном конце (или на обоих концах при проведении позиционно чувствительных измерений). Выбор разъема зависит от характера предполагаемого использования детектора; это может быть как простой проволочный вывод, так и другие широко используемые типы разъемов. Стенки корпуса детектора имеют толщину 0,5 мм и изготовлены из нержавеющей стали или алюминия. Характеристики обоих материалов вполне удовлетворительны, наблюдается лишь незначительное различие в пропускании нейтронов и кон-

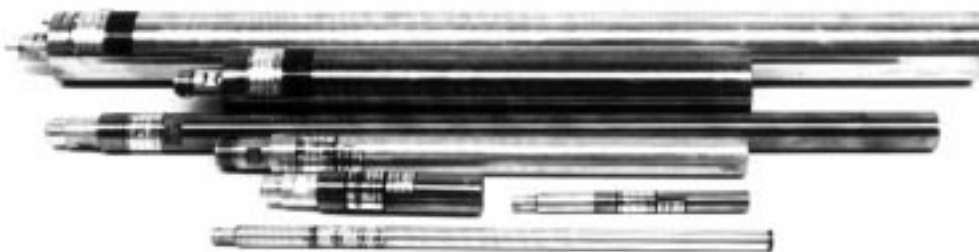


Рис. 13.2. Детекторы нейтронов различных размеров, наполненные BF_3 и ^3He

струкционной прочности. Стенки корпуса из нержавеющей стали поглощают около 3 % нейтронов, а стенки корпуса из алюминия — около 0,5 %. По этой причине предпочтение обычно отдается алюминиевым трубкам из-за более высокой эффективности регистрации нейтронов. Вместе с тем, в ряде случаев стальные трубки имеют небольшое преимущество перед алюминиевыми трубками: они не требуют чрезмерной осторожности при сборке, соединительные нити менее подвержены коррозионному воздействию, может быть понижен уровень примесей. При очень низкой скорости счета наблюдался фон 1 имп./мин, что было отнесено за счет примеси радия в алюминии [1].

Центральная нить, показанная на рис. 13.1, имеет толщину 0,03 мм и изготовлена из позолоченного вольфрама. Вольфрам обеспечивает прочность тонкой нити на растяжение, а покрытие из золота улучшает электропроводность. Положение нити фиксируется керамическими изоляторами.

Иногда внутренняя поверхность корпуса детектора покрывается активированным углем. Такое покрытие используется для трубок, наполненных трифторидом бора (BF_3) или ^3He , при измерениях больших потоков нейтронов. Активированный уголь позволяет абсорбировать электроотрицательные ионы газа, которые образуются под воздействием нейтронов. Например, в детекторах, наполненных BF_3 , при каждом захвате нейтрона атомом бора образуется три атома фтора. При последующих захватах нейтронов атомы фтора соединяются с образующимися электронами. Сначала данный процесс снижает амплитуду электрического импульса, а в конечном счете полностью прекращает образование выходного импульса [2]. Дополнительные данные о конструкции газонаполненных детекторов можно найти в работах [3 и 4].

Как показано в разделе 13.1, регистрация нейтронов предполагает передачу части или всей энергии нейтронов заряженным частицам. Затем заряженная частица ионизирует и возбуждает атомы вдоль своей траектории до тех пор, пока не будет исчерпана ее энергия. Для создания пары ионов в газонаполненном детекторе требуется около 30 эВ. Максимальное число пар ионов, которое может быть образовано, равно $E/30$ эВ, где E — кинетическая энергия заряженной частицы (или заряженных частиц) в эВ. Например, при передаче энергии 765 кэВ образуются положительные и отрицательные заряды, в сумме составляющие около 8×10^{15} Кл.

Если на трубку подается незначительное напряжение или оно не подается совсем, то большинство ионов рекомбинируют, и электрический сигнал на выходе не образуется. При приложении к центральной нити (аноду) положительного потенциала электроны начинают двигаться в направлении анода, а положительно заряженные ионы — к стенке корпуса (катода). При этом на выходе детектора об-

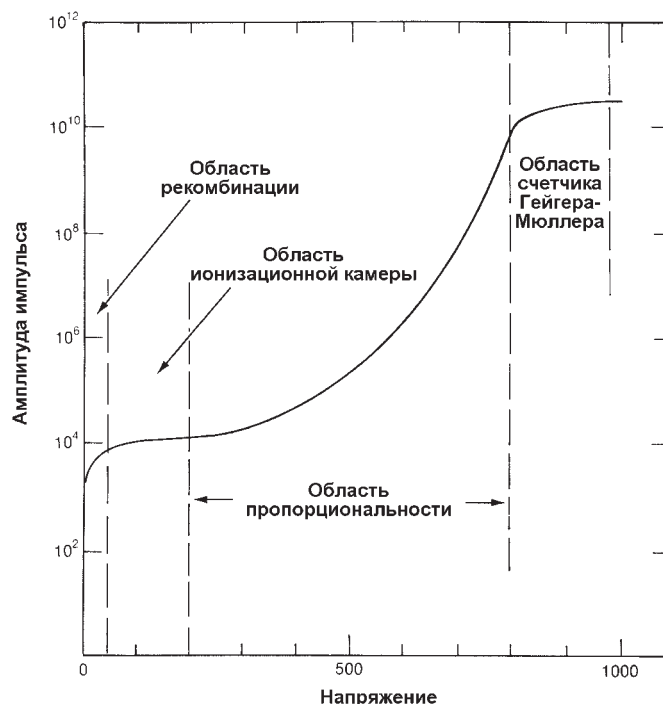


Рис. 13.3. Зависимость амплитуды импульсов от напряжения источника питания газонаполненных счетчиков с разделением на области рекомбинации, ионизации, пропорциональности и области счетчика Гейгера-Мюллера

разуется электрический сигнал, амплитуда которого зависит от величины прикладываемого напряжения, геометрии счетчика и газа-наполнителя. Указанные параметры определяют, работает ли детектор в ионизационной области, пропорциональной области или области счетчика Гейгера-Мюллера. Эти рабочие области показаны на рис. 13.3.

В ионизационной области приложенное напряжение достаточно для сбора почти всех электронов до того, как они рекомбинируют. В этой точке достигается плато счетной характеристики детектора, и дальнейшее незначительное увеличение напряжения не приводит к образованию дополнительных электронов. Детекторы, работающие в данной области, называются ионизационными камерами. Собранный заряд пропорционален энергии, переданной газу, и не зависит от величины прикладываемого напряжения.

Область работы детектора, следующая за ионизационной областью, называется областью пропорциональности. Напряженность электрического поля здесь достаточно высока для того, чтобы первичные электроны получили необходимую энергию для ионизации молекул газа и создания вторичной ионизации. При дальнейшем увеличении напряженности электрического поля вторичные электроны также могут ионизировать молекулы газа. С увеличением напряженности электрического поля данный процесс быстро развивается, при этом значительно увеличивается число ионов, образованных в первоначальном акте. Этот процесс кумулятивного усиления называется лавинной ионизацией. Если из одной пер-

воначальной пары ион-электрон образовалось A таких пар, то коэффициент газового усиления равен A . Коэффициент газового усиления будет равен единице для ионизационной камеры, когда не образуется вторичных ионов, и колебаться в пределах от 10^3 до 10^5 для пропорциональных счетчиков хорошей конструкции. Обратите внимание, что в области пропорциональности собранный заряд также прямо пропорционален энергии, переданной газу.

Для обеспечения процесса газового усиления электрон должен получить достаточную энергию на расстоянии в одну или несколько средних длин свободного пробега, чтобы ионизировать нейтральную молекулу. Средняя длина свободного пробега — это среднее расстояние, которое проходит электрон в газовой среде пропорционального счетчика между столкновениями, равное примерно 1–2 мкм. Для получения коэффициента газового усиления 10^6 требуется менее 20 средних длин свободного пробега, из чего можно заключить, что рассматриваемый процесс протекает лишь в ограниченной области вокруг нити. В остальном объеме электроны дрейфуют в сторону анода. Поскольку процесс газового усиления предполагает наличие очень сильного электрического поля, преимуществом цилиндрической конструкции детектора и является как раз сильное электрическое поле вблизи внутренней нити. Полное усиление пропорционально не пройденному расстоянию, а разности потенциалов электрического поля.

В то время, как электроны дрейфуют в направлении анода, положительные ионы дрейфуют в направлении катода. В пропорциональном счетчике скорость дрейфа электронов приблизительно на три порядка выше скорости дрейфа положительных ионов. Поскольку лавина формируется вблизи нити-анода, электроны с большей скоростью дрейфа собираются в течение крайне короткого отрезка времени (10^{-8} с); дрейфующие с меньшей скоростью положительные ионы собираются на катоде за большее время. Поэтому время нарастания фронта наблюдаемых импульсов имеет две составляющие: быструю, обусловленную движением электронов, и последующую медленную, обусловленную движением положительных ионов. Кроме того, поскольку положительные ионы образуются первоначально вблизи анода и должны затем дрейфовать через все пространство между анодом и катодом, то амплитуда импульса в значительной степени определяется дрейфом положительных ионов. Импульс достигает полной амплитуды только тогда, когда полностью собраны все положительные ионы. При использовании типового пропорционального счетчика время собирания заряда может достигать 200 мкс. Путем дифференцирования можно получить гораздо более короткие импульсы без существенной потери амплитуды, обеспечивая таким образом высокую скорость счета. Можно рассмотреть изменение временного интервала, обусловленное изменением времени дрейфа первичных электронов из области взаимодействия до нити-анода. Оно зависит от напряжения на трубке и ее диаметра; для некоторых типовых газонаполненных детекторов был установлен следующий временной интервал: 1,1 мкс (CH_4), 2,5 мкс (^3He) и 17 мкс (^4He) [5].

По мере дальнейшего увеличения напряжения пропорциональность между первичным зарядом и выходным сигналом постепенно теряется. Эта потеря обусловлена прежде всего эффектом насыщения у нити-анода. При достижении первичными ионами областей высокой напряженности электрического поля около нити начинает развиваться и быстро достигает максимального значения лавинный процесс, поскольку вторичные электроны создают дополнительные лавины по оси вдоль нити. В отличие от пропорциональной области, где лавина локализо-

вана, в данном случае лавины распространяются по всей длине нити-анода, и процесс завершается только тогда, когда напряженность электрического поля значительно падает, что препятствует ускорению вторичных электронов. При слабой первичной ионизации возможны коэффициенты усиления до 10^{10} . Детекторы, работающие в данной области, называются счетчиками Гейгера-Мюллера (или просто счетчиками Гейгера). Счетчики Гейгера имеют простую электронику и широко используются в сложных полевых условиях. Поскольку для них характерно быстрое насыщение, счетчики Гейгера не могут применяться при высоких скоростях счета, но это ограничение не мешает их использованию в качестве прибора измерений излучений низкой интенсивности.

Нейтронные счетчики, работающие в режиме ионизационной камеры или пропорционального счетчика, могут создавать на выходе или усредненный ток, или отдельные импульсы, что зависит от используемой электроники. Измерение только усредненного выходного тока реализуется в радиационных дозиметрах и мониторах мощности реактора. При анализе ядерного материала нейтронные счетчики обычно используются в импульсном режиме, что позволяет регистрировать отдельные нейтроны.

В зависимости от области применения рассматриваемые детекторы обычно заполняются ^3He , ^4He , BF_3 или CH_4 под давлением от 1 до 20 атм. Для улучшения рабочих характеристик детектора часто добавляются другие газы. Например, для сокращения длины пробега продуктов реакции может использоваться тяжелый газ, такой как аргон, при этом большая часть кинетической энергии продуктов реакции передается газу, и таким образом улучшается амплитудное разрешение выходных импульсов. Добавление тяжелого газа также ускоряет собирание зарядов, но имеет и негативное последствие — повышает чувствительность детектора к гамма-излучению [6].

В наполнитель пропорционального счетчика может также добавляться многоатомный газ, имеющий эффект газа-гасителя. Вращательные степени свободы, характерные для молекул многоатомного газа, ограничивают количество энергии, получаемой электронами при прохождении разности потенциалов, позволяя таким образом гасить и сокращать лавинный процесс и уменьшать наложение импульсов. Такие газы, как BF_3 и CH_4 , сами являются многоатомными и не требуют добавления газа-гасителя. Трубки, наполненные ^3He и ^4He , часто содержат в качестве добавки незначительное количество CH_4 или CO_2 . Поскольку BF_3 и CH_4 являются многоатомными газами, наполненные ими детекторы требуют более высокого рабочего напряжения. Кроме того, относительно большое количество многоатомного газа ограничивает прирост энергии, получаемой между столкновениями, поэтому обычно давление газа в этих детекторах не может быть таким высоким, как давление в детекторах, наполненных одноатомными газами.

13.3 ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ ДЕТЕКТОРОВ НЕЙТРОНОВ К ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЮ

Детекторы нейтронов, рассмотренные в данной главе, в определенной степени чувствительны как к нейтронному, так и к гамма-излучению. Поскольку большинство ядерных материалов излучает гамма-квантов в 10 и более раз больше, чем нейтронов, чувствительность нейтронного детектора к гамма-излучению является важным критерием при его выборе. В измерениях отработавшего топлива

при мощности дозы гамма-излучения 1000 Р/ч и более, чувствительность детектора к гамма-излучению может стать определяющим фактором.

В любом детекторе гамма-кванты могут передавать энергию электронам в процессе комптоновского рассеяния (см. главу 2), подобно тому, как нейтроны передают энергию ядрам путем рассеяния или в ядерных реакциях. Комптоновское рассеяние может иметь место на стенках детектора или на атомах газа-наполнителя с образованием высокоэнергетического электрона, который, в свою очередь, при пересечении объема детектора ионизирует газ. В некоторых детекторах электронные импульсы, вызванные гамма-квантами, сравнимы по высоте с импульсами от нейтронов; в других детекторах они значительно меньше, но их наложения в течение времени разрешения электроники детектора могут давать импульсы, сравнимые с импульсами нейтронов. При оценке относительной величины отклика детектора от нейтронов и гамма-квантов следует учитывать четыре фактора.

1. Использование защитного экрана от гамма-излучения существенно влияет на относительную величину отклика детектора. Например, при облучении детектора нейтронами деления с энергией 1 МэВ в присутствии гамма-квантов с энергией 1 МэВ экран из свинца толщиной 5 см обеспечивает поглощение около 0,1 % нейтронов и 90 % гамма-квантов.

2. Конструкция и материалы некоторых детекторов способствуют поглощению нейтронов. В табл. 13.1 представлены характеристики детекторов тепловых и быстрых нейтронов. Из таблицы видно, что вероятность поглощения тепловых нейтронов значительно выше вероятности поглощения гамма-квантов. При регистрации быстрых нейтронов вероятности взаимодействия с материалом детектора быстрых нейтронов и гамма-квантов сопоставимы.

Таблица 13.1 – Вероятность взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалами пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов

	Вероятность взаимодействия	
	тепловые нейтроны	гамма-кванты с энергией 1 МэВ
<u>Материалы детекторов тепловых нейтронов</u>		
³ He в трубке с Ø 2,5 см под давлением 4 атм	0,77	0,0001
Ag в трубке с Ø 2,5 см под давлением 2 атм	0,0	0,0005
BF ₃ в трубке с Ø 5,0 см под давлением 0,66 атм	0,29	0,0006
Алюминиевая стенка трубки толщиной 0,8 мм	0,0	0,014
	Вероятность взаимодействия	
	нейтроны с энергией 1 МэВ	гамма-кванты с энергией 1 МэВ
<u>Материалы детекторов быстрых нейтронов</u>		
⁴ He в трубке с Ø 5,0 см под давлением 18 атм	0,01	0,001
Алюминиевая стенка трубки толщиной 0,8 мм	0,0	0,014
Сцинтиллятор толщиной 5 см	0,78	0,26

Таблица 13.2 – Количество энергии, передаваемой нейтронами и гамма-квантами материалам пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов

	Пробег альфа-частиц или протонов, см	dE/dx для электронов с энергией 400 кэВ, кэВ/см	Среднее количество энергии, переданной в нейтронной реакции, кэВ	Энергия, переданная электронами, кэВ*	Отношение количеств энергии, переданной нейтронами и электронами
<u>Материалы детекторов тепловых нейтронов</u>					
³ He в трубке Ø 2,5 см, 4 атм	2,1	1,1	~500	4,0	125
³ He в трубке Ø 2,5 см, 4 атм + Ag, 2 атм	0,5	6,7	~750	24,0	30
BF ₃ в трубке Ø 5,0 см, 0,66 атм	0,7	3,6	~2300	25,7	90
<u>Материалы детекторов быстрых нейтронов</u>					
⁴ He в трубке Ø 5,0 см, 18 атм	0,1	6,7	1000	48	20
Сцинтиллятор толщиной 5 см	0,001	2000	1000	400	2,5

* Длина пробега электронов рассчитывалась как $\sqrt{2} \times$ диаметр трубки.

3. Материалам некоторых детекторов нейтроны передают больше энергии, чем гамма-кванты. Нейтроны могут вызывать ядерную реакцию, в ходе которой высвобождается больше энергии, чем передается электрону при комптоновском рассеянии гамма-квантов (средняя энергия, теряемая гамма-квантом с энергией 1 МэВ, равна примерно 400 кэВ). Кроме того, в газонаполненных детекторах длина пробега электрона обычно значительно больше длины пробега тяжелых заряженных частиц, образующихся при нейтронных взаимодействиях. Если заданное давление газа должно обеспечить полное торможение лишь тяжелых заряженных частиц, то электроны будут покидать объем трубки, передавая газу лишь незначительную часть своей энергии. В табл. 13.2 приведены некоторые цифры, иллюстрирующие вышесказанное. В ней также показано, что при регистрации быстрых нейтронов пластмассовыми сцинтилляторами относительная отдача энергии нейтронами и гамма-квантами примерно одинакова.

4. Скорость собирания зарядов для регистрации нейтронов и гамма-квантов может отличаться. Она во многом зависит от выбора газа-наполнителя или материала сцинтиллятора. В газонаполненных детекторах большей длины пробега электрона, образовавшегося в результате взаимодействия гамма-кванта с газом, соответствует большее время собирания зарядов. Усилитель с быстрым дифференцированием соберет тогда относительно меньшее число зарядов, образованных гамма-квантами, и большее число зарядов, образованных в нейтронных взаимодействиях. Для сцинтилляторов это различие не так очевидно. В некоторых

случаях, однако, можно отличить импульсы от нейтронов и гамма-квантов посредством дискриминации по форме импульса (см. раздел 13.5.3).

Чтобы добиться надежной дискриминации гамма-излучения, часто необходимо использовать определенные материалы или материалы определенной плотности, которые не являются оптимальным выбором для регистрации нейтронов. Результатом этого может стать снижение эффективности регистрации нейтронов. В табл. 13.3 приведены данные по эффективности регистрации нейтронов и приблизительные предельные мощности дозы гамма-излучения для различных типов нейтронных детекторов. Эффективность детектора определяется как вероятность регистрации нейтрона определенной энергии при единичном пересечении рабочей области детектора. Фактическая эффективность детектора как целостной системы зависит от его геометрии. Полученная эффективность может оказаться ниже расчетной, которая приведена в табл. 13.3. Дополнительная информация по данным детекторам и их чувствительности к гамма-излучению дана в последующих разделах.

Таблица 13.3 – Эффективность и чувствительность к гамма-квантам некоторых детекторов нейтронов

Тип детектора	Размер	Материал, активно поглощающий нейтроны	Энергия нейтронов	Эффективность регистрации нейтронов*, %	Чувствительность к гамма-квантам**, Р/ч
Пластмассовый сцинтиллятор	Толщина 5 см	^1H	1 МэВ	78	0,01
Жидкий сцинтиллятор	Толщина 5 см	^1H	1 МэВ	78	0,1
Литиевое стекло	Толщина 1 мм	^6Li	Тепловая	50	1
Детектор Хорняка	Толщина 1 мм	^1H	1 МэВ	1	1
Метан под давлением 7 атм	$\varnothing$ 5 см	^1H	1 МэВ	1	1
^4He под давлением 18 атм	$\varnothing$ 5 см	^4He	1 МэВ	1	1
^3He , 4 атм, и Ag, 2 атм	$\varnothing$ 2,5 см	^3He	Тепловая	77	1
^3He , 4 атм, и 5 % CO_2	$\varnothing$ 2,5 см	^3He	Тепловая	77	10
BF_3 под давлением 0,66 атм	$\varnothing$ 5 см	^{10}B	Тепловая	29	10
BF_3 под давлением 1,18 атм	$\varnothing$ 5 см	^{10}B	Тепловая	46	10
Камера с покрытием из ^{10}B	0,2 мг/см ²	^{10}B	Тепловая	10	10 ³
Камера деления	2,0 мг/см ²	^{235}U	Тепловая	0,5	10 ⁶ – 10 ⁷

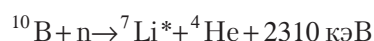
* Вероятность взаимодействия нейтронов, падающих под прямым углом к поверхности детектора

** Приблизительный верхний предел мощности дозы гамма-излучения, при которой еще можно получать сигналы на выходе детектора

13.4 ГАЗОНАПОЛНЕННЫЕ ДЕТЕКТОРЫ

13.4.1 Детекторы тепловых нейтронов на основе ^3He и BF_3

В качестве газов-наполнителей детекторов тепловых нейтронов могут использоваться BF_3 или ^3He . При использовании BF_3 газ обогащается по изотопу ^{10}B . Содержание ^3He в природном гелии составляет около $10^{-4}\%$, поэтому ^3He обычно получают путем выделения из трития при его производстве в специальных ядерных реакторах. В названных газах могут протекать следующие ядерные реакции:



Эти реакции являются экзотермическими и ведут к образованию в газе заряженных частиц высокой энергии. Нейтронные счетчики работают в пропорциональном режиме. Ионизация газа, вызванная заряженными частицами, инициирует процесс газового усиления, предшествующий регистрации нейтронов. Энергия, переданная детектору, представляет собой энергию, выделенную в результате ядерной реакции.

