

Министерство образования и науки Российской Федерации  
Национальный исследовательский ядерный университет  
«МИФИ»

А.В. Бушуев, А.Ф. Кожин, Е.В. Петрова,  
Т.Б. Алеева, В.Н. Зубарев

## **Методы и приборы измерений ядерных материалов**

**ЛАБОРАТОРНЫЙ ПРАКТИКУМ**

*Рекомендовано УМО «Ядерные физика и технологии»  
в качестве учебного пособия для студентов  
высших учебных заведений*

**МОСКВА 2011**

УДК 621.039.531.08(075)  
ББК 31.46я7  
Б 94

*Бушурев А.В., Кожин А.Ф., Петрова Е.В., Алеева Т.Б., Зубарев В.Н.* **Методы и приборы измерений ядерных материалов.** Лабораторный практикум. М.: НИЯУ МИФИ, 2011. – 156 с.

Лабораторный практикум состоит из двух частей, содержащих описание работ, проводимых в лабораторном корпусе (Часть 1) и в помещении реактора ИРТ МИФИ (Часть 2). Каждая часть имеет введение, в котором рассматриваются задачи контрольных измерений соответствующих ЯМ и методы их решения. Особое внимание в первой части уделяется методам спектрометрии ядерных излучений, лежащих в основе неразрушающих анализов ЯМ. Во второй части рассматриваются опыты по определению характеристик отработавших ТВС, особенности измерения протяженных высокоактивных источников излучения.

Цель занятий в практикуме – изучение и освоение наиболее распространенных методов контрольных измерений ЯМ с применением новейшей аппаратуры и программного обеспечения. Объектами исследований являются реальные и макетные твэлы, образцы ЯМ, отработавшие ТВС ИРТ МИФИ. Уделяется внимание определению характеристик измерительной аппаратуры, выбору режима работы, анализу погрешностей полученных результатов, контролю качества измерений. При измерениях отработавших ТВС студенты приобретают навыки безопасной работы с мощными источниками радиоактивного излучения.

Предназначено для студентов четвертого и пятого курсов, специализирующихся в области учета и контроля ядерных материалов.

Подготовлено в рамках Программы создания и развития НИЯУ МИФИ.

Рецензент д-р физ.-мат. наук, проф. В.С. Трошин

ISBN 978-5-7262-1516-7

© *Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», 2011*

Редактор *Н.В. Шумакова*  
Оригинал-макет изготовлен *Т.Б. Алеевой*

---

Подписано в печать 15.12.2010. Формат 60×84 1/16  
Уч.-изд.л. 10,0. Печ.л. 9,75. Тираж 100 экз. Изд. № 1/3/69. Заказ № 15

---

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».  
115409, Москва, Каширское ш., 31

ООО «Полиграфический комплекс «Курчатовский».  
144000, Московская область, г. Электросталь, ул. Красная, д. 42

## СОДЕРЖАНИЕ

### **Часть 1. Определение характеристик ядерных материалов методом спектрометрии излучений**

Введение.....	4
Работа 1. Основы гамма-спектрометрического метода контроля ядерных материалов.....	40
Работа 2. Основы альфа-спектрометрического метода контроля ядерных материалов.....	56
Работа 3. Определение неоднородностей топливного столба в ТВЭлах методом гамма-сканирования.....	68
Работа 4. Определение концентрации ЯМ в растворах методом денситометрии на К-крае поглощения (ККД).....	74
Работа 5. Определение концентрации ЯМ в растворах с помощью рентгено-флуоресцентного анализа (РФА).....	86
Работа 6. Определение изотопного состава образцов плутония и урана с помощью программы FRAM.....	97

### **Часть 2. Методы определения выгорания топлива отработавших ТВС**

Введение.....	114
Работа 7. Определение выгорания отработавших ТВС методом гамма-сканирования.....	133
Работа 8. Определение выгорания по интенсивности нейтронного излучения отработавших ТВС.....	137
Рекомендуемая литература.....	141
Приложение 1.....	143
Приложение 2.....	144
Приложение 3.....	153
Приложение 4.....	155

# **Часть 1. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ МЕТОДОМ СПЕКТРОМЕТРИИ ИЗЛУЧЕНИЙ**

## **Введение**

Контроль за производством, сохранностью и применением ядерных материалов (ЯМ) основан на измерениях. Контролю подлежат материалы, находящиеся в разных физико-химических состояниях и обладающие разными количественными и качественными характеристиками.

Квантово-механические системы (атомы, ядра) могут находиться лишь в определенных энергетических состояниях. При переходе из одного состояния в другое испускаются излучения (гамма, рентгеновское) со строго определенной энергией. Вероятности переходов определяются квантовыми характеристиками состояний. Чем выше вероятность, тем больше интенсивность излучения, сопровождающего этот переход. Поскольку набор возможных энергетических состояний (уровней) для каждого атома и ядра индивидуален, то различаются и энергии испускаемых излучений. Спектры излучений могут рассматриваться как «подписи» нуклидов. Энергетические интервалы между уровнями составляют сотни и тысячи электронвольт, ширина уровней – десятые доли электронвольта, так что спектры излучений, испускаемых при переходах, имеют дискретную структуру.

Ядерные материалы представляют собой радиоактивные вещества, распады которых сопровождаются испусканием ионизирующих излучений. Большую часть всей информации о ЯМ получают из измерений их ядерных излучений. Поскольку часть излучений может поглощаться внутри измеряемого предмета, стремятся использовать наиболее проникающие виды излучений – гамма- или нейтронное.

Измерениям излучений, несущих полезную информацию о ЯМ, часто мешают фоновые излучения, источники которых могут находиться вне исследуемого образца или входить в его состав. В конечном счете, погрешность результата анализа зависит от числа

зарегистрированных сигналов, созданных измеряемым излучением ЯМ (полезные сигналы) и от соотношения между скоростями счета полезных и фоновых сигналов. Внешний фон можно ослабить путем применения специальной защиты детектора. Для отделения излучения, несущего полезную информацию, от фона внутренних источников применяют спектрометрический режим измерения.

Задачей спектрометрии являются измерение распределения частиц или фотонов по энергии. Анализируя распределения, можно обнаружить присутствие в спектре излучения определенного нуклида, а по интенсивности его излучения – содержание нуклида в образце. Успех анализа зависит от энергетического разрешения аппаратуры. Дополнительные возможности дает применение специальных программ математической обработки измеренных спектров.

Кроме измерений фотонных излучений существуют и другие неразрушающие методы контроля. В прошлом для этой цели широко использовали взвешивание – простой метод определения массы предметов, не дающий информации о химическом и изотопном составе. Чтобы охарактеризовать состав материала, требуются дополнительные (разрушающие) анализы для определения примесей, степени окисления (стехиометрии), содержания влаги и главное – изотопного состава. Таким образом, взвешивание можно рассматривать как один из этапов разрушающего анализа. Применение взвешивания в качестве неразрушающего метода предполагает наличие дополнительных данных о составе материала, полученных другими методами.

Все другие (кроме спектрометрии) неразрушающие методы измерения ЯМ (калориметрия, счет нейтронных совпадений) способны обеспечить высокую точность результатов, но требуют дополнительной информации для их расшифровки. Поэтому эти методы не являются самодостаточными.

В силу сказанного в предлагаемом лабораторном практикуме наибольшее внимание уделено изучению спектрометрических методов: гамма-спектрометрии, рентгеновской спектрометрии, альфа-спектрометрии и их применению для решения некоторых практических задач.

Метод гамма-спектрометрии традиционно применяют для неразрушающего определения изотопного состава образцов урана и

плутония. Быстрый прогресс в разработке новой аппаратуры и программного обеспечения ведет к повышению точности результатов гамма-спектрометрических измерений, увеличению возможностей для применения этого метода. Открываются перспективы его использования не только для подтверждающих, но и для учетных измерений, не только изотопного состава, но и массы образцов. В результате может снизиться потребность в другой более дорогостоящей аппаратуре и в специалистах, владеющих альтернативными методами, что откроет возможность расширить и усилить контроль за ЯМ.

## **Спектрометрия с использованием полупроводниковых детекторов**

Для измерений ядерных материалов (ЯМ) широко используются спектрометрические методики, основанные на применении полупроводниковых детекторов (ППД) ионизирующих излучений. В практикум "Методы измерений ядерных материалов" входят шесть лабораторных работ, в которых используется спектрометрия гамма-, альфа- и рентгеновского излучений с помощью германиевых и кремниевых детекторов различных типов. Ниже приведены краткие сведения о ППД и спектрометрической аппаратуре, поскольку не все студенты, проходящие практикум, обладают необходимым минимумом знаний в этой области.

***Полупроводниковые детекторы.*** Важнейшей частью спектрометра является детектор излучений, а важнейшими параметрами – энергетическое разрешение и эффективность. Наиболее часто для контрольных измерений ЯМ применяют полупроводниковые детекторы (ППД), обладающие самой высокой разрешающей способностью по сравнению с детекторами других типов. Высокое разрешение достигается за счет охлаждения ППД.

ППД можно разделить на три группы:

требующие постоянного охлаждения (и при работе, и при хранении). В эту группу входят дрейфовые Ge(Li)-детекторы;

требующие охлаждения во время работы. Это детекторы из особо чистого германия (HPGe);

работающие и хранящиеся при комнатной температуре: поверхностно-барьерные SiAu-детекторы и детекторы на основе теллурида кадмия (CdZnTe, CdTe).

Для охлаждения ППД обычно применяют жидкий азот. Необходимость постоянного охлаждения затрудняет работу с Ge(Li)-детекторами, поэтому в настоящее время для спектрометрии гамма- и рентгеновского излучений используют HPGe-детекторы разных конструкций и размеров. Их разрешающая способность может составлять 300-400 эВ при энергии излучения 59 кэВ, 600-700 эВ при 122 кэВ и 1,7-1,9 кэВ при 1332 кэВ. Для альфа-спектрометрии применяют SiAu-детекторы с разрешением 15-20 кэВ при энергии 5,5 МэВ.

Существует ряд задач, решение которых не допускает или ограничивает применение охлаждения азотом. К их числу относятся измерения в не обслуживаемых персоналом помещениях с особо опасными условиями работы (производство МОХ-топлива) или измерения в стесненных условиях, требующие постоянных перемещений аппаратуры (контроль отложения ЯМ в технологическом оборудовании). Для спектрометрических анализов в подобных условиях разработаны HPGe-детекторы с электроохлаждением. Спектрометры с компактными и легкими электроохладильниками разных типов все шире применяются на практике.

Полупроводниковые детекторы относятся к группе ионизационных детекторов. В детекторах этого типа для регистрации частицы используется ионизационный эффект, в результате которого в веществе детектора образуются носители электрического заряда. В полупроводниковых детекторах носителями заряда являются электроны и дырки, которые под действием электрического поля собираются на электродах.

ППД имеют важные преимущества перед газовыми ионизационными камерами:

плотность вещества в чувствительном объеме приблизительно в  $10^3$  раз выше, поэтому выше эффективность регистрации излучений;

более высокая разрешающая способность.

Другие достоинства ППД: линейная связь между энергией регистрируемого излучения и амплитудой электрического сигнала, короткий фронт сигнала.

При выборе материала для ППД руководствуются следующими требованиями:

малый расход энергии на создание пары носителей заряда;  
минимальная вероятность процессов рекомбинации и захвата носителей заряда;

большие и близкие по величине подвижности носителей заряда;  
высокое удельное сопротивление.

Чем меньше расход энергии  $w$  на создание пары носителей, тем больше число образующихся носителей, больше величина сигнала, и тем меньше относительная флуктуация величины сигнала, от которой зависит разрешающая способность детектора. У ППД средняя энергия образования пары носителей заряда приблизительно в 10 раз меньше, чем у газовых ионизационных камер, и в 100 раз меньше, чем у сцинтилляционных детекторов.

Чем выше подвижность носителей заряда, тем лучше временные характеристики детектора. Если подвижности электронов и дырок равны, то амплитуда сигнала не зависит от места образования носителей в объеме детектора.

Любой материал имеет некоторую электропроводность. При подаче напряжения на детектор в кристалле возникает постоянный ток, величина которого флуктуирует; в результате появляется шум, мешающий измерениям полезных сигналов. Требуемое значение удельного сопротивления материала детектора  $> 10^{10}$  Ом/см.

Всем вышеперечисленным требованиям лучше всего удовлетворяют кристаллические кремний (Si) и германий (Ge). Так как их удельные сопротивления ниже требуемых значений (у Si  $\sim 10^4$  Ом/см, у Ge  $\sim 10$  Ом/см), необходимо во много раз повысить их удельное сопротивление.

**Свойства полупроводников.** Согласно законам квантовой физики, энергия электронов в твердом теле не может быть произвольной. В одиночном атоме энергия электрона принимает дискретные значения, при сближении атомов возникает их взаимодействие, приводящее к расщеплению уровней энергии. В кристалле вместо отдельных разрешенных значений энергии существуют зоны разрешенных и запрещенных энергий электронов.

Электроны с внутренних оболочек не взаимодействуют с соседними атомами, для электронов с внешних оболочек вероятность



взаимодействия велика, и ширина разрешенной зоны составляет около 1 эВ. Электроны с такими энергиями принадлежат всему кристаллу.

При воздействии электрического поля на кристалл электроны в заполненных зонах не изменяют своего распределения по энергиям, не участвуют в переносе заряда и не дают вклада в электропроводимость. Твердое тело со всеми заполненными разрешенными зонами является диэлектриком, а с частично заполненными – полупроводником. У металлов зоны разрешенных значений энергии перекрываются, и при любой температуре электроны могут под действием внешнего электрического поля участвовать в электропроводимости.

В полупроводнике часть электронов в результате теплового движения может переходить в зону проводимости; вероятность такого перехода экспоненциально увеличивается с уменьшением ширины запрещенной зоны. После ухода электрона остается незаполненная вакансия – "дырка", благодаря которой другие электроны получают возможность перемещаться под действием электрического поля, внося вклад в электрический ток. Если электроны и дырки образуются только в результате тепловых переходов через запрещенную зону, то их число одинаково, и тело называют "идеальным" кристаллом.

В реальных кристаллах имеются дефекты и примеси, а в запрещенной зоне существуют уровни, принадлежащие этим дефектам и примесям. Вероятность переходов через эти уровни намного превышает вероятность прямого перехода через запрещенную зону. Ионизация приводит либо к переводу электронов с уровня в зону проводимости (донор), либо к переходу электрона из нижележащей зоны на уровень (акцептор). Донорные уровни располагаются вблизи верхнего края запрещенной зоны, акцепторные – вблизи нижнего края. Полупроводники электронного типа (или *n*-типа) называют донорными, полупроводники дырочного (или *p*-типа) – акцепторными (рис. В1.1).

В любом полупроводнике могут присутствовать и донорные, и акцепторные примеси, которые частично компенсируют друг друга. Ток, обусловленный дрейфом носителей заряда под действием

внешнего поля, определяет удельное сопротивление  $\rho$  полупроводника:

$$\rho = \frac{1}{e \cdot (\mu^+ \cdot p + \mu^- \cdot n)}, \quad (B1.1)$$

где  $p$  – плотность дырок;  $n$  – плотность электронов;  $\mu^+$  – подвижность дырок;  $\mu^-$  – подвижность электронов.

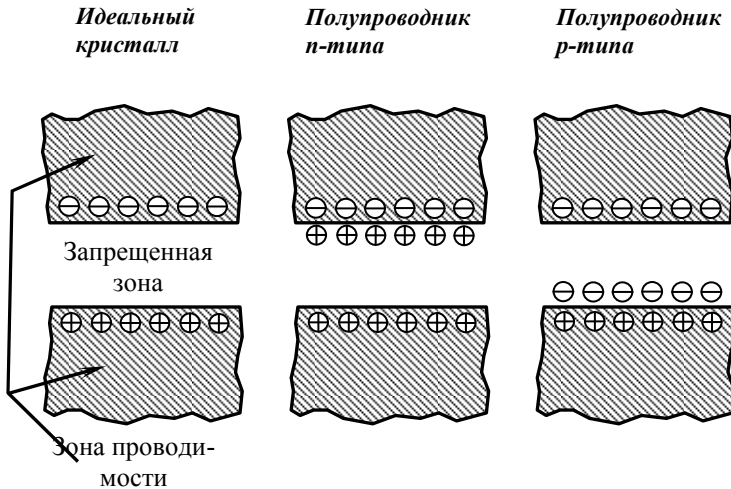


Рис. В1.1. Типы полупроводниковых кристаллов

Плотность носителей заряда зависит от температуры  $T$  и ширины запрещенной зоны  $\varepsilon_g$ :

$$n_i = b \cdot T^{3/2} \exp(-\varepsilon_g / (2 \cdot k \cdot T)), \quad (B1.2)$$

где  $b$  – константа для данного материала,  $k$  – постоянная Больцмана;

$$n_i^2 = n \cdot p, \quad (B1.3)$$

т.е., если число электронов увеличивается, то число дырок уменьшается.

Минимальное число носителей обоих зарядов наблюдается при  $n=p$ , что соответствует случаю полностью скомпенсированного полупроводника, сопротивление которого такое же, как и у беспримесного. Реальные полупроводники обычно содержат примеси: кремний трудно очистить от бора, германий – от кислорода. Характеристики Si и Ge приведены в табл. В1.1.

Таблица В1.1

Элемент	$Z$	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Средняя энергия образования пары носителей, эВ	Ширина запрещенной зоны, эВ	$n_i$ (T=300 К), см <sup>-3</sup>
Si	14	2,33	3,7	1,10	$1,5 \cdot 10^{10}$
Ge	32	5,33	3,0	0,67	$2,0 \cdot 10^{13}$

Даже охлаждая такие материалы до 77 К, не удается получить необходимое удельное сопротивление. Для того чтобы из полупроводников с невысоким удельным сопротивлением изготовить ППД, используют свойства  $p$ - $n$ -перехода (или перехода между полупроводником и металлом).

Переходы создают либо путем введения донорных атомов в полупроводник  $p$ -типа, либо акцепторных – в полупроводник  $n$ -типа. Еще один способ – создание поверхностно-барьерного перехода путем нанесения определенных металлов на поверхность полупроводника  $n$ -типа. Ниже (рис. В1.2) показано формирование  $p$ - $n$ -перехода в полупроводниковом кристалле.

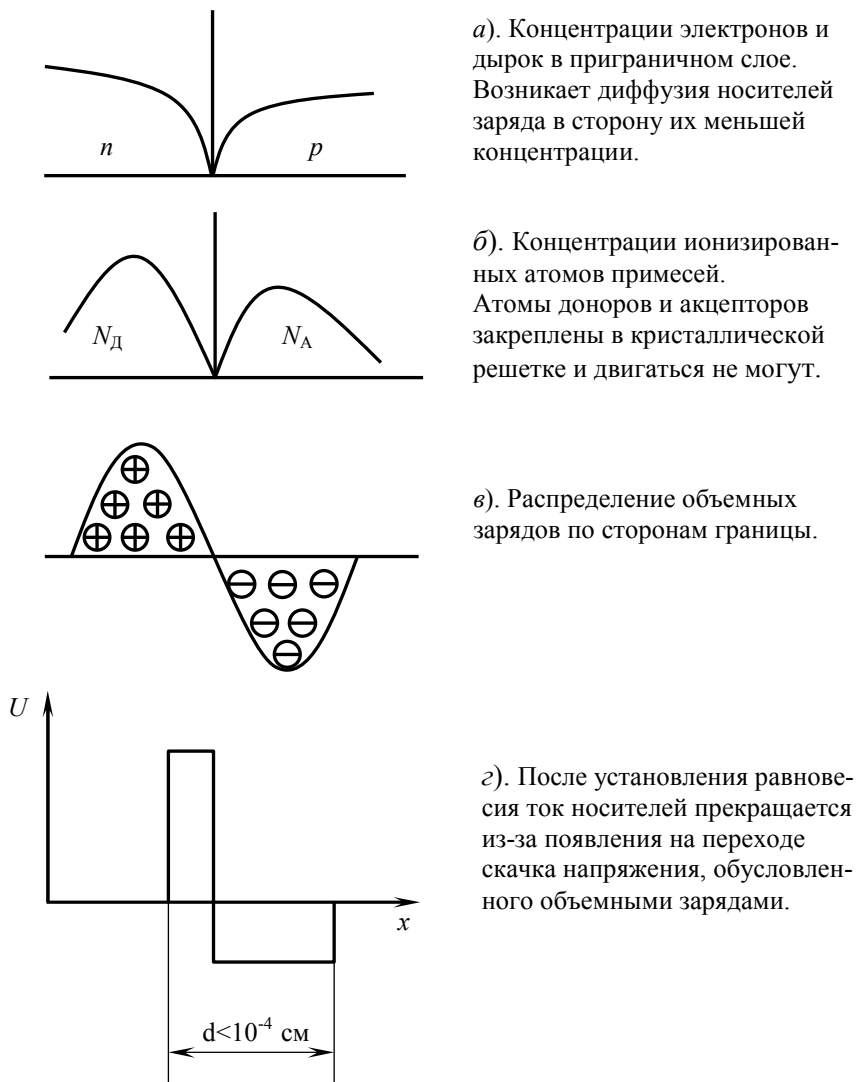


Рис. В1.2. Формирование в полупроводниковом кристалле

Чувствительную область  $d$  можно использовать в качестве детектора. Почти полное отсутствие носителей в этой области соответствует высокому удельному сопротивлению. Размер области

можно увеличить, приложив к переходу обратное напряжение (плюс – к  $n$ -области, минус – к  $p$ -области). В результате этого толщина обедненного носителями слоя возрастет.

### Свойства ППД

При регистрации моноэнергетических частиц или излучений амплитуды сигналов имеют разброс из-за флуктуаций числа собранных носителей заряда, теплового шума и шума, создаваемого током утечки через  $p$ - $n$ -переход. Для Si-детекторов при регистрации частиц с энергией, равной 1 МэВ, разброс составляет около 0,5 кэВ, что близко к теоретическому пределу энергетического разрешения ППД.

Тепловой шум, вызванный флуктуацией скорости теплового движения носителей, и шум обратного тока очень сильно зависят от температуры детектора (рис. В1.3). Охлаждение до температуры жидкого азота (77 К) позволяет достигать предельного разрешения.

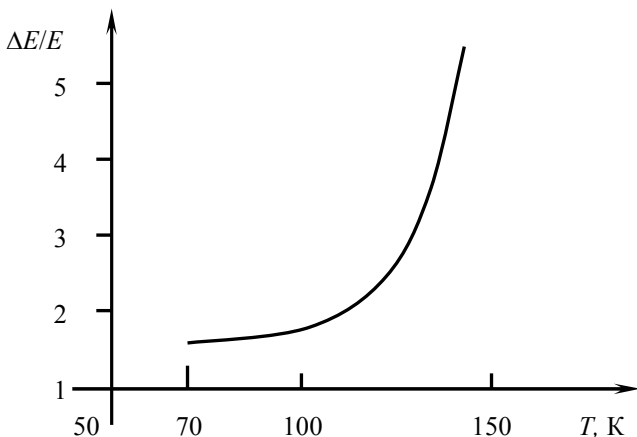


Рис. В1.3. Зависимость энергетического разрешения ППД от температуры

Флуктуация числа собранных носителей заряда обусловлена тем, что сбор не бывает полным, поскольку процесс рекомбинации ограничивает время жизни носителей. Еще один процесс, ограничивающий разрешение ППД, – захват электронов и дырок.

При регистрации гамма-квантов сигнал возникает в результате образования в ППД вторичных заряженных частиц, энергии которых неоднозначно связаны с энергией квантов. В спектрах излучений, регистрируемых с помощью ППД, наибольший интерес представляют пики полного поглощения энергии, которые образуются в результате фотоэффекта. Дополнительный вклад в пик полного поглощения вносит эффект многократного комптоновского рассеяния, доля которого тем выше, чем больше объем детектора, а также процесс образования пары электрон-позитрон для гамма-квантов с энергией, превышающей 1022 кэВ. Эффективность регистрации излучения зависит от его энергии и определяется экспериментально с помощью набора градуировочных источников. С ростом энергии роль фотоэффекта уменьшается, но пик полного поглощения сохраняет значительную величину за счет многократных процессов в объеме детектора (рассеяние+поглощение, и др.). От выбора размеров кристалла зависит энергетическое разрешение и эффективность ППД.

Полученные с помощью ППД спектры могут быть искажены влиянием ряда факторов, которые подразделяют на три категории:

эффекты, связанные с процессами в образце (рассеяние и поглощение квантов внутри образца, возбуждение характеристического рентгеновского излучения в образце, и др.);

эффекты, связанные с характеристиками ППД (спутные пики, возникающие в результате вылета аннигиляционных квантов при образовании пар в ППД, спутные пики, связанные с характеристическим рентгеновским излучением материала детектора, и др.);

внешние эффекты (естественный радиационный фон, суммирование сигналов в электронном тракте, и др.).

## **Типы полупроводниковых детекторов**

*Детекторы из сверхчистого германия (HPGe).* Энергетическое разрешение детекторов этого типа приближается к предельному значению, обусловленному статистическими флуктуациями образования носителей заряда в ППД и уровнем шумов электронных

блоков. HPGe-детекторы бывают двух основных конфигураций: плоскопараллельные (планарные) и коаксиальные.

Исходным материалом при изготовлении этих детекторов служит поликристаллический германий полупроводниковой чистоты, полученный с помощью зонной очистки с поверхности. При зонной очистке большинство примесей концентрируют в жидком расплаве. Для этого нагревающую спираль медленно перемещают вдоль слитка, вызывая плавление материала. Примеси остаются в расплавленной секции и постепенно "счищаются" к концу слитка. Операция очистки повторяется много раз, пока примеси не сконцентрируются на конце, который удаляют. Остаток имеет более высокую чистоту, чем исходный материал, а степень очистки от примесей достигает 100 и более раз. Очищенному слитку придают нужную форму и делают полость на необработанном конце для последующего введения центрального электрического контакта.

Следующая операция – постановка детектора в криостат, где он охлаждается до температуры жидкого азота (рис. В1.4). Для снижения теплового шума первый каскад предусилителя тоже охлаждают, помещая его внутри криостата в высоком вакууме. Для удаления остатка воздуха после откачки и поддержания вакуума в течение длительного времени используют газопоглотитель. Детектор закрепляют на хладопроводе – медном стержне, конец которого погружен в жидкий азот. Толщина стенок алюминиевого криостата составляет 1,3 мм; для измерений мягких излучений в крышке криостата делают окно из Ве или пленки из углеродного волокна.

***Ge(Li)-детекторы.*** До недавнего прошлого широко использовались Ge(Li)-детекторы, изготавливаемые путем диффузионного внедрения лития в германий. Литий напыляют на *p*-материал, затем поднимают температуру до 400°C, и литий диффундирует вглубь. Затем к *p-n*-переходу прикладывают обратное напряжение, и положительными ионы Li начинают двигаться из *n*-области в *p*-область, компенсируя акцепторные атомы *p*-материала. Таким образом получают планарные детекторы площадью до 10-15 см<sup>2</sup> и коаксиальные детекторы объемом до 100 см<sup>3</sup> и более.

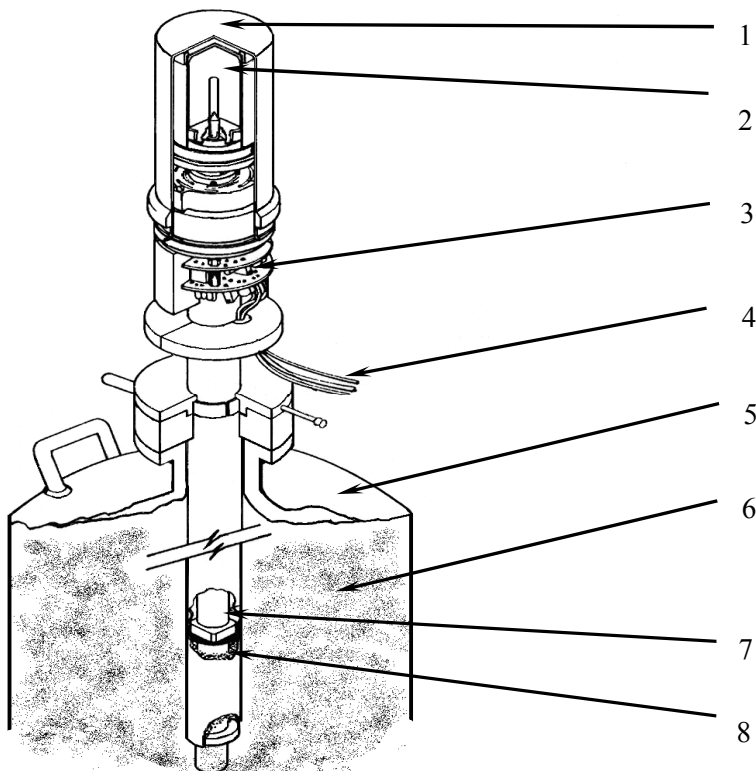


Рис. В1.4. Разрез Ge-детектора:

1 – крышка детектора; 2 – кристалл германия; 3 – предусилитель; 4 – кабели, ведущие к блоку питания предусилителя, входу усилителя, и т.д.; 5 – сосуд Дьюара; 6 – жидкий азот; 7 – хладопровод; 8 – газопоглотитель

При комнатной температуре происходит обратная диффузия лития из кристалла германия, которая ведет к необратимому ухудшению характеристик детектора. По этой причине Ge(Li)-детекторы работают и хранятся только при температуре жидкого азота.

**Теллурид-кадмиевые детекторы.** В настоящее время имеются определенные достижения в технологии изготовления CdZnTe-детекторов, которые могут работать при комнатной температуре. По разрешающей способности и по эффективности они заметно



уступают германиевым детекторам, однако малые геометрические размеры и отсутствие необходимости охлаждения жидким азотом делает их незаменимыми при измерениях в особо трудных условиях.

**Поверхностно-барьерные Si(Au)-детекторы.** Этот тип детекторов получают из кремния *n*-типа с удельным сопротивлением  $0,5 \div 100$  кОм/см путем его протравливания кислородом воздуха с образованием поверхностного *p*-слоя. На его поверхность напыляют тонкий слой золота, служащий электродом. Толщина чувствительной области составляет  $2 \div 5 \cdot 10^{-2}$  см. Si(Au)-детекторы работают при комнатной температуре. Их используют для спектрометрии заряженных частиц:  $\alpha$ -частиц, высокоэнергетических  $\beta$ -частиц, осколков деления.

### **Параметры германиевых детекторов**

В настоящее время разрешение ППД-спектрометров близко к теоретическому пределу. Стремление достичь наилучшего разрешения обусловлено необходимостью отделить излучение определенного нуклида от фоновых излучений и обеспечить наилучшее отношение эффект/фон и, таким образом, снизить погрешность измерения.

Стремление повысить эффективность детектора объясняется желанием зарегистрировать наибольшее число событий в единицу времени, чтобы обеспечить наилучшую точность измерений.

Диапазон энергий регистрируемых квантов гамма-излучения определяется технологическими и конструктивными особенностями германиевых детекторов и может лежать в пределах от единиц кэВ (планарные детекторы с бериллиевым окном) до 10 мэВ (коаксиальные детекторы большого объема).

Эффективность регистрации гамма-квантов в пике полного поглощения германиевых детекторов характеризуется значением так называемой относительной эффективности. Она определяется как отношение эффективностей регистрации в пике полного поглощения линии 1332 кэВ ( $^{60}\text{Co}$ ) германиевого детектора и сцинтилляционного детектора NaI(Tl) размером 3x3 дюйма. У современных детекторов относительная эффективность лежит в пределах  $5 \div 120$  %. Наиболее часто на практике для выполнения различных измерений

используются детекторы с относительной эффективностью 10÷80 %. Фирма *ORTEC* изготавливала отдельные детекторы с относительной эффективностью до 280 %. Относительная эффективность Гедетектора (%) приблизительно равна его объему (см<sup>3</sup>), деленному на 4,3.

Важным параметром, характеризующим контрастность аппаратной линии, является отношение пик/комpton для линии 1332 кэВ. Для германиевых детекторов с относительной эффективностью от 5 до 60 процентов это отношение равно 40÷80 соответственно и практически не увеличивается с дальнейшим ростом относительной эффективности детектора.

Энергетическое разрешение германиевых детекторов, как правило, приводится для линии 1332 кэВ (<sup>60</sup>Co) и 122 кэВ (<sup>57</sup>Co). Значение разрешения германиевых детекторов промышленного изготовления для этих линий обычно составляет 1,75÷2,2 кэВ и 450÷750 эВ соответственно.

В настоящее время германиевые детекторы поставляются в основном в трех типах криостатов:

1. Автономный криостат, который устанавливается в стандартный сосуд Дьюара с жидким азотом емкостью от 20 до 80 литров. Периодичность заливки азота в зависимости от объема сосуда Дьюара составляет 2÷6 недель.

2. Криостат, конструктивно соединенный с сосудом Дьюара емкостью от 1 до 3 литров и предназначенный для выполнения оперативных и инспекционных измерений. Периодичность заливки азота в зависимости от объема сосуда Дьюара составляет 24÷72 часа. Рабочее положение произвольное.

3. Третий тип криостатов основан на применении электроохладителей компрессионного типа. Они не требуют использования жидкого азота. Выпускаются стационарные и переносные системы с электроохлаждением.

Время готовности детектора к выполнению измерений после начала охлаждения составляет 3÷6 часов. Выбор конструкции детектора и криостата определяется спецификой решаемой измерительной задачи.

## Электронный тракт аналогового ППД-спектрометра

На протяжении многих лет в спектрометрии применялись аналоговые электронные блоки. В некоторых организациях такие спектрометры продолжают использовать. Начнем с их рассмотрения.

**Структура и функции спектрометра гамма-излучения.** Высокое энергетическое разрешение ППД может быть реализовано только при использовании малозумящего электронного тракта. Структурная схема аналогового спектрометра гамма-излучения приведена на рис. В1.5. Импульс тока, образованный собранными на электродах детектора зарядами, поступает на вход предварительного усилителя (ПУ), который усиливает сигнал с детектора и формирует импульс длительностью  $200 \div 300$  мкс и амплитудой до 0,1 В.

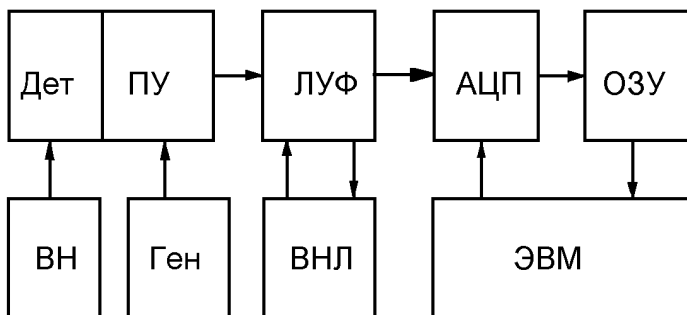


Рис. В1.5. Структурная схема аналогового спектрометра гамма-излучения:

Дет – детектор; ПУ – предварительный усилитель; Ген – генератор импульсов точной амплитуды и известной частоты; ЛУФ – линейный усилитель – формирователь; АЦП – аналого-цифровой преобразователь; ОЗУ – оперативное запоминающее устройство, ВНЛ – восстановитель нулевой линии, ИП – источник высокого напряжения

Линейный усилитель-формирователь формирует импульс длительностью  $1 \div 12$  мкс и усиливает его до амплитуды в несколько вольт, что необходимо для нормальной работы аналого-цифрового преобразователя, преобразующего амплитуду сигнала в цифровой код, который определяет ту ячейку памяти, в которую добавляется единица.

**Предусилитель.** Принципиальная схема подключения HPGe-детектора к предусилителю показана на рис. В1.6. Зарядочувствительная секция предусилителя превращает импульс тока в импульс напряжения амплитудой в несколько мкВ и длительностью более 1 мс. Амплитуда импульса строго пропорциональна энергии зарегистрированного гамма-кванта. Для получения максимального отношения сигнал/шум предусилитель (ПУ) располагают как можно ближе к детектору, что минимизирует емкость на входе и уменьшает уровень шума на выходе. В настоящее время первый каскад ПУ помещают внутрь криостата, а сам ПУ – на поверхности криостата.

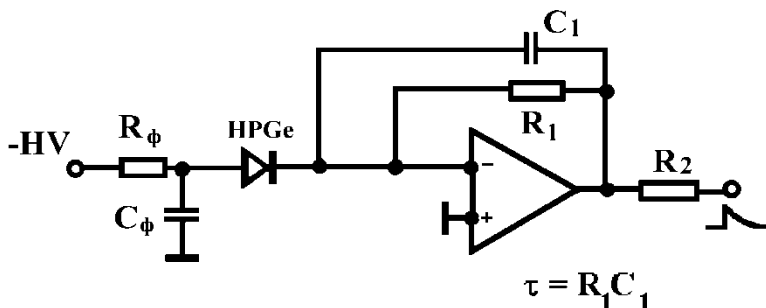


Рис. В1.6. Схема подключения HPGe-детектора

На схеме рис. В1.7 показан предусилитель, состоящий из двух усилительных секций. Первая секция аналогична схеме на рис. В1.6, а вторая секция, кроме усиления сигнала, обеспечивает низкое выходное сопротивление предусилителя (обычно 50 Ом), необходимое для согласования с соединительным кабелем предусилителя и основного усилителя. Включение детектора без разделительного конденсатора приводит к смещению базовой линии на выходе усилительной секции пропорциональное току утечки детектора плюс средний импульсный ток. Для скорости счета  $10^5$  имп/с от гамма-квантов с энергией 1 МэВ при длительности импульса 1 мс смещение базовой линии на выходе усилительной секции составит величину около 4 В.

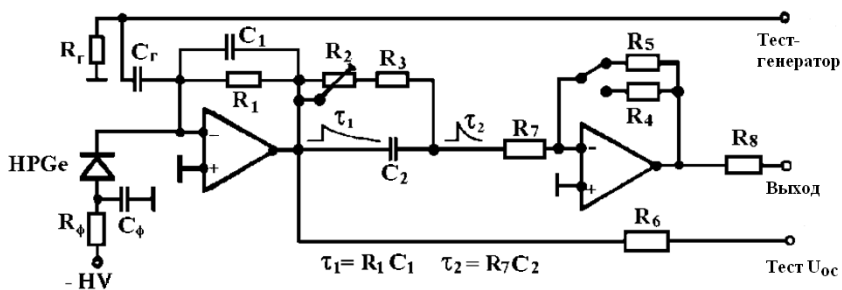


Рис. В1.7. Зарядочувствительный предусилитель

Чтобы предотвратить столь сильное смещение базовой линии, между секциями предусилителя включена дифференцирующая цепочка  $C_2 R_2$ , параметры которой выбираются такими, чтобы длительность импульса на выходе предусилителя составила  $200 \div 300$  мкс. Резисторы  $R_2 + R_3$  выполняют функцию “компенсации полюса нулем”, т.е. убирают отрицательный выброс на базовой линии после прохождения импульса.

Современные промышленные предусилители для германиевых детекторов гамма-излучения обычно имеют собственный энергетический эквивалент уровня шумов в пределах  $400 \div 700$  эВ.

**Линейный усилитель-формирователь (ЛУФ).** Линейный усилитель применяется для того, чтобы увеличить амплитуду импульсов с предусилителя до такой величины, чтобы ее можно было достаточно точно измерить анализирующим прибором. Обычно амплитуда импульсов на выходе усилителя должна находиться в пределах  $0 \div 10$  В. Формирование и фильтрация импульсов в линейном усилителе осуществляется для того, чтобы улучшить отношение сигнал/шум и сделать импульс возможно более коротким, чтобы минимизировать эффекты наложения импульсов. В усилителях-формирователях используют RC-дифференциаторы и пассивные или активные RC-интеграторы. Обычно в ЛУФ имеется переключатель, позволяющий выбирать оптимальное время формирования импульса для достижения наилучшего энергетического разрешения.

Обычно в усилителях имеется переключатель усиления “грубо” и плавный регулятор “точно”, выполненный на многооборотном переменном резисторе.

Для высокого разрешения спектрометра униполярный выход должен иметь очень высокую стабильность базовой линии. За этим следит схема стабилизации базовой линии, выполненная на компараторах. В стабилизаторе имеются регуляторы базовой линии и ключ, отключающий стабилизатор в момент прохождения импульса, чтобы не исказить его форму.

Стабильность работы подобного усилителя зависит не только от стабильности величин резисторов и конденсаторов, но в большой степени от надежности контактов в переключателях и переменных резисторах, которые имеют тенденцию ухудшаться в процессе эксплуатации прибора.

Современные усилители не имеют выведенных на лицевую панель регуляторов. Все управление усилением и формированием импульсов осуществляется программно через ЭВМ.

***Аналого-цифровые преобразователи (АЦП).*** Существует несколько принципов построения спектрометрического тракта. Первый из них заключается в использовании аналоговых цепей формирования, фильтрации и усилении информационного сигнала. На последней стадии обработки амплитуда импульса напряжения преобразуется аналогово-цифровым преобразователем (АЦП) в цифровой код. Последовательность цифровых кодов запоминается, образуя аппаратный спектр, который затем обрабатывается по определенным алгоритмам. Для набора, отображения и обработки аппаратного спектра чаще всего используются персональные компьютеры, в которые предварительно вводятся соответствующие программы (эмулятор многоканального анализатора, градуировка спектрометра по энергии и эффективности, качественная и количественная обработка спектра, расчет активностей, библиотека радионуклидов и т.п.). Спектрометрические тракты, построенные по этому принципу, называются “аналоговыми”.

В аналоговых спектрометрах высокого разрешения обычно применяют АЦП типа Вилкинсона, блок-схема которого показана на рис. В1.8.

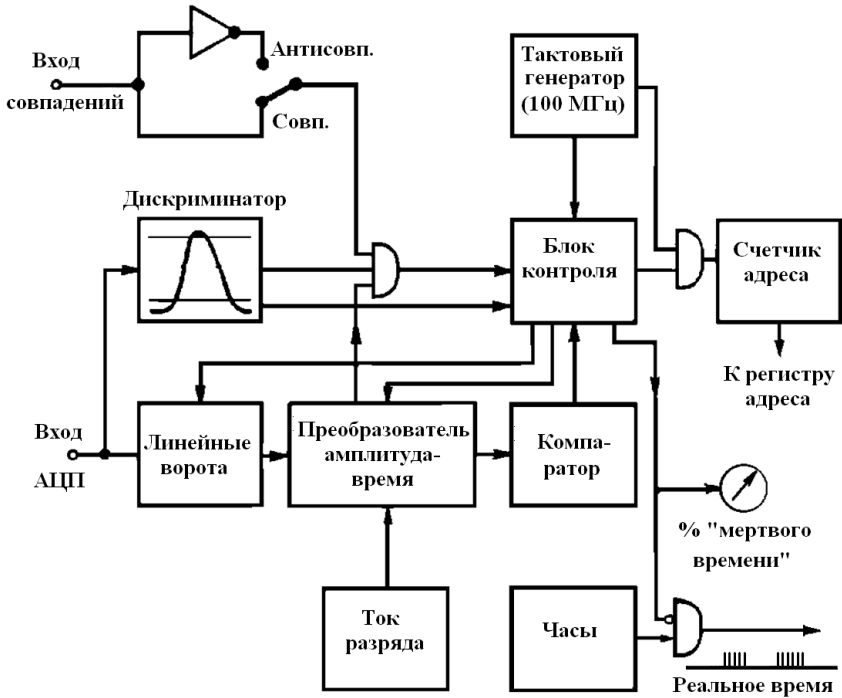


Рис. В1.8. Аналого-цифровой преобразователь

Исследуемый импульс проходит через линейные ворота и заряжает до амплитудного значения конденсатор в блоке “Преобразователь амплитуда-время”. Для определения момента достижения сигналом максимального значения в АЦП имеется пиковый детектор, который дает сигнал на обработку сигнала в тот момент, когда производная напряжения по времени равна нулю. Сразу после прохождения максимума импульса линейные ворота закрывают вход анализатора на все время обработки поступившего импульса. Если амплитуда импульса попадает в окно, ограниченное уровнями дискриминатора, и удовлетворяет условию “совпадение/антисовпадение” с внешним сигналом, то начинается разряд конденсатора постоянным током в блоке “Преобразователь амплитуда-время”. В течение времени разряда тактовый генератор с час-

тотой 100÷450 МГц отсчитывает адрес той ячейки памяти, в которую будет добавлена единица.

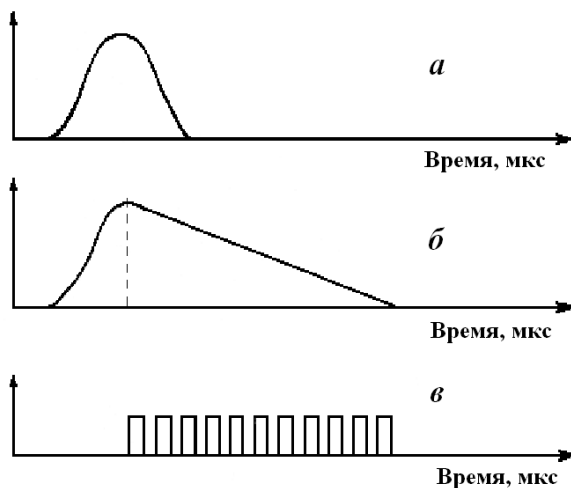


Рис. В1.9. Преобразование сигнала в АЦП:  
*а* – входной сигнал; *б* – изменение напряжения на конденсаторе; *в* – цуг импульсов тактового генератора с кварцевой стабилизацией

Таким образом, аналого-цифровое преобразование фактически осуществляется в две ступени: амплитуда-время и время-код (рис. В1.9). Во время “мертвого времени”, т.е. от момента прихода переднего фронта импульса до записи информации в память, ни один другой импульс не может пройти на вход АЦП. Большую часть “мертвого времени” составляет время разряда конденсатора, причем это время зависит от амплитуды импульса. Сигнал с блока контроля используется для автоматической коррекции времени измерения, останавливая импульсы генератора времени на тот период, когда закрыт вход АЦП.

Время обработки сигнала (“мертвое время”) может вносить существенный вклад в общее время измерения. В каждом случае “мертвое время” АЦП складывается из времени цифрования аналогового сигнала и времени его записи в память (обычно 2÷3 мкс). Для детального анализа “мертвого времени” требуется учитывать



конкретный измеряемый спектр, общую структуру системы, число каналов АЦП.

Дискриминаторы нижнего и верхнего уровня сигналов определяют максимальную и минимальную амплитуды сигналов, подвергающихся цифрованию. Дискриминаторы позволяют, устранив слишком малые и слишком большие сигналы, разгрузить АЦП и уменьшить “мертвое время”.

Достоинством АЦП, использующих метод преобразования амплитуда-время, время-код являются малая интегральная и дифференциальная нелинейность преобразования. Малая интегральная нелинейность обеспечивается возможностью создания высокостабильных генераторов разрядного тока, а малая дифференциальная нелинейность – использованием высокостабильных кварцевых генераторов опорной частоты.

Недостатком данного метода кодирования является относительно невысокое быстродействие АЦП, определяемое частотой тактового генератора, амплитудой анализируемого сигнала и временем записи информации в память анализатора. Характерное время кодирования для АЦП данного типа составляет 50 мкс, поэтому они применяются в прецизионных спектрометрических устройствах, не требующих высокого быстродействия.

АЦП обрабатывает сигналы в определенном диапазоне амплитуды (обычно от 0 до 10 В) и сортирует их на большое число интервалов одинаковой ширины (каналов). Число каналов, на которое делится диапазон, обычно представляют как 2 в некоторой степени. Например, 10 вольт делят на 16384 канала ( $2^{14}$ ), и ширина отдельного канала получается равной 0,6 мВ. Требуемое число каналов зависит от применяемого детектора и ширины исследуемого интервала энергий. Фотопик должен занимать достаточное число каналов, чтобы ясно определялась его форма и структура спектра. Для точного описания формы пика математической моделью он должен охватывать не менее 10 каналов.

Чтобы по амплитуде электрических сигналов определить энергию квантов, требуется линейная связь между ними. Поскольку характеристики ПУ, усилителя и АЦП не строго линейны, соотношение между энергией и номером канала не совсем постоянно. Нелинейность АЦП подразделяют на интегральную и дифференциальную. Интегральная нелинейность – слабое изменение отноше-

ния энергия/номер канала; дифференциальная нелинейность вызвана вариацией ширины канала. Интегральная и дифференциальная нелинейности многих АЦП, составляющие около 1%, приемлемы для большинства применений.

После превращения в АЦП электрического сигнала в двоичный адрес, его нужно сохранить для дальнейшего анализа. Все анализаторы имеют память для хранения измеренного спектра. Максимальное число отсчетов, содержащихся в канале, часто определяет предел точности, достижимой в единичном измерении. Современные анализаторы могут иметь емкость памяти более  $10^9$  отсчетов/канал. Память большого объема требуется для выполнения высокоточных измерений спектров излучения высокоактивных источников.

## **“Цифровые” спектрометрические тракты**

В настоящее время все большее распространение получают “цифровые” спектрометрические системы, в которых быстрый АЦП оцифровывает сигнал, поступающий с предусилителя, а затем микропроцессор формирует импульс, определяет его амплитуду, сохраняет набранный спектр и т.д.

Для спектрометров с германиевыми детекторами одним из важнейших параметров является энергетическое разрешение и высокая пропускная способность. На достижение наилучших значений данных параметров направлена работа цифровой спектрометрической системы.

Спектрометрическая система DSPEC имеет аналоговый предварительный фильтр, быструю схему оцифровки входного сигнала и цифровой микропроцессор для оптимизации энергетического разрешения и пропускной способности с помощью изменяемых восстановителей базового уровня, режектора наложений, автоматической компенсации “полюса нулем”, корректировки баллистического дефицита, определения максимума импульса, измерения и хранения спектра.

Качество оцифровки импульса зависит от тактовой частоты аналогово-цифрового преобразователя и от количества разрядов АЦП. В настоящее время применяются 14-разрядные АЦП со временем

преобразования от 100 до 20 нс (тактовая частота 10-50 МГц). Вход АЦП не закрывается на время преобразования, как это имело место в АЦП прежних конструкций – оцифровывается все, что поступает на вход. Вся дальнейшая обработка выполняется микропроцессором по заложенному в него алгоритму, причем отдельные параметры обработки могут быть изменены по команде оператора из управляющей программы.

**Цифровой фильтр.** Выходной сигнал предусилителя, вызванный поглощением одного гамма-кванта с энергией  $E_x$  в детекторе, показан на рис. В1.10 в виде ступеньки с амплитудой  $V_x$  (если рассматривать более длинную временную шкалу, то эта ступенька будет экспоненциально снижаться до базового уровня). Таким образом, определение энергии гамма-кванта  $E_x$  требует измерения ступеньки напряжения  $V_x$  при шумах усилителя  $\sigma$ .

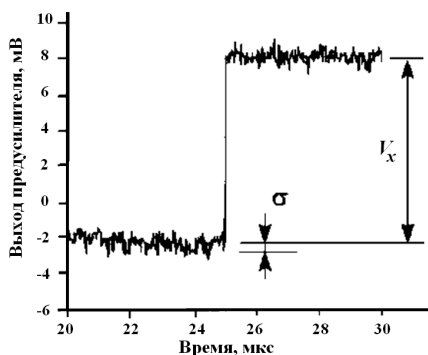


Рис. В1.10. Выходной аналоговый сигнал предусилителя:  
 $\sigma$  – среднеквадратичное значение шума;  $V_x$  – ступенька напряжения на выходе предусилителя

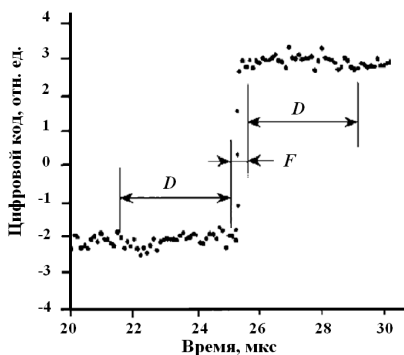


Рис. В1.11. Оцифровка выходного сигнала предусилителя:  
 $D$  – диапазон суммирования;  $F$  – длительность переднего фронта импульса

Шумовые эффекты в электрических измерениях снижаются фильтрацией. Традиционные аналоговые фильтры используют различные комбинации одной дифференциальной ступени и несколь-

ких интегральных ступеней с тем, чтобы преобразовать выходные сигналы предусилителя в треугольные или полугауссовские.

Цифровая фильтрация происходит несколько иным образом. Здесь сигнал уже преобразован в цифровую форму, не является более непрерывным, а представляет собой строку дискретных значений, как показано на рис. В1.11. В данном случае время одного преобразования составляло 100 нс. Имея эту цифровую строку и какой-нибудь арифметический процессор, очевидный подход к определению напряжения  $V_x$  состоит в нахождении некоего среднего значения для точек перед ступенькой и вычитания этой величины из среднего значения для точек после этой ступеньки. Таким образом, как показано на рис. В1.11, средние значения вычисляются для двух диапазонов "D" (диапазон "F" пропускается, поскольку в его пределах сигнал слишком быстро меняется), и разница этих средних значений используется для определения напряжения  $V_x$  из следующего уравнения:

$$V_i = \sum_i^{\text{после}} w_i \cdot V_i - \sum_i^{\text{перед}} w_i \cdot V_i, \quad (\text{B1.4})$$

где значения весовых констант  $w_i$  определяют тип усреднения.

Основные различия между цифровыми преобразователями состоят в том, какая система весовых множителей  $w_i$  используется и каким образом выбраны диапазоны усреднения при расчетах по уравнению (B1.4). Например, если весовые множители уменьшаются с удалением от ступеньки, то уравнение (B1.4) работает как «выступообразный» фильтр. При постоянных весовых множителях, уравнение B1.4 действует как треугольный (если диапазон "F" очень короткий и им можно пренебречь) или трапецеидальный фильтр.

Принцип, лежащий в основе действия «выступообразных» фильтров, состоит в том, что точки, расположенные вблизи ступеньки, несут основную информацию о высоте ступеньки и поэтому должны участвовать в процессе усреднения с максимальными весовыми множителями. Длина фильтра, т.е. размер диапазонов "D", может быть переменной (размер диапазонов меняется от импульса к импульсу) или постоянной (размеры диапазонов одинаковы для всех импульсов).

Принцип, лежащий в основе действия фильтров с переменной длиной диапазона усреднения, состоит в том, что гамма-кванты приходят в детектор случайно и расстояния между созданными их импульсами изменяются случайным образом. Следовательно, представляется разумным максимально использовать имеющуюся информацию по приходу гамма-квантов и установить размер диапазона "D", равным расстоянию между импульсами.

В принципе, наилучшая фильтрация достигается при использовании «выступообразных» весовых множителей и изменяющемся размере диапазона "D", однако такой подход является достаточно дорогостоящим и по вычислительным затратам, необходимым для усреднения данных в режиме реального времени, и по сложности электронного оборудования, необходимого для того, чтобы генерировать нормированные наборы весовых множителей для каждого импульса.

Обычно используют иной подход, когда размер диапазона "D" фиксирован, все весовые множители  $w_i$  равны единице, а суммы, необходимые для вычисления амплитуды, рассчитываются заново для каждого импульса.

Принцип действия такого цифрового фильтра очень прост и эффективен: среднее значение, вычисленное по уравнению (B1.4), действительно дает наилучшую оценку  $V_x$  в смысле метода наименьших квадратов. Вот почему треугольная фильтрация предпочтительна при высоких скоростях обработки информации. Треугольная фильтрация с зависящим от времени размером диапазона "D" может, в принципе, достичь одновременно высокой разрешающей и высокой пропускной способности, но за счет использования значительно более сложного оборудования и за счет появления зависимости разрешающей способности от скорости счета, что неприемлемо для многих задач прецизионного анализа информации.

На практике установлено, что применение цифровых фильтров обеспечивает такую же разрешающую способность, что и наилучшие аналоговые преобразователи, но приблизительно в два раза большую пропускную способность.