При использовании ^3He в результате взаимодействия нейтрона с ядром ^3He образуются ядро тритона ^3H и протон ^1H . Энергия реакции, равная 765 кэВ, делится между тритоном и протоном. При взаимодействии нейтрона с ядром ^{10}B образуются ядро гелия (альфа-частица) и ядро лития, при этом между ними делится энергия реакции, равная 2310 кэВ. Вероятность реакции, при которой ядро лития образуется в возбужденном состоянии, составляет 94 %. Возбуждение снимается испусканием гамма-квантов с энергией 480 кэВ. Эти гамма-кванты обычно покидают детектор, в этом случае в детекторе остается только 2310 кэВ энергии реакции. Вероятность реакции, при которой ядро лития находится в основном состоянии, составляет 6 %. В этом случае в детекторе остается энергия, равная 2790 кэВ. При указанном режиме реакции образуется небольшой дополнительный пик в спектре амплитуд импульсов счетчиков, наполненных BF_3 .

Сечение реакции на тепловых нейтронах для ^3He (уравнение (13.1)) равно 5330 барн, а для ^{10}B (уравнение (13.2)) — 3840 барн. Сечения обеих реакций существенным образом зависят от энергии падающих нейтронов E , эта зависимость может быть выражена как $1/\sqrt{E}$. Зависимость сечения этих реакций от энергии нейтронов показана на рис. 13.4 [7]. Например, счетчик диаметром 2,54 см, наполненный ^3He под давлением 4 атм, имеет эффективность регистрации тепловых нейтронов ($E = 0,025 \text{ эВ}$), равную 77 %. (Такая конструкция детектора является почти оптимальной для регистрации тепловых нейтронов; увеличение количества ^3He лишь незначительно повышает эффективность регистрации и, как правило, нецелесообразно с точки зрения стоимости детектора). При энергии нейтронов 100 эВ эффективность регистрации равна приблизительно 2 %; при 10 кэВ — 0,2 % и при 1 МэВ — 0,002 %. Для достижения максимальной эффективности регистрации, учитывая столь сильную ее зависимость от энергии нейтронов, детекторы, наполненные ^3He или BF_3 , обычно окружают полиэтиленом толщиной около 10 см или другими материалами-замедлителями нейтронов. (Более подробно конструкция детекторов рассматривается в главе 14).

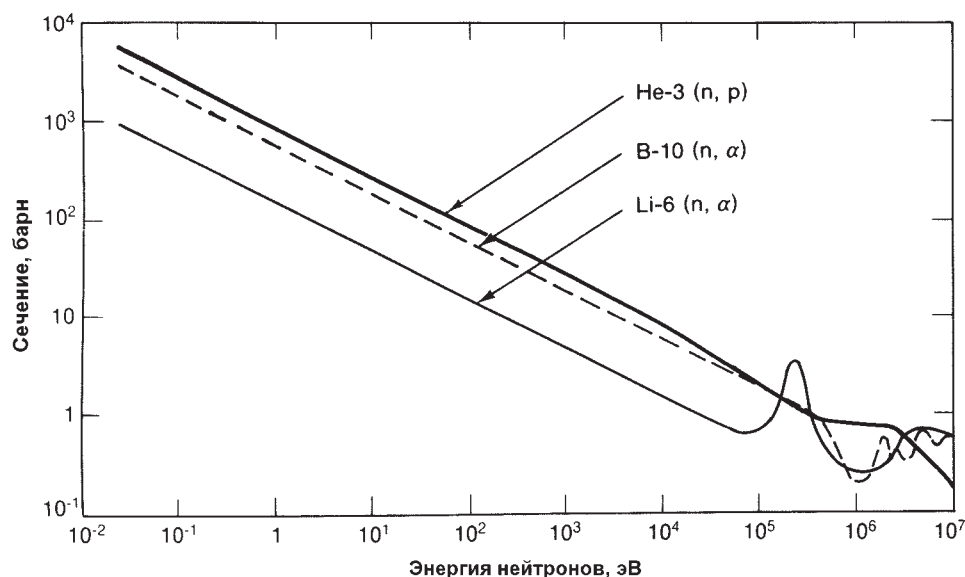


Рис. 13.4. Зависимость сечения реакций ${}^3\text{He}(n,p)$, ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ и ${}^6\text{Li}(n,\alpha)$ от энергии падающих нейтронов [7]

На рис. 13.5 показан типичный спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, заполненного ${}^3\text{He}$ [8]. Форма этого спектра определяется прежде всего кинематикой реакции и выбором постоянной времени формирования усилителя. Пик полного поглощения, наблюдаемый на спектре, отражает собирание кинетической энергии как протона, так и тритона. Следует подчеркнуть, что положение этого пика соответствует энергии реакции 765 кэВ и не зависит от энергии нейтронов. Если одна из двух частиц попадает в стенку счетчика, то количество энергии, передаваемой газу, уменьшается, что ведет к образованию низкоэнергетического хвоста. Поскольку обе заряженные частицы испускаются в противоположные направления, вероятность регистрации одной из них очень велика. Таким образом, существует широкий провал в форме спектра в области ниже минимальной собираемой энергии и последующий подъем в области малых амплитуд шумов и наложения импульсов от гамма-квантов. Если уровень дискриминации установлен внутри этого провала, незначительные изменения напряжения на трубке или параметров усилителя не окажут влияния на скорость счета детектора. В результате стабильность работы детектирующей системы может быть очень высокой (около 0,1 %).

Выбор постоянной времени усилителя определяет степень собирания зарядов в детекторе. При постоянных времени 2 мкс и более происходит почти полное собирание зарядов и формирование спектров амплитуд импульсов детектора, подобных представленному на рис. 13.5, с разрешением по пику полного поглощения в диапазоне от 5 до 15 %. При постоянных времени от 0,1 до 0,5 мкс происходит полная потеря формы пика, но становится возможным повысить скорость счета и снизить влияние шумов электроники и импульсов от гамма-квантов. По-

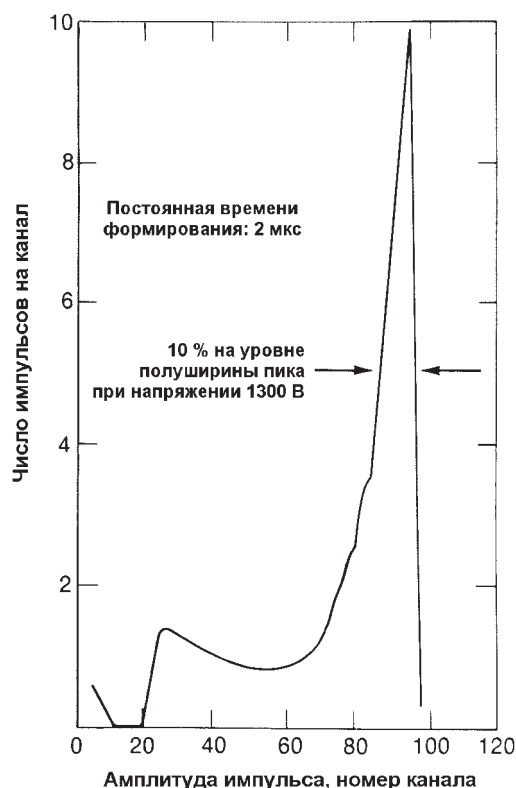


Рис. 13.5. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного ^3He , при регистрации тепловых нейтронов

стоянная времени 0,5 мкс является общепринятым компромиссом между получением хорошего разрешения и высокой скорости счета.

Детекторы, наполненные ^3He , обычно работают от источника питания с напряжением в диапазоне от 1200 до 1800 В. При более высоком напряжении повышение эффективности регистрации в результате улучшения собирания первичных зарядов очень невелико, около 1 % на 100 В [8]. (Типичная форма плато счетной характеристики детектора, наполненного ^3He , показана на рис. 13.6). С другой стороны, суммарная величина собранных зарядов вследствие газового усиления с ростом напряжения быстро возрастает, примерно на 100 % на 100 В. В случае, когда ^3He -детекторы используются в виде батарей счетчиков, важно обеспечить хорошее разрешение (порядка 5 % полуширины пика) и однородность газовой смеси с тем, чтобы положение и ширина пика полного поглощения были одинаковыми для всех детекторов.

Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного BF_3 , показан на рис. 13.7 [1]. Разрешение этих счетчиков изменяется в диапазоне от 5 до 30 % и обычно хуже, чем у гелиевых счетчиков. Давление газа колеблется от 0,2 до 2 атм. Чтобы компенсировать низкое давление, диаметр трубки счетчика обычно выбирают равным 5 см. Рабочее напряжение составляет 1400 — 2800 В,

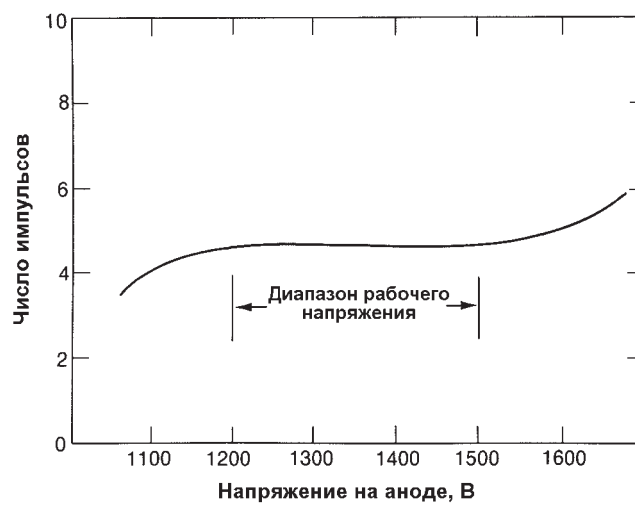


Рис. 13.6. Характерное плато счетной характеристики счетчика, наполненного ^3He

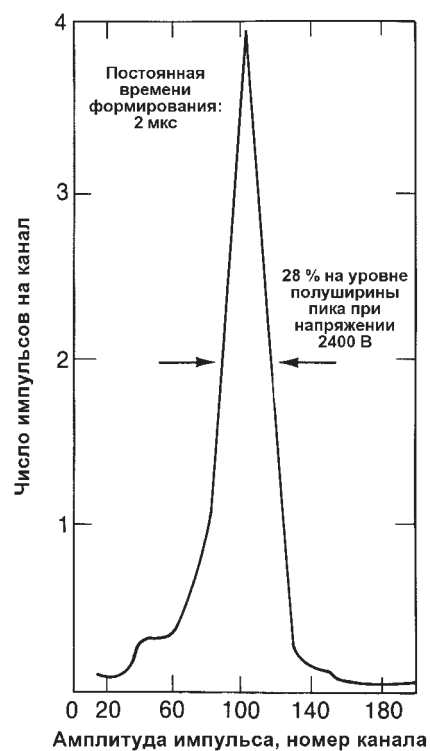


Рис. 13.7. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного $^{10}\text{BF}_3$, при регистрации тепловых нейтронов

что выше, чем для гелиевых счетчиков. Плато счетных характеристик схоже с плато для гелиевых счетчиков. Газ BF_3 дешевле ^3He , поэтому и производство счетчиков, наполненных BF_3 , дешевле. Однако большее сечение поглощения ^3He и возможность достижения более высокого давления газа-наполнителя снижает стоимость счетчиков, наполненных ^3He , в пересчете на количество зарегистрированных нейтронов. Другим преимуществом гелиевых счетчиков является то, что гелий — инертный газ, в то время как BF_3 токсичен. Вместе с тем, согласно нормативным документам Министерства транспорта США, газонаполненные детекторы с давлением газа более 2 атм отнесены к категории установок с сжатым газом под высоким давлением, что часто создает трудности при транспортировке гелиевых счетчиков.

Детекторы, наполненные ^3He и BF_3 , широко применяются при проведении активного и пассивного нейтронных анализов, что обусловлено относительно высокой стабильностью их работы, эффективностью и нечувствительностью к гамма-излучению. Как видно из табл. 13.1, эффективность регистрации тепловых нейтронов такими детекторами велика, а вероятность взаимодействия материала детектора с гамма-квантами низка. Кроме того, при взаимодействии с нейтронами газу передается гораздо больше энергии, чем при его взаимодействии с гам-

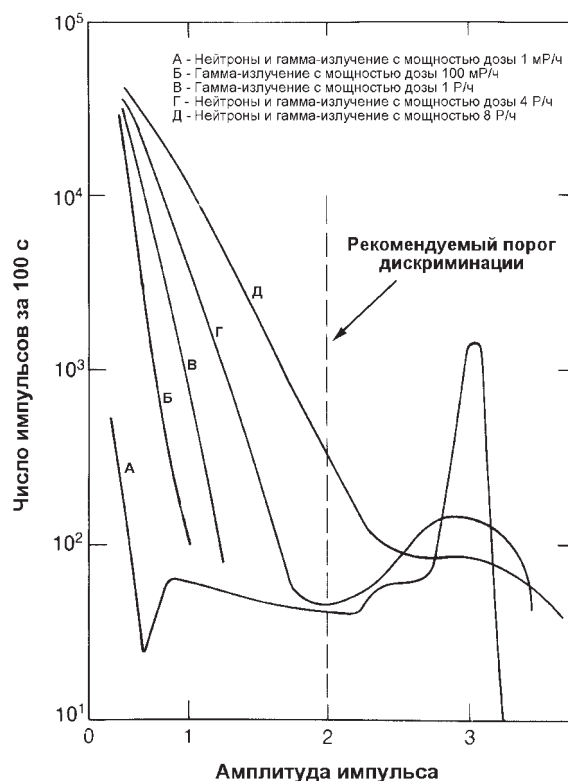


Рис. 13.8. Зависимость счетной характеристики пропорционального счетчика, наполненного ^3He , с диаметром трубки 2,54 см и длиной 50,8 см от мощности дозы гамма-излучения

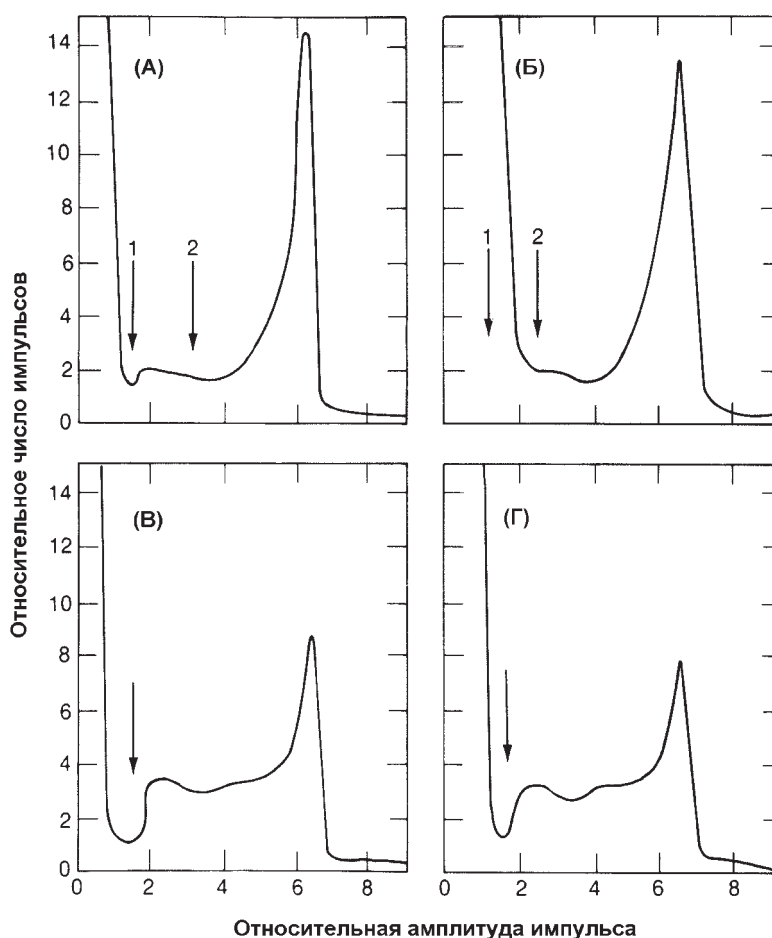


Рис. 13.9. Спектры амплитуд импульсов различных нейтронных детекторов, наполненных ^3He . Постоянная времени формирования усилителя — 0,5 мкс. (А) — смесь ^3He , Ar и CH_4 . Источник нейтронов; (Б) — смесь ^3He , Ar и CH_4 . Источник нейтронов и гамма-излучение с дозой 1 Р/ч; (В) — смесь ^3He и 50 % CO_2 . Источник нейтронов; (Г) — смесь ^3He и 50 % CO_2 . Источник нейтронов и гамма-излучение с мощностью дозы 1 Р/ч

ма-квантами (см. табл. 13.2). Однако, если мощность дозы гамма-излучения больше, чем при использовании обычных плутониевых или урановых образцов, возможно негативное влияние гамма-квантов на отклик детекторов, наполненных ^3He или BF_3 .

В качестве примера на рис. 13.8 показано влияние возрастания мощности дозы гамма-излучения на отклик детектора, наполненного ^3He под давлением 4 атм и аргоном под давлением 2 атм [9]. Предельная мощность дозы гамма-излучения составляет на практике величину порядка 1 Р/ч. Как показано на рис. 13.9, некоторое улучшение спектра амплитуд импульсов может быть достигнуто заменой аргона на CO_2 с концентрацией около 5 % [10]. Это улучшение обусловлено удалением аргона, имеющего относительно высокий атомный номер Z , которому

прямо пропорциональна плотность электронов. Однако удаление аргона сокращает относительную площадь пика полного поглощения, поскольку длина пробега продуктов реакции становится больше, а передаваемая газу энергия меньше. Кроме того, указанное увеличение длины пробега ведет к увеличению времени собирания зарядов, а также к увеличению примерно на 35 % мертвого времени электроники.

Чувствительность детекторов, наполненных BF_3 , к гамма-излучению сравнима или несколько лучше, чем у гелиевых детекторов. Энергия, передаваемая газу в результате взаимодействия нейтрона с ядром ^{10}B , больше энергии от взаимодействия нейтрона с ядром ^3He , но и энергия, передаваемая газу в результате взаимодействия гамма-квантов, также выше (см. табл. 13.2). Сечение реакции взаимодействия нейтрона с ядром ^3He выше, чем с ядром ^{10}B . Сечение взаимодействия гамма-квантов зависит от относительного содержания ^3He , аргона и BF_3 , а также от толщины стенок корпуса счетчика (см. табл. 13.1). Детекторы, наполненные BF_3 , сохраняют работоспособность в гамма-полях с мощностью дозы до 10 Р/ч, что лучше показателей счетчиков, наполненных смесью ^3He с аргоном. Однако рабочие характеристики счетчиков, наполненных смесью ^3He с CO_2 , сопоставимы с характеристиками счетчиков, наполненных BF_3 .

13.4.2 Детекторы быстрых нейтронов, наполненные ^4He и CH_4

Работа детекторов быстрых нейтронов, наполненных ^4He и CH_4 , основана на ионизации газа в счетчике при отдаче легких ядер. Указанное взаимодействие является упругим рассеянием нейтронов легкими ядрами. Если ядром отдачи является только ядро атома водорода (протон), то максимальная энергия, которая может быть передана ядру, равна полной кинетической энергии нейтрона E . Для более тяжелых ядер максимальная передаваемая энергия всегда меньше. Для ядра с массовым числом A максимальная передаваемая энергия равна [7]

$$E(\text{макс}) = \frac{4AE}{(A+1)^2}. \quad (13.3)$$

При единичном рассеянии действительная энергия, передаваемая ядру отдачи, в зависимости от угла рассеяния изменяется в диапазоне от 0 до $E(\text{макс})$, при этом все значения энергии в данном диапазоне равновероятны.

Из уравнения (13.3) видно, что для получения от нейтрона значительной энергии ядро-мишень должно иметь небольшую массу. Наиболее целесообразно использовать водород, как в газообразном состоянии, так и (что привычнее) в составе материалов жидких и пластмассовых сцинтилляторов (см. раздел 13.5). Широко используются детекторы, наполненные метаном (CH_4), имеющим высокое содержание водорода, или ^4He , для которого максимальная передаваемая энергия равна 0,64 E нейтрона. Газ ^3He также соответствует указанным критериям, но он обычно не используется из-за характера реакций, описанных в разделе 13.4.1. На рис. 13.10 проиллюстрирована зависимость сечения упругого рассеяния для ^1H и ^4He от энергии нейтронов. При этом видно, что кривые этой зависимости соответствуют форме энергетического спектра нейтронов деления. Следует отметить, что данные значения сечений упругого рассеяния значительно меньше значений сечений для ^3He и ^{10}B , приведенных на рис. 13.4. Эффективность ре-

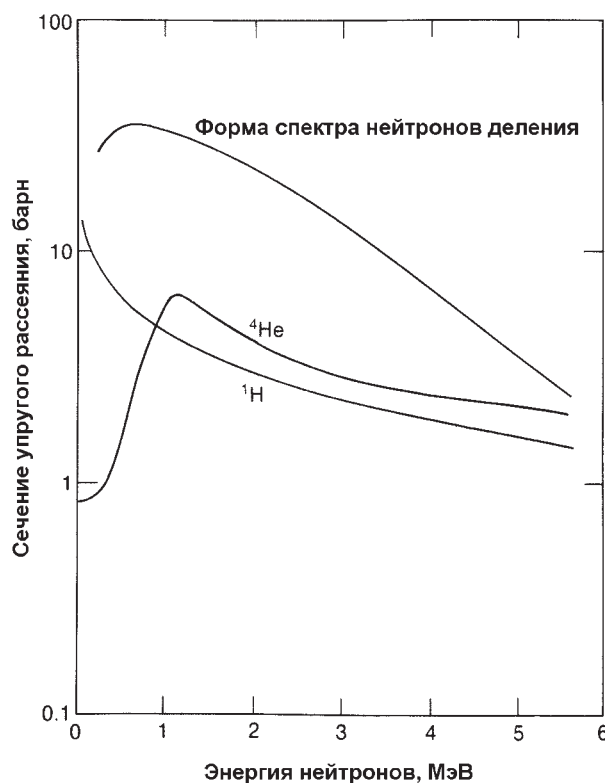


Рис. 13.10. Зависимость сечения упругого рассеяния на ^1H и ^4He от энергии нейтронов (с наложением на рисунок кривой спектра нейтронов деления)

гистрации быстрых нейтронов по реакции упругого рассеяния приблизительно на два порядка ниже, чем эффективность захвата тепловых нейтронов. Таким образом, единичный детектор, наполненный ^4He или CH_4 , имеет собственную эффективность около 1 %.