**Трапецидальная фильтрация.** Результат применения цифрового трапецидального фильтра (с размером диапазона "D", равным 8

мкс, и с размером диапазона "F", равным 2,3 мкс) показан на рис. В1.12. Видно, что выходной сигнал фильтра имеет трапецеидальную форму со временем подъема  $D$ , временем плато  $F$  и со временем симметричного спада тоже  $D$ . Таким образом, полная базовая ширина импульса, которая определяет возможности фильтра по снижению шумовых эффектов, равна  $2D+F$ .

Важной характеристикой оцифрованного трапецеидального импульса является его резкий обрыв после полной базовой ширины импульса. Этот эффект можно сравнить с импульсами, профильтрованными аналоговыми системами. Такие импульсы имеют хвосты с размерами до 40 % времени подъема. Резкий обрыв импульса дает цифровому фильтру определенное преимущество в скорости счета и пропускной способности, так как уменьшает вероятность наложения импульсов.

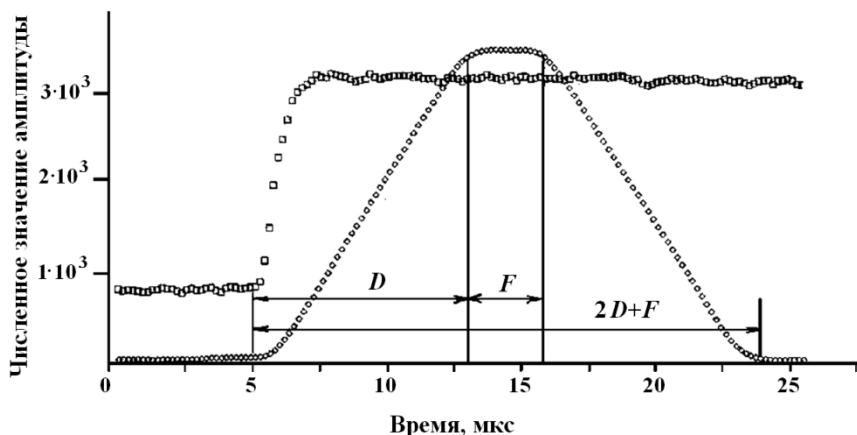


Рис. В1.12. Формирование трапецеидального импульса цифровым фильтром

В спектрометре Dspec Jr-2.0 цифровой трапецеидальный фильтр предоставляет оператору более 100 вариантов длительности фронтов импульса в пределах  $0,8 \div 23$  мкс с шагом 0,2 мкс и 20 вариантов длительности плоской вершины импульса в пределах  $0,3 \div 2,3$  мкс с шагом 0,1 мкс. Такой широкий диапазон времени формирования импульса позволяет выполнять точную оптимизацию параметров системы для получения наилучшего разрешения. Цифровой блок

позволяет выполнить необходимое точное изменение коэффициента усиления, не внося при этом никаких нелинейных искажений, характерных для аналоговых устройств.

**Режекция наложенных импульсов.** Принцип действия режектора в спектрометре Dspec Jr-2.0 показан на рис. В1.13. В программе обработки числовой информации, поступающей с амплитудно-цифрового преобразователя (линия *A*), работают одновременно два цифровых фильтра (*B* и *C*). Медленный цифровой фильтр (*B*) формирует трапецеидальный импульс, как это было описано выше (см. рис. В1.12) для определения его амплитуды. Быстрый цифровой фильтр определяет положение фронтов следующих друг за другом импульсов.

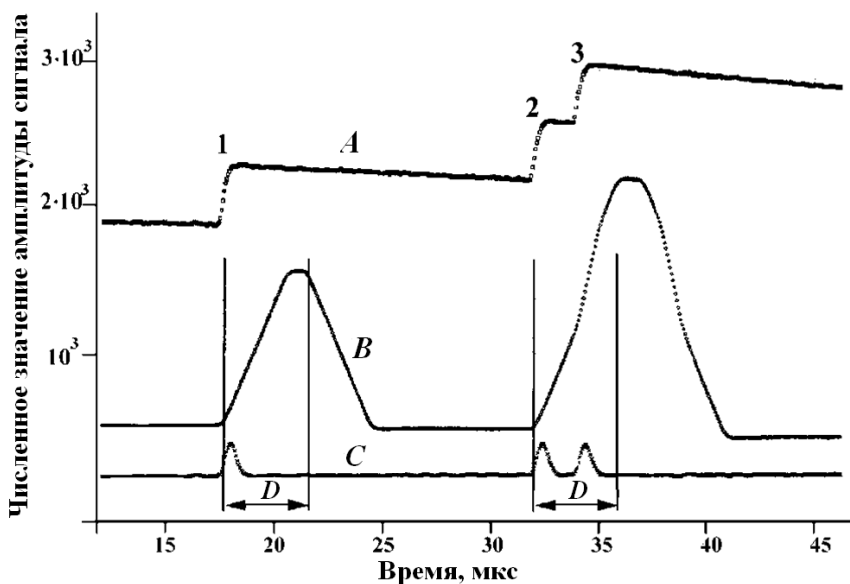


Рис. В1.13. Режекция наложенных импульсов

Если импульс 2 следует за импульсом 1 (см. рис. В1.13) с интервалом больше, чем полная ширина трапецеидального импульса, то наложения импульсов не происходит, и программа определяет амплитуду импульса 1 и заносит результат обработки в спектр.

Если временной интервал между двумя фронтами меньше полной длительности трапецеидального импульса, формируемого цифровым фильтром ( $B$ ), то такие импульсы считаются наложенными. В этом случае возможны два варианта. Если наложение произошло на задний фронт импульса, т.е. интервал между фронтами импульсов больше интервала ( $D$ ), то первый импульс обрабатывается, а второй исключается из обработки. Если произошло наложение на передний фронт импульса, то из обработки исключаются оба импульса. Режектор наложений позволяет разрешать пары импульсов, следующих с интервалом не менее 0,5 мкс. Если импульсы следуют друг за другом с меньшим интервалом, то они регистрируются как один импульс с суммарной амплитудой.

**“Мертвое время” цифрового спектрометра.** Управляющая программа дает информацию о скорости поступления импульсов на вход цифрового АЦП и о величине “мертвого времени” системы. По мере увеличения скорости счета увеличивается число импульсов, отброшенных режектором наложений. При величине “мертвого времени” 50 % половина всех поступивших на вход импульсов оказывается исключенными режектором. Осуществляя режекцию наложенных импульсов, цифровой спектрометр автоматически продлевает время измерения на интервал, равный суммарной длительности наложенных импульсов. Таким образом, при одной и той же интенсивности источника “мертвое время” будет различным для разной длительности импульса, формируемого в цифровой системе. Более короткому импульсу будет соответствовать меньшее “мертвое время”, но энергетическое разрешение спектрометра оказывается несколько хуже, так как время формирования не будет оптимальным с точки зрения разрешения.

Для учета “мертвого времени” существуют различные методы:

- 1) используются аппаратные возможности, т.е. работа по “живому времени”, когда поправка на “мертвое время” вносится самим АЦП;
- 2) одновременно с измеряемым образцом ставят на детектор источник гамма-излучения известной интенсивности;
- 3) подмешивают в спектр периодические сигналы с постоянной частотой и постоянной амплитудой (метод генераторного пика).



Для способов 2 и 3 сигналы, поступающие с генератора или градуированного источника, отбрасываются режектором наложений с той же вероятностью, как и сигналы от гамма-квантов измеряемого образца. Измерив образовавшийся в аппаратурном спектре пик (генераторный пик или пик полного поглощения калиброванного источника), определяют поправку “мертвое время”.

Эти способы хорошо работают в том случае, когда интенсивность излучения образца мало изменяется за время измерения. Если за время измерения загрузка спектрометра заметно изменяется, то ни один из этих методов не даст правильного значения поправки для всех измеряемых нуклидов в спектре.

В связи с этим в спектрометре  $D_{\text{спес}}$  предусмотрена возможность работы с нулевым “мертвым временем”. Принцип работы этой система состоит в том, что поправки на “мертвое время” в набранный спектр вносятся непосредственно в процессе измерения. По окончании времени измерения в памяти спектрометра находятся два спектра, один из которых не содержит поправок, а второй – исправленный с учетом постоянно изменяющегося “мертвого времени”.

***Компенсация полюса нулем.*** Результаты измерений в интервале времени между импульсами используются микропроцессором для стабилизации базовой линии и для автоматической “компенсации полюса нулем”.

Задний фронт входного импульса предусилителя представляет собой экспоненциально спадающую функцию, поэтому, когда в процессе обработки массива чисел цифровой фильтр выходит на задний фронт импульса, разность сумм чисел в диапазоне  $D_2$  и  $D_1$ , становится отрицательной (рис. В1.14). Таким образом, происходит смещение нулевой линии между импульсами. Если следующий импульс с детектора придет раньше, чем нулевая линия достигнет нулевого значения, то этот импульс регистрируется с меньшей амплитудой. В спектре это будет выглядеть как появление “хвостов” в левой части пиков. Данный эффект эквивалентен появлению отрицательных выбросов нулевой линии в усилителе-формирователе, возникающих при дифференцировании импульсов. В аналоговых схемах эта проблема решается добавлением компенсирующих резисторов в цепочку дифференцирования.

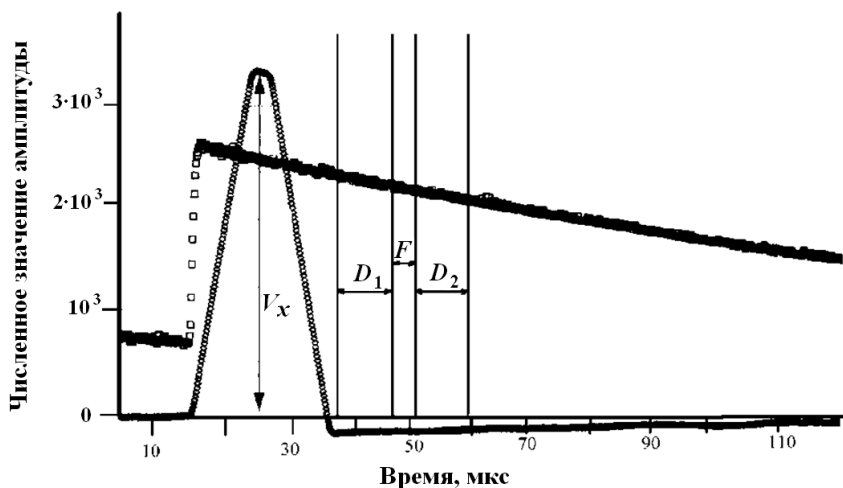


Рис. В1.14. «Компенсация полюса нулем» в цифровой системе

Программа обработки спектрометра Dspec устраняет отрицательный выброс в автоматическом режиме, рассчитав параметры спада заднего фронта импульса для выбранного пользователем времени формирования импульса и соответствующие поправки для компенсации отрицательных значений нулевой линии.

**Дополнительные функции цифровых спектрометров.** Цифровые измерительные системы предоставляют пользователю значительные удобства в работе, связанные с перенастройкой условий измерений и градуировки. Управляющая программа позволяет запоминать все необходимые параметры настройки и точно воспроизводить их при повторном включении системы.

Dspec может выполнять стабилизацию верхнего и нижнего уровней дискриминации и стабилизацию спектра в процессе измерения по двум выбранным пикам в начальных и в конечных каналах спектра в спектре излучения измеряемого образца.

Кроме этого, микропроцессор следит за функционированием отдельных частей спектрометра: стабильностью питающих напряжений, скоростью изменения высокого напряжения в момент включения и выключения спектрометра, за наличием азота в сосуде

Дьюара, за функционированием линии связи спектрометра с ЭВМ через порт USB или Ethernet.

Зарегистрированные спектры записываются в памяти ЭВМ, причем запись может быть произведена в нескольких наиболее распространенных форматах. Это обеспечивает широкие возможности применения различных программ обработки спектров.

## **Математическая обработка спектров**

Обычно, задачами обработки спектра являются определение числа отсчетов импульсов в некоторых пиках и положение их вершин. По положению вершины пика, используя результаты градуировки спектрометра, определяют энергию излучения и его принадлежность определенному нуклиду.

По числу отсчетов в пике какого-либо нуклида определяют его содержание в образце, а измерение относительной интенсивности пиков разных нуклидов дает информацию об изотопном или элементном составе образца. При этом используют рекомендованные справочные данные (квантовые выходы излучений, периоды полураспада радионуклидов) и данные об эффективности детектора, которые получают из измерений с градуировочным источником. Современным источником справочных данных является библиотека NUDAT 2.5 BNL.

Рекомендованные значения вырабатывают путем сбора данных, полученных разными авторами, их оценки и определения средней величины. К рассмотрению привлекают все опубликованные данные, полученные разными методами, в разное время, в разных лабораториях. Нередко применяют экспертную оценку, учитывающую авторитет отдельных лабораторий. Как правило, распределение включенных в рассмотрение результатов относительно среднего, в отличие от распределения результатов обычных повторных измерений, не является нормальным (гауссовым). Принято считать его равномерным.

Для того чтобы определить массу ЯМ в образце или содержания в нем определенного изотопа по результатам измерения абсолютного значения интенсивности определенного излучения, необходимо выполнить тщательный анализ возможных источников систематических погрешностей и принять меры для их устранения. Для

этого требуется прецизионная измерительная система и высококвалифицированный персонал. Все методы абсолютных измерений можно сделать относительными, если градуировку приборов и установок осуществить с помощью стандартных образцов (СО). По мере возрастания роли методов неразрушающего контроля расширяется использование стандартных образцов и образцовых источников измерений для градуировки и ведения контроля за работой аппаратуры (за стабильностью, разрешающей способностью и др.).

**Стандартные образцы и источники.** Для неразрушающих измерений ЯМ требуется градуировка аппаратуры, проводимая с применением СО: аттестованных справочных материалов (CRM) или рабочих справочных материалов (WRM). Их применение обеспечивает единство измерений и сопоставимость с государственной системой измерений. Считают, что физические свойства СО известны в абсолютных значениях благодаря применяемой технологии изготовления, документирования и контроля. «Истинные» параметры СО обычно определяют с помощью разрушающих методов.

Свойства СО должны в достаточной степени приближаться к свойствам исследуемого образца. С помощью СО определяют связь между откликом прибора и исследуемой характеристикой ЯМ. Если результаты неразрушающих анализов линейно связаны с характеристикой ЯМ, то для калибровки требуется 3-5 СО, если связь не линейная – требуется большее количество СО во всем диапазоне изменения характеристики. Важно отметить, что погрешность аттестации СО и градуировочных источников дает вклад в результаты последующих измерений, поэтому точность аттестации должна быть много выше заданной точности результата измерений контролируемых образцов.

CRM изготавливают из ЯМ, обладающих высокой чистотой и имеющих хорошую химическую стабильность. Эти СО находятся на вершине иерархии справочных материалов. Во многих случаях вместо CRM могут быть использованы более доступные WRM. Например, СО растворов плутония всегда изготавливают и аттестуют непосредственно на производственных объектах.

Для градуировок гамма-спектрометров используют комплекты образцовых источников (ОСГИ), включающие  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,

$^{60}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и др., испускающие излучения в диапазоне энергий 26-2734 кэВ. Погрешность аттестации их активности  $\leq 3\%$  при доверительной вероятности 0,99. Альфа-спектрометры градуируют с помощью образцовых источников ОСАИ.

Существуют разные способы градуировки.

1. С использованием комплекта источников, каждый из которых испускает излучение определенной энергии с известной интенсивностью.

2. С использованием одного источника, испускающего несколько излучений разной энергии с известной интенсивностью ( $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ).

3. Самокалибровка с использованием нескольких излучений, испускаемых одним радионуклидом, присутствующим в исследуемом образце.

В процессе градуировки решают ряд задач: определяют зависимость между амплитудой сигнала детектора и энергией регистрируемого излучения, определяют энергетическое разрешение спектрометра и его зависимость от энергии, определяют эффективность детектора и ее зависимость от энергии. Эти данные используют для математической обработки спектров и контроля качества измерений.

Первые два способа градуировки могут дать абсолютное значение определяемых характеристик, третий – их относительные изменения с энергией. Этот способ используют в специализированных программах обработки спектров для определения изотопного состава ЯМ (FRAM, MGA, MGAU).

***Погрешности результата измерения.*** Результаты, полученные самим оператором, могут иметь как случайную, так и систематическую погрешности. Закон их распределения относительно среднего можно исследовать и установить. Природу и величину погрешности можно определить с помощью измерения со стандартным образцом.

Для контроля за погрешностями в план эксперимента включают разные дополнительные измерения, включая повторные измерения с исследуемым образцом, измерения СО, измерения с использованием других приборов и методов и др. Следует также отметить, что по мере повышения требуемой точности измерений, растет число

факторов, влияющих на результат и вносящих существенный вклад в суммарную погрешность.

Результаты измерения числа отсчетов в пиках всегда в большей или меньшей мере искажены двумя факторами: самопоглощением излучения внутри образца и просчетами импульсов в измерительной системе. Поправку на самопоглощение обычно получают из дополнительных экспериментов с образцами разной толщины или из расчетов по методу Монте-Карло.

Как уже отмечалось, методы, применяемые для контрольных измерений ЯМ, являются не прямыми и большей частью относительными. Формулы для определения искомым величин содержат параметры, измеренные самим оператором, а также справочные данные, взятые из библиотек и паспортов, погрешности которых рассматривают как систематические.

За время, отведенное для выполнения лабораторной работы в практикуме, обычно удается проделать лишь малое число повторных измерений. Все указанные особенности необходимо учитывать при вычислении погрешности полученного результата.

Правила вычисления погрешностей измерения для государственного учета и контроля ядерных материалов содержится в ГОСТ Р ИСО 5725-1–2002 «Точность методов и результатов измерений». Поскольку задачи и методы их решений в разных работах различаются, видоизменяются и формулы, служащие для определения погрешностей получаемых результатов.

Погрешность результата измерения (а иногда и возможность регистрации эффекта) зависит от фона, создаваемого внешними источниками излучения. Источниками фона могут являться радионуклиды, содержащиеся в строительных конструкциях, или излучения установок, работающих в соседних помещениях, в том числе реактора ИРТ МИФИ.

Для защиты детекторов от внешнего фона их окружают поглощающими материалами. Слой свинца поглощает жесткое гамма-излучение, но при этом образуются рентгеновские кванты с энергией около 75 и 85 кэВ. Располагая между свинцом и детектором слои кадмия и меди, можно защитить детектор и от рентгеновского излучения свинца. Таким образом, целесообразно применять многослойную защиту, используя чистые, не содержащие радионуклидов, материалы.

Исследуемый пик может быть в большей или меньшей степени замаскирован посторонними излучениями, и для его выделения необходимо использовать соответствующую математическую модель и алгоритм. Таким образом, выбор подходящей программы обусловлен сложностью спектра. В свою очередь, применимость определенной программы для решения конкретной задачи зависит от качества измеренного спектра, которое определяется разрешающей способностью спектрометра и числом зарегистрированных импульсов.

Чтобы выделить пик исследуемого излучения, используют специальные программы математической обработки спектра, где форму пика и фонового континуума моделируют с учетом всех их особенностей, обусловленных как свойствами применяемого детектора, энергией излучений, так и геометрией измерений.

Программы обработки спектров подразделяются на универсальные (GammaVision, GENIE-2000) и специализированные (FRAM, MGA, MGAU). Универсальные программы часто выполняют дополнительные функции, включая контроль за аппаратурой и управление экспериментом. Программное обеспечение быстро развивается, происходит частая смена версий.

## Работа 1

### Основы гамма-спектрометрического метода контроля ядерных материалов

**Цель работы** – изучение метода  $\gamma$ -спектрометрического анализа, знакомство с программой обработки  $\gamma$ -спектров GammaVision, проведение градуировок, изучение эффектов, искажающих результаты измерений.

**Измерительная система** состоит из коаксиального ППД на основе особо чистого германия эффективностью 25 %, цифрового спектрометра DSPec, персонального компьютера, программного обеспечения GammaVision -32.

При выполнении лабораторной работы будут использоваться набор стандартных источников гамма-излучения ОСГИ и урановые образцы.

#### Введение

Явление радиоактивности представляет собой процесс самопроизвольного испускания веществом излучения, имеющего ядерное происхождение. Такое излучение появляется при  $\alpha$ - и  $\beta$ -превращениях атомных ядер, спонтанном делении ядер и т.д.

Число радиоактивных ядер изменяется со временем по экспоненциальному закону:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t}, \quad (1.1)$$

где  $N(t)$  – число радиоактивных ядер данного элемента в момент времени  $t$ ;  $N_0$  – число радиоактивных ядер данного элемента в момент времени  $t_0=0$ ;  $\lambda$  – постоянная распада. На практике чаще используется другая временная характеристика распада – период полураспада  $T_{1/2}$ . По определению, период полураспада – это время, в течение которого число радиоактивных ядер уменьшается в два раза. Период полураспада связан с постоянной распада следующим соотношением:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}.$$



В результате распада радиоактивных изотопов часто образуются дочерние ядра в возбужденном состоянии. Переход ядер из одного состояния в другое сопровождается испусканием  $\gamma$ -квантов с энергиями  $10^4$ - $10^6$  эВ. Их спектр дискретен, различие энергий  $\gamma$ -квантов одного перехода составляет порядка ширины уровня, т.е. не превышает нескольких долей электронвольта.

Каждое ядро имеет свою индивидуальную систему уровней и при распадах испускает свой характерный набор  $\gamma$ -квантов. Это позволяет выделять  $\gamma$ -излучение определенных нуклидов в сложных спектрах, формируемых смесями радионуклидов, например, смесью изотопов плутония или урана.

Для того чтобы гамма-квант был обнаружен, он должен взаимодействовать с материалом детектора. Существует три основных типа взаимодействия гамма-квантов с веществом: фотоэлектрическое поглощение (фотоэффект), комптоновское рассеяние и образование пары электрон-позитрон.

**Фотоэффект** представляет собой поглощение гамма-кванта атомом с испусканием одного из атомных электронов. При этом часть энергии гамма-кванта расходуется на работу по отделению электрона от атома, а оставшаяся энергия трансформируется в кинетическую энергию электрона. Вероятность фотоэффекта зависит от энергии гамма-излучения и порядкового номера атома:

$$p = C \frac{Z^{4,6}}{E^3}, \quad (1.2)$$

где  $Z$  – заряд ядра,  $E$  – энергия гамма-кванта,  $C$  – коэффициент пропорциональности.

При фотоэффекте гамма-квант теряет всю свою энергию, а возникающий импульс попадает в **пик полного поглощения**. При  $\gamma$ -спектрометрических измерениях содержание радионуклида в образце определяют по числу испускаемых им  $\gamma$ -квантов определенной энергии в единицу времени, которое прямо пропорционально площади соответствующего пика полного поглощения в полученном спектре.

**Комптоновское рассеяние** – это процесс взаимодействия гамма-кванта со свободным или слабо связанным электроном. При этом гамма-квант отклоняется на некоторый угол  $\varphi$ , а электрон получает импульс отдачи за счет убыли энергии гамма-кванта. Величина энергии рассеянного гамма-кванта зависит от угла рассеяния:

$$E' = \frac{m_0 c^2}{1 - \cos\varphi + m_0 c^2 / E}, \quad (1.3)$$

где  $m_0 c^2$  – масса покоя электрона (511 кэВ),  $\varphi$  – угол между падающим и рассеянным гамма-квантами,  $E$  – энергия падающего гамма-кванта. Рассеянный в материале детектора гамма-квант может либо покинуть детектор, либо снова рассеяться, либо поглотиться в результате фотоэффекта. В детектор попадают кванты разных энергий (излучение источника, фоновое излучение), и их комптоновское рассеяние приводит к образованию непрерывного распределения импульсов в спектре.

**Образование электрон-позитронной пары.** Гамма-кванты с энергией, превышающей 1,022 МэВ, могут создавать пары электрон-позитрон в электромагнитном поле ядра. Электрон и позитрон, образовавшиеся в результате реакции, быстро теряют энергию при движении в среде, а затем позитрон аннигилирует с испусканием двух гамма-квантов с энергиями 511 кэВ. Эти гамма-кванты могут провзаимодействовать с материалом детектора или покинуть его. В результате процесса образования электрон-позитронной пары в спектре возникает три пика. Первый – соответствует случаю, когда оба аннигиляционных гамма-кванта поглощаются в детекторе. Это взаимодействие дает вклад в пик полного поглощения. Второй – когда один из аннигиляционных гамма-квантов покидает детектор. Такое взаимодействие дает вклад в пик, с энергией на 511 кэВ ниже пика полного поглощения (пик одиночной утечки). Третий – когда оба гамма-кванта покидают детектор, взаимодействие дает вклад в пик с энергией на 1022 кэВ меньше пика полного поглощения (пик двойной утечки). С точки зрения контроля ЯМ процесс образования пар не очень важен, по-

сколькo большая часть анализируемых гамма-излучений имеет энергию ниже порога этого взаимодействия.

Возникший в образце  $\gamma$ -квант не всегда достигает поверхности детектора: он может быть поглощен внутри образца или на пути из образца в детектор, что приводит к потере отсчетов в пике полного поглощения. Поправочные коэффициенты можно получить с помощью расчетов или дополнительных экспериментов.

Другая причина, которая может исказить результат измерений, – просчеты импульсов в спектрометрическом тракте. Каждый тракт характеризуется определенным “мертвым временем” и способен пропускать без искажений ограниченное число импульсов в единицу времени. В настоящее время проблема просчетов обычно решается аппаратными средствами с использованием режима измерений по “живому” времени.

Гамма-спектрометрия ядерных материалов (ЯМ) основана на применении полупроводниковых и сцинтилляционных детекторов и соответствующей аппаратуры. Полупроводниковые спектрометры обычно используют для анализов сложных смесей радионуклидов, поскольку они обеспечивают более высокое энергетическое разрешение. Сцинтилляционные спектрометры, разрешение которых значительно хуже, но зато на порядок выше эффективность, применяют для анализов более простых спектров, например, для оперативного контроля обогащения урановых образцов.

В данной лабораторной работе рассматриваются основы гамма-спектрометрического анализа, которые, в первую очередь, включают:

- 1) градуировку спектрометрической системы по энергии;
- 2) градуировку энергетического разрешения;
- 3) градуировку по эффективности.

***Градуировка спектрометрической системы по энергии.*** Энергетическая градуировка гамма-спектрометрической системы позволяет получить соотношение между энергией зарегистрированного гамма-кванта и амплитудой образованного им импульса. Градуировка по энергии используется для определения значения энергии идентифицируемых гамма-квантов.

Градуировочная зависимость хорошей спектрометрической системы близка к линейной.

Процедура градуировки включает определение положения вершин пиков известной энергии в каналах и подгонку градуировочной функции к этим значениям. Для этого обычно используют стандартные источники гамма-излучения (типа ОСГИ).

**Энергетическое разрешение.** Полная ширина пика полного поглощения на половине высоты (ПШПВ) является характеристикой, разрешающей способности спектрометра. Она обычно приводится в единицах энергии (кэВ) для детекторов высокого разрешения, либо выражается в процентах от энергии измеряемого излучения, для детекторов низкого разрешения.

Общее разрешение спектрометра  $\Delta E$  может быть представлено формулой:

$$\Delta E = \sqrt{\text{ПШПВ}_{\text{шум}}^2 + \text{ПШПВ}_{\text{дет}}^2} = \sqrt{a + bE}, \quad (1.4)$$

где  $\text{ПШПВ}_{\text{шум}}$  – слагаемое, определяемое шумом электронного тракта;  $\text{ПШПВ}_{\text{дет}}$  – слагаемое, учитывающее флуктуацию числа носителей заряда, обусловленную статистической природой образования пар носителей заряда, рекомбинацией, захватом в ловушки и другими процессами в детекторе.

Для описания пиков используют функцию Гаусса следующего вида:

$$y(x) = y_0 \exp\left[-\frac{(x - x_0)^2}{2\sigma^2}\right], \quad (1.5)$$

где  $y(x)$  – число отсчетов в канале  $x$ ;  $y_0$  – амплитуда пика;  $x_0$  – центроида пика;  $\sigma^2$  – дисперсия.