Данные газонаполненные счетчики работают в режиме пропорциональных счетчиков при напряжении питания в диапазоне от 1200 до 2400 В. Давление газа в счетчиках, наполненных ^4He , обычно колеблется от 10 до 20 атм. По сравнению с ^4He многоатомные газы CH_4 или H_2 требуют более высокого рабочего напряжения, имеют несколько меньшую эффективность, более низкое давление газа и обеспечивают более короткое время нарастания импульсов. Чувствительность двух этих типов счетчиков к гамма-излучению примерно одинакова. При относительно высоком уровне дискриминации регистрация нейтронов может производиться в гамма-полях с мощностью дозы около 1 Р/ч [11].

На рис. 13.11 представлен спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного ^4He , полученный при регистрации нейтронов источника ^{252}Cf . Наблюдаемая форма спектра определяется следующими факторами:

1. энергетическим спектром нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf (см. рис. 11.20);
2. вероятностью передачи ядру отдачи энергии в диапазоне от 0 до $E(\text{макс})$;

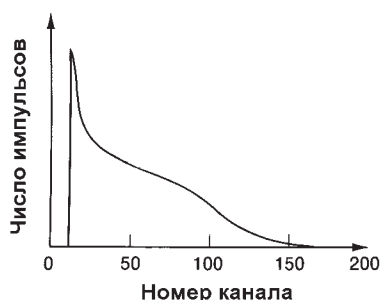


Рис. 13.11. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного ^4He , при регистрации нейтронов источника ^{252}Cf

3. вероятностью многократных рассеяний нейтронов, а также вероятностью потери энергии ядер отдачи в стенках корпуса счетчика [12] (в качестве примера см. также рис. 8.14);
4. регистрацией низкоамплитудных шумовых импульсов и наложений импульсов от гамма-квантов.

В результате воздействия указанных факторов в начальном энергетическом спектре нейтронов четко выраженный пик может практически отсутствовать, как показано на рис. 13.11. Несмотря на это, часть информации сохраняется, а часть — может быть получена посредством учета перечисленных факторов. Как правило, порог дискриминации устанавливается достаточно высоким для исключения шумов и импульсов от гамма-квантов в низкоэнергетической области и одновременно достаточно низким для регистрации значительного количества импульсов от нейтронов средней и высокой энергии. Так как порог дискриминации устанавливается по резко нисходящей кривой, детекторы на ядрах отдачи менее стабильны, чем детекторы тепловых нейтронов.

Несмотря на такие очевидные недостатки детекторов на ядрах отдачи, как их низкие эффективность и стабильность, регистрация нейтронов этими детекторами осуществляется без предварительного замедления нейтронов. Таким образом, регистрация нейтронов осуществляется очень быстро, и при этом частично сохраняется информация об их начальной энергии. Счетчики быстрых нейтронов позволяют регистрировать нейтроны с энергией от 20 кэВ до 20 МэВ, некоторые из них используются для быстрого счета совпадений с временем разрешения от 10 до 100 нс. Можно также установить такой порог дискриминации, при котором не будут регистрироваться импульсы от гамма-квантов и низкоэнергетических нейтронов, что имеет особое значение в системах активного анализа.

13.4.3 Камеры деления

Камеры деления являются разновидностью газонаполненных счетчиков, рассмотренных выше. Они регистрируют нейтроны, вызывающие вынужденное деление ядер делящегося материала, которым покрыты внутренние стенки камеры. Часто внешне камеры деления похожи на другие газонаполненные счетчики, хотя существуют камеры меньших диаметров и других форм. В качестве делящегося материала обычно используется высокообогащенный ^{235}U . На внутренние стенки методом электролиза (иногда испарением или кистью) наносится очень тонкий слой урана (поверхностная плотность от 0,02 до 2 мг/см²), который находится в непосредственном контакте с газом детектора. Образующиеся в результате деления осколки движутся практически в противоположных направлениях.

Ионизация, вызванная попавшим в газ осколком деления, регистрируется детектором; осколок, движущийся в противоположном направлении, поглощается стенками детектора [13].

Между осколками распределяется энергия деления, равная примерно 160 МэВ, но длина пробега осколков невелика. Средняя длина пробега осколков деления в таком типичном материале покрытия, как уран, не превышает 7 мкм, что соответствует толщине покрытия, примерно равной 13 мг/см². Следовательно, осколки деления, образовавшиеся в стенках детектора на глубине более 7 мкм, не могут достичь газа и вызвать ионизацию. Более того, большинство осколков движутся по касательным к поверхности покрытия, и поэтому длина их пробега больше минимально необходимой для выхода в газ. Поскольку для обеспечения выхода осколков деления в газ слой покрытия должен быть тонким, в камерах деления используются незначительные количества делящегося материала, что обуславливает их низкую эффективность регистрации. Собственная эффективность регистрации тепловых нейтронов камерами деления обычно составляет 0,5 — 1 %. Регистрация быстрых нейтронов камерами деления также возможна, но с еще более низкой эффективностью.

Камеры деления работают в режиме ионизационной камеры, поскольку ионизация, вызванная осколками деления, вполне достаточна и дополнительного газового усиления не требуется. Схема электроники, часто используемая совместно с камерами деления, показана на рис. 13.1. Напряжение источника питания выбирается в диапазоне от 200 до 600 В. Газом-наполнителем обычно является смесь аргона (90 %) и метана (10 %). При нормальном давлении пробег осколков деления в газе составляет 2 см.

На рис. 13.12 показан спектр амплитуд импульсов от камеры деления с покрытием из ²³⁵U [14]. Если потери энергии в урановом покрытии или стенках корпуса не слишком велики, наблюдается двугорбая форма спектра, соответствующая энергиям легкого и тяжелого осколков деления (около 70 и 100 МэВ). Поскольку почти любой делящийся материал содержит альфа-излучающие изотопы, в низкоэнергетической области спектра также наблюдаются фоновые импульсы, образованные альфа-частицами. Энергия альфа-частиц равна примерно 5 МэВ, в то время как энергия осколков деления на порядок выше. Таким образом порог дискриминации может устанавливаться выше сигналов от альфа-частиц. При таком

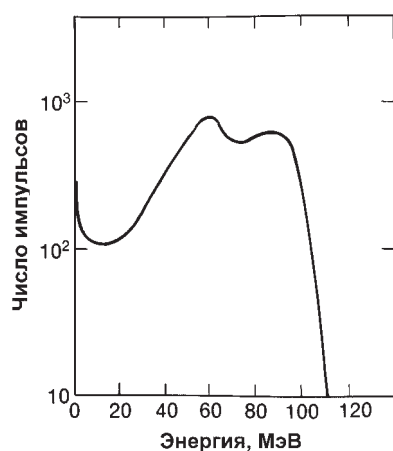


Рис. 13.12. Спектр амплитуд импульсов камеры деления с покрытием из ²³⁵U с поверхностной плотностью около 0,8 мг/см²

пороге часть импульсов от осколков с низкими энергиями теряется. Альфа-активность плутония выше, чем у урана, следовательно, при использовании камер деления с покрытием из плутония фон альфа-частиц будет выше и порог дискриминации должен устанавливаться также выше, чем для камер с покрытием из урана.

Ввиду значительной энергии осколков деления, из всех нейтронных детекторов камеры деления наименее чувствительны к гамма-излучению (примерно до 10^6 Р/ч). Лишь использование камер деления дает возможность осуществить прямой нейтронный контроль отработавшего ядерного топлива без дополнительной защиты. Камеры деления позволяют проводить пассивные измерения в больших нейтронных и гамма-полях. Присущая камерам деления низкая эффективность компенсируется возможностью регистрации значительного числа нейтронов.

13.4.4 Детекторы с покрытием из ^{10}B

Детекторы с покрытием из ^{10}B занимают промежуточное положение между пропорциональными счетчиками, наполненными ^3He и $^{10}\text{BF}_3$, и камерами деления с точки зрения эффективности регистрации нейтронов и чувствительности к гамма-излучению. Конструктивно детекторы с покрытием из ^{10}B похожи на камеры деления, использующие в качестве радиатора чувствительный к нейтронам бор, который очень тонким слоем (около $0,2$ мг/см 2) наносится на стенки детектора.

Регистрация нейтронов детекторами с покрытием из ^{10}B основана на реакции, выраженной уравнением (13.2). В газ попадает либо альфа-частица, либо ядро лития (но не обе частицы, поскольку они излучаются в противоположные стороны), и происходит процесс регистрации. Так как пробег альфа-частиц в боре составляет около 1 мг/см 2 , покрытие должно быть тонким; эффективность регистрации (порядка 10%) при этом ниже, чем у счетчиков, наполненных BF_3 . Однако, поскольку ядерная реакция протекает не в газе-наполнителе, состав газа может быть оптимизирован с точки зрения временного разрешения. В качестве газа-наполнителя обычно используется аргон под давлением $0,25$ атм с небольшой добавкой CO_2 . Счетчик работает в пропорциональном режиме при рабочем напряжении от 600 до 850 В [15].

На рис. 13.13 показан спектр амплитуд импульсов камеры с покрытием из ^{10}B , описанной выше. Ступенчатая форма спектра обусловлена тем, что в газ могут попадать как альфа-частицы, так и ядра лития. Поскольку более легкая альфа-частица уносит больше энергии, импульсам альфа-частиц соответствует на рисунке крайняя правая ступень. Из-за потери энергии частиц в борном покрытии стенок образуется большое число низкоэнергетических импульсов. Порог дискриминации устанавливается обычно выше этих низкоэнергетических импульсов. Из-за отсутствия четко определенного “провала”, по которому мог бы устанавливаться порог дискриминации, наклон счетной характеристики составляет примерно 10 % на 100 В [15].

Счетчики с покрытием из ^{10}B имеют среднюю эффективность регистрации тепловых нейтронов и низкую эффективность регистрации быстрых нейтронов. Их удобно использовать для регистрации нейтронов в высоких гамма-полях. При наличии соответствующей электроники эти детекторы могут работать в гамма-полях с мощностью дозы до 1000 Р/ч с 50 % потерей эффективности регистра-

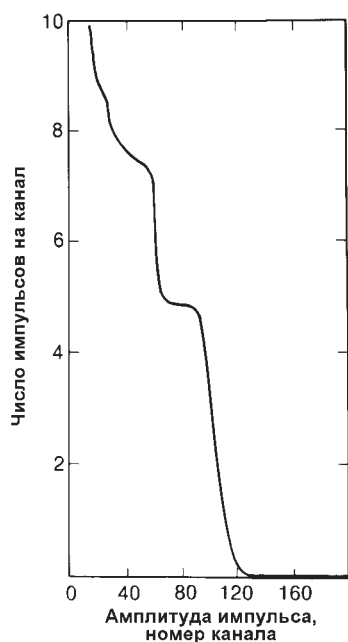


Рис. 13.13. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика с покрытием из ^{10}B

ции нейтронов, которая является следствием установления более высокого порога дискриминации для исключения импульсов от гамма-квантов [15]. Меньшая чувствительность счетчиков с покрытием из ^{10}B по сравнению со счетчиками, наполненными BF_3 , к гамма-излучению обусловлена более низкими давлением газа-наполнителя и рабочим напряжением, что уменьшает амплитуду импульсов от гамма-квантов по сравнению с амплитудой импульсов от нейтронов.

13.5 ПЛАСТМАССОВЫЕ И ЖИДКИЕ СЦИНТИЛЛЯТОРЫ

13.5.1 Введение

Использование пластмассовых и жидких органических сцинтилляторов для регистрации быстрых нейтронов объясняется их коротким временем формирования отклика и умеренной стоимостью. Быстрота отклика особенно важна при регистрации совпадений, когда соотношение действительных и случайных совпадений может иметь существенное влияние на статистическую точность измерений. Хотя органические сцинтилляторы имеют время формирования отклика порядка нескольких наносекунд, время разрешения совпадений при анализе обычно определяется динамическим диапазоном времени (десятки наносекунд) переноса быстрых нейтронов от образца к детектору. (Нейтрон с энергией 500 кэВ проходит расстояние в 1 м примерно за 100 нс). Время разрешения установок регистрации совпадений, в которых регистрации предшествует замедление быстрых нейтронов, с другой стороны, определяется динамическим диапазоном времени (десятки микросекунд), необходимого для термализации нейтронов.

Основным недостатком органических сцинтилляторов при проведении неразрушающего анализа является их высокая чувствительность к гамма-излуче-

нию. Вероятность регистрации ими нейтронов и гамма-квантов примерно одинакова, а спектры амплитуд импульсов от излучений обоих типов с одинаковой энергией перекрываются. Поэтому амплитуда импульса сама по себе дает немного информации о типе частицы. Вместе с тем, с некоторыми органическими сцинтилляторами может использоваться электроника, позволяющая методом дискриминации по форме импульса осуществлять эффективное разделение между сигналами от нейтронов и гамма-квантов.

13.5.2 Механизмы взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалом детектора

Быстрые нейтроны взаимодействуют с материалом сцинтиллятора в реакциях упругого рассеяния на ядрах (в основном углерода и водорода). Нейтроны спектра деления или (α, n)-реакций вызывают сцинтилляции за счет реакций отдачи в основном на ядрах водорода (протонах). Это происходит вследствие того, что при упругом рассеянии на протоне нейтрон может передавать ему 100 % своей энергии, в то время как при упругом рассеянии на ядре ^{12}C ему может быть передано не более 28 % энергии нейтрона. Кинетическая энергия протонов отдачи поглощается сцинтиллятором и в конечном итоге преобразуется в тепло и видимый свет. Свет может быть собран фотоэлектронным умножителем (ФЭУ), оптически соединенным со сцинтиллятором, и преобразован в электронный импульс, амплитуда которого пропорциональна кинетической энергии протона отдачи.

Хороший сцинтилляционный материал, используемый для регистрации нейтронов, имеет относительно высокую конверсионную эффективность (отношение энергии световой вспышки к энергии ядер отдачи), достаточную прозрачность для собственного излучения и спектр световой вспышки, соответствующий области чувствительности фотоумножителя. Многие выпускаемые промышленностью сцинтилляторы, такие как NE102 и NE213, вполне удовлетворяют этим критериям. В табл. 13.4 приведены характеристики пластмассовых и жидких сцинтилляторов, получивших широкое распространение. Максимум в спектре светового излучения соответствует длине волны ~ 400 нм. Для такого излучения толщина слоя светового поглощения в сцинтилляторе находится в диапазоне от 1 до 5 м. Поскольку свет может проходить в сцинтилляционных материалах значительные расстояния без существенного поглощения, применение органических сцинтилляторов с размерами порядка 1 м не является каким-либо исключением.

Хотя механизм передачи кинетической энергии быстрых нейтронов протонам отдачи в органических сцинтилляторах аналогичен механизму ее передачи в пропорциональных счетчиках, наполненных водородом или метаном, сам процесс регистрации имеет ряд существенных отличий. Они в значительной степени обусловлены различием физических свойств органических сцинтилляторов и газов. Например, плотность газа в пропорциональных счетчиках на протонах отдачи составляет порядка 10^{-3} г/см³, в то время как плотность органических сцинтилляторов — около 1 г/см³. Это различие в плотности означает, что для заданной длины пробега в этих материалах вероятность взаимодействия как для нейтронов, так и для гамма-квантов будет значительно выше для сцинтилляторов, чем для пропорциональных счетчиков. На рис. 13.14 изображена зависимость вероятности взаимодействия, выраженной в виде линейного коэффициента ослабления, с материалом сцинтиллятора NE213 от энергии. Из рисунка видно, что вероятность взаимодействия нейтронов с энергией 1 МэВ с материалом жидкого

Таблица 13.4 – Характеристики некоторых пластмассовых и жидких сцинтилляторов для регистрации нейтронов

Тип	Обозначение	Фирма-изготовитель*	Световыход по отношению к антрацену, %	Время высвечения, нс	Длина волны светового излучения максимальной интенсивности, нм	Отношение содержания водорода и углерода	Примечания
Пластмассовые	NE102A	1	65	2,4	423	1,104	Обычное использование
	NE104	1	68	1,9	406	1,100	Быстрое формирование
	NE111A	1	55	1,6	370	1,103	Очень быстрое формирование
	Пилот В (Pilot В)	1	68	1,8	408	1,100	Обычное использование
	Пилот U (Pilot U)	1	67	1,4	391	1,100	Очень быстрое формирование
Жидкие	NE211	1	78	2,6	425	1,248	Обычное использование
	NE213	1	78	3,7	425	1,213	Быстрые нейтроны (МНД)**
	BC501	2	78	3,7	425	1,213	Быстрые нейтроны (МНД)**
	NE228	1	45		385	2,11	Высокое отношение содержания водорода к углероду
	NE311	1	65	3,8	425	1,701	Активирован бором
	NE323	1	60	3,8	425	1,377	Активирован гадолинием

*Код фирмы: 1 – "Нуклеар Энтерпрайзиз, Лтд." (Nuclear Enterprises, Ltd.), 2 – "Бикрон Корп." (Bicron Corp.)

** МНД – мгновенные нейтроны спонтанного деления.

сцинтиллятора толщиной 5 см равна примерно 78 %, а вероятность взаимодействия гамма-квантов с энергией 1 МэВ — примерно 26 %.

Пробеги протонов и электронов отдачи в сцинтилляторе будут значительно меньше, чем в пропорциональных счетчиках. За исключением случаев взаимодействия вблизи границ детектора этот факт при рассмотрении поведения протонов отдачи не имеет большого значения. Однако важным следствием сокращения пробега электронов отдачи в органических сцинтилляторах может быть торможение электронов высоких энергий в объеме детектора. Например, электроны с энергией 500 кэВ могут полностью отдавать свою энергию сцинтиллятору, в то время как в пропорциональном счетчике они отдают лишь незначительную часть ее.

Кроме того, световыходы для электронов и протонов отдачи одинаковой начальной энергии различны. Это обусловлено разницей в плотности ионизации вдоль пути торможения этих частиц. Как видно из рис. 13.15, световыход для про-

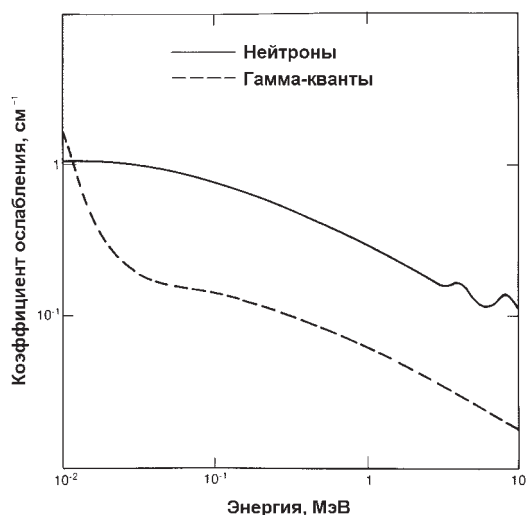


Рис. 13.14. Зависимость коэффициента ослабления от энергии падающих нейтронов и гамма-квантов для сцинтиллятора NE213

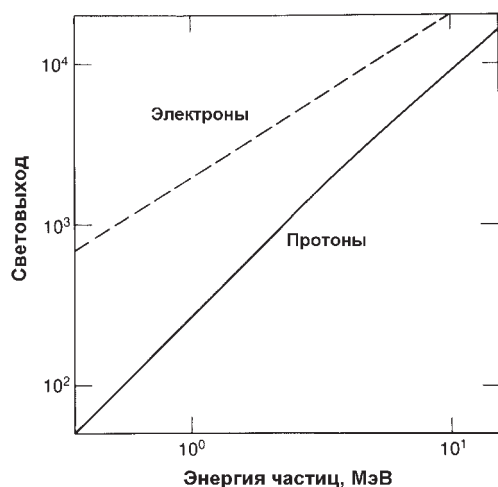


Рис. 13.15. Зависимость световыхода от энергии электронов и протонов для сцинтиллятора NE102 [7, 16]

тонов всегда меньше, чем для электронов той же энергии [7 и 16]. Зависимость световыходов для этих двух частиц от энергии также различна. (Ядра отдачи ^{12}C дают меньше света, чем протоны отдачи той же энергии, что еще больше уменьшает их и так незначительный вклад в процесс регистрации.) Обычно световыходы для электронов с энергией 60 кэВ и протонов с энергией 500 кэВ в органических сцинтилляторах примерно одинаковы.

13.5.3 Дискриминация по форме импульса

Механизм преобразования части кинетической энергии частиц отдачи в видимый свет чрезвычайно сложен, однако установить несколько его особенностей достаточно легко. Основные компоненты сцинтилляции имеют время высвечивания порядка нескольких наносекунд. Из этого следует, что органические сцинтилляторы могут работать при очень высокой скорости счета. Однако у многих сцинтилляторов есть более слабый, но долгоживущий компонент излучения, который соответствует запаздывающей флюоресценции. Поэтому полный световыход может быть представлен суммой двух экспоненциальных составляющих, соответствующих быстрому и медленному компонентам сцинтилляции. Медленный компонент имеет время высвечивания, равное нескольким сотням наносекунд. Часть светового излучения, наблюдаемого в этом слабом медленном компоненте, определяется типом частицы, вызывающей излучение. Более тяжелые частицы имеют большую ионизирующую способность и образуют большее излучение запаздывающей флюоресценции. На рис. 13.16 показана зависимость световых импульсов в стильбене, являющимся твердым органическим кристаллическим сцинтиллятором, от времени, в течение которого кристалл находится под воздействием различных видов излучений. Наличие такой временной зависимости позволяет идентифицировать импульсы от частиц, имеющих различную скорость потери энергии, но образующих в сцинтилляторе световое излучение примерно одинаковой интенсивности. Этот способ называется дискриминацией по форме импульса и используется для исключения импульсов гамма-квантов из потока при регистрации нейтронных импульсов в органических сцинтилляторах.

Дискриминация по форме импульса достигается при помощи электроники, использующей различия во времени высвечивания при регистрации органическим сцинтиллятором различных излучений. Для дискриминации по форме импульса в органических сцинтилляторах наиболее широко применяется метод, основанный на прохождении импульса с фотоэлектронного умножителя через биполярный формирователь. Пересечение этим биполярным импульсом нулевого уровня зависит от времени нарастания и формы начального импульса, но не зависит от его амплитуды. Таким образом, разделение импульсов по форме достигается измерением интервала времени между фронтом начального импульса, который не зависит от формы импульса, и пересечением нулевого уровня сформированным биполярным импульсом. На рис. 13.17 показана схема, реализующая рассматриваемый метод [18]. На рисунке также схематично изображены импульсы от электронов и протонов в различных точках схемы.

Функционирование схемы дискриминации по форме импульса описывается приведенной чувствительностью. Этот критерий сравнивает расстояние между пиками спектров время-разделенных сигналов от нейтронов и гамма-квантов с суммой полуширин этих пиков (см. рис. 13.18). Приведенная чувствительность

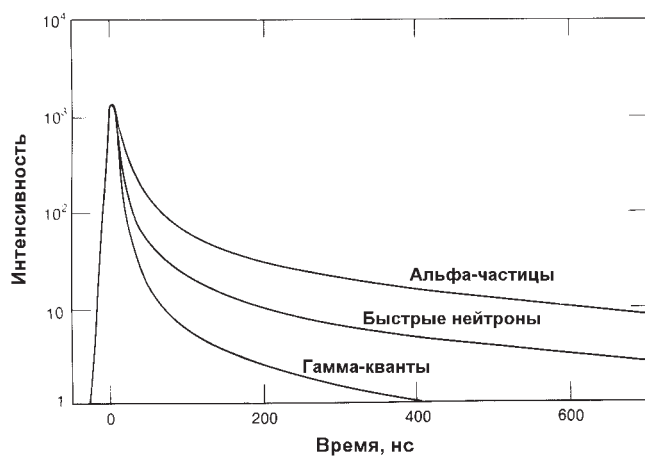


Рис. 13.16. Зависимость интенсивности световых импульсов для стильбена, представленная в логарифмическом масштабе, от времени высвечивания для различных видов излучения [17].

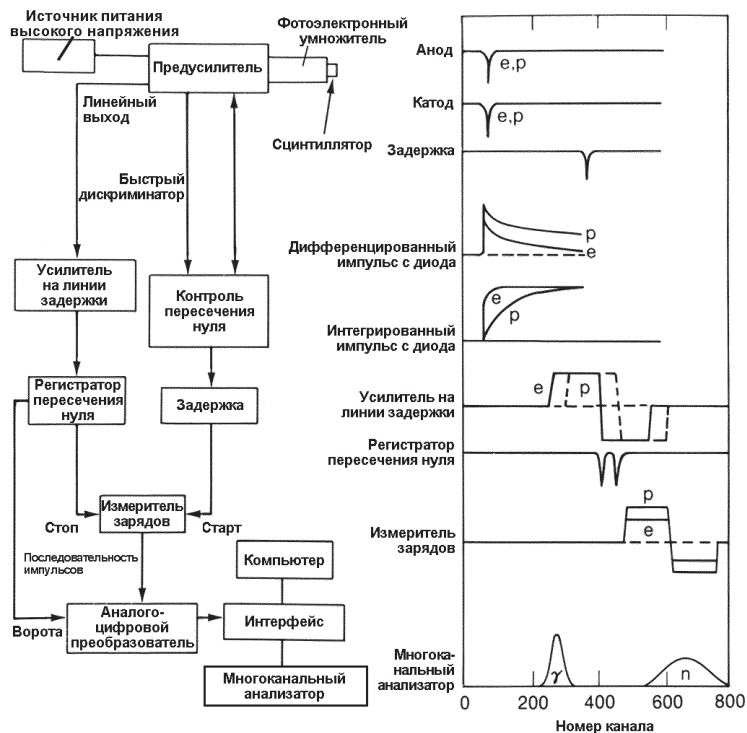


Рис. 13.17. Блок-схема дискриминатора по форме импульса [18]

обычно снижается при увеличении либо динамического диапазона амплитуд входящих импульсов, либо при возрастании общей скорости счета. Есть данные об успешном использовании схемы дискриминации по форме импульса в динамическом диапазоне, равном 100 при скорости счета 10^4 имп./с [18]. На рис. 13.19 показаны результаты экспериментов, полученные с использованием жидкого сцинтиллятора NE218 и плутоний-бериллиевого источника нейтронов и гамма-квантов.

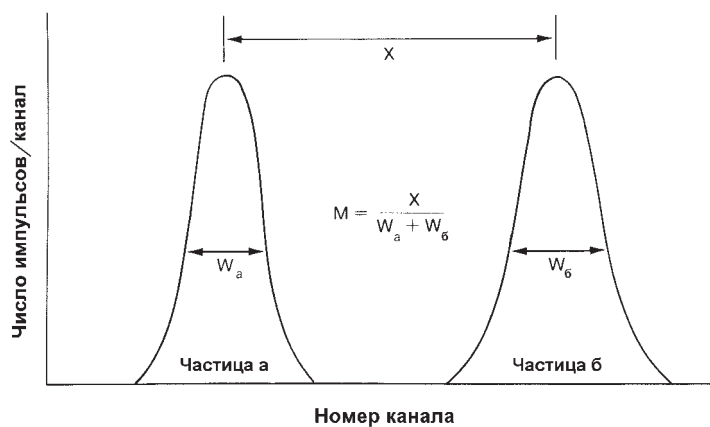


Рис. 13.18. Иллюстрация использования приведенной чувствительности M для оценки схемы дискриминации по форме импульса

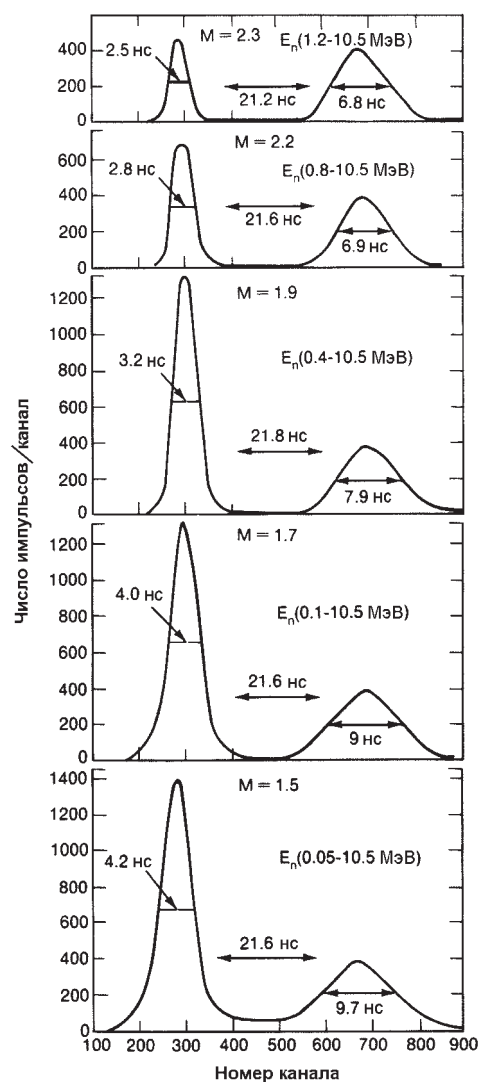


Рис. 13.19. Распределение времени нарастания для различных динамических диапазонов энергий нейтронов для жидкого сцинтиллятора NE218 и плутоний-бериллиевого источника нейтронов и гамма-квантов [18]

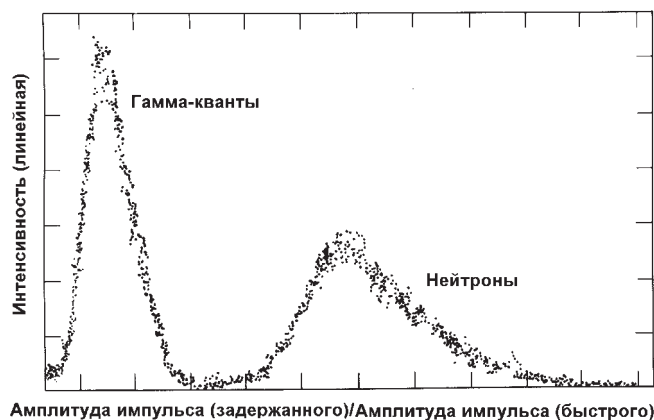


Рис. 13.20. Отношение сигнала АЦП в задержанном временном селекторе к сигналу АЦП в мгновенном временном селекторе для NE213 [18]

Другой широко распространенный способ дискриминации по форме импульса заключается в интегрировании заряда, содержащегося в переднем фронте импульса, и сравнение его с зарядом, содержащимся в заднем фронте импульса. В одной из последних реализаций этого метода [19] импульс с анода ФЭУ расщепляется, после чего передний и задний фронты отдельно анализируются интегрирующим аналого-цифровым преобразователем (АЦП). Отношение цифровых значений зарядов, соответствующих переднему и заднему фронтам, дает спектр дискриминации по форме импульса, подобный тому, который показан на рис. 13.20.

13.6 ДРУГИЕ ТИПЫ ДЕТЕКТОРОВ НЕЙТРОНОВ

В данном разделе рассматриваются некоторые нейтронные детекторы, которые не получили широкого применения в области анализа ядерных материалов. Принцип работы этих детекторов при регистрации нейтронов, как и других детекторов, описанных в данной главе, основан исключительно на реакциях отдачи или ядерных реакциях.

Для повышения эффективности регистрации нейтронов в некоторые сцинтилляторы добавляют материал, активно поглощающий нейтроны. При этом преследуется цель добиться более локализованной и эффективной регистрации нейтронов, чем это возможно при использовании газонаполненных счетчиков. В качестве таких добавок-«наполнителей» обычно используются гадолиний, ^{10}B и ^6Li . При захвате нейтронов образуются заряженные частицы и гамма-кванты, при взаимодействии которых с материалом сцинтиллятора возникает световое излучение. После взаимодействия с нейтроном процесс регистрации протекает так же, как при образовании светового излучения от гамма-квантов. Поскольку сцинтиллятор является и детектором гамма-квантов, его чувствительность к гамма-квантам обычно очень высока. Однако существуют конструкции приборов, позволяющие добиться высокой эффективности регистрации нейтронов при низкой чувствительности к гамма-квантам.

Для регистрации тепловых нейтронов могут успешно использоваться стеклянные сцинтилляторы, наполненные литием, а также кристаллы $\text{ZnS}(\text{Ag})$, диспергированные в стеклянной среде, или силикатные стекла, активированные це-

рием. Тепловые нейтроны вступают в (n, α) -реакцию с ядром ${}^6\text{Li}$, и тяжелые альфа-частицы вызывают сцинтилляцию. Детекторы данного типа могут быть также в виде пластин толщиной около 1 мм. Эффективность регистрации тепловых нейтронов в гамма-полях может достигать 25 — 99 % при мощности дозы гамма-излучения порядка 1 Р/ч. Низкая чувствительность к гамма-излучению обусловлена высоким сечением захвата тепловых нейтронов, выделением в реакции значительной энергии (4,78 МэВ) и небольшой толщиной детектора [7].

При диспергировании кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$ в люцит (органическое стекло) возможна регистрация быстрых нейтронов. Механизм взаимодействия представляет собой упругое рассеяние нейтронов на ядрах водорода. Протон отдает свою энергию материалу сцинтиллятора, в результате чего происходит возбуждение кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Кристаллы $\text{ZnS}(\text{Ag})$ малочувствительны к гамма-излучению, так как для возбуждения кристаллов сульфида цинка, излучающих свет, требуется относительно высокая энергия. Детекторы на основе кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$, диспергированных в оргстекло, называются детекторами Хорняка [20]; их эффективность невысока (порядка 1 %), поскольку плохое пропускание света материалом этих детекторов позволяет использовать лишь детекторы небольших размеров. Детекторы в виде тонких пластин использовались для измерения отходов в контейнерах на заводе в Рокки Флэтс [21]. Благодаря свойствам кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$ и незначительной толщине детектора, что ограничивает передачу энергии гамма-излучением, детекторы Хорняка могут работать в гамма-полях с мощностью дозы около 1 Р/ч.

Во многих нейтронных детекторах чувствительный к нейтронам материал и электроника представляют собой единый блок. Однако возможно применение другой детектирующей системы, которая более компактна и портативна, с использованием материалов, чувствительных только к нейтронам. Сначала такой материал помещается в заданное место измерений, затем он извлекается для измерения реального потока нейтронов по изменениям в изотопном составе или в структуре кристаллической решетки. В качестве примера можно привести термолюминесцентные дозиметры (ТЛД) на основе кристаллов, которые при нагревании излучают свет, интенсивность которого пропорциональна поглощенной дозе. Термолюминесцентные дозиметры используются преимущественно для измерения дозы гамма-излучения, но существует такой распространенный кристалл, как LiF , чувствительность которого к нейтронам может быть повышена обогащением по ${}^6\text{Li}$ [7].

Другим примером использования материалов, чувствительных к нейтронам, могут служить активируемые фольги, используемые для измерений излучений низкой интенсивности и задач ядерной безопасности. Например, медная фольга использовалась для мониторинга миграции плутония в почве вокруг хранилищ радиоактивных отходов [22]. Механизм регистрации основан на захвате нейтронов ядрами ${}^{63}\text{Cu}$ с образованием ${}^{64}\text{Cu}$, который распадается в ${}^{64}\text{Ni} + e^+$ с периодом 12,7 ч. Фольга достаточно долго облучается для равновесия накопления ${}^{64}\text{Cu}$ и затем измеряется позитронная активность. Таким образом можно контролировать концентрацию плутония до 10 нКи/г почвы.

13.7 ИЗМЕРЕНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ НЕЙТРОНОВ

13.7.1 Введение

Как указывалось в разделе 13.1, пассивные методы нейтронного анализа обычно основаны на измерении количества нейтронов без учета их энергии. Это обусловлено, во-первых, тем, что радиоактивные материалы излучают нейтроны с широкими энергетическими спектрами, изменения которых для различных изотопов незначительны, и, во-вторых, тем, что регистрация нейтронов основана на косвенных методах, при которых сохраняется незначительная информация об энергии нейтронов. В данной главе было показано, что широкий круг взаимодействий в процессе регистрации нейтронов не находится в прямой зависимости от энергии нейтронов. В определенной мере исключение составляют детекторы на ядрах отдачи, такие, как счетчики, наполненные ^4He , и органические сцинтилляторы. Однако ни один из рассмотренных детекторов не позволяет идентифицировать изотопы на основе измерения энергии испускаемых ими нейтронов. Вследствие этого пассивные методы нейтронного анализа обычно основаны на измерении количества тепловых или быстрых нейтронов, иногда посредством подбора детектора или окружающего его материала для регистрации нейтронов в наиболее широком энергетическом спектре. При выборе детекторов также учитывается их способность генерировать быстрые (от 10 до 100 нс) и медленные (от 10 до 100 мкс) выходные сигналы для счета совпадений. Конструкция некоторых детекторов позволяет эффективно регистрировать нейтроны практически всех энергий (их называют "всеволновыми" детекторами).

13.7.2 Методы измерений

Хотя измерение энергетического спектра нейтронов при пассивных методах анализа не является обязательным, оно иногда важно при проведении исследований и разработке приборов. Такие измерения трудны, но возможны с использованием различных методов измерений. Для этого используются спектрометры на протонах отдачи, нейтронные время-пролетные измерения и спектрометры, наполненные ^3He . Ниже приводится пример использования спектрометра, наполненного ^3He , для измерения энергетических спектров нейтронов.

Разработанный Шалевым и Катлером [23 и 24] спектрометр, наполненный ^3He , использовался для измерения энергетических спектров запаздывающих нейтронов. (Спектр нейтронов источника AmLi , приведенный на рис. 11.5, был также измерен с помощью аналогичного прибора). Спектрометр представляет собой пропорциональный счетчик, наполненный ^3He , аргоном и некоторым количеством метана. Регистрация нейтронов этим счетчиком основана на реакции $^3\text{He}(n,p)$ в диапазоне энергий от 20 кэВ до 2 МэВ. Сечение реакции в этом диапазоне энергий гладкое и почти плоское, уменьшающееся примерно от 10 до 1 барн. Для регистрации быстрых нейтронов счетчик не помещается в замедляющий нейтроны материал; для уменьшения вклада в отклик детектора тепловых нейтронов, сечение взаимодействия которых с ^3He равно 5330 барн, он защищается слоем кадмия или бора. Кроме того, для уменьшения влияния на энергетическое разрешение детектора наложений импульсов от гамма-квантов также используют защитные экраны из свинца. Собственная эффективность при этом низкая, порядка 0,1 %.

Энергетический спектр, полученный с помощью спектрометра, наполненного ^3He , имеет пик полного поглощения, соответствующий сумме энергий $E_n + 765$ кэВ; пик захвата тепловых нейтронов при энергии 765 кэВ; спектр, полученный при реакции упругого рассеяния $^3\text{He}(n,n')$ с максимумом при энергии, равной $0,75 E_n$ (по уравнению (13.3)). Для выделения пика $E_n + 765$ кэВ используется постоянная времени длительного сбора зарядов в диапазоне от 5 до 8 мкс. Это позволяет выделить более медленные сигналы от протонов отдачи, образующихся в (n,p) -реакции, на фоне более быстрых сигналов от отдачи ядер ^3He . Это также способствует одновременному накоплению информации о собранных зарядах и времени нарастания сигнала для обеспечения более эффективной дискриминации по форме импульса. Таким способом возможно получение энергетического спектра нейтронов, однако при его обработке необходимо очень аккуратно обращаться с результатами измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Engineering Data Sheets 1.21 and 1.22 for BF_3 Proportional Counters (Reuter-Stokes, Inc., Cleveland, Ohio, 1979).
2. A.E. Evans, H.O. Menlove, R.B. Walton, and D.B. Smith, "Radiation Damage to ^3He Proportional Counter Tubes," *Nuclear Instruments and Methods* 133, (1976).
3. D.H. Wilkinson, *Ionization Chambers and Counters* (Cambridge University Press, Cambridge, Massachusetts, 1950).
4. P. Rice-Evans, *Spark, Streamer, Proportional, and Drift Chambers* (The Richelieu Press, London, 1974).
5. T.L. Atwell and H.O. Menlove, *Measurement of the Time Resolution of Several ^4He and CH_4 Proportional Counters* in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September-December 1973," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7784-MS (July 1979), pp. 57-63.
6. T.D. Reily, "The Measurement of Leached Hulls", Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-7784-MS (July 1979), pp. 57-63.
7. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
8. Engineering Data Sheets 1.02 and 1.03 for ^3He Proportional Counters (Reuter-Stokes, Inc., Cleveland, Ohio, 1978).
9. T.W. Crane, "Shielding for ^3He Detectors" in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, May-August 1976," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6675-PR (January 1977), p. 3.
10. T.W. Crane, "Gas Mixture Evaluation for ^3He Neutron Detectors," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (March 1978), p. 39.
11. M.L. Evans, "NDA Technology for Uranium Resource Evaluation, January 1- June 30, 1978," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7617-PR (1979), pp. 36-41.
12. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602, SA1-MLM-2585 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).