Функция Гаусса симметрична относительно точки  $x_0$ , которая используется при энергетической градуировке. Параметр  $y_0$  является максимальным значением функции. Между параметром  $\sigma^2$  (дисперсией) и полной шириной пика на половине высоты ПШПВ справедливо следующее соотношение:

$$\text{ПШПВ} = 2\sigma\sqrt{2\ln 2} = 2,355\sigma. \quad (1.6)$$

Площадь под кривой Гаусса определяется выражением:

$$S = \sigma y_0 \sqrt{2\pi} . \quad (1.7)$$

Пики полного поглощения не повторяют точно форму кривой Гаусса. Для германиевых детекторов невысокого качества легко обнаружить эти отклонения в виде избыточного числа отсчетов на низкоэнергетической стороне пика, вызванные комптоновским рассеянием гамма-квантов на малые углы, неполным сбором заряда, рекомбинацией носителей.

Форму пика полного поглощения в спектре и его симметричность характеризует соотношение ПШПВ с шириной пика на высотах ниже, чем половина максимума, чаще всего – с полной шириной на одной десятой высоты (ПШО,1В). Значение ПШО,1В/ПШПВ < 1,9 считается соответствующим хорошей форме пика.

Величина ПШПВ определяется путем подгонки реального пика под функцию Гаусса методом наименьших квадратов. Определение параметров зависимости ПШПВ( $E$ ) проводится с использованием стандартных источников аналогично градуировке по энергии. Для проведения градуировки нужно использовать изолированные в спектре пики, измеренные с хорошей статистикой.

В цифровой системе на разрешающую способность также оказывает влияние длительность трапецеидального импульса, формируемого арифметическим фильтром. Полная длительность импульса складывается из длительности переднего и заднего фронтов и длительности плоской вершины. Увеличение ширины окна арифметического фильтра позволяет с большей точностью определять положение базовой линии и амплитуды импульса за счет большего количества суммируемых чисел, что приводит к уменьшению дисперсии в определении амплитуды импульса, т.е. уменьшению величины ПШПВ. При малых скоростях счета оптимальными являются времена подъема переднего фронта более 10 мкс.

При большой длительности импульса и высокой скорости счета часто происходит наложение импульсов, что приводит к увеличению «мертвого времени» измерительной системы. Уменьшение длительности импульса ведет к уменьшению «мертвого времени», но к увеличению ПШПВ. При настройке измерительной системы

необходимо найти компромисс между величиной “мертвого времени” и допустимым ухудшением энергетического разрешения.

**Эффективность регистрации квантов в пике полного поглощения.** Под абсолютной полной эффективностью измерительной системы понимается отношение числа отсчетов, зарегистрированных в пике полного поглощения, к числу квантов соответствующей энергии, испущенных источником за время измерения, расположенным в заданной позиции относительно детектора.

Вообще говоря, если пренебречь возможными просчетами, спектрометр регистрирует в пике полного поглощения гамма-квант, родившийся в источнике, если:

гамма-квант испущен в направлении детектора (это зависит от геометрии опыта);

гамма-квант не поглотится внутри источника (избежит самопоглощения);

не будет поглощен по пути от источника к чувствительному образцу детектора (например, в материале контейнера, в оболочке детектора);

потеряет всю свою энергию в чувствительном объеме детектора (это определяется свойствами детектора).

Таким образом, полная эффективность может быть выражена в виде произведения четырех сомножителей:

$$\varepsilon_{\gamma} = \varepsilon_{\text{геом}} \varepsilon_{\text{сп}} \varepsilon_{\text{полг}} \varepsilon_{\text{дет}}, \quad (1.8)$$

где  $\varepsilon_{\text{геом}}$  – геометрический фактор, представляет собой долю фотонов, испущенных в направлении детектора;

$\varepsilon_{\text{сп}}$  – вероятность гамма-кванту не поглотиться внутри образца.

$\varepsilon_{\text{сп}}$  представляет собой величину, обратную поправке на самопоглощение в образце ( $K_{\text{сп}}$ );

$\varepsilon_{\text{полг}}$  – вероятность гамма-кванту не поглотиться по пути от источника к детектору в промежуточных материалах (таких как фильтры, стенки контейнера и т.д.);

$\varepsilon_{\text{дет}}$  – собственная эффективность детектора, представляет собой отношение числа гамма-квантов, зарегистрированных в пике полного поглощения, к числу гамма-квантов, попавших в детектор.

Эффективность изменяется в зависимости от энергии гамма-квантов  $\varepsilon_{\gamma} = f(E_{\gamma})$ . Эту зависимость получают с помощью изме-

рения эффективности для ряда энергий, а затем подгонки соответствующей функции к экспериментальным точкам.

Для определения эффективности проводят измерения стандартных образцов. Абсолютная эффективность регистрации  $\gamma$ -излучения с энергией  $E_i$  определяется по формуле:

$$\varepsilon_i = S_i / (tAI_i), \quad (1.9)$$

где  $S_i$  – площадь пика с данной энергией,  $t$  – время измерения,  $A$  – активность СО на момент измерения,  $I_i$  – квантовый выход данного гамма-излучения.

Далее, по рассчитанным значениям эффективности  $\varepsilon_i$  с помощью метода наименьших квадратов строят зависимость  $\varepsilon_\gamma = f(E_\gamma)$ .

Данный метод определения эффективности подразумевает, что геометрия измерений и самопоглощение для стандартных и исследуемых образцов будут одинаковыми. На практике, самопоглощение часто различается, в этих случаях вносят поправку, которую можно определить **методом измерения пропускания**.

**Определение поправки на самопоглощение гамма-излучения в образце методом измерения пропускания.** При условии плоской геометрии измерений поправку на самопоглощение вычисляют по формуле:

$$K_{\text{сп}} = \frac{1}{\varepsilon_{\text{сп}}} = \frac{\mu_l \cdot x}{[1 - \exp(-\mu_l \cdot x)]} = \frac{-\ln(T)}{(1-T)}, \quad (1.10)$$

где  $\mu_l$  – линейный коэффициент ослабления в образце гамма-квантов с данной энергией;  $x$  – толщина образца;  $T$  – пропускание пучка гамма-квантов внешнего источника через образец:

$$T = \frac{N}{N_0} = \exp(-\mu_l \cdot x), \quad (1.11)$$

где  $N_0$  – число гамма-квантов внешнего источника, попавших на образец;  $N$  – число гамма-квантов внешнего источника, прошедших через образец.

Этот метод не требует предварительных сведений о составе и плотности образца.

**Активность исследуемого образца** находят по следующей формуле:

$$A_{\text{обр}} = \frac{S_{\text{обр}}}{(t_{\text{обр}} I_{\gamma} \varepsilon_{\gamma})} \cdot \frac{K_{\text{сп}}^{\text{обр}}}{K_{\text{сп}}^{\text{ст}}}, \quad (1.12)$$

где  $S_{\text{обр}}$  – площадь пика с данной энергией в спектре излучения исследуемого образца,  $t_{\text{обр}}$  – время измерения спектра,  $I_{\gamma}$  – квантовый выход данного гамма-излучения;  $\varepsilon_{\gamma}$  – полная эффективность регистрации гамма-квантов с данной энергией, рассчитанная по измерению со стандартным образцом;  $K_{\text{сп}}^{\text{обр}}$ ,  $K_{\text{сп}}^{\text{ст}}$  – поправки на самопоглощение излучения с данной энергией для исследуемого и стандартного образцов.

## Порядок выполнения работы

Работа 1 – первая работа, выполняемая в практикуме. Студенты впервые знакомятся с аппаратурой и программным обеспечением. Поэтому инструкция к этой работе максимально детализирована. Приобретенный навык используется при выполнении всех последующих работ.

### 1. Выбор оптимального времени формирования импульса

1. Загрузите программу **GammaVision** с помощью иконки на рабочем столе компьютера. В меню программы **Acquire**→**MCB properties**→**Amplifier-2** установите время подъема переднего фронта импульса 2 мкс. Запустите измерение спектра источника  $^{60}\text{Co}$ . Выполните автоматическую компенсацию полюса нулем, нажав кнопку **Pole Zero** → **Start**. Остановите набор спектра. Очистив память анализатора, проведите измерение спектра  $\gamma$ -излучения  $^{60}\text{Co}$  в течение 2 мин. Выделите в спектре линию с энергией 1332 кэВ и определите ее ПШПВ. Результат измерения ПШПВ и величину “мертвого времени” спектрометра занесите в табл. 1.1.

2. Повторите измерения для длительностей переднего фронта импульса, указанных в табл. 1.1, всякий раз выполняя процедуру компенсации полюса нулем. Определите оптимальную длитель-



ность переднего фронта по результатам измерения ПШПВ и “мертвого времени”.

3. В меню программы **Acquire→МСВ-properties→Amplifier-2** установите выбранное значение время подъема переднего фронта импульса и проведите компенсацию полюса нулем.

Таблица 1.1

*Зависимость величины ПШПВ от времени формирования импульса*

Длительность переднего фронта, мкс							
ПШПВ, канал							
«Мертвое время», %							

## 2. Градуировка измерительной системы с помощью стандартного $\gamma$ -источника $^{152}\text{Eu}$

Проведите измерение спектра излучения  $^{152}\text{Eu}$  (данные о  $\gamma$ -излучении представлены в приложении 1 табл. П1.1). Для этого установите время измерения 20 мин. После очистки информации запустите набор спектра иконкой или командой **Acquire→Start**, дождитесь окончания измерения и сохраните спектр с данным именем командой **File→Save**.

### 2.1. Создание градуировочной библиотеки нуклидов

В программе используются несколько библиотек нуклидов для разных задач. В базе данных программы имеется библиотека **Calib** с типичными нуклидами для градуировки.

1. Выберите **Library→Select File→Calib→Open**. Этим вы сделаете библиотеку **Calib** текущей рабочей.

2. Выберите **Library**→**Edit**→**GammaVision Editor**. Появится окно с нуклидами и их линиями, которые содержатся в текущей библиотеке. Оцените, соответствует ли текущая библиотека градуировочному источнику  $^{152}\text{Eu}$ . Можно удалить лишний нуклид, подсветив его и нажав кнопку **Cut**.

3. Для добавления нуклида к библиотеке откройте меню левым верхним квадратиком окна и выберите из меню **Show Master Library**, а затем любую большую по размеру библиотеку, например, **Suspect** и нажмите кнопку **Open**.

4. Подсветите нужный нуклид в окне большой библиотеки слева и нажмите кнопку **Insert** в окне создаваемой библиотеки. Перенесите таким образом в создаваемую библиотеку все нужные нуклиды и закройте большую, а затем создаваемую библиотеку с подтверждением о сохранении изменений.

В итоге набор нуклидов в библиотеке должен совпадать с набором нуклидов в градуируемом спектре.

## 2.2. Градуировка спектрометра

### 2.2.1. Градуировка по энергии и форме пика

После сохранения спектра стандартного  $\gamma$ -источника  $^{152}\text{Eu}$ .

1. Выберите **Calibrate**→**Energy**. Появятся три окна **Energy**, **Energy Table**, **Calibr**. В окне **Calibr** откройте меню в левом верхнем квадратике и выберите **Destroy**. Этим уничтожается предыдущая градуировка. Если начать градуировку без уничтожения предыдущей, то существующая градуировка пополнится новыми точками. Выбери команду **Auto Calibrate** для проведения автоматической градуировки по энергии и по ПШПВ.

2. Проверьте ход кривой ПШПВ от энергии. Для этого вызовите график и таблицу этой зависимости, пометив соответствующее поле в окне **Calibr**. Кривая должна иметь положительную первую и вторую производную во всей рабочей области. Если некоторые экспериментальные точки значительно отстоят от кривой, их следует убрать из рассмотрения, пометив в таблице и нажав кнопку **Delete Energy**. При этом происходит пересчет хода кривых без учета удаленных точек.

3. По результатам проведенных градуировок заполните табл. 1.2.

4. Сохраните изменения в новом файле градуировки с запоминающимся именем.

Таблица 1.2

*Результаты градуировки спектрометра*

№	Номер канала	$E_{\gamma}$ , кэВ	ПШПВ, кэВ	S, имп.	$\delta S$ , %	$\epsilon_{\gamma}$	$\delta \epsilon_{\gamma}$ , %
1							
2							
...							
<i>n</i>							

### 2.2.2. Градуировка по эффективности

1. Чтобы начать градуировку по эффективности выберите **Calibrate**→**Efficiency** и удалите предыдущую градуировку командой **Destroy** из меню, появляющегося при нажатии левой верхней кнопки окна. При этом градуировка по энергии остается текущей.

2. Выберите первый пик для градуировки с помощью, например, окна **Pulse Hate Analysis**, стрелок в области **Peak** и кнопки **Info**. Убедитесь, что энергия пика появилась в окне энергии окна **Calib** и нажмите кнопку **Calc**. Появится окно информации об источнике. Заполните это окно, используя информацию из сертификата источника. Нажмите кнопку **Calculate Efficiency**→**OK**. При этом вычисленное значение эффективности появится в таблице и на графике. Повторите процедуру для всех пиков, которые желаете использовать в возрастающей по энергии последовательности. После обработки всех пиков выберите **Polinomial Mode** в окне **Calibr**.

3. Для сохранения таблицы градуировки по эффективности нажмите **Save** в окне **Calibr**, дайте имя файлу, нажмите **Save** и закройте процедуру градуировки.

4. Сохраните полную градуировку (энергия и эффективность) в формате **.clb**. Этот файл может быть вызван в любой момент для анализа любых образцов, соответствующих градуировочному образцу. Для сохранения выберите **Calibrate**→**Save Calibration**→**Save**→**OK**, дав файлу запоминающееся имя.

### 2.2.3. Обработка спектра

1. Для определения площади пиков, присутствующих в спектре, откройте диалоговое окно задания параметров анализа **Analyze→Settings→Sample Type**. Выберите раздел диалога **Sample**.

2. Нажмите **Browse**, чтобы выбрать библиотеку нуклидов (**Nuclide Library**), которая была создана для анализа градуировочного образца. Нажмите **Browse**, чтобы выбрать **Calibration** – градуировку, которая была создана в процессе измерений образцового источника. Уберите отметки **Internal** из окошек для градуировки и библиотеки нуклидов.

3. Выберите **Analyze→Entire Spectrum in Memory**. В результате обработки спектра получите протокол, содержащий исходные параметры и результаты вычислений.

4. Перепишите из протокола площади пиков  $^{152}\text{Eu}$  и их погрешность в табл. 1.2. По формуле (1.9) рассчитайте значения  $\varepsilon_\gamma$  и занесите их в табл. 1.2.

### 3. Определение активности неизвестного источника (из набора ОСГИ)

1. После того, как преподаватель поставит неизвестный источник на детектор, установите время измерения 3 мин. Запустите набор спектров иконкой или командой **Acquire→Start** после очистки информации, дождитесь окончания и сохраните спектры с данным именем командой **File→Save**.

2. Опираясь на данные из табл. III.1, определите, какому радионуклиду принадлежит измеренный спектр.

3. Создайте рабочую библиотеку нуклидов, в которой будут только нуклиды, содержание которых будет оцениваться. Ее создание аналогично созданию библиотеки для градуировки. После наполнения ее нужными нуклидами сохраните ее с уникальным именем при помощи команды **Save Library As**.

4. Откройте диалоговое окно задания параметров анализа **Analyze→Settings→Sample Type**. Выберите раздел диалога **Sample**.

5. Нажмите **Browse**, чтобы выбрать **Nuclide Library**, которая была создана для анализа образца. Нажмите **Browse**, чтобы вы-

брать **Calibration**, которая была создана в процессе измерений образцового источника. Уберите отметки **Internal** из окошек для градуировки и библиотеки нуклидов.

6. Выберите **Analyze→Entire Spectrum in Memory**. В результате обработки спектров получите протокол, содержащий исходные параметры и результаты вычислений.

7. Полученный результат сравните с паспортными данными на источник.

#### 4. Влияние эффектов самопоглощения гамма-излучения в образцах

Данный эксперимент выполняется в два этапа. На первом по результатам измерения пропускания излучения внешнего источника определяется линейный коэффициент ослабления для энергии 185,7 кэВ в металлическом уране для заданной геометрии. На втором – определяются удельные интенсивности гамма-излучения нескольких образцов из естественного металлического урана разной толщины с учетом поправки на самопоглощение.

В качестве внешнего источника гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ используется двуокись урана с обогащением 90 %, напыленная на алюминиевую подложку диаметром 18 мм.

1. Поместите источник из обогащенного урана на детектор. Наберите спектр собственного гамма-излучения урана в течение 1÷2 мин. Определите число отсчетов в пике  $U^{235}$  с энергией 185,7 кэВ ( $N_0$ ) в единицу времени. Результат запишите в табл. 1.3 (здесь и далее результаты измерения представляются с погрешностью).

2. Под источник подложите металлическую урановую фольгу №1. Наберите суммарный спектр от источника и фольги. Результат измерения запишите в таблицу.

3. Уберите источник из обогащенного урана и проведите измерение только с фольгой из естественного урана в течение 2-3 мин. Результат измерения числа отсчетов в пике энергией 185,7 кэВ запишите в табл. 1.3.

4. Повторите измерения с фольгами различной толщины из естественного урана.

Таблица 1.3

Результаты измерения числа отсчетов в пике 185,7 кэВ в опытах с внешним источником и урановыми фольгами разной толщины

№	Масса фольги, г	Толщина фольги, мм	Суммарная скорость счета в пике 185,7 кэВ от источника и фольги, имп/с	Скорость счета в пике 185,7 кэВ от фольги ( $N_i^\phi$ ), имп/с	Скорость счета в пике 185,7 кэВ от источника ( $N_i$ ), имп/с
	0	0			
1					
2					
...					
$n$					

Постройте график зависимости логарифма пропускания гамма-излучения источника (см. формулу (1.11)) от толщины подложенных под него фольг. Рассчитайте значение линейного коэффициента ослабления гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ в металлическом уране.

Рассчитайте удельную интенсивность гамма-излучения урановых фольг без учета и с учетом поправок на самопоглощение. Результаты запишите в табл. 1.4. Проанализируйте полученные значения и сделайте вывод о корректности расчета поправок  $K_{\text{сп}}^i$ .

Таблица 1.4

Скорость счета в пике 185,7 кэВ, отнесенная на единицу массы урановых фольг без учета и с учетом поправки на самопоглощение

Масса образца, г	Скорость счета в пике на единицу массы урановых фольг без учета самопоглощения ( $N_i^\phi / m_i$ ), имп/с г	Скорость счета в пике на единицу массы урановых фольг с учетом самопоглощения ( $N_i^\phi K_{\text{сп}}^i / m_i$ ), имп/с г

## Отчет о работе

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Заполненные табл. 1.1–1.4.
2. Значение оптимальной длительности переднего фронта импульса (задание 1).
3. Градуировочный график зависимости  $E_\gamma(N_{\text{кан}})$ .
4. Градуировочный график зависимости ПШПВ( $E_\gamma$ ).
5. Градуировочный график зависимости  $\varepsilon_\gamma(E_\gamma)$ , построенный по данным табл. 1.2.
6. График зависимости логарифма пропускания гамма-излучения источника от толщины подложенных под него фольг.
7. Результаты расчетов линейного коэффициента ослабления гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ в металлическом уране.
8. Выводы по результатам, представленным в табл. 1.4.
9. Заключение.

## Вопросы к работе 1

1. В результате каких процессов  $\gamma$ -кванты регистрируются в пике полного поглощения?
2. Как изменяется измеренный спектр  $\gamma$ -излучения при увеличении объема Ge-детектора?
3. Зависит ли “мертвое время” измерительной  $\gamma$ -спектрометрической системы от вида исследуемого спектра (от набора пиков)?
4. Как будет отличаться соотношение между пиками 185,7 кэВ и 1001 кэВ в спектрах  $\gamma$ -излучения образцов металлического урана и  $\text{UO}_2$  с одинаковыми размерами и обогащением?
5. Почему и как различается энергетическое разрешение Ge-детекторов с одинаковой толщиной и разной площадью чувствительной поверхности?

## Работа 2

### Основы альфа-спектрометрического метода контроля ядерных материалов

**Цель работы** – изучение возможностей измерения спектров  $\alpha$ -излучения с помощью Si(Au)-детекторов.

#### Аппаратура:

пассивный ионно-имплантированный планарный Si(Au)-детектор  $\alpha$ -излучения;

$\alpha$ -спектрометр в едином блоке, включающий в себя предусилитель, усилитель-формирователь, амплитудный дискриминатор, вакуумную камеру для размещения детектора и измеряемых образцов, источники низковольтного питания и высоковольтного питания детектора;

плата анализатора импульсов на 2048 каналов, установленная на шину персонального компьютера с управляющей программой *Maestro*;

форвакуумный насос.

Радиоактивный распад с испусканием  $\alpha$ -частиц происходит в двух группах элементов: нуклиды тяжелее свинца и редкоземельные элементы с числом нейтронов  $> 84$ . Данные о некоторых из них приведены в табл. 2.1. Спектры  $\alpha$ -частиц, испускаемых при радиоактивных распадах, дискретны. Энергии  $\alpha$ -частиц лежат в диапазоне 4–7 МэВ.

Для измерений  $\alpha$ -спектров чаще всего применяют полупроводниковые Si(Au)-детекторы. Эти детекторы работают при комнатной температуре и имеют удовлетворительную разрешающую способность. Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц зависит от площади чувствительной поверхности детектора и от расстояния между детектором и измеряемым образцом. Площадь чувствительной поверхности может достигать 1500 мм<sup>2</sup>. Разрешающая способность больших детекторов хуже, чем малых из-за увеличения электрической емкости детектора и роста токов утечки. В настоящее время серийно производятся пассивные ионно-имплантированные планарные кремниевые (PIPS) детекторы  $\alpha$ -излучения. Их активная



площадь составляет от 300 до 1200 мм<sup>2</sup>, а энергетическое разрешение – от 17 до 37 кэВ соответственно.

Таблица 2.1

*Ядерные данные некоторых α-излучающих нуклидов*

Нуклид	$T_{1/2}$ , лет	$E_{\alpha}$ , кэВ	$I_{\alpha}$ , %
<sup>232</sup> Th	1,4·10 <sup>10</sup>	3953	22
		4010	77
<sup>233</sup> U	1,6·10 <sup>5</sup>	4784	15
		4824	84
<sup>234</sup> U	0,25·10 <sup>6</sup>	4723	28
		4775	71
<sup>235</sup> U	7,1·10 <sup>6</sup>	4368	15
		4396	55
<sup>238</sup> U	4,5·10 <sup>9</sup>	4150	23
		4198	77
<sup>238</sup> Pu	87,70	5456	28
		5499	72
<sup>239</sup> Pu	2,4·10 <sup>4</sup>	5106	11
		5144	15
		5156	73
<sup>240</sup> Pu	6,56·10 <sup>3</sup>	5124	27
		5168	73
<sup>242</sup> Pu	0,37·10 <sup>6</sup>	4856	24
		4901	76
<sup>241</sup> Am	432,7	5443	13
		5486	85
<sup>226</sup> Ra	1,6·10 <sup>3</sup>	4602	5,5
		4785	94,5
<sup>244</sup> Cm	18,1	5763	23
		5805	77

Высокая стабильность и практически полное отсутствие внешнего фона позволяют проводить длительные измерения с источниками малой активности. При попадании α-частиц в кремниевый детектор образуется электрический заряд в несколько миллионов носителей и формируется импульс с большой амплитудой, слабо размываемый шумами электроники и статистическими флуктуациями заряда. Пики в α-спектрах, измеренных с помощью по-

лупроводниковых кремниевых детекторов, обычно имеют величину ПШПВ=15÷30 кэВ, что позволяет решать некоторые практические задачи, но не обеспечивает полного разделения всех пиков, регистрируемых в  $\alpha$ -спектрах образцов плутония из-за малого различия энергий некоторых  $\alpha$ -частиц.

Альфа-частицы быстро теряют энергию при взаимодействии с атомами среды. Их пробеги в твердых веществах малы и составляют несколько микрометров. На пути от точки образования  $\alpha$ -частицы до ее поглощения в чувствительном слое детектора она теряет энергию в материале самого источника, в защитной пленке источника, при взаимодействии с молекулами воздуха между источником и детектором, в «мертвом» слое входного окна детектора. Все это влияет на энергетическое распределение  $\alpha$ -частиц, поступающих в измерительную систему, деформирует спектр. Чтобы минимизировать деформацию  $\alpha$ -спектра, готовят образец в виде тонкого слоя равномерной толщины анализируемого препарата и закрепляют его на полированной подложке.

Альфа-частицы, попадающие в детектор под разными углами, теряют разное количество энергии, поэтому пики в  $\alpha$ -спектре приобретают «хвосты» со стороны нижних энергий. Чтобы выровнять пробеги  $\alpha$ -частиц в мертвых слоях, увеличивают расстояние между источником и детектором или устанавливают коллиматор с большим количеством тонких отверстий, пропускающий только те частицы, которые летят перпендикулярно к поверхности детектора.

При близком расположении к детектору источника без защитной пленки возникает опасность загрязнения поверхности детектора атомами отдачи, вылетающими из источника при  $\alpha$ -распаде и при спонтанном делении ядер. Указанный эффект можно устранить применением защитных пленок на поверхности образца и подачей небольшого напряжения между образцом и детектором.

Контроль содержания  $^{238}\text{Pu}$  в плутонии и в материалах, содержащих плутоний, является важной задачей. Этот нуклид требует особого внимания, являясь источником тепла, нейтронов и гелия. Например, в образце, содержащем 0,15 %  $^{238}\text{Pu}$ , на его долю приходится почти 25 % суммарной  $\alpha$ -активности. Соотношение пиков в спектре  $\alpha$ -излучения плутония определяется его изотопным составом, который зависит от условий облучения ядерного топлива, ти-

па реактора, длительности облучения и др. Концентрация  $^{238}\text{Pu}$  может изменяться от 0,002 % до 3 % и более. При малых содержаниях  $^{238}\text{Pu}$  единственным надежным методом его контроля является  $\alpha$ -спектрометрия. Чтобы устранить мешающий измерениям  $^{238}\text{Pu}$  фон от  $^{241}\text{Am}$ , применяют предварительную химическую очистку образца от америция. Интервал между очисткой и измерением стремятся сделать минимальным. Для единичного анализа на производстве требуется всего несколько минут на приготовление источника из очищенной фракции плутония и приблизительно 10 минут на измерение и обработку  $\alpha$ -спектра.

Ширина пиков в измеренном  $\alpha$ -спектре зависит не только от разрешающей способности спектрометра, но и от некоторых искажающих факторов.

Альфа-частицы теряют часть энергии внутри источника и в покрывающей его защитной пленке. Для  $\alpha$ -частиц с энергией 6 МэВ потери составляют около 0,2 кэВ/(мкг/см<sup>2</sup>). Из-за этих потерь уменьшается энергия вылетающих из источника  $\alpha$ -частиц и увеличивается их разброс по энергии, пики уширяются и сдвигаются в сторону низких энергий, у них появляются длинные “хвосты”. Для изготовления  $\alpha$ -источников с тонким и равномерным слоем радиоактивного вещества применяют разные способы: испарение в вакууме, катодное или лазерное напыление и др. Чтобы уширение пиков не превосходило 10 кэВ, слой вещества не должен быть больше 5-10 мкг/см<sup>2</sup>. Материалом для подложек служит хорошо отполированная нержавеющая сталь или стекло.

Альфа-частицы могут терять энергию в результате взаимодействий с молекулами воздуха в пространстве между источником и детектором, поэтому источник и детектор помещают в вакуумную камеру.

Искажение формы пиков усложняет математическую обработку  $\alpha$ -спектров. В таких случаях нужно использовать специальные вычислительные программы, в которых пики аппроксимируются асимметричными гауссианами.

Изотопное отношение  $R_{8/9} = {}^{238}\text{Pu}/{}^{239}\text{Pu}$  в образце можно вычислить следующим образом. Активность радиоактивного изотопа  $A$  пропорциональна числу ядер в образце  $N$  и его постоянной распада  $\lambda$ , т.е.  $A = N \cdot \lambda$ .

Площадь пика в спектре  $\alpha$ -излучения пропорциональна активности образца, времени измерения  $T_{\text{изм}}$  и эффективности регистрации  $\alpha$ -частиц  $\epsilon$ :

$$S = A \cdot T_{\text{изм}} \cdot \epsilon.$$

Если принять во внимание, что  $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ , то числа отсчетов в пиках  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$  можно записать как:

$$S_8 = N_8 \cdot (\ln 2 / T_{1/2}^8) \cdot T_{\text{изм}} \cdot \epsilon_8,$$

$$S_9 = N_9 \cdot (\ln 2 / T_{1/2}^9) \cdot T_{\text{изм}} \cdot \epsilon_9.$$

Если принять эффективности регистрации  $\alpha$ -частиц  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$  одинаковыми, то изотопное отношение  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  можно рассчитать по формуле:

$$R_{8/9} = (N_8 / N_9) = (S_8 / S_9) \cdot (T_{1/2}^8 / T_{1/2}^9),$$

где  $S_8$  – измеренное число отсчетов в сумме пиков  $^{238}\text{Pu}$ ;  $S_9$  – измеренное число отсчетов в сумме пиков  $^{239}\text{Pu}$ ;  $T_{1/2}^8$  и  $T_{1/2}^9$  – периоды полураспада изотопов  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ .

Данная лабораторная работа основана на использовании  $\alpha$ -спектрометра фирмы ORTEC с управляющей программой “Maestro” на персональном компьютере. Для проведения экспериментов используется набор образцовых спектрометрических  $\alpha$ -источников (ОСАИ), (табл. 2.2).

Таблица 2.2

*Активности  $\alpha$ -источников*

№ п/п	Изотопы	Номер источника	Активности, кБк	Дата аттестации
1	$^{238}\text{Pu}$	1388	48,5	18.12.89
2	$^{238}\text{Pu}$	1396	39,3	10.11.89
3	$^{239}\text{Pu}$	1388	3,59	18.12.89
4	$^{226}\text{Ra}$	1388	38,8	18.12.89
5	$^{226}\text{Ra}$	1396	41,1	10.11.89
6	$^{233}\text{U} + ^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu}$	1470	35,1	18.12.89
7	$^{233}\text{U} + ^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu}$	1485	37,6	10.11.89
8	$^{241}\text{Am} + ^{244}\text{Cm}$	А1К4-1	10,0	25.07.08
9	$^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu}$	2061	25,7	20.10.99
10	$^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu}$	2062	9,36	20.10.99

## Порядок выполнения работы

### 1. Подготовка спектрометра к измерениям:

включите питание на измерительном блоке и на персональном компьютере;

запустите управляющую программу “Maestro” в режим связи с измерительным блоком;

установите время измерения 2-3 мин (по указанию преподавателя).

### 2. Определение оптимального напряжения на детекторе, обеспечивающего наилучшее разрешение:

поместите источник  $^{239}\text{Pu}$  из набора ОСАИ на 4-5 полочку измерительной камеры;

откачайте воздух из камеры в течение 1-2 мин с помощью форвакуумного насоса, повернув вакуумный кран в положение PUMP. О наличии вакуума можно судить по показаниям вакуумметра;

поверните вакуумный кран в положение HOLD;

установите напряжение на детекторе 3 В;

запустите измерение. Убедитесь в том, что происходит набор спектра на экране монитора;

по окончании набора спектра выделите с помощью «мыши» зону  $\alpha$ -пика и определите положение максимума, ширину пика на половине высоты (ПШПВ) с помощью команд *Mark ROI* и *Peak Info*;

результаты измерения занесите в табл. 2.3;

рассчитайте значения относительного энергетического разрешения спектрометра (ПШПВ)/Е. Результаты расчета занесите в табл. 2.3;

повторяйте измерения для напряжений, указанных в табл. 2.3 до тех пор, пока разрешение спектрометра не начнет ухудшаться или в течение двух-трех измерений будет оставаться постоянным;

установите напряжение на детекторе, соответствующее наилучшему энергетическому разрешению.

Таблица 2.3

*Зависимость ПШПВ спектрометра от напряжения на детекторе*

$U$ , В	$E$ , кэВ	ПШПВ, кэВ	ПШПВ/ $E$
5			
10			
20			
...			
80			

Оптимальное напряжение на детекторе составляет \_\_\_\_\_ В.

### 3. Градуировка энергетической шкалы спектрометра

Градуировка энергетической шкалы заключается в получении зависимости положения вершины пика на шкале спектрометра от энергии  $\alpha$ -частицы. Для градуировки следует использовать источник, содержащий несколько хорошо разрешенных  $\alpha$ -линий, или источник, состоящий из смеси нескольких изотопов:

поверните вакуумный кран в положение Open. Откройте крышку вакуумной камеры и установите в нее источник, содержащий два изотопа:  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ ;

поверните вакуумный кран в положение PUMP и откачайте воздух из камеры в течение 1-2 мин;

наберите спектр от установленного источника в течение 3-5 мин;

используя данные табл. 2.1 об энергиях  $\alpha$ -частиц и их выходах на распад, отградуируйте шкалу спектрометра по двум любым пикам с помощью опции Calibration в управляющей программе, предварительно удалив существующую градуировку;

проверьте правильность градуировки по третьему пику, определите его энергию с помощью маркера.

### 4. Исследование влияния расстояния источник-детектор на форму и положение пика:

поместите в камеру на верхнюю полочку источник  $^{239}\text{Pu}$  и откачайте воздух;

наберите спектр от этого источника в течение 1 мин;

по окончании набора спектра определите положение максимума пика, полуширину на половине максимума и на  $1/5$  максимума, как это было сделано в пункте 2;

результаты измерения занесите в табл. 2.4;

рассчитайте значения энергетического разрешения спектрометра (ПШПВ)/ $E$ . Результаты расчета занесите в таблицу;

откройте камеру и переставьте источник на одну полочку ниже. Повторите измерение в течение 2 мин;

рассчитайте значения энергетического разрешения спектрометра (ПШПВ)/ $E$  для нового положения источника, результаты измерений и расчета занесите в таблицу;

повторяйте измерения, постепенно удаляя источник от детектора и одновременно увеличивая время измерения;

после проведения измерений на нижней полочке установите источник в верхнее положение, поместив на него коллиматор. Выполните измерения с коллиматором.

Таблица 2.4

*Зависимость энергетического разрешения от расстояния между детектором и источником*

Номер полочки	$E$ , кэВ	ПШПВ, кэВ
1		
2		
4		
6		
10		
Коллиматор		

Объясните полученные результаты.

## **5. Изучение влияния уровня давления воздуха в камере на форму и положение пика:**

поверните вакуумный кран в положение *Open*, откройте крышку вакуумной камеры, снимите коллиматор и установите источник  $^{239}\text{Pu}$  на третью полочку;

наберите спектр при половине атмосферного давления в камере в течение 2-3 мин;

значение величин энергии и ПШПВ занесите в табл. 2.5;  
откачайте воздух из камеры до 1/10 атмосферного давления и повторите измерения;  
повторяйте измерения для величин давления воздуха, указанных в таблице.

Таблица 2.5

*Изменение положения пика в спектре и энергетического разрешения от давления воздуха в камере*

Давление воздуха, %	$E$ , кэВ	ПШПВ, кэВ
10		
5		
2		
1		

Объясните полученные результаты.

#### **6. Влияние толщины источника на параметры $\alpha$ -спектра:**

установите в измерительную камеру источник из набора ОСАИ, откачайте воздух из камеры;

наберите спектр этого источника в течение 3 мин. Зарисуйте форму одного из пиков в набранном спектре;

откройте камеру и замените источник на аналогичный из другого набора ОСАИ;

откачайте воздух, выполните такое же измерение с этим источником. Зарисуйте форму того же пика из второго спектра;

определите по форме пиков, какой из источников имеет большую толщину.

#### **7. Влияние толщины защитной пленки на параметры $\alpha$ -спектра:**

установите в измерительную камеру источник  $^{239}\text{Pu}$  из набора ОСАИ, откачайте воздух из камеры;

наберите спектр этого источника в течение 2-3 мин. Определите, насколько отличаются энергия  $\alpha$ -пиков изотопов  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$  в набранном спектре от табличных значений;

повторите измерения с другими источниками, содержащими  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Результаты измерений запишите в табл. 2.6.



Сравните полученные значения энергий  $\alpha$ -пиков в разных спектрах. Определите по полученным результатам, какой из источников имеет самую толстую и самую тонкую защитную пленку.

Таблица 2.6

*Зависимость параметров измеренного спектра от толщины защитной пленки*

Источник	$^{238}\text{Pu}$		$^{239}\text{Pu}$	
	$E_{\text{изм}}, \text{кэВ}$	$E_{\text{изм}} - E_{\text{табл}}, \text{кэВ}$	$E_{\text{изм}}, \text{кэВ}$	$E_{\text{изм}} - E_{\text{табл}}, \text{кэВ}$
1				
2				
3				
4				

### 8. Определение эффективности регистрации $\alpha$ -частиц:

установите на четвертую полочку измерительной камеры источник, содержащий изотоп плутония  $^{238}\text{Pu}$ ;

наберите спектр от этого источника в течение 3 мин;

с помощью программы Maestro рассчитайте суммарное количество отсчетов в пиках, принадлежащих  $^{238}\text{Pu}$ ;

по приведенной в табл. 2.2 активности источника рассчитайте эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц для использованной геометрии измерений. Результаты измерений запишите в табл. 2.7;

повторите измерение с источником  $^{239}\text{Pu}$ . По суммарной скорости счета в пиках  $^{239}\text{Pu}$  и полученной величине эффективности регистрации  $\alpha$ -частиц рассчитайте активность источника  $^{239}\text{Pu}$ .

Таблица 2.7

*Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц*

Источник	Активность источника, Бк	Скорость счета от источника, имп/сек	Эффективность
$^{238}\text{Pu}$			
$^{239}\text{Pu}$			

**9. Идентификация радионуклидов по спектру их  $\alpha$ -излучения:**

наберите спектр неизвестного источника в течение 3-5 мин;  
определите энергии пиков в спектре и их площади. Результаты измерений занесите в табл. 2.8;

используя данные библиотеки нуклидов JEFPC, идентифицируйте нуклиды данного источника.

Таблица 2.8

*Идентификация нуклидов неизвестного источника*

Номер п/п	Энергия пика в спектре, кэВ	Площадь пика	Нуклид	Энергия пика по библиотеке нуклидов
1				
2				
3				
4				
5				
6				

Напишите схему распада неизвестного нуклида.

**10. Определение изотопного соотношения:**

установите в измерительную камеру источник, содержащий два изотопа плутония  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ ;

наберите спектр от этого источника в течение 3-5 мин;

с помощью программы Maestro рассчитайте суммарное количество отсчетов в пиках, принадлежащих  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Результаты запишите в табл. 2.9;

рассчитайте изотопное отношение  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  в образце.

Таблица 2.9

*Определение изотопного соотношения*

Изотоп	$S$ , имп	$T_{1/2}$ , лет	$R_{8/9} = N_8/N_9$
$^{238}\text{Pu}$			
$^{239}\text{Pu}$			

## Отчет о работе

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Заполненные таблицы с результатами измерений.
  2. Анализ результатов измерений по каждому пункту лабораторной работы.
  3. Графики зависимости ПШПВ и скорости счета в пике от расстояния между источником и детектором.
  4. Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц и измеренную активность источника.
  5. Изотопное соотношение  $^{238}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  с погрешностью.
  6. Схему распада неизвестного нуклида.
  7. Заключение.
- Все результаты представляются с погрешностями.

## Вопросы к работе 2

1. От чего зависит величина ПШПВ  $\alpha$ -пиков в спектре?
2. Перечислите факторы, искажающие спектр  $\alpha$ -излучения.
3. Что происходит с регистрируемым  $\alpha$ -спектром при увеличении толщины образца?
4. Как выглядит спектр источника  $\alpha$ -излучения бесконечной толщины?
5. Как влияет диаметр и количество отверстий в коллиматоре на величину ПШПВ?
6. Можно ли измерить  $\alpha$ -спектр от образца, содержащего кроме  $\alpha$ -излучателей продукты деления?
7. Как устроен Si(Au)-детектор? Почему этот полупроводниковый детектор работает при комнатной температуре?
8. Можно ли определить относительную концентрацию  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{240}\text{Pu}$  в плутониевом образце с помощью  $\alpha$ -спектрометрии?

## Работа 3

### Определение неоднородностей топливного столба в твэлах методом гамма-сканирования

**Цель работы** – изучение метода  $\gamma$ -сканирования твэлов, определение обогащения топлива, контроль дефектов твэлов.

Самым распространенным типом ядерного топлива является двуокись урана. Тепловыделяющие элементы (твэлы) реакторов представляют собой трубки из циркония (РБМК, ВВЭР) или стали (БН), заполненные таблетками из спрессованного, спеченного и специально обработанного  $UO_2$ . Плотность таблеток  $UO_2$  составляет около  $10 \text{ г/см}^2$ , что примерно в два раза меньше, чем у металлического урана. В процессе облучения топлива в пористой структуре  $UO_2$  аккумулируются газообразные продукты деления (криптон, ксенон), что замедляет процессы их выхода под оболочку твэла и набухания топлива. В результате становится допустимым глубокое выгорание топлива, что улучшает экономику реактора.

Твэлы из  $UO_2$  изготавливают путем набивки таблеток в трубки в перчаточном боксе. Согласно требованиям учета и контроля ЯМ, паспортные данные о количестве и обогащении  $UO_2$  в сфабрикованных твэлах необходимо подтвердить измерениями (выходной контроль на производстве твэлов, входной контроль на производстве ТВС). Также необходим технологический контроль за однородностью топливного столба внутри твэлов. Неоднородности могут возникать из-за неплотного прилегания таблеток друг к другу (зазоры) или случайного попадания в столб таблеток с другим обогащением урана. В локальных объемах вблизи неоднородностей происходят возмущения нейтронного потока, ведущие к температурным возмущениям и образованию “горячих” точек. Появление таких точек может привести к возникновению аварийных ситуаций, например пережогу твэлов с выходом радиоактивности в теплоноситель.

Стремление к росту глубины выгорания ведет к увеличению обогащения топливных таблеток. Для профилирования нейтронного поля используют для набивки твэлов таблетки с разным обога-

щением. В итоге может возникать путаница, растет опасность появления твэлов, состав которых не соответствует заданному.

Для контроля топливного столба в сфабрикованных твэлах применяют неразрушающие методы анализа. Из них чаще всего используют  $\gamma$ -сканирование твэлов. Один из вариантов анализа состоит в следующем. Измеряют спектр гамма-излучения, испускаемого определенным участком твэла. В спектре присутствуют пики с энергиями 185,7 кэВ и 1001,0 кэВ, интенсивность которых характеризует содержание  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в топливе.

По относительной интенсивности этих излучений можно судить о величине обогащения уранового топлива. Поглощение излучения внутри таблеток и в оболочке твэла влияет на результат определения относительной интенсивности указанных излучений. Влияние этих процессов можно устранить, если провести дополнительное измерение со стандартным твэлом (твэл с известным обогащением и аналогичной конструкцией). Тогда относительное содержание  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в исследуемом твэле можно определить из следующего соотношения:

$$\frac{N_{235}}{N_{238}} = \left( \frac{N_{235}}{N_{238}} \right)_{\text{ст}} \cdot \frac{S_{185}}{S_{1001}} \cdot \left( \frac{S_{1001}}{S_{185}} \right)_{\text{ст}}, \quad (3.1)$$

где  $\left( \frac{N_{235}}{N_{238}} \right)_{\text{ст}}$  – обогащение топлива стандартного твэла;  $S_{185}$ ,  $S_{185, \text{ст}}$  скорости счета в пиках с энергией 185,7 кэВ в спектрах исследуемого и стандартного твэлов;  $S_{1001}$ ,  $S_{1001, \text{ст}}$  – те же величины для излучения 1001 кэВ.

В настоящей работе используются макеты дефектных твэлов типа РБМК и ВВЭР с разным обогащением и соответствующие макеты стандартных твэлов. Дефектные твэлы наряду со стандартными таблетками  $\text{UO}_2$  содержат таблетки другого обогащения и имитаторы пустот (рис.3.1.).






-  – таблетка основного обогащения;
-  – дефект – таблетка с обогащением, отличным от основного;
-  – дефект – полость.

Рис. 3.1. Макет твэла типа ВВЭР

Система сканирования состоит из устройства перемещения твэла относительно щели коллиматора и полупроводникового коаксиального Ge-детектора  $\gamma$ -излучения. Применение коллиматора с регулируемой шириной щели обеспечивает возможность измерений с необходимым линейным разрешением (детектор “видит” только участок твэла, ограниченный щелью) при подходящей загрузке спектрометрического тракта. Таким образом, с помощью гамма-сканирования можно обнаружить и установить природу дефекта, определить его размер.

Принципиальная схема измерительной системы представлена на рис. 3.2. В приложении 4 содержится инструкция по работе с устройством для сканирования твэлов.

### Порядок выполнения работы

1. С помощью стандартного  $\gamma$ -источника  $^{152}\text{Eu}$  (см. табл. П1.1) проведите градуировку спектрометрической системы по энергии. Время измерения – 10-15 мин.

2. Измерение отношения  $(S_{185}/S_{1001})_{\text{ст}}$ , необходимого для дальнейшего определения обогащения топлива исследуемых твэлов. Проведите измерение спектра излучения стандартного твэла в трех точках. В каждом спектре определите отношение площадей пиков  $S_{185}/S_{1001}$  и вычислите среднее значение этого соотношения. Время каждого измерения – 5-10 мин.

3. Проведение серии измерений с целью поиска дефектов в исследуемом твэле. Шаг перемещения твэла 10 мм. Время каждого измерения – 3-5 мин (согласовать с преподавателем). Результаты измерений на расстоянии  $> 20$  мм от дефектов служат для вычисления отношения  $S_{185}/S_{1001}$ , характерного для материала твэла, и для определения обогащения топлива.

4. Вблизи от мест расположения дефектов в исследуемом твэле проведите подробные измерения с малым шагом перемещения (3-5 мм) с целью исследования размера дефектной части и ее природы (полость или таблетка с другим обогащением). В последнем случае вычисляют  $(S_{185}/S_{1001})_{\text{деф}}$  и определяют обогащение нештатной таблетки.

### **Отчет о работе**

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Градуировочный график зависимости  $E_{\gamma}(N_{\text{кан}})$ .
  2. Результаты расчета среднего отношения  $(S_{185}/S_{1001})_{\text{эт}}$  по результатам трех измерений эталонного твэла.
  3. Результаты определения обогащения топлива исследуемого твэла.
  4. Выводы по результатам анализа дефектов топливного столба: размеры дефектных областей и обогащение, если дефект – таблетка.
  5. Заключение.
- Все результаты представляются с погрешностями.

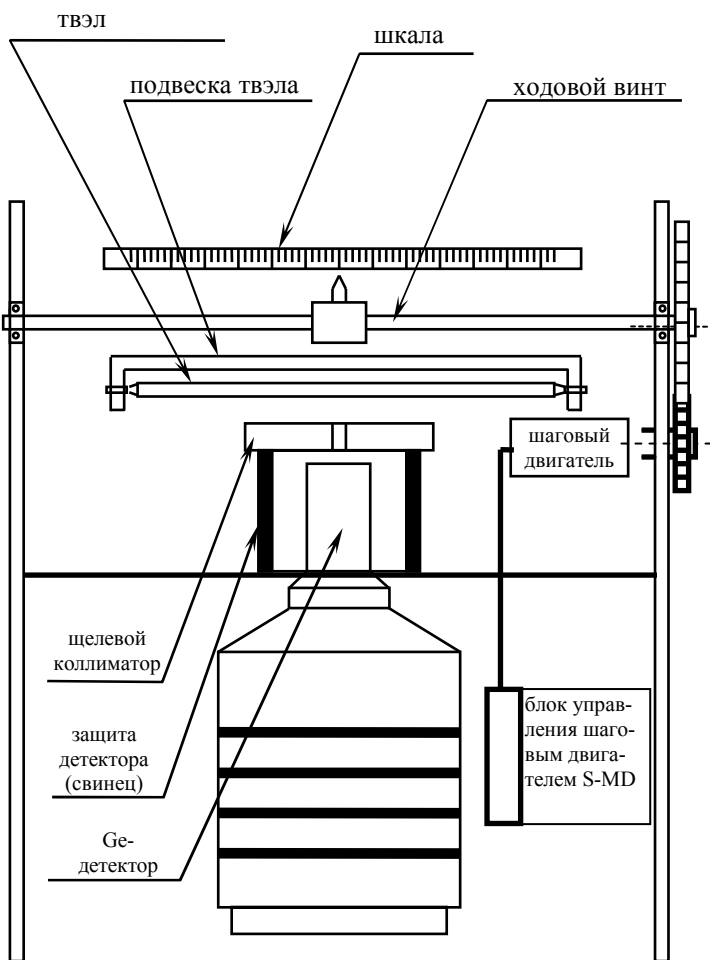


Рис. 3.2. Схема установки  $\gamma$ -сканирования ТВЭЛов



### Вопросы к работе 3

1. Каким нуклидам принадлежат пики 185,7 кэВ и 1001 кэВ в спектрах урановых образцов и почему их можно использовать для оценок содержания  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ ?

2. Можно ли для гамма-сканирования твэлов использовать NaI(Te)-спектрометр вместо германиевого?

3. Оцените толщину свинцового листа, пригодного для изготовления коллиматора для гамма-сканирования.

4. Можно ли с помощью гамма-сканирования определить длину топливного столба в твэле?

5. Какие требования следует предъявить к характеристикам стандартного твэла?

6. Надо ли вносить поправки на просчет в результаты измерений относительной интенсивности пиков 185,7 кэВ и 1001 кэВ?

7. Можно ли в данном опыте определить обогащение урана, используя только результаты измерения площади пика 185,7 кэВ?

8. Сравните разрешающую способность спектрометра при 185,7 и 1001 кэВ. Объясните разницу.

## Работа 4

### Определение концентрации ЯМ в растворах методом денситометрии на $K$ -крае поглощения (ККД)

**Цель лабораторной работы** – определение концентраций ЯМ в имитаторах водных растворов урана и тория методом денситометрии на  $K$ -крае поглощения.

Денситометрия (плотнометрия) основана на измерении пропускания коллимированного пучка квантов гамма- или рентгеновского излучения через исследуемый образец (рис. 4.1).

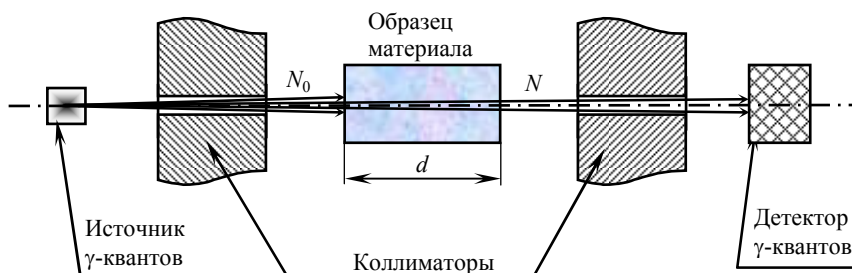


Рис. 4.1. Схема установки для денситометрии растворов ЯМ

Пропускание  $\gamma$ -излучения ( $T$ ) – это отношение числа гамма-квантов ( $N_0$ ), попавших на поверхность исследуемого образца, к числу квантов ( $N$ ), прошедших через слой материала толщиной  $d$ :

$$T = \frac{N}{N_0} = \exp(-\mu \cdot \rho \cdot d) \quad , \quad (4.1)$$

где  $\mu$  – массовый коэффициент ослабления излучения с данной энергией в данном материале;  $\rho$  – плотность или концентрация материала;  $\mu\rho$  – линейный коэффициент ослабления.

Величина пропускания определяется путем измерения интенсивности  $\gamma$ -излучения источника определенной энергии с образцом ЯМ и без него.

## Определение концентрации ЯМ в растворе с помощью источника моноэнергетического $\gamma$ -излучения

Пропускание моноэнергетического излучения позволяет определять плотность однородных веществ или концентрацию одного компонента в растворе или смеси. Рассмотрим, например, двухкомпонентную систему – раствор урана в азотной кислоте с плотностями  $\rho$  (для ЯМ) и  $\rho^m$  (для матрицы) и массовыми коэффициентами ослабления  $\gamma$ -квантов  $\mu$  и  $\mu^m$  соответственно. Пропускание моноэнергетического излучения через образец такого раствора ЯМ рассчитывается по формуле:

$$T = \exp\left(-(\mu \cdot \rho + \mu^m \cdot \rho^m) \cdot d\right). \quad (4.2)$$

После логарифмирования уравнения (4.2) формула для расчета неизвестной концентрации ЯМ в образце размером  $d$  будет выглядеть следующим образом:

$$\rho = -\left(\frac{1}{\mu d}\right) \ln T - \frac{\mu^m \rho^m}{\mu}. \quad (4.3)$$

При измерении концентрации ЯМ в растворах необходимо, чтобы состав матрицы (растворителя) был хорошо известен и постоянен. Произведение  $\mu^m \rho^m$  можно определить из уравнения (4.1), если измерить пропускание  $T_0$  через чистую матрицу, не содержащую ЯМ:

$$\mu^m \rho^m = -\ln T_0 / d. \quad (4.4)$$

Массовый коэффициент ослабления  $\mu$  для выбранной энергии источника  $\gamma$ -излучения можно взять из базы ядерных данных.

## Определение концентрации ЯМ в растворе с помощью источников $\gamma$ -излучения двух энергий

Измерение пропускания через образец излучений двух энергий дает возможность контролировать оба компонента раствора, на-

пример, концентрацию элемента с большим  $Z$  (ЯМ) в матрице с малым  $Z$ . В этом случае пропускания для двух энергий  $E_1$  и  $E_2$  можно записать в виде системы двух уравнений:

$$\begin{cases} T_1 = \exp(-(\mu_1\rho + \mu_1^m\rho^m) \cdot d); \\ T_2 = \exp(-(\mu_2\rho + \mu_2^m\rho^m) \cdot d). \end{cases}$$

После логарифмирования систему этих уравнений можно записать в виде:

$$-\ln T_1 / d = M_1 = \mu_1\rho + \mu_1^m\rho^m;$$

$$-\ln T_2 / d = M_2 = \mu_2\rho + \mu_2^m\rho^m.$$

Если известны массовые коэффициенты ослабления в ЯМ и в матрице для измеряемых излучений с энергиями  $E_1$  и  $E_2$ , то, решая эту систему уравнений относительно неизвестных  $\rho$  и  $\rho^m$ , находим искомые концентрации:

$$\rho = \frac{(M_1 \cdot \mu_2^m - M_2 \cdot \mu_1^m)}{D} \quad (\text{для ЯМ}), \quad (4.5)$$

$$\rho^m = \frac{(M_2 \cdot \mu_1 - M_1 \cdot \mu_2)}{D} \quad (\text{для матрицы}), \quad (4.6)$$

где  $D = \mu_1 \cdot \mu_2^m - \mu_2 \cdot \mu_1^m$ .

Величина  $D$  должна быть отлична от нуля. Это условие выполняется, если массовые коэффициенты ослабления двух компонентов смеси имеют существенно разные энергетические зависимости. Существует два возможных подхода к выбору энергии  $\gamma$ -излучений: либо использовать  $\gamma$ -излучения, сильно отличающиеся по энергии, либо выбрать излучения с энергиями вблизи от  $K$ -края поглощения исследуемого ЯМ (табл. 4.1).

Таблица 4.1

*Энергии  $K$ -края поглощения ЯМ*

Элемент	Th	U	Np	Pu	Am
Энергия $K$ -края поглощения, кэВ	109,65	115,61	118,68	121,82	125,03

## Денситометрия на $K$ -крае поглощения

Денситометрия на  $K$ -крае поглощения (ККД) основана на измерении коэффициентов пропускания  $\gamma$ -излучений с энергиями выше ( $E_U$ ) и ниже ( $E_L$ )  $K$ -края поглощения ( $E_K$ ) исследуемого ЯМ (рис. 4.2).