13. R.W. Lamphere, "Fission Detectors," in *Fast Neutron Physics*, I, J.B. Marion and J.L. Fowler, Eds. (Interscience Publishers, Inc., New York, 1960).
14. S. Kahn, R. Harman, and V. Forgue, *Nuclear Science and Engineering* 23, 8 (1965).
15. Engineering Data Sheet 1.41 for ^{10}B -Lined Proportional Counter (Reuter-Stokes Inc., Cleveland, Ohio, 1979).
16. R.L. Craun and D.L. Smith, "Analysis of Response Data for Several Organic Scintillators," *Nuclear Instruments and Methods* 80, 239 (1970).
17. L.M. Bollinger and G.E. Thomas, *Review of Scientific Instruments* 32, 1044 (1961).
18. D.W. Glasgow, D.E. Velkley, J.D. Brandenberger, and M.T. McEllistrem, "Pulse-Shape Discrimination for Wide Dynamic Range Neutron Scattering Experiments," *Nuclear Instruments and Methods* 114, 535 (1974).
19. C.L. Morris, J.E. Bolger, G.W. Hoffman, C.F. Moore, L.E. Smith, and H.A. Thiesen, "A Digital Technique for Neutron-Gamma Pulse Shape Discrimination," *Nuclear Instruments and Methods* 137, 397 (1976).
20. W.F. Hornyak, "A Fast Neutron Detector," *Review of Scientific Instruments* 23 (6), 264 (1952).
21. R.A. Harlan, "Uranium and Plutonium Assay of Crated Waste by Gamma-Ray, Single Neutron, and Slow Coincidence Counting," in Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards Publication 582, 1980), p.622.
22. L.E. Bruns, "Capability of Field Instrumentation to Measure Radionuclide Limits," Rockwell Hanford report RHO-LD-160 (1981), p.45.
23. S. Shalev and J.M. Cuttler, *Nuclear Science and Engineering* 51, 52 (1973).
24. H. Franz, W. Rudolph, H. Ohm, K.L. Kratz, G. Herrmann, F.M. Nuh, D.R. Slaughter, and S.G. Prussin, "Delayed-Neutron Spectroscopy with ^3He Spectrometers," *Nuclear Instruments and Methods* 144, 253 (1977).

Глава 14

Основы регистрации полного потока нейтронов

Дж. Стюарт
(Переводчик А. Н. Григорьев)

14.1 ВВЕДЕНИЕ

При измерении полного потока нейтронов регистрируются все импульсы, возникающие при взаимодействии нейтронов с чувствительным объемом детектора. При этом не предпринимается никаких попыток, чтобы выделить временную корреляцию событий, как это делается при регистрации нейтронных совпадений.

Простейшая система регистрации полного потока нейтронов состоит из устройств, схематически представленных на рис. 14.1. Все события, зарегистрированные детектором и образующие сигнал на выходе усилителя с амплитудой больше порогового значения, установленного интегральным дискриминатором, подсчитываются за заданный интервал времени пересчетным устройством. Обычно значение порога срабатывания дискриминатора достаточно высоко для того, чтобы отсекал импульсы с малой амплитудой от сопутствующего гамма-излучения, а также электромагнитных помех и шумов, и достаточно мало для того, чтобы зарегистрировать импульсы, вызванные нейтронами. Важно отметить, что спектры амплитуд импульсов пропорциональных счетчиков нейтронов ^3He и BF_3 не содержат информации об энергии регистрируемых нейтронов. Однако некоторая информация об этом может быть получена путем использования специальной конструкции замедляющих и поглощающих материалов, окружающих счетчики.

В этой главе представлены основные принципы применения регистрации полного потока нейтронов для пассивного анализа материалов, содержащих уран и плутоний. В качестве примера рассматриваются пропорциональные счетчики ^3He с предварительным замедлением нейтронов в полиэтилене. Такие детекторы обычно применяются в практике регистрации нейтронов на ядерных установках во всем мире.



Рис. 14.1. Основные компоненты простой системы регистрации полного потока нейтронов

14.1.1 Теория регистрации полного потока нейтронов

Скорость счета полного потока нейтронов определяется по простой формуле:

$$T = \epsilon M_L S, \quad (14.1)$$

где T — скорость счета полного потока нейтронов, имп./с;

ϵ — полная эффективность регистрации, имп./нейтрон;

M_L — умножение нейтронов утечки в образце, отн. ед.;

S — интенсивность первичного излучения нейтронов в образце, нейтрон/с.

Полная эффективность регистрации ϵ — это число импульсов, зарегистрированных детектором от одного нейтрона, излученного образцом. Умножение нейтронов утечки из образца M_L — это отношение числа нейтронов, излученных с внешней поверхности образца, к одному первичному нейтрону, рожденному внутри образца. Интенсивность нейтронного излучения в образце S — это количество первичных нейтронов, образованных за секунду в образце.

Построение этой главы основано на уравнении (14.1). Факторы, воздействующие на величины S , M_L и ϵ рассматриваются относительно влияния, которое они оказывают на методику пассивного анализа материалов.

14.1.2 Сравнение методов регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений

Перед изложением основных принципов регистрации полного потока нейтронов необходимо сравнить регистрацию полного потока нейтронов с регистрацией нейтронных совпадений, принципы которой подробно описаны в главе 16. Как правило, регистрация полного потока нейтронов относится ко *всем* нейтронам, испускаемым из образца, в то время как регистрация совпадений — только к нейтронам, коррелированным во времени.

Тремя основными источниками нейтронов для пассивного анализа материалов являются реакции (α, n) , спонтанное деление и вынужденное деление (см. главу 11 с подробным описанием механизмов образования нейтронов). В результате реакции (α, n) нейтроны образуются во времени случайным образом. При делении образуются "пачки", состоящие от 0 до 8 нейтронов. Схема совпадений может отделять нейтроны, образованные в процессе деления, от образованных при реакции (α, n) . Такая особенность позволяет обеспечить проведение пассивного анализа содержания изотопов плутония с высокими скоростями спонтанного деления (в основном это ^{240}Pu) на фоне значительного количества нейтронов от (α, n) -реакции и естественного нейтронного фона помещения. Кроме того, в активных методиках совпадений нейтронов применяются внешние источники нейтронов подсветки, например, из реакции (α, n) , чтобы индуцировать реакцию вынужденного деления в образце, результирующие нейтроны которой регистрируются с использованием электронной схемы совпадений. Схемы регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений различным образом реагируют на три источника образования нейтронов как при пассивном, так и при активном анализе. Это показано в табл. 14.1. Отметим, что в активном анализе вклад нейтронов спонтанного деления измеряемого образца может быть значительно снижен путем подбора интенсивного источника нейтронов (α, n) -реакции.

Таблица 14.1 – Чувствительность методик регистрации нейтронов к нейтронам от трех источников

Метод анализа	Регистрация полного потока нейтронов	Регистрация совпадений
Пассивный анализ	(α, n) , СД*, ВД**	СД, ВД
Активный анализ	(α, n) , СД, ВД	СД, ВД

* СД — нейтроны спонтанного деления.

** ВД — нейтроны вынужденного деления

Обычно, чем к меньшему числу источников нейтронов чувствительна методика, тем в большей степени она подходит для анализа определенных изотопов. Чем больше методика специфична к виду изотопов, тем более она полезна для анализа. Вообще пассивный метод регистрации полного потока нейтронов является наименее избирательным методом из представленных в табл. 14.1. Однако в тех случаях, когда преобладает только один из трех источников нейтронов, для анализа может быть применена пассивная регистрация полного потока нейтронов. Например, UF_6 , содержащий высокообогащенный уран, и PuF_4 являются материалами, в которых преобладают нейтроны (α, n) -реакции. Металлические образцы урана и плутония являются примерами, когда спонтанное деление представляет собой основной источник нейтронов. В каждом из этих примеров вынужденное деление может быть фактором, усложняющим анализ при регистрации как полного потока нейтронов, так и нейтронных совпадений. Так как вынужденные деления увеличивают средний выход нейтронов из образца, а отклик схем совпадений (например, сдвигового регистра, описанного в главе 16) увеличивается быстрее, чем средний поток нейтронов из образца, то регистрация полного потока нейтронов менее чувствительна к мешающему воздействию вынужденного деления.

Скорость счета совпадений пропорциональна ϵ^2 , в то время как скорость счета полного потока нейтронов пропорциональна ϵ . Изменения в матрице образца (например, наличие влаги) могут изменить среднюю энергию нейтронов, излучаемых из образца, и тем самым изменить эффективность детектора ϵ . Следовательно, регистрация нейтронных совпадений является более чувствительной к изменениям ϵ , чем регистрация полного потока нейтронов. Кроме того, результат регистрации полного потока нейтронов статистически намного точнее, чем результат регистрации совпадений за то же время измерения.

Недостатком метода регистрации полного потока нейтронов по сравнению с регистрацией совпадений является его чувствительность к фоновым нейтронам. Обычно фоновые нейтроны распределяются во времени случайно и легко отделяются схемой совпадений. Чтобы устранить это влияние используется отдельное измерение фона или применение специальной внешней защиты, либо совместно оба этих способа. Однако во многих случаях интенсивность фоновых нейтронов незначительна по сравнению с интенсивностью всех нейтронов из образца и эти дополнительные меры не обязательны.

На практике регистрация полного потока нейтронов и регистрация нейтронных совпадений часто применяются вместе для того, чтобы скорректировать ре-

зультаты измерений с учетом вынужденного деления (поправка на эффект саморазмножения).

Более подробное изложение этого вопроса можно найти в разделе 16.8.4 главы 16.

14.2 ИСТОЧНИКИ ОБРАЗОВАНИЯ ПЕРВИЧНЫХ НЕЙТРОНОВ

Первым из трех важных факторов, влияющих на регистрацию полного потока нейтронов, является образование первичных нейтронов в образце. Первичные нейтроны образуются в результате реакции (α, n) и спонтанного деления; вторичные нейтроны образуются в результате вынужденного деления. Вынужденное деление и поглощение нейтронов в образце рассматриваются обычно вместе и называются размножением нейтронов в образце. В главе 11 описываются физические процессы образования первичных нейтронов и даются значения выходов нейтронов из изотопов актинидов в результате спонтанного деления и реакции (α, n) , представляющих интерес при пассивном нейтронном анализе. Значения выходов нейтронов (α, n) -реакции представлены для оксидов и фторидов.

В этом разделе рассматриваются те свойства процесса образования нейтронов в соединениях урана и плутония, которые влияют на результаты анализа, основанного на регистрации полного потока нейтронов. Излагаются общие принципы градуировки без рассмотрения эффектов размножения нейтронов. Другими словами, не учитываются образование нейтронов за счет вынужденного деления и потери нейтронов за счет поглощения. Эти вопросы рассматриваются в разделе 14.3.

14.2.1 Соединения плутония

При применении полного потока нейтронов в качестве характеристики одного или нескольких изотопов урана и плутония потребуются знание химической формы и изотопного состава образца. Мы постарались проиллюстрировать это на примерах. Рассмотрим образцы плутония массой 100 г в форме металла, PuO_2 и PuF_4 трех различных изотопных составов, представляющие топливо легководных реакторов низкой, средней и высокой глубины выгорания. В табл. 14.2 представлена интенсивность образования нейтронов для каждого изотопа, процесса образования нейтронов и формы образца. Эта интенсивность рассчитана на основе данных по выходу нейтронов из табл. 11.1 и 11.3 главы 11. Образование нейтронов при спонтанном делении зависит от изотопного состава образца, но не зависит от его химической формы. Образование же нейтронов при реакциях (α, n) зависит от того и другого. Выводы из результатов табл. 14.2 следующие:

1. Для металлического плутония, который не имеет (α, n) -компоненты, образование первичных нейтронов определяется изотопом ^{240}Pu (98, 96 и 65 % для трех изотопных составов плутония).

Таблица 14.2 – Интенсивность образования первичных нейтронов для трех изотопных составов плутония в металлическом плутонии, PuO_2 и PuF_4

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов для 100 г плутония, нейтрон/с		
		металл (спонтанное деление)	PuO_2 ((α ,n)-реакция)	PuF_4 ((α ,n)-реакция)
^{238}Pu	0,024	62	322	52800
^{239}Pu	89,667	2	3416	502135
^{240}Pu	9,645	9838	1360	202545
^{241}Pu	0,556	0	1	95
^{242}Pu	0,109	187	0	29
^{241}Am	0,327*	<u>0</u>	<u>880</u>	<u>144417</u>
	ИТОГО:	10089	5979	902021
^{238}Pu	0,059	153	791	129800
^{239}Pu	82,077	2	3127	459631
^{240}Pu	16,297	16623	2298	342237
^{241}Pu	1,231	0	2	209
^{242}Pu	0,336	578	1	91
^{241}Am	0,162*	<u>0</u>	<u>436</u>	<u>71546</u>
	ИТОГО:	17356	6655	1003514
^{238}Pu	1,574	4077	21092	3462800
^{239}Pu	57,342	1	2185	321115
^{240}Pu	24,980	25480	3522	524580
^{241}Pu	10,560	0	14	1795
^{242}Pu	5,545	9537	11	1497
^{241}Am	1,159*	<u>1</u>	<u>3118</u>	<u>511863</u>
	ИТОГО:	39096	29942	4823650

* Весовое содержание изотопа ^{241}Am дано в процентах относительно плутония.

Полный поток нейтронов металлического плутония является характеристикой эффективной массы изотопа ^{240}Pu ($^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$), где

$$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = 2,43(^{238}\text{Pu}) + ^{240}\text{Pu} + 1,69(^{242}\text{Pu}). \quad (14.2)$$

Коэффициенты 2,43 и 1,69 учитывают более высокое удельное (на грамм) образование нейтронов в изотопах ^{238}Pu и ^{242}Pu при спонтанном делении по отношению к ^{240}Pu . (Уравнение (14.2) незначительно отличается от уравнения (16.1) (глава 16) для регистрации совпадений из-за различного распределения множественности нейтронов для четных изотопов плутония). Если изотопный состав плутония известен, полная масса плутония может быть выведена из определения

$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$, полученного при градуировке интенсивности счета полного потока нейтронов. Другими словами, принимая умножение равным 1,

$$T = \varepsilon \cdot S = k_0 {}^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = k_1 \text{Pu}, \quad (14.3)$$

где k_0 и k_1 — эмпирические постоянные;
 $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ и Pu — массы $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ и плутония, соответственно.

2. Для PuO_2 отношение числа нейтронов, образованных в результате (α, n) -реакции, к числу нейтронов спонтанного деления составляет 0,59; 0,38 и 0,77 для трех выбранных изотопных составов плутония. В зависимости от состава материала изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Am вносят значительный вклад в образование нейтронов при реакции (α, n) в PuO_2 . Полное образование потока нейтронов в PuO_2 описывается общим уравнением следующего вида:

$$S = a_1({}^{238}\text{Pu}) + a_2({}^{239}\text{Pu}) + a_3({}^{240}\text{Pu}) + a_4({}^{242}\text{Pu}) + a_5({}^{241}\text{Am}), \quad (14.4)$$

где множители a_1 – a_5 — удельные интенсивности образования нейтронов в PuO_2 как для спонтанного деления, так и (α, n) -реакции, а величины в скобках являются массами изотопов плутония. Множители определяются для каждого изотопа на основе выхода нейтронов (α, n) -реакции и спонтанного деления. Если они известны, то полная масса плутония может быть определена из формулы

$$T = \varepsilon \cdot S = k_2 \text{Pu}, \quad (14.5)$$

где k_2 — эмпирическая постоянная;
 Pu — масса плутония.

Напомним, что уравнение (14.5) не предполагает эффектов размножения ($M_L = 1$).

3. Для PuF_4 в (α, n) -реакциях для всех трех изотопных составов образуется более чем 98 % нейтронов. Как правило, образование нейтронов в PuF_4 описывается уравнением, похожим на уравнение (14.4):

$$S = a_6({}^{238}\text{Pu}) + a_7({}^{239}\text{Pu}) + a_8({}^{240}\text{Pu}) + a_9({}^{241}\text{Am}). \quad (14.6)$$

Множители a_6 – a_9 являются удельными интенсивностями образования нейтронов для PuF_4 в (α, n) -реакциях при небольших количествах компонентов от спонтанного деления. Как и в случае с PuO_2 , если изотопы плутония известны, полная масса плутония может быть определена путем регистрации полного потока нейтронов из PuF_4 , применяя простую (без учета размножения) формулу:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_3 \text{Pu}. \quad (14.7)$$

Как и ранее, постоянная k_3 должна быть определена эмпирически.

Для примеров, представленных в табл. 14.2, значения для изотопа ^{241}Am были взяты во время проведения анализа. ^{241}Am является дочерним изотопом ^{241}Pu . Содержание ^{241}Am увеличивается со временем, так как период его полураспада превышает период полураспада ^{241}Pu . Для расчета концентрации ^{241}Am в некоторый момент времени t при известных первоначальных концентрациях ^{241}Pu и ^{241}Am к моменту $t = 0$ используется уравнение (21.11) главы 21.

14.2.2 Соединения урана

Так же как и для соединений плутония, для анализа соединений урана методом регистрации полного потока нейтронов необходимы предварительные знания о химической форме и изотопном составе. Интенсивности первичных нейтронов в образцах урана в зависимости от химической формы и изотопного состава, которые часто встречаются в ядерном топливном цикле, приведены в табл. 14.3 и 14.4. Рассмотрены образцы урана массой 10 кг в виде металла, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 . В табл. 14.3 представлены данные по низкообогащенному урану (НОУ) с обогащением по ^{235}U : 0,2; 0,7; 3,0 и 18,2 % (первое и второе значения — это обедненный и природный уран, соответственно, — прим. ред). В табл. 14.4 представлены данные по высокообогащенному урану (ВОУ) с обогащением по ^{235}U : 31,7; 57,4; 69,6 и 97,6 %. Интенсивности нейтронов при спонтанном делении и (α, n) -реакциях для каждого обогащения определяются изотопным составом и химической формой. Эти интенсивности рассчитаны на основе данных по выходу нейтронов из табл. 11.1 и 11.3 главы 11 и работы [1] (UO_2F_2). Общие выводы по таблицам следующие:

1. Спонтанное деление ^{238}U является доминирующим фактором при образовании нейтронов в металлическом уране с обогащением по изотопу ^{235}U ниже 70 %. Этот факт позволяет анализировать ^{238}U в крупных образцах металлического урана методом регистрации полного потока нейтронов во всех случаях за исключением высокого обогащения по ^{235}U . Однако при анализе урана для приемлемой статистической точности требуются более продолжительное время измерения и более крупные образцы из-за низкой интенсивности нейтронов по сравнению с металлическим плутонием. Линейная зависимость интенсивности полного потока нейтронов от массы ^{238}U в сочетании с обогащением ^{235}U используется для определения полного количества металлического урана в низкообогащенном материале (см. раздел 15.4.1 главы 15). Эта зависимость имеет вид

$$T = \varepsilon \cdot S = k_4 {}^{238}\text{U} = k_5 U, \quad (14.8)$$

где k_4 и k_5 — эмпирические постоянные.

2. Для UO_2 полное образование нейтронов (спонтанное деление плюс (α, n) -реакция) является приблизительно постоянным для обогащения менее 60 %. С ростом обогащения составляющая спонтанного деления уменьшается по мере увеличения составляющей реакции (α, n) . При обогащении более 60 % составляющая реакции (α, n) быстро растет. Альфа-распад ^{234}U является преобладающим источником реакций (α, n) в UO_2 с обогащением 3 % или выше. Полный поток нейтронов в UO_2 в общем виде описывается формулой

$$S = b_1 ({}^{234}\text{U}) + b_2 ({}^{235}\text{U}) + b_3 ({}^{238}\text{U}), \quad (14.9)$$

где b_1 – b_3 — удельные интенсивности образования нейтронов как для спонтанного деления, так и реакций (α, n) в UO_2 , а величины в скобках представляют массы изотопов урана. Они рассчитываются из известного изотопного состава и удельного нейтронного выхода для каждого процесса. Если они известны, тогда используется линейная градуировка по формуле

$$T = \varepsilon \cdot S = k_6 U, \quad (14.10)$$

где k_6 — эмпирическая постоянная;

U — масса урана.

Анализ UO_2 , являющегося самой распространенной формой, в которой находится уран в ядерном топливном цикле (контейнеры, стержни, топливные сборки и т.п.), проводится преимущественно не пассивными, а активными нейтронными методами, так как при пассивных измерениях относительно низкие интенсивности полного потока нейтронов для образцов урана стандартных размеров сравнимы с окружающим нейтронным фоном. В активных методах нейтроны вынужденного деления ^{235}U регистрируются приборами счета совпадений. Однако крупные образцы UO_2 могут анализироваться путем пассивной регистрации полного потока нейтронов в зависимости от характеристик образца и целей измерений.

Таблица 14.3 – Интенсивности источников первичных нейтронов в металлическом уране, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 для четырех изотопных составов низкообогащенного урана (НОУ)

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов для образца урана массой 10 кг, нейтрон/с			
		металл (спонтанное деление)	UO_2 ((α ,n)-реакция)	UO_2F_2 ((α ,n)-реакция)	UF_6 ((α ,n)-реакция)
^{234}U	0,0005	0	0	9	29
^{235}U	0,1977	0	0	1	2
^{236}U	0,0036	0	0	0	1
^{238}U	99,8	136	1	175	279
	ИТОГО:	136	1	185	311
^{234}U	0,0049	0	1	90	284
^{235}U	0,7108	0	0	3	6
^{236}U	-	-	-	-	-
^{238}U	99,28	135	1	174	278
	ИТОГО:	135	2	267	568
^{234}U	0,0244	0	7	449	1415
^{235}U	3,001	0	0	11	24
^{236}U	0,0184	0	0	2	5
^{238}U	96,96	132	1	170	271
	ИТОГО:	132	8	632	1715
^{234}U	0,0865	0	26	1592	5017
^{235}U	18,15	1	1	65	145
^{236}U	0,2313	0	1	28	67
^{238}U	96,96	111	1	143	228
	ИТОГО:	112	29	1828	5457

3. Для UO_2F_2 (продукт химической реакции UF_6 и воды) образование нейтронов определяется преимущественно (α, n) -реакцией. Интенсивность образования нейтронов увеличивается с обогащением по ^{235}U . Это происходит потому, что в процессах разделения изотопов, основанных на различии масс, ^{234}U обогащается вместе с ^{235}U . Уравнения, аналогичные уравнениям (14.9) и (14.10), описывают градуировку пассивной регистрации полного потока нейтронов из UO_2F_2 с известным изотопным составом. Пассивная регистрация полного потока нейтронов применялась для определения количества отложений UO_2F_2 внутри технологического оборудования на газодиффузионных заводах [2].