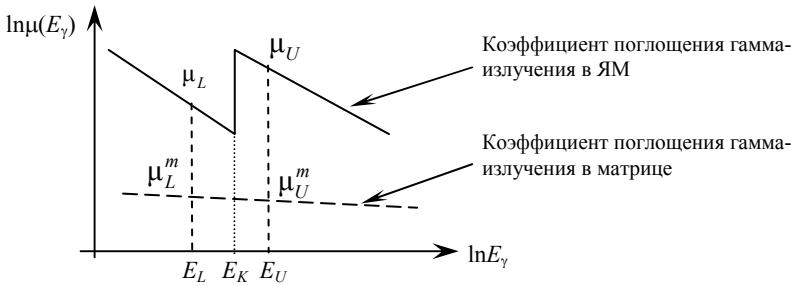


Рис. 4.2. Зависимость от энергии коэффициентов ослабления  $\gamma$ -излучения в компонентах смеси

Пропускания  $\gamma$ -излучений двух энергий через раствор ЯМ выражаются формулами:

$$\text{для энергии } E_L \text{ ниже } K\text{-края поглощения: } T_L = e^{-(\mu_L \rho + \mu_L^m \rho^m) d},$$

$$\text{для энергии } E_U \text{ выше } K\text{-края поглощения: } T_U = e^{-(\mu_U \rho + \mu_U^m \rho^m) d}.$$

Если прологарифмировать эти уравнения и вычесть из верхнего уравнения нижнее, то можно получить формулу для определения концентрации ЯМ в растворе:

$$\rho = \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) + \rho^m \cdot \left(\frac{\Delta\mu^m}{\Delta\mu}\right), \quad (4.7)$$

где  $\Delta\mu = \mu_U - \mu_L > 0$ ,  $\Delta\mu^m = \mu_L^m - \mu_U^m > 0$ .

Если использовать гамма-кванты с энергиями достаточно близкими к  $E_K$ , то величина  $\Delta\mu^m = \mu_L^m - \mu_U^m$  будет близка к нулю, и вторым слагаемым в формуле (4.7) можно пренебречь.

## Определение концентрации ЯМ в растворе с помощью стандартного образца

Метод денситометрии на  $K$ -крае поглощения не чувствителен к материалу матрицы в случае, когда энергии излучений  $E_L$  и  $E_U$  очень близки к  $E_K$ . Однако на практике достаточно сложно выполнить это условие, поэтому вклад матрицы не равен нулю (см. второе слагаемое в уравнении (4.7)). Этот вклад становится еще более значительным для малых концентраций ЯМ, или при большой разнице между  $E_L$  и  $E_U$ .

Поправка на ослабление излучения в матрице может быть определена с помощью калибровочного опыта с раствором известной концентрации  $\rho^{ст}$  в аналогичном контейнере:

$$\rho^{ст} = \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \ln\left(\frac{T_L^{ст}}{T_U^{ст}}\right) + \rho^m \cdot \left(\frac{\Delta\mu^m}{\Delta\mu}\right). \quad (4.8)$$

Если выразить  $(\rho^m \Delta\mu^m)$  из уравнения (4.8) и подставить в уравнение (4.7), то неизвестную концентрацию ЯМ в растворе можно определить по формуле:

$$\rho = \rho^{ст} + \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \left( \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) - \ln\left(\frac{T_L^{ст}}{T_U^{ст}}\right) \right). \quad (4.9)$$

Погрешность результата анализа изменяется в зависимости от концентрации ЯМ и толщины образца (рис. 4.3), а также от энергий используемых излучений и активности источников.

Чаще всего источником для ККД урановых растворов служит  $^{169}\text{Yb}$ :  $E_L=109,8$  кэВ,  $E_U=130,5$ . Для анализов плутония используют два источника:  $^{75}\text{Se}$  ( $E_L=121,1$  кэВ) и  $^{57}\text{Co}$  ( $E_U=122,06$  кэВ). В последнем случае поправка на ослабление в матрице очень мала, так как  $E_L$  и  $E_U$  очень близки, поэтому  $\Delta\mu_m$  близко к нулю.

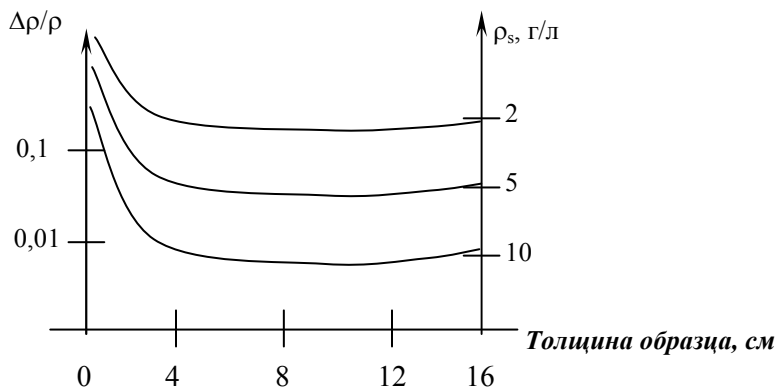


Рис. 4.3. Зависимость погрешности определения концентрации ЯМ от толщины образца

### Измерительная установка

Измерительная установка для определения концентрации растворов ЯМ методом денситометрии представляет собой массивную свинцовую конструкцию, в которой размещаются мощный источник  $^{182}\text{Ta}$ , измеряемый образец имитатор раствора, коллиматор и планарный HPGe-детектор (рис. 4.4).

Имитаторы растворов имеют цилиндрическую форму и представляют собой герметичные тонкостенные пластмассовые стаканы, заполненные слоями ЯМ (металлические фольги из естественного урана или тория) и оргстекла (имитатор воды). Длина всех образцов составляет 7,1 см. Такая конструкция позволяет получать различные концентрации ЯМ в анализируемых образцах при сохранении равномерного распределения ЯМ в объеме образца. Ослабление излучений в стенках контейнера не требует специального учета.

Для измерения коэффициентов пропускания используется источник  $^{182}\text{Ta}$  – танталовая фольга, облученная нейтронами в реакторе ИРТ МИФИ. Для определения концентрации ЯМ в образцах измеряется пропускание  $\gamma$ -квантов с энергиями 100,1 и 152,4 кэВ, испускаемых при распадах  $^{182}\text{Ta}$ . Энергии этих излучений близки к

$K$ -краю поглощения урана и тория и располагаются по обе стороны от  $E_K$  (табл. 4.1 и 4.2). Информация об используемых в данной работе массовых коэффициентах ослабления урана и тория для энергий  $\gamma$ -излучения  $^{182}\text{Ta}$  представлена в табл. 4.2.

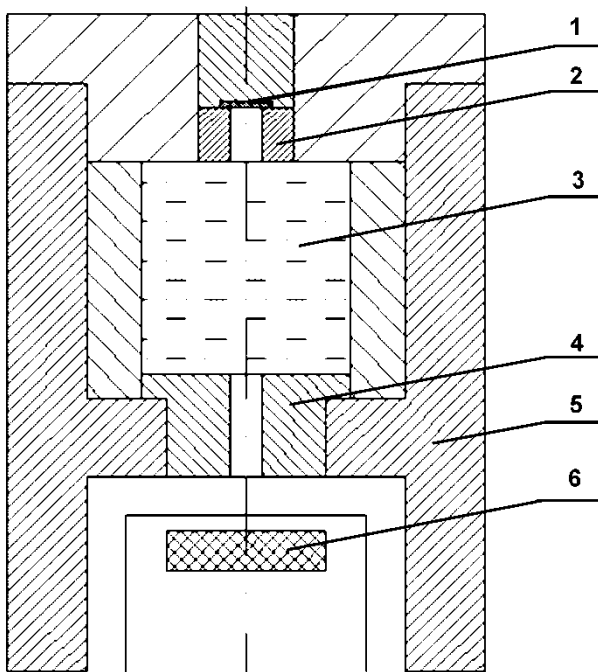


Рис. 4.4. Схема установки для денситометрии:  
 1 – источник  $^{182}\text{Ta}$ , 2 – верхний коллиматор, 3 – измеряемый образец раствора ЯМ, 4 – нижний коллиматор, 5 – свинцовая защита, 6 – планарный HPGe-детектор

Таблица 4.2

*Массовые коэффициенты ослабления урана и тория*

Энергия, кэВ	$E_L$	$E_U$
		100,1
$\mu_U, \text{см}^2/\text{г}$	1,91	2,57
$\mu_{Th}, \text{см}^2/\text{г}$	1,79	2,44



Следует учитывать, что наряду с гамма-квантами указанных энергий,  $^{182}\text{Ta}$  испускает и другие, более интенсивные и жесткие излучения, комптоновское рассеяние которых создает фон под измеряемыми пиками, увеличивая погрешность измерения.

Фоновые излучения ЯМ также могут мешать измерениям, особенно рентгеновское излучение урана 98,4 кэВ, близкое по энергии к измеряемому излучению 100,1 кэВ  $^{182}\text{Ta}$ . Для уменьшения наложений пиков, образуемых этими излучениями, требуется спектрометр с разрешением не хуже 800 эВ при 122 кэВ. С учетом требований к измерительной системе, был выбран подходящий планарный детектор с высокой разрешающей способностью и высокой эффективностью регистрации мягкого  $\gamma$ -излучения.

Большая толщина свинца в конструкции измерительной установки значительно ослабляет внешнее фоновое излучение, а также защищает участников работы в практикуме от жесткого излучения  $^{182}\text{Ta}$ .

Существуют два способа определения концентрации ЯМ в растворе путем проведения дополнительных опытов:

дополнительное измерение коэффициентов пропускания через матрицу (растворитель) излучения внешнего источника;

измерение коэффициентов пропускания через стандартный образец с известной концентрацией ЯМ.

## Порядок выполнения работы

1. Градуировка спектрометра с помощью источников из набора ОСГИ. Проведите измерение спектра гамма-излучения от нескольких источников из набора ОСГИ в течение 5-10 минут ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ). По результатам измерения проведите градуировку измерительной системы по энергии и разрешающей способности, с помощью программы *GammaVision*. Сохраните полученную градуировку.

2. Проведите измерение спектра излучения источника  $^{182}\text{Ta}$  без образца-имитатора раствора (время измерения – 3-5 мин). В полученном спектре идентифицируйте пики с энергиями 100,1 и 152,4 кэВ. Обработайте спектр с помощью программы *GammaVision* и занесите результаты определения скорости счета импульсов в пиках 100,1 и 152,4 кэВ в табл. 4.3. Эта информация необходима при

расчетах коэффициентов пропускания для всех последующих измерений.

3. Проведите измерение пропускания излучения  $^{182}\text{Ta}$  через материал матрицы (время измерения – 3-5 мин). С помощью программы *GammaVision* определите скорости счета в пиках с энергиями 100,1 кэВ и 152,4 кэВ и занесите их в табл. 4.3. Рассчитайте коэффициенты пропускания через матрицу для обеих энергий  $\gamma$ -квантов.

Таблица 4.3

*Результаты измерения с матрицей*

Энергия $\gamma$ -квантов	100,1 кэВ	%	152,4 кэВ	%
Скорость счета без матрицы				
Скорость счета с матрицей				
Коэффициент пропускания через матрицу				
$\mu^m \rho^m = -\ln T_m / d$				

Рассчитайте поправочный коэффициент, учитывающий поглощение гамма-излучения ЯМ в матрице:

$$\frac{\rho^m \Delta \mu^m}{\Delta \mu} = \frac{\mu^m \rho^m (100,1 \text{ кэВ}) - \mu^m \rho^m (152,4 \text{ кэВ})}{\Delta \mu}$$

и его погрешность. Эти данные Вам понадобятся в последующих измерениях.

4. Проведите измерения образца раствора урана с неизвестной концентрацией. С помощью программы *GammaVision* определите значения скорости счета в пиках с энергиями 100,1 кэВ и 152,4 кэВ и занесите их в табл. 4.4.

Рассчитайте концентрацию урана в исследуемом растворе без учета поглощения гамма-излучения в матрице:

$$\rho = \frac{1}{\Delta \mu \cdot d} \cdot \ln \left( \frac{T_L}{T_U} \right).$$

Рассчитайте концентрацию урана в исследуемом растворе с учетом поглощения гамма-излучения в матрице:

$$\rho = \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) + \rho^m \cdot \left(\frac{\Delta\mu^m}{\Delta\mu}\right).$$

Сравните полученные значения концентрации урана с учетом их погрешностей и сделайте вывод о значимости влияния матрицы на конечный результат.

Таблица 4.4

*Результаты измерения с неизвестным образцом раствора урана*

Энергия $\gamma$ -квантов	100,1 кэВ	%	152,4 кэВ	%
Скорость счета импульсов				
Коэффициент пропускания				

5. Проведите измерения со стандартным образцом-имитатором раствора урана. С помощью программы *GammaVision* определите значения скорости счета в пиках с энергиями 100,1 кэВ и 152,4 кэВ и занесите их в табл. 4.5. Рассчитайте коэффициенты пропускания для стандартного образца и концентрацию урана в исследуемом растворе по формуле (4.9).

Таблица 4.5

*Результаты измерения с урановым стандартом*

Энергия $\gamma$ -квантов	100 кэВ	%	152 кэВ	%
Скорость счета со стандартным раствором				
Коэффициент пропускания через стандартный раствор				

Сравните результаты определения концентрации урана двумя методами.

6. Повторите аналогичные измерения с образцами растворов тория. Результаты обработки спектров занесите в табл. 4.6 и 4.7 и рассчитайте по ним коэффициенты пропускания.

Таблица 4.6

Результаты измерения с неизвестным образцом раствора тория

Энергия $\gamma$ -квантов	100,1 кэВ	%	152,4 кэВ	%
Скорость счета импульсов				
Коэффициент пропускания				

Рассчитайте концентрацию тория в исследуемом растворе без учета поглощения гамма-излучения в матрице:

$$\rho = \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right).$$

Рассчитайте концентрацию тория в исследуемом растворе с учетом поглощения гамма-излучения в матрице:

$$\rho = \frac{1}{\Delta\mu \cdot d} \cdot \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) + \rho^m \cdot \left(\frac{\Delta\mu^m}{\Delta\mu}\right).$$

Сравните полученные значения концентрации тория с учетом их погрешностей и сделайте вывод о значимости влияния матрицы на конечный результат.

7. Проведите измерения со стандартным образцом-имитатором раствора тория. С помощью программы *GammaVision* определите значения скорости счета в пиках с энергиями 100,1 кэВ и 152,4 кэВ и занесите их в табл. 4.7. Рассчитайте коэффициенты пропускания для стандартного образца и концентрацию тория в исследуемом растворе по формуле (4.9).

Таблица 4.7

Результаты измерения с ториевым стандартом

Энергия $\gamma$ -квантов	100,1 кэВ	%	152,4 кэВ	%
Скорость счета импульсов				
Коэффициент пропускания				

Сравните результаты определения концентрации тория двумя методами.

## Отчет о работе

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Краткое описание денситометрии на  $K$ -крае поглощения/
2. Заполненные таблицы с результатами измерений.
3. Результаты расчета концентраций ЯМ в измеренных образцах.
4. Заключение.

Все результаты представляются с погрешностями.

## Контрольные вопросы к работе 4

1. Каким образом можно учесть ослабление гамма-излучения в стенке контейнера?

2. По каким критериям следует выбирать источники  $\gamma$ -излучения для денситометрии на  $K$ -крае поглощения?

3. Назовите преимущества и недостатки использования рентгеновских установок по сравнению с  $\gamma$ -источниками для проведения денситометрических анализов.

4. Какие преимущества имеет планарный детектор перед коаксиальным для ККД с  $^{182}\text{Ta}$  источником?

5. Для чего нужно коллимировать излучение источника в опытах по денситометрии?

6. Изобразите примерную зависимость вероятности ослабления гамма-излучения от его энергии для ККД растворов МОХ-топлива.

7. Применима ли денситометрия на  $K$ -крае поглощения для контроля металлических изделий, порошков, сплавов с Al?

8. Как связана погрешность ККД-анализа с величиной пропускания?

## Работа 5

### Определение концентрации ЯМ в растворах с помощью рентгено-флюоресцентного анализа (РФА)

**Цель работы** – изучение метода РФА, широко применяемого на практике для измерений концентрации ядерных материалов в растворах.

Анализ элементного состава образцов по характеристическому рентгеновскому излучению (РФА) относится к неразрушающим методам измерения состава материалов. Анализируемое вещество может находиться в разных агрегатных состояниях: твердом, жидком, газообразном, в виде порошка, пульпы и т.д. Можно анализировать образцы разных размеров, форм и видов. Можно определять содержание в образце нескольких элементов одновременно, проводить анализ в широком диапазоне концентраций растворов.

Флюоресценция (вторичное излучение атома) происходит вследствие удаления электрона с внутренней оболочки. Атом стремится вернуться в состояние с наибольшей возможной энергией связи, путем заполнения вакансии другим электроном с внешней оболочки. Переход сопровождается испусканием фотона с энергией, равной разности энергий связи на оболочках, между которыми совершается электронный переход:

$$E_{\gamma} = E_f - E_i, \quad (5.1)$$

где  $E_i$ ,  $E_f$  – начальная и конечная энергии связи электрона, испытывавшего переход,  $E_{\gamma}$  – энергия фотона, испускаемого в результате электронного перехода.

В результате многократных переходов формируется спектр характеристического излучения. Пики в спектре имеют разные амплитуды в соответствии с вероятностями электронных переходов. Энергии переходов практически не зависят от химических связей атомов. Спектры характеристического излучения достаточно просты, что облегчает их анализ.

Фотоэлектрическое поглощение  $\gamma$ -квантов атомами вещества сопровождается характеристическим рентгеновским излучением. Энергия поглощенного кванта затрачивается на освобождение

электрона и на передачу ему кинетической энергии. При этом минимальный необходимый расход энергии равен энергии связи электрона в атоме.

Вероятность возбуждения рентгеновского излучения  $K$  (или  $L$ ) серии ( $w$ ) зависит от разности между энергией квантов источника возбуждения  $E_0$  и энергией связи электронов на  $K$ -оболочке  $E_K$ :

$$w \sim 1/(E_0 - E_K)^3 \quad (5.2)$$

Вероятность возбуждения максимальна, когда энергия гамма-кванта лишь немного превышает энергию связи электрона. Эффективность возбуждения быстро падает при увеличении разности между энергией связи и энергией возбуждающего излучения.

Для возбуждения характеристического излучения используют подходящие радиоактивные источники или рентгеновские трубки. Преимущество радиоактивных источников заключается в простоте их устройства и стабильности энергии возбуждающего излучения. Спектр возбуждающего излучения должен быть как можно проще. В случае сложного спектра присутствуют "неработающие" высокоэнергетические линии, создающие фон в области пиков измеряемого рентгеновского излучения или даже интерферирующие с ними.

В табл. 5.1 представлена информация об энергии и относительной интенсивности  $K$ -серии рентгеновского излучения ЯМ.

Таблица 5.1

*Энергии и относительные интенсивности линий рентгеновского излучения  $K$ -серии Th, U, Pu*

Элемент	$K_{\alpha 1}$		$K_{\alpha 2}$		$K_{\beta 1}$		$K_{\beta 2}$	
	$E_x$ , кэВ	$I$ , %	$E_x$ , кэВ	$I$ , %	$E_x$ , кэВ	$I$ , %	$E_x$ , кэВ	$I$ , %
Th	93,33	100	89,94		105,59		104,81	
U	98,44	100	94,66	62,0	111,31	22,0	110,43	11,6
Pu	103,76	100	99,55	62,5	117,26	22,2	116,27	11,7

На рис. 5.1 показан спектр рентгеновского излучения образца уранового раствора с концентрацией 45 г/л (источник возбуждения  $^{57}\text{Co}$ ). В спектре хорошо видны наиболее интенсивные рентгеновские линии  $K_{\alpha 1}$  (94,66 кэВ) и  $K_{\alpha 2}$  (98,44 кэВ).

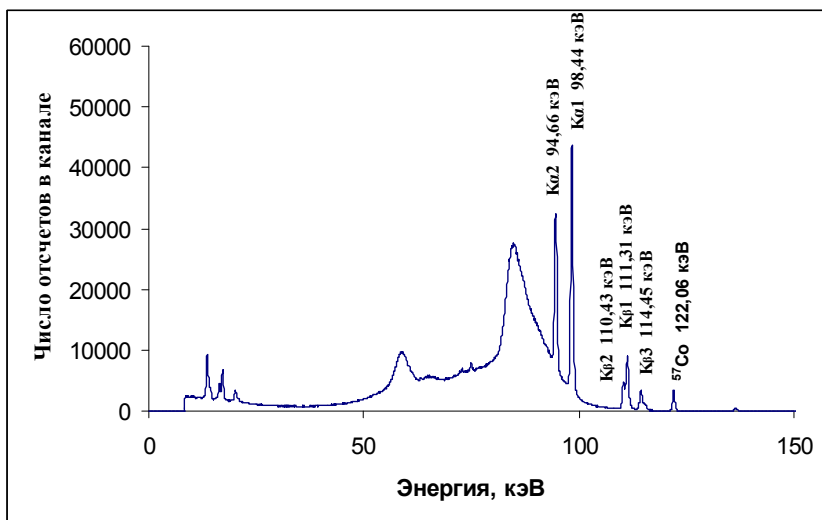


Рис. 5.1. Спектр рентгеновского излучения урана

Для успешного проведения РФА очень важен выбор геометрии измерительной системы. Основное значение имеют фотоэлектрические взаимодействия возбуждающего излучения с анализируемым материалом (атомами ЯМ). Обратное комптоновское рассеяние (широкий пик слева от  $K_{\alpha 2}$ ) может мешать измерениям, создавая значительный фон под рентгеновскими пиками при неправильном выборе геометрии измерений.

Энергия  $\gamma$ -квантов, испытавших комптоновское рассеяние, определяется формулой:

$$E' = \frac{511(\text{кэВ})}{1 - \cos\varphi + 511/E}, \quad (5.3)$$

где  $E$  и  $E'$  – энергии падающего и рассеянного  $\gamma$ -квантов соответственно,  $\varphi$  – угол между рассеянным и падающим  $\gamma$ -квантами.

Энергия  $E'$  минимальна при  $\varphi = 180^\circ$ . Кванты, рассеянные под таким углом, образуют широкий пик обратного рассеяния в измеренном спектре. Для квантов с энергией 122 кэВ, испускаемых <sup>57</sup>Со (подходящий источник для РФА урана и плутония), энергия пика обратного рассеяния равна 82,6 кэВ. Если  $\varphi = 90^\circ$ , то энергия пика рассеяния  $E'$  равна 98,5 кэВ, что мешает измерениям  $K$ -серии рент-



геновского излучения урана и плутония. Поэтому выбирают такое расположение исследуемого образца и источника, чтобы угол  $\varphi$  был максимально близок к  $180^\circ$  для рассеянных квантов, попадающих в детектор, что минимизирует фон в диапазоне измерения  $K_\alpha$ -линий.

Конструкция измерительной системы должна обеспечивать максимальную эффективность возбуждения с помощью оптимальной геометрии и компактного расположения источника, образца и детектора. При этом следует выполнять требования радиационной безопасности для участников эксперимента и минимизировать попадание первичного и рассеянного излучений источника в детектор. Чтобы стабилизировать фон измерений, относительное положение источника, образца и детектора, необходимо четко зафиксировать.

Источник  $^{57}\text{Co}$  из набора ОСГИ мал и прост в обращении. Его основной недостаток – необходимость периодической замены из-за спада активности (период полураспада  $^{57}\text{Co}$  равен 272 дням). Другой недостаток – источник мощностью 1 мКи или больше требует надежной защиты для персонала и детектора. Геометрия измерительной установки, представленная на рис. 5.2, обеспечивает защиту детектора от прямого попадания гамма-квантов от источника возбуждающего излучения  $^{57}\text{Co}$  и приемлемый уровень фона от рассеянных квантов.

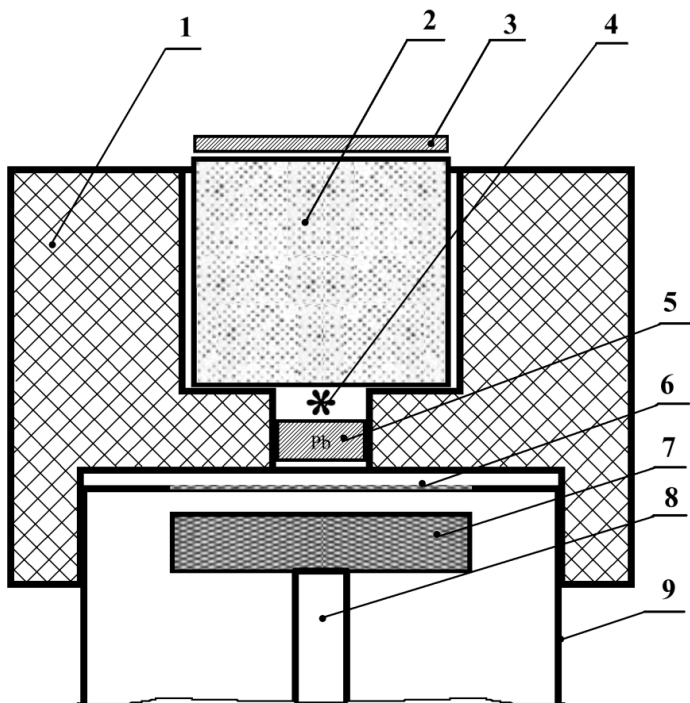


Рис. 5.2. Схема расположения образца, источника и детектора:  
 1 – подставка из оргстекла, 2 – измеряемый образец раствора ЯМ, 3 – металлическая фольга из ЯМ, 4 – источник возбуждающего излучения ( $^{57}\text{Co}$ ), 5 – свинцовая защита детектора от излучения  $^{57}\text{Co}$ , 6 – входное окно планарного HPGe-детектора, 7 – планарный HPGe-детектор, 8 – хладагент, 9 – корпус детектора

Ослабление излучений внутри образца – основная причина, ограничивающая точность РФА. Необходимо учитывать ослабление как возбуждающего излучения, так и рентгеновского излучения, возникающего в образце. Поскольку энергия возбуждающего излучения выше  $K$ -края поглощения ЯМ, а характеристического рентгеновского излучения ниже, то первое поглощается в образце сильнее (средний свободный пробег гамма-квантов с энергией 122 кэВ в воде равен 6,4 см). На рис. 5.3 показана зависимость длины свободного пробега гамма-квантов  $^{57}\text{Co}$  от концентрации ЯМ.

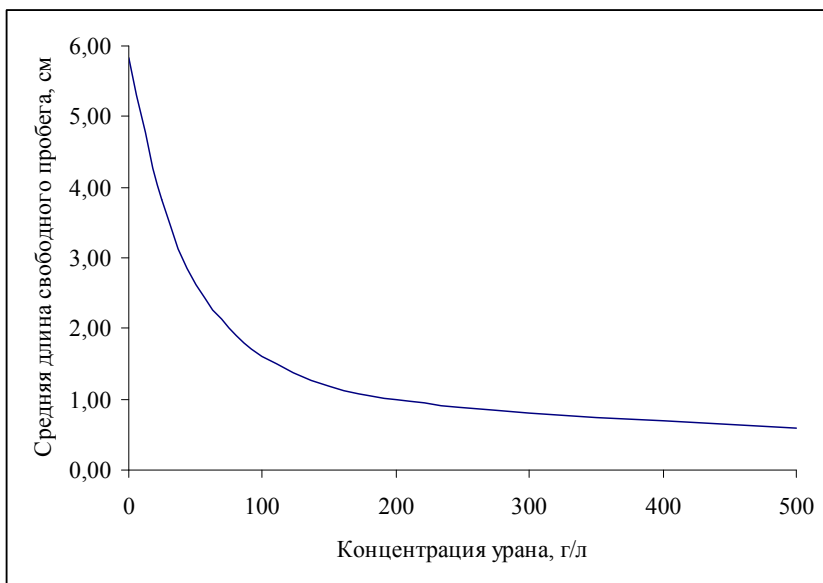


Рис. 5.3. Зависимость средней длины свободного пробега  $\gamma$ -квантов с энергией 122 кэВ от концентрации уранилнитрата в 4-молярном растворе азотной кислоты

Наиболее подходящие условия для применения РФА – анализы растворов с концентрацией ЯМ менее 100 г/л. Ослабление излучения ограничивает выбор материала контейнера для образца, однако измерения рентгеновского излучения ЯМ возможны даже при использовании металлических сосудов.