Таблица 14.4 – Интенсивности источников первичных нейтронов в металлическом уране, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 для четырех изотопных составов высокообогащенного урана (ВОУ)

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов для образца урана массой 10 кг, нейтрон/с			
		металл (спонтанное деление)	UO_2 $((\alpha, n)$ -реакция)	UO_2F_2 $((\alpha, n)$ -реакция)	UF_6 $((\alpha, n)$ -реакция)
^{234}U	0,1404	0	42	2583	8143
^{235}U	31,71	1	2	114	254
^{236}U	0,3506	0	1	42	102
^{238}U	67,80	<u>92</u>	<u>1</u>	<u>119</u>	<u>190</u>
	ИТОГО:	93	46	2858	8689
^{234}U	0,2632	0	79	4842	15265
^{235}U	57,38	2	4	207	459
^{236}U	0,5010	0	1	60	145
^{238}U	41,86	<u>57</u>	<u>0</u>	<u>73</u>	<u>117</u>
	ИТОГО:	59	84	5184	15986
^{234}U	0,3338	0	100	6142	19360
^{235}U	69,58	2	5	250	557
^{236}U	0,5358	0	1	64	155
^{238}U	29,55	<u>40</u>	<u>0</u>	<u>52</u>	<u>83</u>
	ИТОГО:	42	106	6508	20155
^{234}U	1,032	1	310	18989	59856
^{235}U	97,65	3	7	352	781
^{236}U	0,2523	0	1	30	73
^{238}U	1,07	<u>1</u>	<u>0</u>	<u>2</u>	<u>3</u>
	ИТОГО:	5	318	19373	60713

4. Для UF_6 (стандартный технологический материал при обогащении урана) в качестве источника нейтронов доминирует реакция $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$ в результате альфа-распада ^{234}U . Этот материал похож на UO_2F_2 , при этом из-за дополнительного фтора преобладает реакция (α, n) . Для произвольного значения обогащения образование полного потока нейтронов в UF_6 также определяется уравнением, аналогичным (14.9). Последующая градуировка проводится по уравнениям типа (14.10).

Пассивная регистрация полного потока нейтронов может применяться для подтверждающих измерений баллонов с UF_6 любых размеров. Обычно этот быстрый, простой и недорогой метод применяется для баллонов, содержащих низкообогащенный UF_6 . Небольшие баллоны измеряются в 4π -геометрии («колодезные» счетчики). Измерения крупных баллонов осуществляются портативными счетчиками, такими как SNAP (см. раздел 15.2 главы 15). Для крупных баллонов с низкообогащенным ураном градуировочные характеристики получаются более

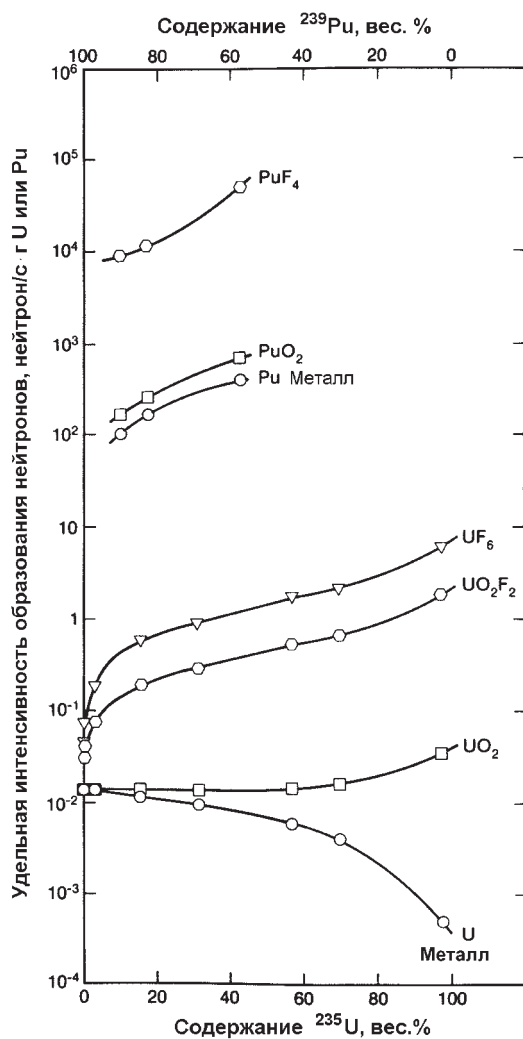


Рис. 14.2. Удельные интенсивности образования нейтронов для металлического урана и плутония, их оксидов и фторидов. Данные взяты из табл. 14.2–14.4

простые, чем в уравнениях (14.9) и (14.10), предполагая постоянными величину весового содержания изотопа ^{238}U и отношение ^{235}U к ^{234}U (см. раздел 15.2.2 главы 15). Данные табл. 14.2–14.4 приведены на графике рис. 14.2. Здесь сравниваются интенсивности нейтронного излучения при спонтанном делении и реакции (α, n) для металлического плутония, PuO_2 , PuF_4 , металлического урана, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 . Удельные (на грамм урана или плутония) интенсивности перекрывают восемь порядков значений, начиная от металлического урана до PuF_4 . Интенсивности показаны на графике как функции весового содержания ^{235}U и ^{239}Pu . График полезен для визуального сравнения и оценки статистики измерений в экспериментах с известными детекторами и геометрией.

14.2.3 Примеси

Соединения плутония и урана в ядерном топливном цикле очень редко встречаются полностью свободными от примесей, которые могут значительно искажать образование первичных нейтронов. В качестве примера рассмотрим PuO_2 с примесями воды. Обычно вода встречается в PuO_2 с номинальным содержанием 1 вес.%. В табл. 14.2 представлена интенсивность образования нейтронов при реакции (α, n) в сухом PuO_2 для трех изотопных составов плутония из топлива легководного реактора с низкой, средней и высокой глубиной выгорания. Первый образец содержит приблизительно 10 % изотопа ^{240}Pu от массы плутония. Второй — приблизительно 16 % ^{240}Pu и третий — приблизительно 25 % ^{240}Pu . На рис. 14.3 показана зависимость интенсивности $S(\alpha, n)$ образования нейтронов (α, n) -реакции от весового содержания воды для трех изотопных составов плутония. Значение $S(\alpha, n)$ для материала с 25 % изотопа ^{240}Pu приблизительно в 5 раз больше, чем для материалов с 16 и 10 % ^{240}Pu (из-за высокого содержания ^{238}Pu), независимо от содержания влаги. На рис. 14.4 показаны значения $S(\alpha, n)$ для влажного PuO_2 по сравнению с сухим оксидом в зависимости от содержания H_2O . Полезно отметить, что воздействие влаги не зависит от изотопного состава плутония. То есть, примесь влаги в 1 % производит одинаковые изменения в $S(\alpha, n)$ при содержании 10, 16 и 25 % изотопа ^{240}Pu , а именно +4,4 %. Это указывает на то, что небольшое изменение первоначальной энергии альфа-частиц в результате изменений изотопного состава плутония незначительно влияет на образование нейтронов во влажном PuO_2 .

Хотя в PuO_2 встречаются следы многих примесей, наиболее важным воздействием фактором является фтор, влияющий на изменение $S(\alpha, n)$. На рис. 14.5 приведена зависимость $S(\alpha, n)$ от примеси фтора в PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с содержанием 1 и 9 вес. % воды. На рис. 14.6 показаны значения $S(\alpha, n)$ для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с примесями фтора по отношению к чистому PuO_2 как функция концентрации фтора. Показаны случаи с влажностью 1 и 9 вес. %. Это *относительное* изменение $S(\alpha, n)$ в зависимости от примеси фтора больше для сухого, чем для влажного PuO_2 .

Вода и примеси фтора влияют на образование нейтронов в (α, n) -реакции, но не влияют на образование нейтронов при спонтанном делении. Если содержание воды и фтора известны, то данные на рис. 14.3–14.6 могут быть использованы для корректировки параметров градуировки при анализе методом регистрации полного потока нейтронов. Эти данные были рассчитаны, используя Лос-Аламосскую программу SOURCES [3, 4]. В работе [5] содержатся результаты расчетов

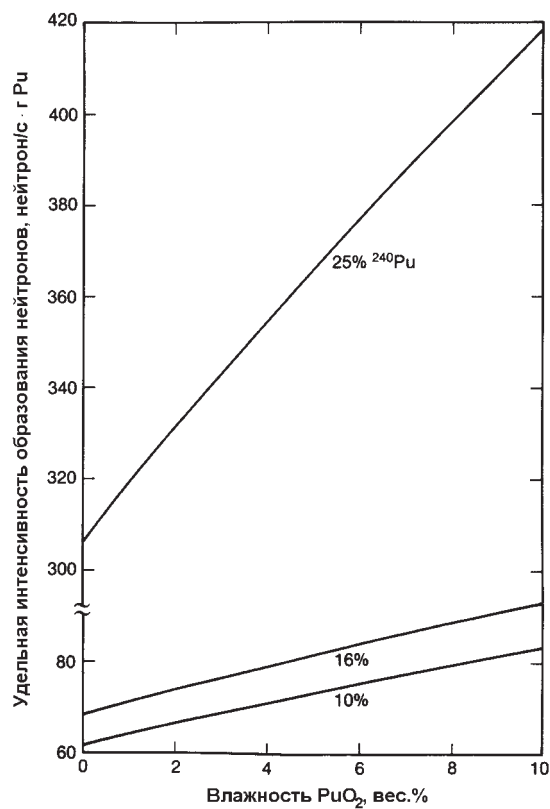


Рис. 14.3. Удельные интенсивности образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 в зависимости от количества влаги для содержаний ^{240}Pu 10, 16 и 25 %

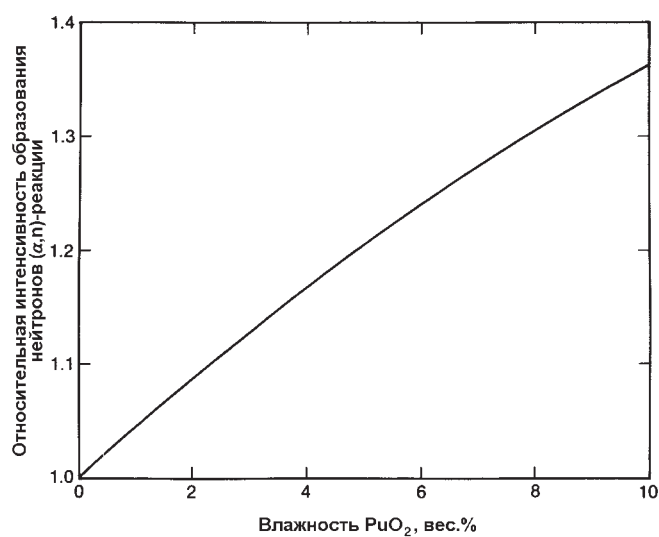


Рис. 14.4. Зависимость образования нейтронов при (α, n) -реакциях во влажном PuO_2 по отношению к сухому PuO_2 от количества влаги. Данные для изотопных составов 10, 16 и 25 % ^{240}Pu ложатся на одну кривую

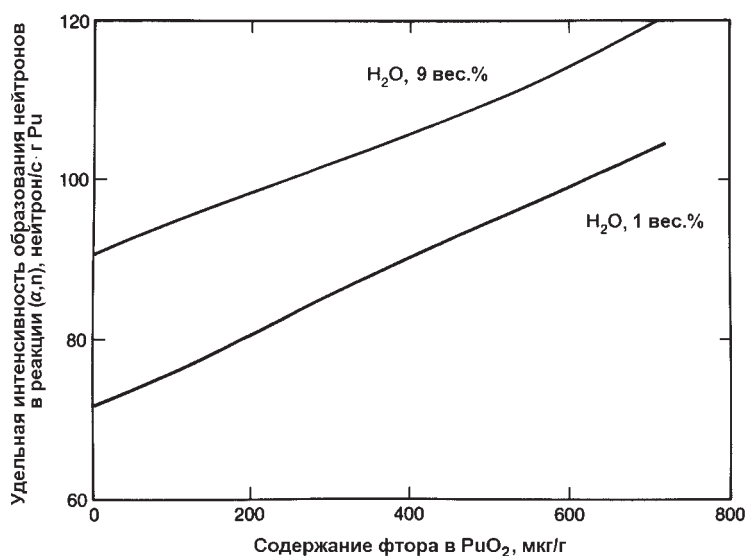


Рис. 14.5. Удельная интенсивность образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 в зависимости от количества примесей фтора для изотопного состава с 10 % ^{240}Pu . Показаны случаи с 1 и 9 вес. % воды

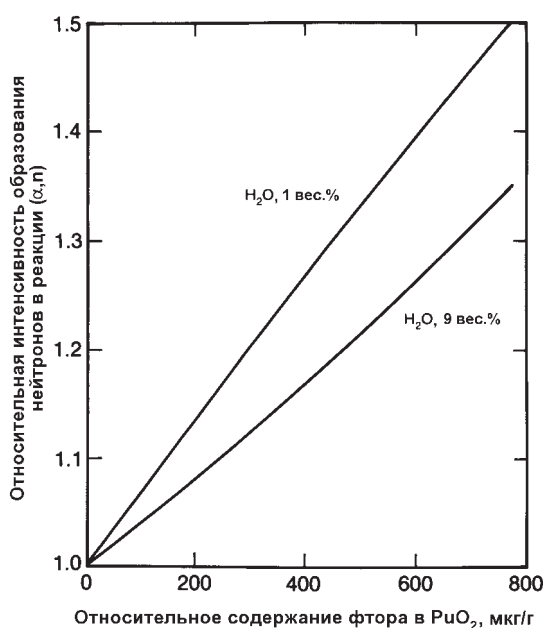


Рис. 14.6. Отношение интенсивности образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 с примесями фтора по отношению к чистому PuO_2 в зависимости от концентрации фтора для 16 % ^{240}Pu . Показаны случаи с 1 и 9 вес.% воды

воздействия следовых количеств некоторых примесей с низким атомным номером Z на величину $S(\alpha, n)$ для металлического плутония. В разделе 11.4 главы 11 представлены приблизительные формулы для расчета влияния на $S(\alpha, n)$ примесей в оксидах урана и плутония.

14.2.4 Эффекты влияния энергетического спектра нейтронов

Нейтроны образуются при спонтанном делении и (α, n) -реакциях с характерными распределениями по энергии или энергетическими спектрами. Эти спектры важны при конструировании детекторов полного потока нейтронов с применением счетчиков на основе ^3He с полиэтиленовым замедлителем нейтронов. Для соединений плутония спектр спонтанного деления незначительно зависит от изотопного состава плутония и не зависит от химического состава образца. Вид спектра при спонтанном делении определяется ядерной кинетикой процесса распада, который немного отличается для изотопов ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu . На рис. 14.7 представлен график спектра удельного образования нейтронов при спонтанном делении для плутония с 16 % ^{240}Pu . Спектр изотопа ^{240}Pu хорошо описывается формулой Уатта [3]:

$$N(E) \propto e^{-E/A} \text{sh}(\sqrt{BE}), \quad (14.11)$$

где E — энергия нейтронов в лабораторной системе координат;

$A = 0,795$;

$B = 4,69$.

Энергетический спектр нейтронов, образующихся при (α, n) -реакциях в соединениях плутония зависит от химического состава образца, уровня примесей и незначительно зависит от изотопного состава плутония. Состав образца определяет снижение энергии альфа-частиц и зависимость сечения (α, n) -реакции от их энергии. На рис. 14.8 приведены четыре спектра удельного выхода нейтронов, образованных в реакции (α, n) для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с различной влажностью и при-

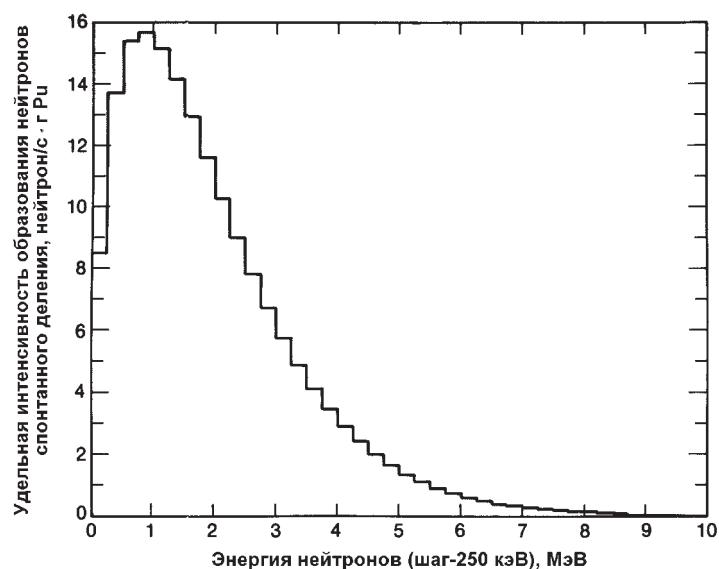


Рис. 14.7. Спектр образующихся нейтронов спонтанного деления для Pu с содержанием изотопа ^{240}Pu 16 %

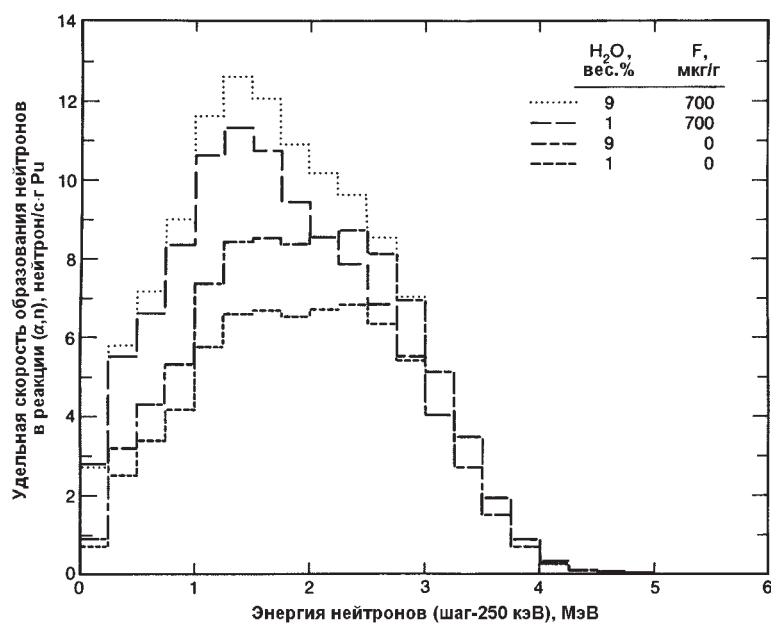


Рис. 14.8. Спектры образующихся нейтронов в реакции (α, n) для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с переменной влажностью и содержанием фтора (из расчетов по программе SOURCES [3])

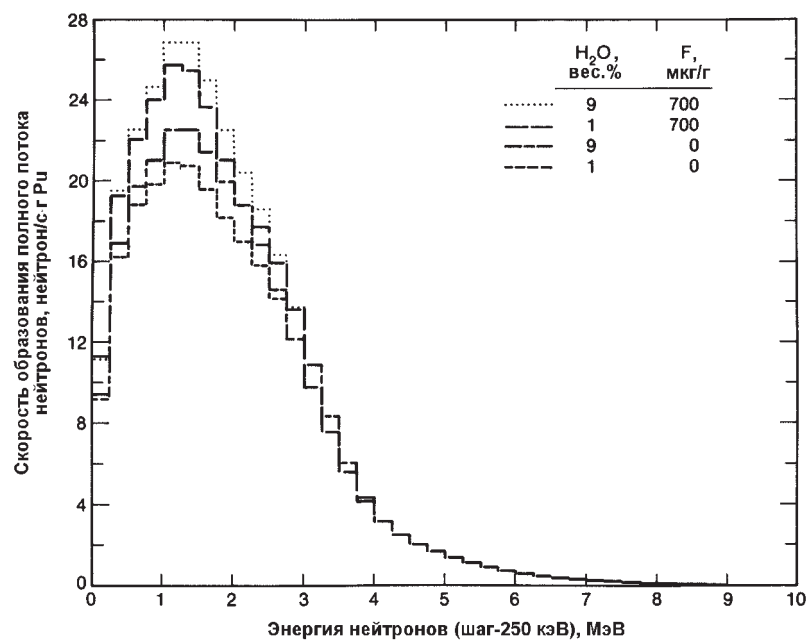


Рис. 14.9. Спектр образования полного потока нейтронов в PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с переменной влажностью и содержанием фтора (из расчета по программе SOURCES [3])

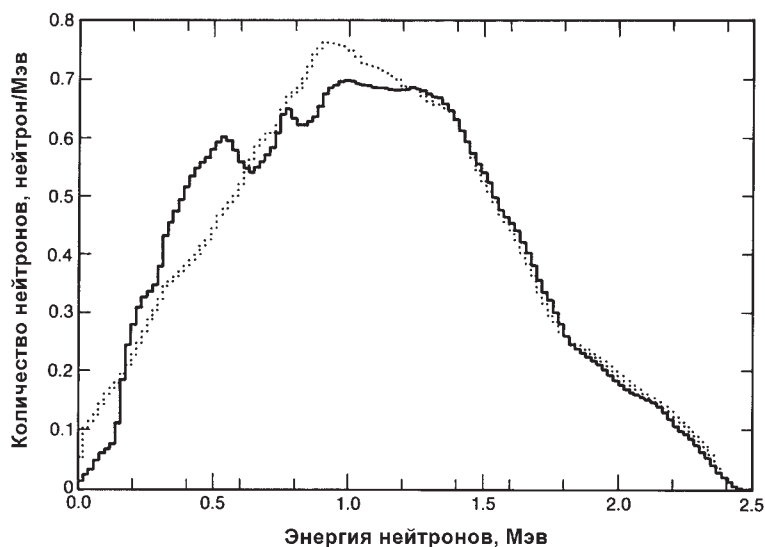


Рис. 14.10. Нормированный спектр образования нейтронов реакции (α, n) в $^{234}\text{UF}_6$ (из расчета по программе SOURCES [3]) с моделями двух уровней ветвления в ^{22}Na

месями фтора. Увеличение влажности незначительно "ужесточает" спектр, а увеличение содержания фтора "смягчает" его. На рис. 14.9 показаны четыре спектра полного потока нейтронов, соответствующие концентрациям влаги и фтора, указанным на рис. 14.8. Средние энергии этих четырех спектров по существу не отличаются. Это сходство указывает на то, что отличия в форме спектра, как правило, не являются основными факторами, влияющими на интенсивность полного потока нейтронов в PuO_2 при уровнях влажности и примесей фтора в исследуемых диапазонах, типичных для множества образцов PuO_2 .