При количественном анализе содержание элемента в образце  $\rho_x$  определяется по формуле:

$$\rho_x = n_x k_k k_a, \quad (5.4)$$

где  $n_x$  – скорость счета импульсов в пике рентгеновского излучения  $K$ -серии элемента  $X$ ;  $k_k$  – калибровочный коэффициент;  $k_a$  – поправка на ослабление излучений.

Поправка  $k_a$  должна учитывать как ослабление возбуждающего излучения в образце, так и измеряемого характеристического излучения. В случае плоской геометрии и моноэнергетического возбуждающего излучения поправку  $k_a$  можно представить в виде

$$k_a = -\frac{\ln \alpha}{1 - \alpha}. \quad (5.5)$$

Величину  $\alpha$  определяют по результатам трех измерений (рис. 5.4):

$$\alpha = \frac{n_{s+f} - n_s}{n_f}, \quad (5.6)$$

где  $n_s$  – скорость счета в первом измерении с образцом раствора ЯМ;  $n_{s+f}$  – скорость счета во втором измерении с образцом и дополнительной фольгой из того же ЯМ;  $n_f$  – скорость счета в третьем измерении с фольгой и пустым контейнером.

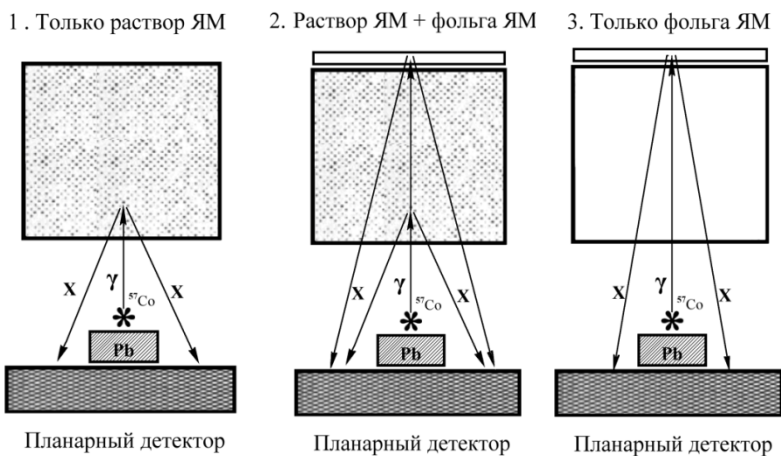


Рис. 5.4. Определение поправки на ослабление излучения

### Измерительная установка для РФА включает:

1. Планарный детектор с Ве-окном.
2. Цифровой анализатор импульсов Junior-2.0.
3. Компьютер с управляющей и обрабатывающей программой *GammaVision*.
4. Источник возбуждающего излучения  $^{57}\text{Co}$ , помещенный в обойму из оргстекла.
5. Свинцовая защита детектора и источника.

6. Образцы имитаторов растворов различных концентраций солей ЯМ из агар-агара. Эти образцы имеют относительно малую концентрацию ЯМ и сохраняют свои свойства в течение длительного времени. Образцы помещены в герметичные тонкостенные контейнеры из оргстекла.

7. Металлическая фольга из ЯМ.

8. Пустой контейнер из оргстекла.

Взаимное расположение источника  $^{57}\text{Co}$  и измеряемого образца раствора обеспечивают геометрию, при которой в детектор попадает лишь та часть излучения, которая рассеивается под углом, близким к  $180^\circ$ .

## **Порядок выполнения работы**

### **1. Градуировка энергетической шкалы спектрометра**

С рабочего стола компьютера запустите программу **GammaVision**. В меню программы **Acquire**→**MSB-properties**→**Amplifier-2** установите время подъема переднего фронта импульса 5 мкс и проведите измерение спектра от трех источников из набора ОСГИ ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$  и  $^{137}\text{Cs}$ ) в течение 5 мин. Выполните градуировку энергетической шкалы спектрометра по пикам в набранном спектре. Пронаблюдайте форму градуировочных графиков для энергии и ПШПВ.

### **2. Измерение спектра фонового излучения ЯМ**

Установите образец-имитатор раствора в заданную позицию на детектор, и в течение 5 мин проведите измерение спектра. Пики в полученном спектре идентифицируйте с помощью базы ядерных данных JEFPC.

### **3. Измерение спектра излучения источника $^{57}\text{Co}$ без образца-имитатора раствора**

Установите источник  $^{57}\text{Co}$  в заданную позицию на детектор и в течение 2 мин проведите измерение спектра. Идентифицируйте пики в полученном спектре.

По результатам измерений п.п. 2 и 3 убедитесь в том, что ни ЯМ, ни источник  $^{57}\text{Co}$  не создают пиков в области измеряемых пиков рентгеновского излучения ЯМ. Если пики есть, рассчитайте их

интенсивность и учитывайте их при обработке результатов последующих измерений.

#### 4. Определение калибровочного коэффициента

Калибровочный коэффициент  $k_k$ , связывающий скорость счета в пике  $n_x$  с концентрацией ЯМ  $\rho_x$  в образце, определяется как среднее из двух значений, полученных из измерений с двумя образцами с известной концентрацией. Для каждого образца калибровочный коэффициент рассчитывается по результатам трех измерений (см. рис. 5.4). Измерения необходимо проводить в следующей последовательности:

- 1-е измерение – образец раствора № 1 с известной концентрацией;
- 2-е измерение – образец раствора № 1 + фольга;
- 3-е измерение – фольга на пустом контейнере;
- 4-е измерение – образец раствора № 2 с известной концентрацией;
- 5-е измерение – образец раствора № 2 + фольга;
- 6-е измерение – фольга на пустом контейнере.

Время каждого измерения 5-10 мин. Результаты определения скорости счета в пике по программе *GammaVision* в каждом измерении запишите в табл. 5.2. Используя результаты расчета площадей рентгеновских пиков и формулы (5.5) и (5.6), определите поправки на ослабление и калибровочные коэффициенты для каждого из образцов.

Таблица 5.2

*Результаты измерения со стандартными образцами*

Образец	Измерение	Раствор	Раствор + фольга	Фольга	$k_a$	$k_k$
30 г/л	<i>n</i> пика					
	Погр. %					
45 г/л	<i>n</i> пика					
	Погр. %					

Рассчитайте среднее значение калибровочного коэффициента и его погрешность (СКО):  $k_k = \dots \pm \dots$

## 5. Определение концентрации раствора ЯМ в исследуемом образце

Выполните измерения с образцом раствора ЯМ неизвестной концентрации:

- 1-е измерение – образец раствора;
- 2-е измерение – образец раствора + фольга;
- 3-е измерение – фольга на пустом контейнере.

Время каждого измерения 5-10 мин. Результаты измерения скорости счета в пиках запишите в табл. 5.3.

Таблица 5.3

*Результаты измерений и определения концентрации ЯМ в неизвестном образце*

Измерение	Раствор	Раствор + фольга	Фольга	$k_a$	Концентрация раствора
Скорость счета импульсов в пике, $n$					
Погрешность, %					

Используя результаты измерения скорости счета в пиках, значение калибровочного коэффициента, полученное в предыдущих измерениях, и формулы (5.5) и (5.6), определите концентрацию ЯМ в исследуемом растворе.

### Отчет о работе

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Заполненные таблицы с результатами измерений.
2. Результаты расчета калибровочного коэффициента.
3. Результаты расчета концентрации ЯМ в исследуемом образце.

Все результаты представляются с погрешностями.

### Вопросы к работе 5

1. Измерительная система для РФА прокалибрована с помощью стандартного образца, характеристики которого совпадают с харак-

теристиками исследуемого образца во всем, кроме содержания ЯМ. Нужны ли поправки к результатам измерений образцов?

2. Какое излучение сильнее поглощается в материале образца: возбуждающее или собственное характеристическое?

3. Может ли сцинтилляционный детектор быть использован для РФА вместо ППД?

4. РФА ядерных материалов может быть основан на измерениях  $K$ - либо  $L$ -рентгеновского излучения. Как различаются при этом измерительные системы?

5. С помощью каких источников возбуждают рентгеновское излучение исследуемых образцов?

6. Какие требования предъявляются к источнику возбуждающего излучения?

7. Можно ли с помощью РФА определять состав растворов, содержащих несколько ЯМ?

8. К какой категории методов измерения ЯМ следует отнести РФА: разрушающие или неразрушающие, пассивные или активные?



## Работа 6

### Определение изотопного состава образцов плутония и урана с помощью программы FRAM

**Цель работы** – изучение интерфейса пользователя программы, процедуры обработки спектра, используемой в программе FRAM, измерение спектров  $\gamma$ -излучения образцов урана и плутония и определение их изотопного состава.

#### Введение

Информация об изотопном составе урана и плутония необходима для:

- контроля технологических процессов;
- контроля качества оружейного плутония;
- проверочных измерений при осуществлении учета и контроля;
- расшифровки результатов измерений массы плутониевых образцов методом счета нейтронных совпадений или калориметрии.

Эту информацию можно получить из неразрушающих измерений  $\gamma$ -спектров.

#### 1. Гамма-спектрометрические анализы изотопного состава плутония

Обычно образцы плутония содержат изотопы  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$ , большинство из которых испускает  $\gamma$ -излучение в разных диапазонах энергии. Измерениям в каждом диапазоне присущи определенные особенности. Выбор диапазона производится с учетом свойств образца. Данные о гамма-излучении перечисленных изотопов представлены в таб. 6.1.

При гамма-измерениях определяются изотопные отношения:  $f_{238}/f_{239}$ ,  $f_{240}/f_{239}$ ,  $f_{241}/f_{239}$ ,  $f_{242}/f_{239}$ , причем сумма  $f_{238}+f_{239}+f_{240}+f_{241}+f_{242}=1$ .

$^{242}\text{Pu}$  не может быть измерен напрямую из-за своей низкой активности (большого периода полураспада и малых квантовых вы-

ходов гамма-линий). Поэтому для его оценки применяют метод изотопных корреляций, используя данные об относительном содержании в образце других изотопов плутония. Эти корреляции зависят от типа реактора и истории облучения топлива.

Таблица 6.1

*Сведения о  $\gamma$ -излучении изотопов плутония в разных энергетических диапазонах*

Диапазон, кэВ		40-60	90-105	120-450			450-800
$^{238}\text{Pu}$ , $T_{1/2}=87,74$ лет	$E_{\gamma}$ , кэВ	43,5	99,9	152,7			766,4
	$I_{\gamma}$ , %	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$7,4 \cdot 10^{-3}$	$9,4 \cdot 10^{-4}$			$2,2 \cdot 10^{-5}$
$^{239}\text{Pu}$ $T_{1/2}=24120$ лет	$E_{\gamma}$ , кэВ	51,6	98,8	129,3	375,0	413,7	646,0
	$I_{\gamma}$ , %	$2,7 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$6,3 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$
$^{240}\text{Pu}$ $T_{1/2}=6564$ лет	$E_{\gamma}$ , кэВ	45,2	104,2	160,3			642,5
	$I_{\gamma}$ , %	$4,5 \cdot 10^{-2}$	$7,1 \cdot 10^{-3}$	$4,0 \cdot 10^{-4}$			$1,4 \cdot 10^{-5}$
$^{241}\text{Pu}$ $T_{1/2}=14,35$ лет	$E_{\gamma}$ , кэВ	-	103,7	148,6	208,0	267,5	-
	$I_{\gamma}$ , %	-	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$7,9 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-5}$	-
$^{242}\text{Pu}$ $T_{1/2}=376300$ лет	$E_{\gamma}$ , кэВ	44,9	103,5	158,8			-
	$I_{\gamma}$ , %	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$			-

Если измерить относительную интенсивность гамма-излучений отдельных изотопов и определить с помощью **самокалибровки** относительную эффективность их регистрации, можно установить относительное содержание в образце этих изотопов без помощи стандартных образцов. Такой подход обеспечивает независимость результата анализа от характеристик образца (размера, формы, физического и химического состава, упаковки, фильтрации) и просчетов импульсов в измерительном тракте. Искажения в тракте одинаково влияют на результаты измерения отдельных линий и не сказываются на результате определения их относительной интенсивности.

Во всех диапазонах полезная информация содержится в близких по энергии пиках разных изотопов. При измерениях в верхних диа-

пазонах энергии (450-800 кэВ) можно определить изотопный состав плутония, находящегося внутри толстостенных контейнеров, без извлечения образца наружу. В результате повышается безопасность работы операторов и появляется возможность инспекций опломбированных контейнеров, используемых для длительного хранения ЯМ. В случае малых образцов в тонкостенных контейнерах наилучшие результаты дают измерения в нижних диапазонах энергии.

Контрольные измерения плутониевых образцов проводят с помощью программ MGA и FRAM.

MGA (многогрупповой анализ) — программа для определения изотопного состава Pu по результатам гамма-спектрометрических измерений в диапазоне энергий 94-105 кэВ.

В программе FRAM, в отличие от MGA, для определения изотопного состава Pu используются более высокоэнергетические гамма-пики в диапазоне энергии от 120 до 1001 кэВ. Измерения образцов в тонкостенных контейнерах проводят с помощью планарных Ge-детекторов. Из-за снижения эффективности регистрации гамма-излучения с ростом его энергии применение планарных детекторов ограничено областью  $\leq 400$  кэВ. Использование коаксиального детектора позволяет проводить измерения как в мягком (до 400 кэВ), так и в жестком (до 1 МэВ) диапазоне энергий.

Следует учитывать, что квантовые выходы мягких излучений изотопов плутония на  $\sim 2$  порядка выше, чем жестких. Другой, требующий учета фактор – сильное поглощение мягкого излучения внутри образца. Поэтому измерения малых образцов проводят в низкоэнергетическом диапазоне с помощью планарных, либо коаксиальных детекторов, а большие образцы измеряют в высокоэнергетическом диапазоне с помощью коаксиальных детекторов.

Результат анализа зависит от свойств детектора: его энергетического разрешения и формы пиков в полученных спектрах. Реальная форма пика в измеренном спектре должна соответствовать его математической модели, применяемой в расчетной программе. Форма пика характеризуется отношением ширины на  $1/50$  максимума к ширине на  $1/2$  максимума для пика 122 кэВ. Форму фотопика считают удовлетворительной, если это отношение меньше 2,55.

При проведении  $\gamma$ -измерений плутония необходимо учитывать, что  $^{241}\text{Am}$ , накапливающийся в плутониевых образцах со временем, испускает интенсивное гамма-излучение с энергией 59,54 кэВ. Им-

пульсы от квантов 59,54 кэВ могут суммироваться с импульсами от излучений 94,66 кэВ ( $U$   $XK_{\alpha 2}$ ), 98,44 кэВ ( $U$   $XK_{\alpha 1}$ ), 101,07 кэВ ( $Np$   $XK_{\alpha 1}$ ) и, таким образом, создавать помехи при наблюдении пиков 153 кэВ  $^{238}Pu$  и 160,3 кэВ  $^{240}Pu$ . Для подавления излучения 59,54 кэВ применяют фильтры из Cd, Sn и других материалов (достаточно 2 мм Cd), которые помещают между образцом и детектором.

## 2. Гамма-спектрометрические анализы изотопного состава урановых образцов

Определение обогащения урана является важной задачей учета и контроля ядерных материалов. Неразрушающий анализ урана проводят с помощью  $\gamma$ -спектрометрии. Анализ урана без оболочек и в тонкостенных контейнерах проводят на планарном HPGe-детекторе, с применением для обработки полученного спектра программы MGAU. Для урана в толстостенных контейнерах такой способ анализа не всегда пригоден, так как излучение в области 88–100 кэВ сильно поглощается в стенках контейнера.

Для анализа контейнеров с гексафторидом урана на обогатительном производстве применяют спектрометрию более жестких излучений (табл. 6.2) с помощью коаксиального HPGe-детектора.

Анализ данных об излучениях изотопов урана позволяет сделать следующие выводы:

1. Наиболее интенсивные линии  $^{235}U$  наблюдаются в низкоэнергетической части спектра 100-200 кэВ, а  $^{238}U$  – в высокоэнергетической (700-1000 кэВ). Построение единой функции относительной эффективности для всего диапазона является трудной задачей и может быть осуществлено для образцов с разным обогащением путем использования программы FRAM с разными наборами параметров.

2. Энергии измеряемых линий сильно различаются, поэтому требования к разрешению аппаратуры не столь велики, как при измерении образцов урана в диапазоне 88-100 кэВ (MGAU) или при анализе образцов плутония с помощью FRAM.

3. Квантовые выходы излучений  $^{238}U$  очень малы, период полураспада велик ( $4,47 \cdot 10^9$  лет), и для обеспечения удовлетворительной точности могут потребоваться длительные измерения.

4. Изотоп  $^{234}\text{U}$  накапливается в уране по мере увеличения обогащения, а его относительная концентрация может достигать 1,5-2,0 % в высокообогащенном уране. В этих случаях необходимо учитывать содержание  $^{234}\text{U}$  в анализируемых образцах. Данные о концентрации  $^{234}\text{U}$  получают путем определения относительной интенсивности  $\gamma$ -линии 120,9 кэВ в спектре уранового образца.

Таблица 6.2

*Сведения о  $\gamma$ -излучении изотопов урана*

Изотоп	$T_{1/2}$ , лет	Энергия $\gamma$ -квантов, кэВ	Выход, $I_\gamma$ , %		
$^{234}\text{U}$	$2,45 \cdot 10^5$	120,95	0,041		
$^{235}\text{U}$	$7,04 \cdot 10^8$	143,8	11,0		
		163,4	5,00		
		185,7	57,5		
		195,0	0,63		
		202,2	1,10		
$^{236}\text{U}$	$2,34 \cdot 10^7$	205,3	5,00		
		112,7	0,019		
		$^{238}\text{U}$	$4,47 \cdot 10^9$	258,0	0,069
				742,8	0,095
				766,4	0,322
786,3	0,055				
880,5	0,021				
883,2	0,021				
945,9	0,034				
1001,1	0,839				

При изготовлении ТВС современных энергетических реакторов в настоящее время широко используют регенерированный (т.е. выделенный из отработавшего топлива) уран. Во время предыдущих облучений в нем по реакции  $^{235}\text{U}(n,\gamma)$  накапливается  $^{236}\text{U}$  – четно-четный пороговый нуклид. Его относительная концентрация может превышать 1 %, тогда его присутствие нужно учитывать. Однако его слабое и мягкое гамма-излучение трудно поддается прямым неразрушающим измерениям.

В регенерированном уране содержится также  $^{232}\text{U}$ , который с периодом 68,9 лет распадается в  $^{228}\text{Th}$ . Гамма-линии  $^{228}\text{Th}$  с энергиями 238, 583, 727 и 860 кэВ могут наблюдаться в спектре, и их можно использовать для построения кривой относительной эффективности.

В программе FRAM для анализа изотопного состава урана реализованы два разных подхода к построению кривой относительной эффективности.

В первом случае для сшивки низкоэнергетического диапазона, в котором присутствуют линии  $^{235}\text{U}$ , и высокоэнергетического, содержащего линии  $^{238}\text{U}$ , ключевую роль играет гамма-линия  $^{238}\text{U}$  с энергией 258 кэВ. Такой подход применим для анализа образцов низкообогащенного урана, поскольку в спектрах высокообогащенных образцов эта линия слишком слаба и маскируется фоном.

Во втором случае (для построения кривой эффективности в случае высокообогащенных образцов, содержащих регенерат) используют  $\gamma$ -линии  $^{228}\text{Th}$  и продуктов его распада. Соответствующие наборы используемых параметров: *ULoEnr* (для низкообогащенного урана) и *UHiEnr* (для высокообогащенного урана).

### 3. Процедуры анализа и обработки пиков в программе FRAM

Процедуры поиска пиков, выбор энергетических диапазонов анализа и изотопов, подлежащих определению, управляются набором параметров (Set Parameters). Не все спектры обрабатываются с помощью одного набора параметров. База данных построена так, чтобы обеспечить возможность применения разных наборов.

Принцип работы программы – самокалибровка и построение кривой относительной эффективности по пикам излучения исследуемого образца. Определяются зависимости: канал/энергия, ПШПВ/энергия, форма пика/энергия, относительная эффективность/энергия, причем используются специально выбранные пики в измеренном спектре.

Обработка спектра начинается с построения зависимости энергии от номера канала. Далее определяется фон в области каждого пика. Для нахождения фона используют участки спектра, где пики отсутствуют. Счет в отдельных каналах на этих участках служит для построения фоновой функции. Пользователь может выбрать

одну из восьми функций для описания фона: линейную, квадратичную, экспоненциальную и др.

Затем определяется ПШПВ отдельных пиков и запоминается вместе с их энергиями  $E$ . Обработка этих данных методом наименьших квадратов дает коэффициенты в формуле, описывающей соотношение (ПШПВ/энергия):

$$(\text{ПШПВ})^2 = A_1 + A_2 \cdot E + A_3 \cdot E^{-1}, \quad (6.3)$$

где  $E$  – энергия (кэВ). Эта формула используется в дальнейшем для обработки всех пиков.

Форма гамма-пика описывается выражением:

$$N_i = N_0 [e^{\alpha(x_i - x_0)^2} + T(x_i)], \quad (6.4)$$

где  $N_i$  – число отсчетов в канале  $x_i$  после вычитания фона («чистый» счет);  $N_0$  – амплитуда пика;  $x_0$  – центр пика;  $\alpha = 4 \ln 2 (\text{ПШПВ})^2 = 1 / (2 \cdot \sigma^2)$  – параметр, характеризующий ширину пика, где  $\sigma$  – стандартное отклонение для функции Гаусса;  $T(x_i)$  – функция описывающая хвост пика (функция остатка):

$$T(x_i) = [A \cdot e^{B(x_i - x_0)} + C \cdot e^{D(x_i - x_0)}] \cdot [1 - e^{0,4\alpha(x_i - x_0)^2}] \cdot \delta, \quad (6.5)$$

где  $A$  и  $C$  – амплитуды короткого и длинного хвостов,  $B$  и  $D$  – наклоны короткого и длинного хвостов,  $\delta = 1$  при  $x_i < x_0$  и  $\delta = 0$  при  $x_i \geq x_0$ .

Пики, которые предназначаются для нахождения «хвостовых» коэффициентов, задаются в наборе параметров. Для каждого пика определяется его гауссова часть с использованием ранее полученных данных о ПШПВ, затем эта часть вычитается из канальных отсчетов  $N_i$ . Далее модель «хвоста» подгоняют к полученным результатам с помощью метода наименьших квадратов.

На второй стадии анализа для каждого анализируемого диапазона оценивается сплошной фон, создаются модели спектра и эти модели подгоняются к «чистому» счету. Затем определяются площади под пиками, которые используются для построения функций относительной эффективности в диапазоне измерений спектра.

Эффективность в программе FRAM представляет собой вероятность регистрации детектором гамма-кванта, возникшего при распаде ядра Pu или U в объеме образца. Вероятность зарегистрировать гамма-квант в фотопике связана с вероятностями того, что он вылетит из образца в направлении детектора, не поглотится в образце и по пути из образца в детектор и вызовет импульс, эквивалентный его полной энергии. Таким образом, эффективность в программе FRAM есть произведение четырех вероятностей.

Кривая относительной эффективности описывается функцией:

$$\ln \varepsilon = C_1 + C_2 E^{-2} + C_3 \ln E + C_4 (\ln E)^2 + C_5 (\ln E)^3 + C_i + C_j E^{-1}, \quad (6.6)$$

где  $C_i$  – нормировочные коэффициенты для всех изотопов кроме первого,  $C_j$  – нормировочные коэффициенты для различных кривых относительной эффективности, кроме первой, построенных по пикам разных изотопов,  $E$  – энергия (МэВ).

В последних версиях программы FRAM для описания кривой относительной эффективности пользователь на выбор может использовать либо функцию (6.6), либо физическую модель.

Далее, используя значения относительных эффективностей, оцениваются относительные активности отдельных изотопов плутония, и определяется изотопный состав образца.

Применение программы FRAM имеет следующие достоинства:

легкую приспособляемость к условиям различных измерений без необходимости перепрограммирования;

возможность пользователю редактировать параметры анализа;

возможность проводить анализы самых разных образцов при содержании 2÷38 %  $^{240}\text{Pu}$ , 0,01÷50 %  $^{241}\text{Am}$ , образцов в толстостенных контейнерах, образцов с неоднородным по объему отношением Am/Pu, образцов из смеси оксидов урана и плутония при соотношениях  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}=0,005\div 35$  и др.

#### 4. Измерительная установка

Измерительная спектрометрическая система состоит из полупроводникового детектора, цифрового гамма-спектрометра DSPec



и персонального компьютера. Детектор имеет следующие паспортные характеристики:

относительная эффективность регистрации фотопика на линии 1,33 МэВ.....25 %;  
энергетическое разрешение на линии 122 кэВ.....0,85 кэВ;  
энергетическое разрешение на линии 1,33 МэВ.....1,85 кэВ.

***Перед выполнением работы ознакомьтесь с описанием программы (приложение 2)!***

Лабораторная работа разбита на пять основных этапов:

1. Настройка измерительной системы, согласно требованиям программы FRAM.
2. Изучение основных меню программы FRAM.
3. Проведение измерений образцов урана.
4. Изучение процедур обработки спектра в программе FRAM.
5. Исследование некоторых факторов, влияющих на выбор параметров обработки спектра, с использованием заранее измеренных спектров урана и плутония.

При этом некоторые задания выполняются параллельно, например, изучение интерфейса пользователя программы FRAM проводится во время измерения образцов урана.

Работа состоит из измерений и обработки спектров излучения образцов урана и обработки заранее измеренных в лаборатории ФЭИ спектров образцов плутония. Кроме того, работа имеет два варианта. Для измерения могут быть предложены разные образцы: контейнеры с шаровыми твэлами ВТГР или топливные таблетки из твэлов ВВЭР. Преподаватель на свое усмотрение предлагает каждой бригаде студентов тот или иной вариант лабораторной работы.

Для проведения измерений в данной лабораторной работе используются следующие образцы ЯМ:

герметично упакованные таблетки  $UO_2$  с обогащением 2,4 % и 6,5 %;

шаровые твэлы ВТГР с обогащением 6,5 % и 21 % в контейнере, позволяющем производить замену одного или нескольких твэлов.

*Информация о заранее измеренных спектрах плутония, а также паспортные данные для использованных образцов плутония и урана, представлены в табл. 6.3-6.6.*

## **Порядок выполнения работы**

### **1. Настройка измерительной системы, согласно требованиям программы FRAM**

В меню программы установите число каналов анализатора, равное 8192; нулевое смещение энергетической шкалы; усиление 0,125 кэВ/канал; время формирования импульса 5 мкс. Затем проведите компенсацию полюса нулем.

Начните набор спектра уранового образца. Убедитесь, что пик с энергией 185,7 кэВ находится в  $1486 \pm 3$  канале, а пик с энергией 1001,1 кэВ в  $8008 \pm 3$  канале.

### **2. Измерение спектров излучения образцов урана**

#### **Вариант 1**

В данном задании проводятся измерения шаровых твэлов ВТГР в закрытом контейнере. Штатно в контейнер помещается четыре одинаковых твэла. Преподаватель делает подмену одного или нескольких твэлов со штатными характеристиками на твэлы другого обогащения, либо на пустые графитовые оболочки. По результатам измерения и обработки спектра студенты должны обнаружить и объяснить подмену.

Проведите измерение контейнера с первым набором шаровых твэлов. Время измерения – 40 мин. По окончании измерения сохраните спектр, обработайте его с помощью набора параметров *UloEnr*. Распечатайте отчет.

Проведите измерение контейнера со вторым набором шаровых твэлов. Время измерения – 40 мин. По окончании измерения сохраните спектр, обработайте его с помощью набора параметров *UloEnr*. Распечатайте отчет (**Medium**).

По результатам измерений, зная, что в наличии имеются шаровые твэлы двух обогащений (табл. 6.5), и используя спектр стандартного контейнера, указанный преподавателем, сделайте выводы о наличии либо отсутствии в контейнерах шаровых твэлов нештатного обогащения (по результатам анализа изотопного состава) и о сохранности общей массы урана (по интенсивности пиков гамма-излучения изотопов урана).

## **Вариант 2**

Проведите измерения образцов урана №№ 6 и 7 (время измерения 30 мин. для каждого образца). Определите их изотопный состав, распечатайте отчеты и графики кривых эффективности.