На рис. 14.10 приведены нормированные спектры образования нейтронов при (α, n) -реакциях в $^{234}\text{UF}_6$. Показаны спектры для двух схем уровней ветвления ^{22}Na . Спектр нейтронов (α, n) -реакции для $^{234}\text{UF}_6$ мягче, чем для PuO_2 , и имеет среднюю энергию приблизительно 1,2 МэВ, тогда как для PuO_2 средняя энергия составляет приблизительно 2,0 МэВ.

14.2.5 Эффекты тонкой мишени

В предыдущих разделах предполагалось, что первичные нейтроны при реакциях (α, n) образуются в образцах, которые определяются как "толстые" мишени. Толстыми мишенями являются материалы, в которых альфа-частицы теряют всю свою энергию в объеме образца. Если плотность и размеры образца достаточно малы, образование нейтронов снижается, так как некоторые альфа-частицы вылетают из образца до того, как они вступят в (α, n) -реакцию с изотопами мишени. Ситуацией с "тонкой" мишенью является образование нейтронов в газообразном UF_6 альфа-частицами от ^{234}U по реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$. В этом случае альфа-частицы могут выйти из объема газа при энергии выше порогового сечения реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)$. В работе [6] представлены методы расчета образования нейтронов в тон-

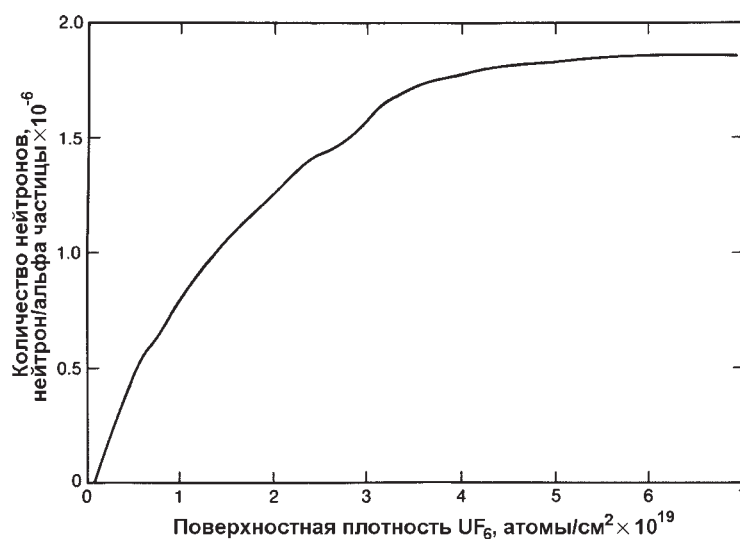


Рис. 14.11. Зависимость количества нейтронов, образованных альфа-частицей с энергией 4,77 МэВ при распаде ^{234}U , от поверхностной плотности UF_6 . Толщина мишени в см может быть получена путем деления абсциссы на плотность атомов UF_6 (атомы/см³)

кой газовой мишени UF_6 . Рис. 14.11 [6] показывает образование нейтронов в UF_6 как функцию поверхностной плотности, равной произведению плотности атомов и толщины мишени. В толстой мишени из $^{234}UF_6$ образование нейтронов насыщается приблизительно при поверхностной плотности 6×10^{19} атомов/см². При поверхностной плотности приблизительно $1,3 \times 10^{19}$ атомов/см² число нейтронов, образованных α -частицей, составляет примерно половину от числа нейтронов для толстой мишени.

14.3 ПЕРЕНОС НЕЙТРОНОВ В ОБРАЗЦЕ

После определений образования первичных нейтронов в образце и отношения их количества к массе урана или плутония, следующим логическим шагом при использовании пассивной регистрации полного потока нейтронов для анализа является определение количества нейтронов, которые вылетают из образца, отнесенного к одному образованному нейтрону. Описание переноса нейтронов в объеме образца (включая все процессы образования и потери нейтронов) является сложным и требует для получения лучших результатов применения расчетов методом Монте-Карло на больших компьютерах. В главе 12 описываются многие из основных принципов переноса нейтронов. Здесь мы представляем простую формулу для оценки умножения нейтронов утечки в образце, обсуждаем численные результаты и рассматриваем применение этой формулы.

14.3.1 Умножение нейтронов утечки

Число нейтронов, вылетающих из образца (и, следовательно, пригодных для регистрации), отнесенное к одному образованному первичному нейтрону называется умножением нейтронов утечки в образце M_L . Величина M_L отличается от полного умножения M , определенного в главе 12. Величина M — это количество нейтронов, *рожденных* в образце (от первичного источника, вынужденных делений, реакций $(n, 2n)$ и других событий), отнесенное к одному образованному первичному нейтрону. Величина M_L учитывает *рождение нейтронов и их потери* при делении и паразитических реакциях захвата. Следовательно, M_L имеет большее отношение к регистрации полного потока нейтронов, чем M . Эти две величины, как показано ниже, близко связаны.

Используются следующие определения:

- ν — среднее число нейтронов, рожденных в одном акте вынужденного деления;
- p — вероятность того, что нейтрон вызовет деление;
- p_c — вероятность того, что нейтрон будет захвачен;
- p_L — вероятность того, что нейтрон вылетит из образца (вероятность утечки).

Нейтрон данного поколения может вызвать деление с вероятностью p и исчезнуть с вероятностью $1 - p$. Другими словами,

$$p + p_c + p_L = 1. \quad (14.12)$$

Кроме того, число делений, произведенных в данном поколении, отнесенное к числу делений в предыдущем поколении, равно $p\nu$. Величина $p\nu$ — это коэффициент размножения k из физики реакторов, рассмотренный в главе 12. При вынужденном делении нейтрон поглощается. Поэтому чистая *прибыль* нейтронов в результате вынужденного деления, отнесенная к делению, составляет $\nu - 1$.

Рассмотрим образец, в котором для нейтрона единственными возможностями являются вынужденное деление, захват нейтрона или его выход из образца. В нулевом поколении один нейтрон образуется в результате спонтанного деления или (α, n) -реакции. В первом поколении существуют p делений и $p\nu$ новых нейтронов, создающих чистую прибыль нейтронов $p(\nu - 1)$. Во втором поколении существуют $p^2\nu$ делений, $(p\nu)^2$ новых нейтронов и чистая прибыль нейтронов $p^2\nu(\nu - 1)$. Этот процесс размножения показан в табл. 14.5 для нескольких первых поколений нейтронов. Для всех поколений сумма общего числа нейтронов в образце, образованных одним первичным нейтроном, составляет полное умножение M :

$$M = \frac{1}{1 - p\nu} = \frac{1}{1 - k}; k < 1. \quad (14.13)$$

Для всех поколений сумма чистой прибыли нейтронов — это полная чистая прибыль нейтронов, отнесенная к одному первичному нейтрону, $(1 - p)/(1 - p\nu)$. Не все нейтроны чистой прибыли покидают образец — некоторые будут поглощены. Умножение нейтронов утечки M_L является полной чистой прибылью нейтронов от одного первичного нейтрона, умноженной на вероятность исчезновения, то есть:

$$M_L = \left(\frac{1-p}{1-pv} \right) \left(\frac{p_L}{p_L + p_c} \right) = \frac{p_L}{1-pv} = \frac{1-p-p_c}{1-pv} . \quad (14.14)$$

В итоге, из уравнений (14.13) и (14.14) соотношение между M_L и M составляет:

$$M_L = p_L M . \quad (14.15)$$

Если вероятность захвата p_c невелика, то

$$M_L \simeq (1-p) M = \frac{1-p}{1-pv} . \quad (14.16)$$

Таблица 14.5 – Процесс размножения нейтронов для четырех поколений деления

Поколение	Число делений	Созданные нейтроны	Чистая прибыль нейтронов
0	—	1(источник)	1
1	p	pv	$p(v-1)$
2	$p(pv)$	$(pv)^2$	$p(pv)(v-1)$
3	$p(pv)^2$	$(pv)^3$	$p(pv)^2(v-1)$
4	$p(pv)^3$	$(pv)^4$	$p(pv)^3(v-1)$

Если значения p_c и p малы, то M_L и M имеют приблизительно одно и то же значение. Величина M всегда больше или равна M_L . Уравнение (14.4), определяющее M_L , зависит от трех параметров: v , p и p_c . Эти величины зависят от энергии нейтрона, вызывающего деление, или захваченного нейтрона. Поэтому предполагается, что они представляют средние значения для спектра замедления нейтрона в образце. Все три параметра зависят от состава образца и плотности. Вероятности p и p_c зависят также и от геометрии образца. Предполагается, что эффекты размножения, вызванного нейтронами, отраженными счетчиком обратно в образец, должны быть включены в p и p_c . Отражение понижает энергию нейтронов и увеличивает как p , так и p_c .

На рис. 14.12 показаны графики умножения нейтронов утечки M_L как функции вероятности деления p . Для создания графиков использовалось уравнение (14.16). Представлены две группы кривых. Нижняя группа трех кривых описывает урансодержащие образцы с $v = 2,5$. Верхняя группа трех кривых с $v = 3,0$ описывает образцы, содержащие плутоний. В каждой группе кривых вероятность захвата p_c меняется от 0 до 0,02, т.е. охватывает широкий диапазон образцов.

На рис. 14.13 показаны графики полного умножения и умножения утечки нейтронов в зависимости от массы PuO_2 в цилиндрическом объеме с диаметром 8,35 см. Эффективная масса изотопа ^{240}Pu составляла 10 % от веса плутония. PuO_2 имел плотность 1,3 г/см³ и содержал 1 % воды. Высота образца увеличивалась по мере увеличения массы PuO_2 . Значение умножения нейтронов утечки рассчитано с использованием программы расчета переноса методом Монте-Карло

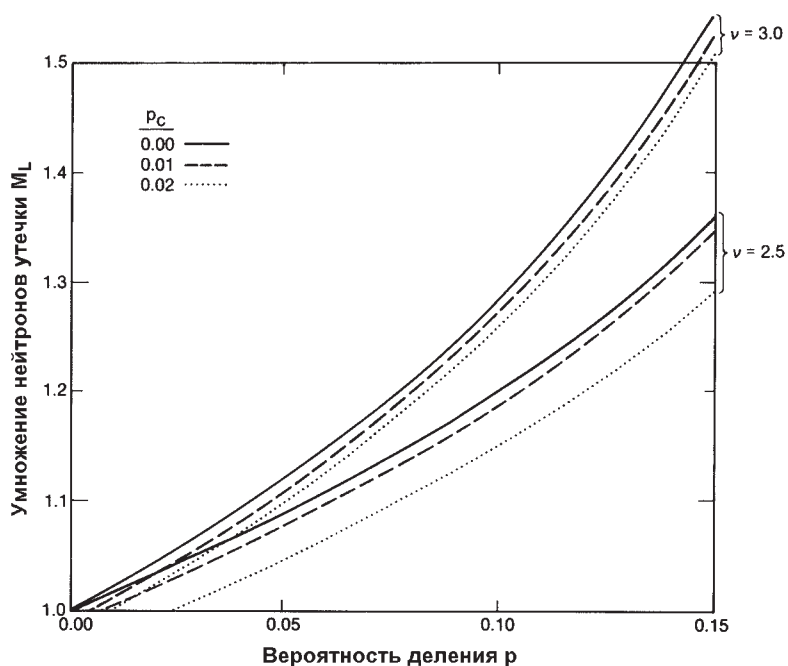


Рис. 14.12. Зависимость умножения нейтронов утечки M_L от вероятности деления для двух значений средней множественности нейтронов и трех значений вероятности захвата

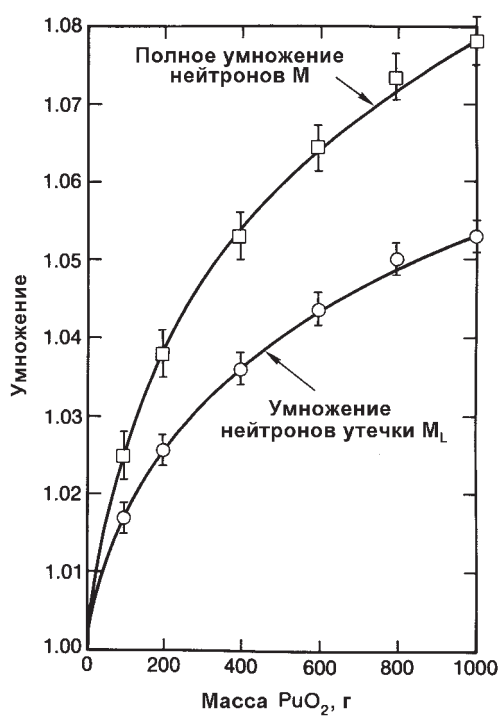


Рис. 14.13. Зависимости умножения нейтронов утечки M_L и полного умножения M от массы PuO_2 в контейнере с внутренним диаметром 8,35 см. Плутоний содержит 10 % ^{240}Pu . Образец PuO_2 имеет плотность 1,3 г/см³ и 1 вес. % воды. Высота заполнения увеличивается по мере увеличения массы

MCNP [7]. Значения полного коэффициента умножения M рассчитаны из значений коэффициента умножения нейтронов утечки M_L , используя соотношение

$$M = \frac{\nu M_L - 1}{\nu - 1}, \quad (14.17)$$

где $\nu = 3,13$. Это выражение может быть получено путем комбинации уравнений (14.13) и (14.16). Для образцов, рассмотренных на рис. 14.13, вероятность захвата p_c незначительна. На графиках ясно видна разница между полным коэффициентом умножения M и коэффициентом умножения нейтронов утечки M_L . В работе [8] содержится дополнительная информация по расчетам M_L с помощью программы MCNP и информация по корректировке множественности совпадений на эффект размножения.

14.3.2 Спектр нейтронов утечки

Нейтроны, покидающие образец, имеют меньшую среднюю энергию по сравнению с первичными нейтронами, образованными при спонтанном делении или в реакциях (α, n) . Нейтроны теряют энергию в образце из-за упругих столкновений с легкими ядрами или неупругих столкновений с тяжелыми ядрами. Контейнер, в котором находится образец, может также влиять на спектр утечки нейтронов. Как правило, он не является главным фактором. Если нет мешающих материалов, энергетический спектр регистрируемых детектором нейтронов представляет собой спектр нейтронов, выходящих из контейнера с делящимся материалом. Форма этого спектра может иметь значение при определении эффективности регистрации, как это описано в разделе 14.4.

Пример потери энергии нейтронов в образце, рассчитанный методом Монте-Карло по программе MCN [9], показан на рис. 14.14. Здесь приведен спектр нейтронов утечки из баллона с UF_6 массой 2273 кг, в котором обогащение по ^{235}U составляет 2,5 % [10]. Для расчетов предполагалось равномерное пространственное распределение нейтронов с энергией 1 МэВ, потому что энергетический спектр для толстой мишени $^{19}F(\alpha, n)^{22}Na$ (см. рис. 14.10) в то время не был хорошо известен. На рис. 14.14 показано, что замедление нейтронов в большом баллоне с UF_6 весьма значительно. Средняя энергия нейтронов утечки составляет 0,44 МэВ по сравнению со средней энергией первичного нейтрона 1,0 МэВ. Следует также отметить, что около 20 % первичных нейтронов не выходят из баллона из-за эффектов захвата нейтронов.

Другой пример расчета спектра нейтронов утечки, выполненный по программе MCNP [7], показан на рис. 14.15. Моделируемый образец представлял собой 800 г PuO_2 плотностью $1,3 \text{ г/см}^3$. Образец содержал 706 г плутония (10 % ^{240}Pu) и 1 % воды. Цилиндрический образец имел 8,35 см в диаметре и 11,24 см по высоте. Гладкая кривая на рис. 14.15 — это спектр излучения нейтронов при спонтанном делении ^{240}Pu (см. рис. 14.7 и уравнение (14.11)). Расчетный спектр нейтронов утечки в образце представляет гистограммное распределение с указанием погрешности 1σ . Средняя энергия спектра нейтронов утечки — 1,91 МэВ сравнима с величиной 1,93 МэВ для спектра излучения. Это показывает очень небольшое изменение энергетического спектра первичных нейтронов в материале PuO_2 . Небольшой подъем в спектре нейтронов утечки между 0,6 и 1,0 МэВ обусловлен неупругим рассеянием на ядрах плутония и упругим рассеянием на ядрах кислоро-

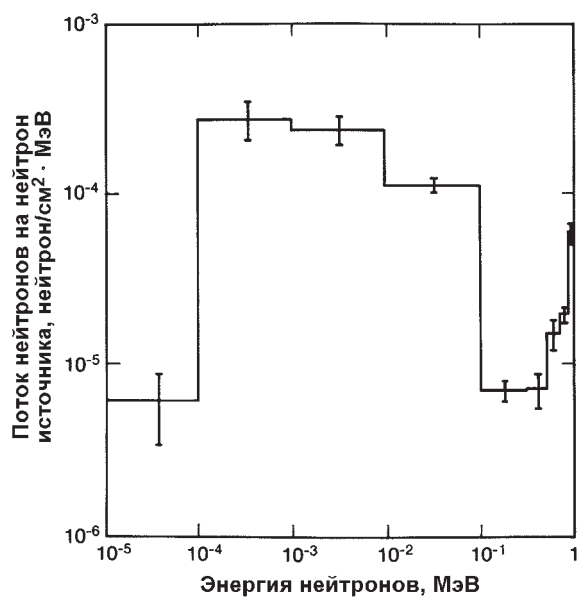


Рис. 14.14. Спектр нейтронов утечки из баллона с UF_6 массой 2273 кг (2,5% ^{235}U) с равномерно распределенными источниками нейтронов с энергией 1 МэВ

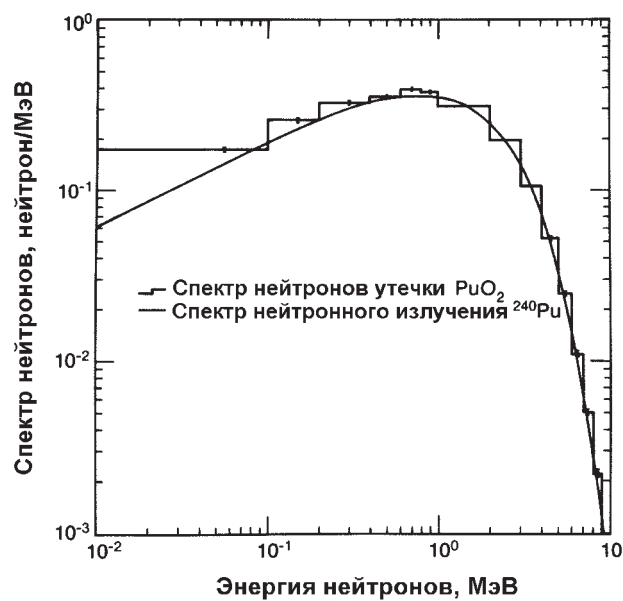


Рис. 14.15. Спектр нейтронов утечки из образца PuO_2 массой 800 г (10% ^{240}Pu). Предполагаются характеристики энергетического спектра как при спонтанном делении ^{240}Pu . Первичные нейтроны равномерно распределены в объеме образца

да. Такой подъем должен увеличиваться с добавлением влаги. Для данного образца умножение нейтронов утечки составляет приблизительно 1,04.

14.4 ЭФФЕКТИВНОСТЬ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

Уравнение (14.1) определяет эффективность детектора ϵ как число отсчетов (импульсов), зарегистрированных детектором, отнесенных к количеству нейтронов, излученных из образца. В этом разделе рассматриваются важные факторы, влияющие на ϵ для пропорциональных ^3He -счетчиков с полиэтиленовым замедлителем. Эти факторы включают расположение гелиевых счетчиков внутри полиэтиленового замедлителя, конструкцию замедлителя и спектр нейтронов утечки, покинувших образец. Кроме того, отличия в энергетическом спектре сигнала и фоновых нейтронов могут быть использованы для повышения отношения полезного сигнала к фону.

14.4.1 Расположение гелиевых счетчиков в замедлителе

При заданной геометрии замедлителя размещение и количество ^3He пропорциональных счетчиков сильно влияет на эффективность регистрации нейтронов. Для примера был выполнен ряд расчетов эффективности с использованием программы MCNP [7] для переменного количества гелиевых счетчиков, размещенных внутри полиэтиленового кольца высотой 1 м. Счетчики имели диаметр 2,54 см и были наполнены ^3He под давлением 4 атм (эффективность регистрации тепловых нейтронов 77 %). Внутренний и внешний диаметры кольца составляют 17,8 и 38,1 см, соответственно. Гелиевые счетчики равномерно размещались внутри кольца по окружности диаметром 27,9 см. При расчетах предполагалось, что источник имеет моноэнергетический спектр нейтронов с энергией 1 МэВ. Две кривые на рис. 14.16 демонстрируют результаты расчетов. Кривая, относящаяся к левой оси ординат, представляет полную эффективность регистрации в зависи-

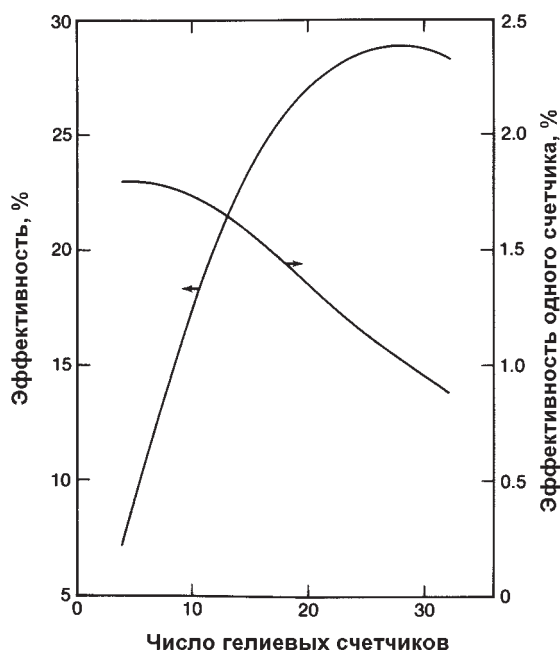


Рис. 14.16. Результаты расчетов методом Монте-Карло эффективности регистрации полного потока нейтронов как функции числа гелиевых счетчиков для конфигурации, описанной в разделе 14.4.1

мости от числа гелиевых счетчиков. Из этой кривой видно, что наибольшая эффективность счета находится приблизительно на уровне 29 % для 28 гелиевых счетчиков. Так как гелиевые счетчики дороги, иногда приходится идти на компромисс при выборе полной эффективности регистрации. Кривая, относящаяся к правой оси ординат, представляет эффективность регистрации, отнесенную к одному гелиевому счетчику (показатель цены эффективности), в зависимости от количества счетчиков. Приемлемое компромиссное решение для этого примера составило бы 16 гелиевых счетчиков. Выбор количества счетчиков также зависит от интенсивности излучения нейтронов из образца и желаемой точности измерений.

14.4.2 Конструкция замедлителя

Для определенного количества и расположения гелиевых счетчиков масса и расположение полиэтиленового замедлителя также могут существенно влиять на эффективность регистрации. В качестве примера были проведены расчеты для полиэтиленовой пластины длиной 25,4 см, высотой 15,3 см и толщиной 4,0 см (рис. 14.17). Два ^3He -счетчика были встроены в пластину параллельно ее продольной оси и находились на расстоянии 5,3 см друг от друга. Счетчики имеют активную длину 25,4 см, заполнены ^3He под давлением 4 атм и имеют диаметр 2,54 см. Источник нейтронов Cf-252 размещен на расстоянии 40 см от пластины на линии, перпендикулярной плоскости гелиевых счетчиков. Для расчета эффективности регистрации нейтронов для различной толщины полиэтилена спереди и сзади гелиевых счетчиков (по отношению к источнику) использовалась программа MCNP [7]. Для расчетов был использован спектр деления Уатта (уравнение (14.11)) при $A = 1,025$ и $B = 2,926$ для Cf-252. Эти параметры и геометрия пластины представляют типовые значения, встречающиеся в реальных детекторах нейтронов.

Результаты расчетов представлены в табл. 14.6 и на рис. 14.18. Статистическая погрешность вычислений относительных эффективностей составляет приблизительно $\pm 1\%$. Полная толщина пластины может быть получена сложением

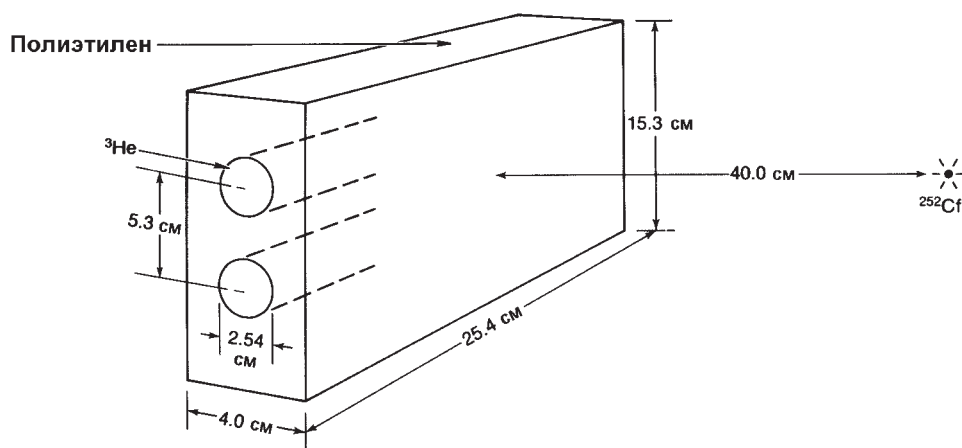


Рис. 14.17. Геометрия, используемая для серии вычислений эффективности детектора методом Монте-Карло. При расчетах изменялась толщина полиэтилена спереди и сзади двух гелиевых счетчиков

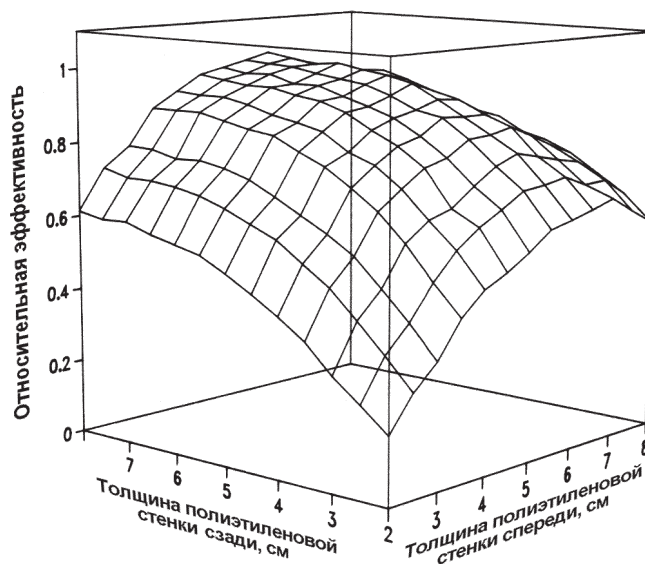


Рис. 14.18. Зависимость относительной эффективности регистрации нейтронов ^{252}Cf от толщины полиэтиленовой стенки спереди и сзади небольшого плоского детектора, показанного на рис. 14.17

толщины полиэтилена спереди и сзади счетчиков, потому что толщина измеряется от нити гелиевых счетчиков. Наиболее высокую эффективность регистрации обеспечивает конфигурация замедлителя с полиэтиленом толщиной 6 см перед гелиевыми счетчиками и толщиной 8 см за ними. Отметим, что при заданной толщине полиэтилена, находящегося сзади счетчиков, с увеличением толщины полиэтилена перед счетчиками эффективность регистрации сначала увеличивается, а затем снижается. Снижение объясняется захватом нейтронов в водороде. При заданной толщине полиэтилена перед счетчиками с увеличением толщины полиэтилена сзади счетчиков эффективность приближается к асимптотическому значению. Этот эффект объясняется отражением нейтронов от полиэтилена, находящегося сзади счетчиков. Часто ограничения в габаритах и весе ограничивают и полную толщину полиэтиленового замедлителя. В США полиэтилен обычно поставляется в пластинах толщиной 10,2 см. Если для простоты производства общая толщина пластины ограничивается этой величиной, то для оптимальной эффективности гелиевые счетчики следует размещать с толщиной полиэтилена спереди 4,6 см и сзади — 5,6 см.

14.4.3 Влияние энергетического спектра нейтронов

Для конкретной конструкции детектора эффективность регистрации нейтронов будет зависеть от энергии падающего нейтрона ввиду зависимости сечения реакции $^3\text{He}(n,p)$ от энергии нейтрона и замедляющего влияния водорода в полиэтилене. Зная удельный спектр нейтронов утечки, можно спроектировать детектор таким образом, чтобы сделать эффективность максимальной для этого спектра. В случае практического применения, когда отношение сигнала к фону невелико, желательно спроектировать детектор, который мог бы различать фоновые

вые нейтроны с отличающимися энергетическими спектрами. В этом разделе приведены два примера — один для нейтронов из UF_6 , а другой для нейтронов из PuO_2 .

Коллимированные плоские детекторы нейтронов спроектированы так, чтобы контролировать уровни потока нейтронов в UF_6 на заводах с центрифужным разделением изотопов урана. Описание детекторов приведено в разделе 15.3.1 и проиллюстрировано на рис. 15.4 главы 15. Каждый детектор содержит одиннадцать гелиевых счетчиков диаметром 2,54 см, размещенных в полиэтиленовой пластине размерами 10,2×30,5×61 см. Пластина окружена кадмиевой оболочкой и покрыта толстым полиэтиленовым экраном, кроме открытой лицевой поверхности площадью 1860 см², которая покрыта слоем полиэтилена толщиной 1,3 см. Полиэтилен вместе с кадмием отфильтровывает фоновые нейтроны низкой энергии. На рис. 14.19 показан поперечный разрез детектора.

Таблица 14.6 — Относительная эффективность простого плоского детектора для полиэтиленового замедлителя с переменной толщиной стенки спереди и сзади ³He-счетчиков

		Толщина передней полиэтиленовой стенки, см												
Толщина задней полиэтиленовой стенки, см		2	2,5	3	3,5	4	4,5	5	5,5	6	6,5	7	7,5	8
	2	0,181	0,271	0,334	0,430	0,489	0,521	0,560	0,608	0,622	0,639	0,659	0,615	0,575
	2,5	0,242	0,351	0,419	0,508	0,577	0,625	0,661	0,700	0,706	0,717	0,687	0,690	0,644
	3	0,301	0,426	0,494	0,596	0,645	0,665	0,713	0,757	0,782	0,765	0,747	0,733	0,692
	3,5	0,374	0,497	0,565	0,668	0,717	0,762	0,779	0,821	0,825	0,839	0,807	0,771	0,742
	4	0,425	0,547	0,611	0,719	0,769	0,812	0,830	0,872	0,867	0,866	0,826	0,799	0,773
	4,5	0,469	0,597	0,650	0,766	0,797	0,847	0,871	0,886	0,908	0,901	0,862	0,839	0,792
	5	0,511	0,628	0,688	0,798	0,844	0,887	0,896	0,919	0,946	0,919	0,889	0,849	0,808
	5,5	0,547	0,658	0,723	0,833	0,860	0,911	0,917	0,943	0,963	0,944	0,894	0,848	0,810
	6	0,564	0,682	0,745	0,843	0,874	0,921	0,941	0,952	0,973	0,965	0,898	0,858	0,815
	6,5	0,580	0,696	0,759	0,858	0,895	0,936	0,940	0,962	0,986	0,955	0,910	0,875	0,820
	7	0,604	0,703	0,755	0,874	0,909	0,935	0,961	0,975	0,977	0,963	0,921	0,873	0,832
	7,5	0,600	0,703	0,773	0,873	0,908	0,945	0,957	0,978	0,989	0,968	0,920	0,873	0,826
	8	0,613	0,722	0,775	0,872	0,913	0,954	0,968	0,983	1,000	0,969	0,929	0,883	0,835

Монитор для анализа UF_6 спроектирован так, чтобы получить зависимость эффективности от энергии нейтронов, аналогичную энергетическому спектру нейтронов $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$ (см. рис. 14.10). В конструкции также предусмотрено сведение к минимуму отклика на фоновые нейтроны космического излучения с низкой энергией. Это было реализовано путем проведения измерений и расчетов влияния полиэтиленовых фильтров с тремя различными толщинами с лицевой стороны детектора [11]. На рис. 14.20 представлен график зависимости эффективности от энергии нейтронов для трех толщин полиэтилена: 0; 1,3 и 2,5 см. Действие полиэтиленового фильтра заключается в снижении эффективности регистрации падающих нейтронов для всех энергий, но с большим снижением для более низких энергий, свойственных фоновым нейтронам космического излучения. Эти расчеты показывают, что фильтр толщиной 1,3 см является хорошим компромиссным решением между высокой эффективностью регистрации для нейтро-

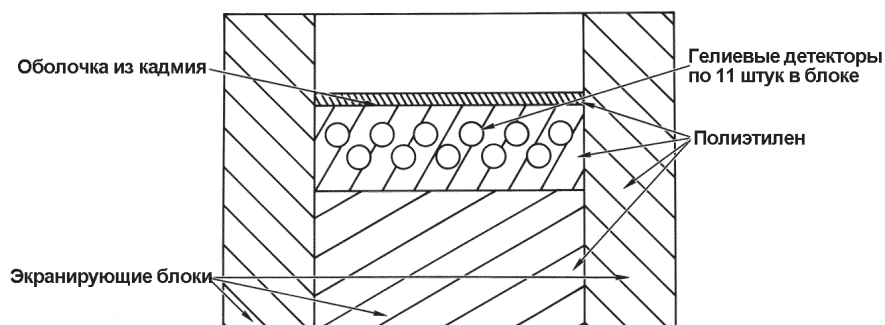


Рис. 14.19. Поперечный разрез коллимированного плоского детектора нейтронов

нов с энергией 1,0 МэВ и низкой эффективностью регистрации для нейтронов с энергией 0,1 МэВ. Более детальное исследование оптимизации детектора UF_6 с целью получения малого отношения сигнала к фону приведено в [12].

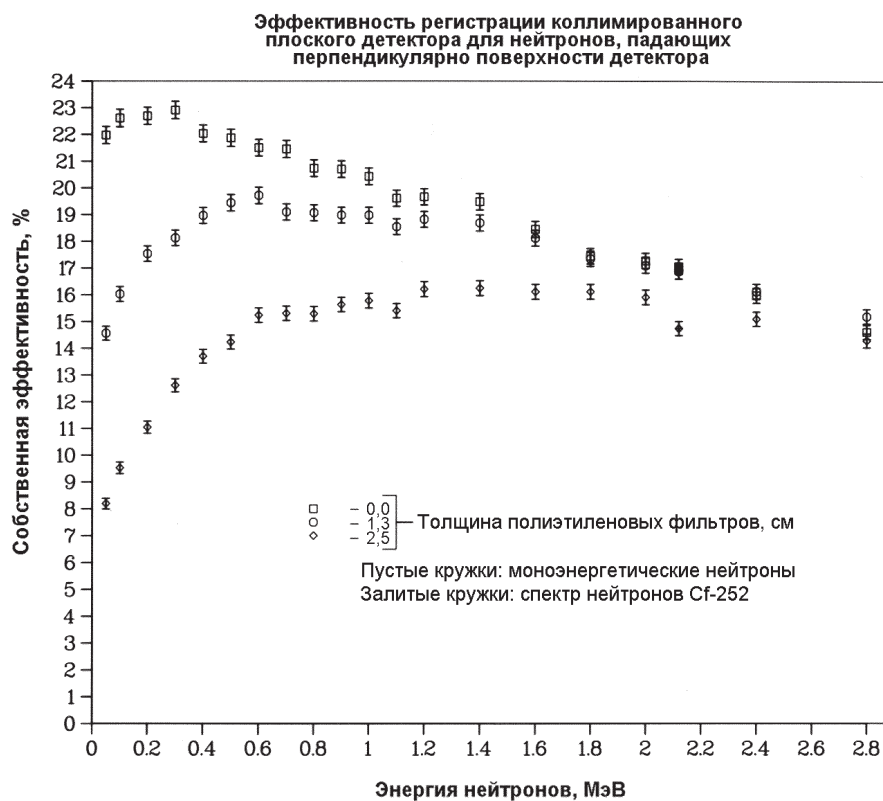


Рис. 14.20. Зависимость расчетной эффективности регистрации коллимированного плоского детектора от энергии нейтронов, падающих перпендикулярно поверхности детектора. Показаны результаты для трех толщин полиэтиленового фильтра, покрывающего лицевую сторону: 0, 1,3 и 2,5 см

Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC является детектором, сконструированным, в первую очередь, для пассивной регистрации нейтронных совпадений от PuO_2 (см. [13] и раздел 17.2.2 главы 17). Зависимость его эффективности от энергии нейтронов представлена на рис. 14.21. Если эту зависимость сравнить со спектром нейтронов утечки из типичного образца PuO_2 (см. рис. 14.15), то можно увидеть, что эффективность HLNCC максимальна для энергии нейтронов, меньшей, чем та, с которой ему приходится работать. Другими словами, HLNCC, который разрабатывался как легкий портативный прибор, содержит слишком мало полиэтилена для полной термализации нейтронов.

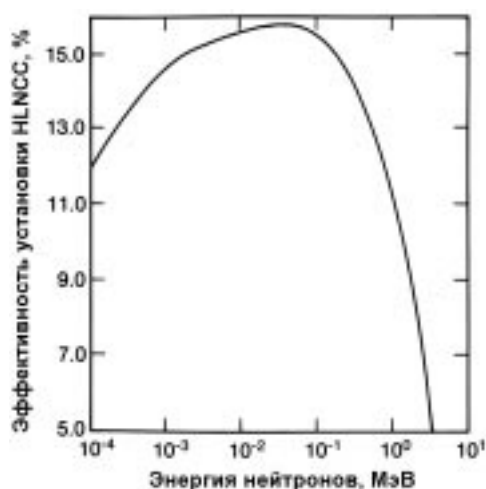


Рис. 14.21. Зависимость расчетной эффективности регистрации нейтронов высокоуровневого счетчика нейтронных совпадений HLNCC от энергии нейтронов, излучаемых изотропно в центре детекторного колодца

ЛИТЕРАТУРА

1. W.B. Wilson, R.T. Perry, and J.E. Stewart, "Neutron Production in UO_2F_2 from the Spontaneous-Fission and Alpha Decay of Uranium Nuclides and Subsequent $^{17,18}\text{O}(\alpha, n)$ and $^{19}\text{F}(\alpha, n)$ Reactions," in "Applied Nuclear Data Research and Development, April 1-June 30, 1981," P.G. Young, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-9060-PR (December 1981), p.50.
2. R.H. Augustson, R.B. Walton, W. Harbarger, J. Hicks, G. Timmons, D. Shissler, R. Tayloe, S. Jones, R. Harris, and L. Fields, "Measurements of Uranium Holdup in an Operating Gaseous Diffusion Enrichment Plant," in "Proceedings of the ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface," Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983, US DOE New Brunswick Laboratory, Conf. No. 831106 (August 1984), pp.77-88.
3. W.B. Wilson, R.T. Perry, J.E. Stewart, T.R. England, D.G. Madlund, and E.D. Arthur, "Development of the SOURCES Code and Data Library for the Calculation of Neutron Sources and Spectra from (α, n) Reactions, Spontaneous Fission, and β^- Delayed Neutrons," in "Applied Nuclear Data Research and Development Semi-annual Progress report, October 1, 1982-March 31, 1983," E.D. Arthur, Compiler, Los Alamos National Laboratory report LA-9841-PR (August 1983), p.65.

4. W.B. Wilson, "Calculations of (α ,n) Neutron Production in PuO_2 with Variable Moisture and Fluorine Contamination," Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1581, to J.E. Stewart (March 1985).
5. W.B. Wilson, R.T. Perry, and J.E. Stewart, "Neutrons from the Spontaneous Fission of Plutonium Nuclides and from the (α ,n) Reactions of Their Decay Alpha Particles with Trace Contaminants of Li, Be, B, C, N, O, F, Na, Mg, Al, Si, Cl, and As in Pu Metal," Los Alamos National Laboratory report (available on request from Group N-1, MS E540).
6. J.E. Stewart, "Neutron Production by Alpha Particles in Thin Uranium Hexafluoride," Los Alamos National Laboratory report LA-9838-MS (July 1983).
7. Los Alamos Monte Carlo Group X-6, "MCNP — A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 2B," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7396-M, Rev. (November 1979).
8. N. Ensslin, J. Stewart, and J. Sapir, "Self-Multiplication Correction Factors for Neutron Coincidence Counting," Nuclear Materials Management VIII (2), 60 (1979).
9. E.D. Cashwell, J.R. Neergaard, W.M. Taylor, and G.D. Turner, "MCN: A Neutron Monte Carlo Code," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4751 (1972).
10. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H. Menzel, E.D. Marshall, and L.W. Fields, "Measurements of UF_6 Cylinders with Portable Instruments," Nuclear Technology 21, 133 (1974).
11. J.E. Stewart and S.M. Simmonds, "Neutron Energy Response of an Area Neutron Monitor," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1984," Los Alamos Laboratory report LA-10529-PR (1986), p.85.
12. J.E. Stewart and H.O. Menlove, "Design Study of an Optimized In-Cascade Neutron Monitor for Centrifuge Plants," in "Safeguards and Security Status Report: February-July 1982," Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1983), pp.57-63.
13. M.S. Krick and H.O. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC): User's Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (ISPO-53) (June 1979).