*Влияние контейнера на эффективность регистрации гамма-квантов.* Проведите измерение образцов урана №№ 6 и 7 с использованием имитатора оболочки контейнера. Время измерения 30 мин для каждого образца. Распечатайте отчеты и графики кривых эффективности. Объясните ход кривых эффективности для данного и предыдущего измерений.

## **3. Основные меню программы FRAM (приложение 2)**

Войдите в режим редактирования наборов параметров (**Edit→Parameters**). Откройте набор параметров **Coax8k3** (**File→Open**). Последовательно открывая окна **Fitting Parameters**, **Peaks**, **Regions by channel**, **Regions by energy**, **Isotopes** (меню **Edit**) ознакомьтесь с параметрами для подгонки пика, пиками разных изотопов, используемыми в процессе обработки, диапазонами поиска пиков и фона, способами аппроксимации фона. Выйдите из режима редактирования наборов параметров.

Загрузите для обработки спектр *9\_1.dat* (меню **Measure→Analyze Data**). Набор параметров – **Coax8k3**. Поставьте флажок в рамке **Print Results**, формат отчета – **Short**. После нажатия кнопки **OK** программа начнет обработку спектра и автоматически отправит результаты на печать.

Выберите опцию **Options→Display Results→Medium**. Ознакомьтесь с содержанием этого варианта отчета.

Выберите опцию **Options→PlotSpectrum**. В меню **Display** поставьте флажок в окне **regions** (набор параметров **Coax8k3**). На гра-

фике спектра точки пиков в области пиков окрашиваются в красный цвет, а точки фона – в зеленый. Убедитесь, совпадают ли области, окрашенные в красный цвет с пиками  $\gamma$ -излучения Pu, и являются ли выделенные зеленым цветом области непрерывным фоном, не находятся ли в этих диапазонах пики. Распечатайте участок спектра с 200 кэВ по 450 кэВ. Последовательно помещая флажок в окна **ecal peaks, fcal peaks, scal peaks** меню **Display**, убедитесь, что области, окрашенные в красный цвет и используемые для энергетической калибровки, калибровки по ПШПВ и калибровки по форме пика соответственно, совпадают с пиками  $\gamma$ -излучения плутония.

Выберите опцию **Options**→**PlotEfficiencies**. Распечатайте график. Объясните ход кривой эффективности.

С помощью опции **Options**→**ISOPOW** скорректируйте паспортные значения изотопного состава образцов плутония №№9,8,7,6 на 10 ноября 1998 года. Результаты распечатайте.

#### 4. Изучение процедуры обработки спектра, используемой в программе FRAM, и определение изотопного состава образца плутония или урана

*Для выполнения этого задания воспользуйтесь распечаткой отчета для спектра "X", выданной преподавателем<sup>1</sup>.*

Постройте калибровочный график  $E_\gamma(N_{\text{кан.}})$ , пользуясь таблицей, представленной в отчете (*table used for energy calibration*).

Используя коэффициенты  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$ , рассчитанные программой (раздел отчета: *FWHM parameters in formula*), рассчитайте по формуле (6.3) значения ПШПВ для значений энергии в интервале 120÷1001 кэВ. Постройте калибровочный график ПШПВ( $E_\gamma$ ). Нанесите на график экспериментальные значения ПШПВ, приведенные в таблице (*fitted fwhm*).

Постройте калибровочный график  $\epsilon_\gamma(E_\gamma)$ , используя формулу (6.6) и коэффициенты, приведенные в разделе *Results of efficiency calculations*.

---

<sup>1</sup> Обратите внимание, что в одних случаях размерность энергии – МэВ, а в других – кэВ.

Определите изотопный состав измеренного образца плутония, используя наиболее интенсивные пики излучения  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и следующие формулы:

$$\frac{N_i}{N_{239}} = \frac{S_i \cdot T_{1/2(i)} \cdot I_{239} \cdot \varepsilon_{239}}{S_{239} \cdot T_{1/2(239)} \cdot I_i \cdot \varepsilon_i},$$

$$f_{239} = \left( \sum_i \frac{N_i}{N_{239}} \right)^{-1},$$

$$f_i = \frac{N_i}{N_{239}} \cdot f_{239},$$

где  $i=238, 239, 240, 241$ ;  $S_{239}, I_{239}, \varepsilon_{239}, T_{1/2(239)}$  – соответственно, площадь пика, выход, эффективность и период полураспада для пика  $^{239}\text{Pu}$ ;  $S_i, I_i, \varepsilon_i, T_{1/2(i)}$  – аналогичные величины для пиков  $^{238}, ^{240}, ^{241}\text{Pu}$ .

*Задание 4 выполняется при оформлении отчета. Все необходимые пояснения даются преподавателем в процессе выполнения лабораторной работы.*

## 5. Исследование некоторых факторов, влияющих на выбор параметров обработки спектра

*Влияние контейнера на спектр излучения образца и выбор параметров обработки спектра*

Обработайте с помощью программы спектры излучения образца плутония №7, измеренного без контейнера и в контейнере (спектры 7\_1.dat и 7\_2.dat соответственно). Используйте набор параметров **Coax8k3** (для автоматического вывода отчета на принтер поставьте флажок напротив окошка **Print Results**). После этого проанализируйте спектр 7\_2.dat, используя набор параметров **Sc42**. Распечатайте результаты расчета и кривые эффективности. Сравните спектры излучения образцов. Рассчитайте отношения эффективности для линий 255,4 и 451,5 кэВ в обоих случаях. Сравните результаты, объясните расхождения.

### *Влияние толщины образца на результаты анализа*

Проанализируйте с помощью программы спектры излучения образца плутония №9 толщиной 3,16 мм и 9,48 мм (спектры *9\_9.dat* и *9\_11.dat* соответственно), используя набор параметров **Sc42**. Распечатайте результаты расчета и кривые эффективности. Сравните спектры излучения образцов. Рассчитайте отношения эффективности для линий 208,0 и 451,5 кэВ в обоих случаях. Сравните результаты, объясните расхождения.

### *Влияние величины усиления амплитуды сигнала на результаты анализа*

Обработайте спектры одного и того же образца плутония, измеренные при усилении 0,122 кэВ/канал (*9\_4.dat*) и 0,125 кэВ/канал (*9\_1.dat*). Выведите на экран графики спектров. Сравните результаты анализа, объясните расхождения.

### *Влияние времени измерений на погрешность результатов*

Обработайте спектры излучения образца плутония №7, измеренного в течение 2149 с и 45 с на планарном детекторе (спектры *7\_1\_P.dat* и *7\_3\_P.dat* соответственно), с помощью набора параметров **wr6Planar**. Сравните спектры и распечатайте графики. Сравните погрешности результатов. Объясните разницу.

## **Отчет о работе**

По результатам, полученным при выполнении работы, составляется краткий отчет, включающий:

1. Описание и схему измерительной установки.
2. Результаты проведенных измерений с распечатанными отчетами.
3. Для варианта 1 выводы о наличии (отсутствии) аномалий в содержимом контейнеров.
4. Для варианта 2 выводы о влиянии ослабления в стенке контейнера на ход кривой относительной эффективности.
5. Результаты расчета изотопного состава неизвестного образца с калибровочными графиками.
6. Результаты определения изотопного состава плутониевых образцов по заранее отмеренным спектрам их излучения и выводы

о факторах, влияющих на результаты анализов и выбор набора параметров.

7. Заключение.

Все результаты представляются с погрешностями.

### **Контрольные вопросы к работе 6**

1. Вещество испускает две группы гамма-квантов с энергиями  $E_1$  и  $E_2$ , причем  $E_1 < E_2$ . Сравните для них вероятности избежать поглощения внутри образца, по пути из образца в детектор и вероятность зарегистрироваться в детекторе.

2. Оцените, как будут соотноситься вероятности поглощения гамма-излучений в стенках свинцового, стального и алюминиевого контейнеров одинаковой толщины.

3. Как изменится соотношение между интенсивностями мягкого и жесткого гамма-излучений при увеличении толщины образца ЯМ?

4. Почему для контроля образцов в толстостенных контейнерах используется не планарный, а коаксиальный детектор?

5. Укажите причины асимметрии линий в измеренных спектрах. Как это учитывается в программе FRAM?

6. Какие параметры использует FRAM при моделировании пика?

7. С помощью базы ядерных данных JEFPC определите, какие дочерние продукты  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  испускают  $\gamma$ -излучения, представленные в табл. 6.2?

8. Перечислите основные различия в анализах изотопного состава урана и плутония.

9. Как при гамма-спектрометрических измерениях изотопного состава плутония определяют содержание  $^{242}\text{Pu}$ ?

Таблица 6.3

*Паспортные значения изотопного состава образцов плутония*

№ образца	Дата аттестации	Изотопный состав				
		<sup>238</sup> Pu, %	<sup>239</sup> Pu, %	<sup>240</sup> Pu, %	<sup>241</sup> Pu, %	<sup>242</sup> Pu, %
9	01.06. 1973	0,0070	95,170	4,5300	0,2800	0,0100
8	01.07. 1969	0,0700	88,230	10,730	1,0400	0,1900
7	11.04. 1988	0,2300	77,860	16,760	4,1300	1,0200
6	01.02. 1988	0,5900	67,590	21,320	7,830	2,6700
Л	01.03. 1965	0,0090	95,480	4,2100	0,2600	0,0150

Таблица 6.4

*Паспортные значения обогащения образцов урана*

№ образца	Дата аттестации	Обогащение, масс. проц.
1	21.07.1991	2,00
2	21.07.1991	6,50
3	21.07.1991	10,0
4	21.07.1991	36,0
5	21.07.1991	90,0
6	03.12.1995	2,40
7	03.12.1995	6,50

Таблица 6.5

*Параметры шаровых твэлов ВТГР*

№	Дата аттестации	Обогащение, %	Масса урана, г
1	14.02.1993	6,5	6,15
2	14.02.1993	20,5	2,40



Таблица 6.6

Информация об условиях измерений спектров образцов плутония

Имя спектра	Условия измерения				
	$t_{\text{изм.}}$ , с	Толщина Cd фильтра, мм	Толщина Pb фильтра, мм	Толщина фильтра из стали, мм	Толщина образца, мм
<b>Измерения на коаксиальном детекторе</b>					
9_1	300	2	0	0	3,16
9_2	232	1,5	0	0	3,16
9_3	509	2	0	0	3,16
9_4	220	2	0	0	3,16
9_7	424	0,5	2,5	0	3,16
9_8	719	0,5	4	0	3,16
9_9	1971	0,5	0	10	3,16
9_10	475	0,5	0	10	6,32
9_11	462	0,5	0	10	9,48
8_1	222	2	0	0	3,16
8_4	600	3	0	0	3,16
7_1	530	2	0	0	6,08
7_2	474	0	4	0	6,08
6_1	544	2	0	0	6,08
6_2	526	0	2,5	0	6,08
6_3	521	0	4	0	6,08
<b>Измерения на планарном детекторе</b>					
9_1_P	600	2	0	0	3,16
9_3_P	40	3	0	0	3,16
9_4_P	961	0	2,5	0	3,16
9_5_P	929	0	4	0	3,16
8_1_P	800	0	0	0	3,16
8_3_P	2303	3	0	0	3,16
7_1_P	2149	2	0	0	6,08
7_3_P	45	2	0	0	6,08
6_1_P	2600	2	0	0	6,08

## Часть 2. МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВЫГОРАНИЯ ТОПЛИВА ОТРАБОТАВШИХ ТВС

### Введение

Выгорание ядерного топлива в результате его облучения в реакторе определяют как отношение числа делений к суммарному начальному содержанию тяжелых ядер в топливе:

$$B = N_f / \sum N_i^0 . \quad (B2.1)$$

В урановом топливе первоначально содержатся атомы  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ . В процессе облучения топлива нейтронами в нем образуются другие тяжелые атомы, включая изотопы плутония, которые вносят затем растущий вклад в деление (и выгорание) топлива.

Величина выгорания ТВС характеризует ее энерговыработку (при каждом делении выделяется около 200 МэВ энергии) и накопление продуктов деления в топливе. Выгорание измеряют либо в МВт·сут выработанной энергии на килограмм топлива, либо в процентах разделившихся тяжелых атомов. Иногда на исследовательских реакторах с высокообогащенным топливом под выгоранием понимают только убыль ядер  $^{235}\text{U}$ .

Около 16 % всех делений приводят к образованию газообразных изотопов криптона и ксенона. При увеличении выгорания растет давление газов, накопившихся в зазорах в топливе и под оболочками твэлов, что приводит к опасным последствиям, в том числе, к распуханию и потере герметичности твэлов, и в итоге – к недопустимо высокому радиоактивному загрязнению оборудования первого контура охлаждения реактора. Поэтому величина выгорания лимитирована.

Вместе с тем, существует стремление к повышению выгорания, так как это снижает потребность в новых ТВС, позволяет экономить место в бассейнах выдержки отработавших ТВС (ОТВС), уменьшает объем перевозок ОТВС с АЭС на завод-переработчик и др. Приближение реального выгорания к максимально допустимому ведет к улучшению экономических показателей эксплуатации реакторов. Необходимый зазор между реальным и предельным вы-

гораниями зависит от погрешности оценки величины выгорания: чем точнее и надежнее оценка, тем больше может быть допустимое выгорание за счет приближения реального выгорания к предельному, тем выше ядерная и радиационная безопасность работ с ОТВС.

Растущие количества отработавших ТВС разных реакторов усиливает угрозу их похищения террористами для применения с целью радиационного загрязнения среды обитания и для изготовления ядерных взрывных устройств. Следует отметить, что, согласно литературным данным, критическая масса плутония, выделенного из ОТВС энергетических реакторов, составляет от 20 до 25 кг [10]. Указанные обстоятельства требуют усиления контроля за сохранностью ОТВС.

Определение выгорания является одной из главных задач контрольных измерений отработавшего ядерного топлива. Такие измерения проводят: при комплектовании партий ОТВС, отправляемых с АЭС на переработку; при проверке и уточнении паспортных данных о длительно хранящихся (20-30 лет и более) ОТВС исследовательских реакторов; при ресурсных испытаниях твэлов и ОТВС на материаловедческих реакторах и др.

В зависимости от особенностей исследуемых ОТВС отличаются используемые методы и приборы. Подходы, успешно применяемые для контроля ОТВС реакторов ВВЭР, не могут быть прямо использованы для исследовательских реакторов. Поэтому методы, изучаемые в предлагаемом лабораторном практикуме, отличаются рядом особенностей, включая экспериментальные установки, режимы проведения экспериментов и способы интерпретации результатов измерений. Кроме того, время, отпущенное для выполнения экспериментов, было жестко лимитировано, что также повлияло на конструкцию экспериментальной установки и выбор аппаратуры.

Лабораторный практикум проводится в здании ИРТ МИФИ. Он предназначен для подготовки магистров по УиК ЯМ, для работы студентов-дипломников и аспирантов и является частью лабораторного комплекса кафедры «Теоретической и экспериментальной физики ядерных реакторов». К занятиям в практикуме допускаются студенты, прошедшие медицинский контроль и специальный инструктаж. В работе участвуют преподаватели и сотрудники ИРТ, обеспечивающие проведение опытов и контролирующие обстановку в зоне их проведения.

Объектами исследования являются ОТВС, поочередно извлекаемые из бассейна выдержки. Используются сборки с разным начальным обогащением топлива (90 %  $^{235}\text{U}$  или 36 %  $^{235}\text{U}$ ) и разной историей (отличается время их загрузки и выгрузки из реактора, режимы облучения). Истории ОТВС ИРТ отличаются весьма непостоянным режимом облучения, что влияет на скорости реакций в топливе и содержание отдельных нуклидов.

Активная зона реактора ИРТ МИФИ вмещает от 20 до 24 ТВС, окруженных отражателем. В некоторых ТВС располагаются стержни СУЗ и АЗ. Один из вариантов загрузки ИРТ МИФИ представлен на рис. В2.1.

1	2	3	4	5	6	7	8
H <sub>2</sub> O	Be	Be	Be	Be	Be	Be	Pb
Be	Be	ИРТ-3М 185	19К КС-2 009.91	ИРТ-3М 147	19К АР 008.91	Be	H <sub>2</sub> O ВЭК
Be	Be	19К КС-3 001.91	19К КС-3 004.91	19К АЗ-2 007.91	ИРТ-3М 187	Be	Be
Be ВЭК-44	Be	ИРТ-3М 146	19К АЗ-3 010.91	19К АЗ-1 002.91	ИРТ-3М КС-1 151	Be	Be
Be	Be	ИРТ-3М 186	19К КС-2 005.91	ИРТ-3М 131	19К КС-1 006.91	Be	Be
Al	Al	Al	Al	Al	Al	Al + Be	Be

Рис. В2.1. Картограмма загрузки активной зоны реактора ИРТ МИФИ

На распределение глубины выгорания топлива оказывают влияние: изменение потока нейтронов по высоте активной зоны, различия свойств отдельных частей отражателя и влияние стержней управления на поле нейтронов в активной зоне. По указанным причинам выгорание топлива и его распределение по объему разных ТВС неоднородно.

Топливные сборки ИРТ состоят из твэлов – коаксиальных четырехгранных труб разного размера. Конструкционным материалом является алюминий, используемый в качестве матрицы для частиц диоксида урана и материала для оболочек твэлов. Устройство и размеры ТВС ИРТ-3М и ИРТ-2М представлены на рис. В2.2а и В2.2б. Точные данные о начальном содержании  $^{235}\text{U}$  и полном содержании урана содержатся в паспортах ТВС. Предметом исследования являются значения среднего выгорания ОТВС и максимального выгорания.

Поскольку ОТВС представляют собой мощные источники радиации (их активность достигает  $10^{13}$  Бк и более), обращение с ними требует строгого соблюдения норм безопасности для предотвращения переоблучения участников экспериментов и аппаратуры. Такие эксперименты проводят в заполненных водой бассейнах выдержки ОТВС, в горячих камерах или за специальной защитой.

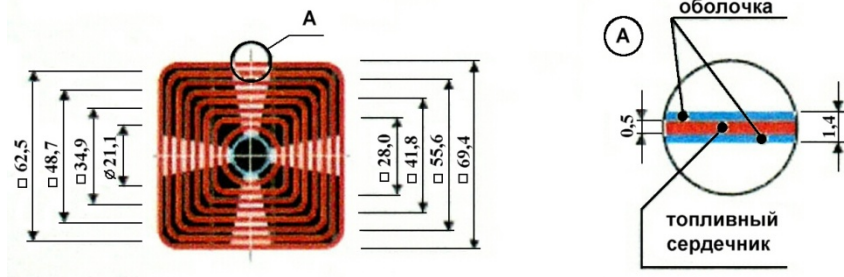


Рис. В2.2а. Поперечное сечение ТВС ИРТ-3М

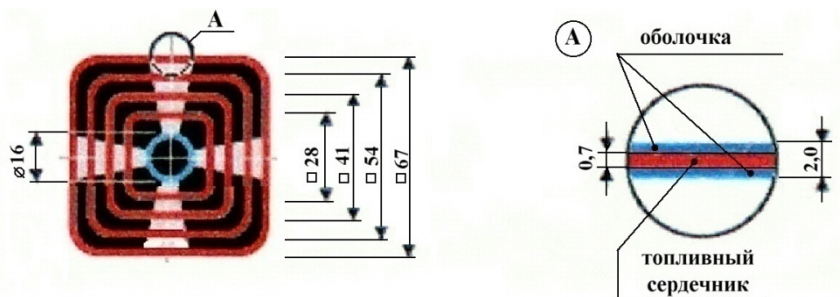


Рис. В2.2б. Поперечное сечение ТВС ИРТ-2М

Большинство методик определения выгорания основано на следующих положениях:

с ростом выгорания в топливе увеличивается содержание продуктов деления и трансурановых нуклидов;

информацию об их содержании в объеме ТВС (а, значит, и о выгорании) могут дать измерения самых проникающих излучений – нейтронов и гамма-квантов, испускаемых вышеназванными нуклидами;

после завершения облучения ТВС происходит распад короткоживущих нуклидов, что позволяет проводить измерения излучения более долгоживущих нуклидов, между интенсивностью которых и выгоранием устанавливаются простые связи.

Обычно искомое значение выгорания определяют по результатам гамма-спектрометрических или нейтронных измерений на аппаратуре, прокалиброванной с помощью стандартных образцов – специально аттестованных ТВС. Такой метод позволяет получать наиболее точные результаты, но требует дополнительных измерений. В предлагаемых работах будут использоваться данные, полученные ранее из опытов со стандартными ТВС.

Самопоглощение измеряемого излучения внутри ТВС искажает получаемые результаты. Нейтронное излучение обладает достаточно большой проникающей способностью. Гамма-излучение ослабевает, проходя через слои топлива, поэтому из ТВС ВВЭР наружу реально выходит излучение только двух-трех внешних рядов твэлов. Однако ТВС ИРТ состоят из тонких твэлов с малой концентрацией урана и поэтому слабо поглощают жесткое гамма-

излучение. В этом случае эффект самопоглощения относительно слабый и полученный результат измерения требует лишь малой коррекции.

Начальный нуклидный состав топлива реакторов ИРТ и ВВЭР сильно различается: обогащение урана по  $^{235}\text{U}$  в твэлах ВВЭР составляет 3-5 %, а в твэлах ИРТ – 36 % или 90 %. Это влияет на накопление в топливе нуклидов-эмиттеров нейтронов. Другая причина различий – применение алюминия в качестве матричного материала в твэлах ИРТ. Сечение реакции  $(\alpha, n)$  на алюминии относительно велико, оно в семь раз больше, чем на кислороде (табл. В2.1).

Таблица В2.1

*Выходы нейтронов при  $(\alpha, n)$ -реакциях*

Элемент	Be	C	O	F	Al
Выход $n$ на $10^6$ частиц с энергией 5,2 МэВ	65 ±5	0,078±0,004	0,059±0,002	5,9±0,6	0,41±0,01

Еще одной причиной различия являются частые изменения мощности во время работы ИРТ и более продолжительное время охлаждения ОТВС до измерений (до 20 и более лет). По указанным и некоторым другим причинам для определения выгорания ОТВС ИРТ нужны особые методики. При работе в практикуме будут рассмотрены и использованы как общие подходы к решению задачи определения выгорания топлива, так и варианты, наиболее пригодные для анализа топлива ИРТ.

### **Определение выгорания ОТВС методом гамма-сканирования**

Обычно при гамма-спектрометрических измерениях величину выгорания определяют по интенсивности излучения определенного продукта деления, служащего монитором выгорания. Концентрацию нуклида-монитора  $N_m$  в элементе объема ОТВС можно вычислить по формуле:

$$N_m = (n_m \cdot \exp(\lambda_m \cdot t_{\text{выд}}) \cdot K) / (\lambda_m \cdot I_\gamma^m \cdot \varepsilon \cdot S), \quad (\text{B2.2})$$

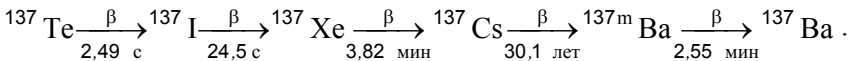
где  $n_m$  – скорость счета импульсов в пике нуклида-мониторa в измеренном спектре гамма-излучения ОТВС;  $S$  – площадь участка поверхности ОТВС, излучение которого попадает на детектор;  $I_\gamma^m$  – квантовый выход измеряемого излучения;  $\varepsilon$  – эффективность регистрации этого излучения детектором;  $K$  – поправка, учитывающая ослабление измеряемого излучения на пути от точки испускания к детектору;  $\lambda_m$  – постоянная радиоактивного распада нуклида-мониторa;  $t_{\text{выд}}$  – время охлаждения ОТВС с момента извлечения из реактора до начала измерения.

Зная концентрацию монитора можно определить число произошедших делений:

$$N_f = N_m / (Y_m \cdot (1 + \Delta_v) \cdot (1 + \Delta_p)), \quad (\text{B2.3})$$

где  $Y_m$  – выход нуклида-мониторa при делении,  $(1 + \Delta_v)$  и  $(1 + \Delta_p)$  – поправки на выгорание и распад монитора во время облучения ТВС. Следует отметить, что режим работы ИРТ имеет ступенчатый характер, поэтому определение поправки  $\Delta_p$  представляет непростую задачу.

В качестве монитора используют такой нуклид, для которого величины поправок были минимальны, т.е. нуклид с большим периодом полураспада и малым сечением поглощения нейтронов. Еще одно требование – гамма-излучение монитора должно испытывать наименьшее поглощение внутри ОТВС и по пути от ОТВС до детектора (т.е. поправка  $K$  не слишком большая). Всем этим условиям наиболее полно отвечает продукт деления  $^{137}\text{Cs}$ , который образуется в следующей цепочке распадов:



Данные о  $^{137}\text{Cs}$  приведены в табл. В2.2.



Таблица В2.2

Ядерные данные для  $^{137}\text{Cs}$ 

Выход при делении, %		$T_{1/2}$ , лет	$E_\gamma$ , кэВ	$I_\gamma$ , %
$^{235}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$			
6,22	6,69	30,17	661,6	85,1

Спустя год после выгрузки из реактора спектр гамма-излучения ОТВС содержит более 30 пиков в диапазоне энергии 0,4-2,0 МэВ. Применение Ge-спектрометра дает возможность наблюдать в спектре изолированные пики ряда нуклидов, в том числе пик 661,6 кэВ  $^{137}\text{Cs}$  (рис. В2.3).

Отработавшая ТВС – мощный источник гамма-излучения, испускаемого при распадах продуктов деления. Поэтому высокой эффективности детектирования не требуется, так как существует опасность перегрузки электронного измерительного тракта, приводящей к просчетам импульсов и уширению пиков в спектре.

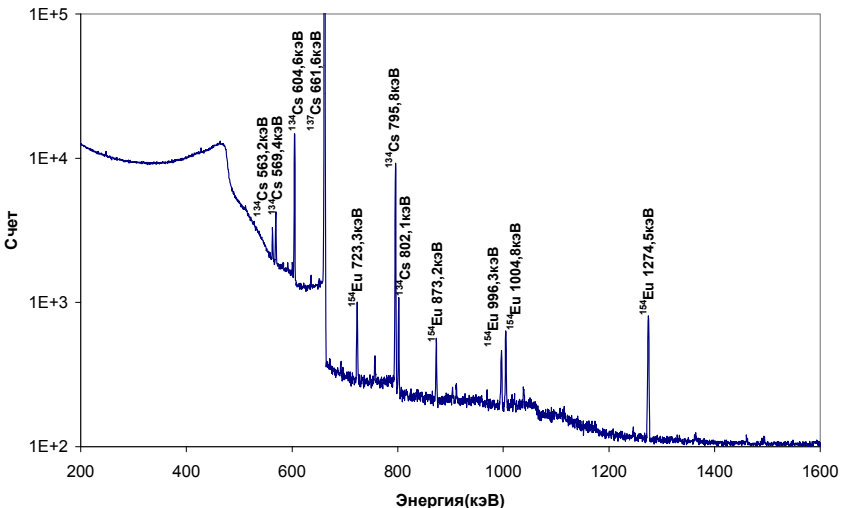


Рис. В2.3. Гамма-спектр ОТВС после длительной выдержки

Загрузка измерительной системы потоком гамма-квантов может регулироваться путем изменений площади коллимационного от-

верстия, через которое кванты попадают в детектор, и применения фильтров из поглощающих материалов, устанавливаемых на пути квантов в детектор.

После регистрации кванта измерительная система производит обработку возникшего сигнала и на это время ее вход закрыт для последующих сигналов («мертвое время»), что ведет к их просчетам. В современных спектрометрах существует специальный режим работы «по живому времени», когда реальное время измерения удлиняется на величину «мертвого времени».

В любом случае, можно учесть просчеты с помощью дополнительного реперного источника, помещенного вблизи детектора. По числу отсчетов в пике реперного источника, присутствующего во всех измеренных спектрах, можно определить поправку на просчеты: она равна отношению чисел отсчетов в опыте без ОТВС и при измерении ОТВС.

Требование к энергетическому разрешению детектора зависит от сложности измеряемого спектра, которая определяется временем выдержки ОТВС. После выгрузки из реактора при коротких выдержках спектр – сложный, многокомпонентный, и для выделения отдельных пиков требуется высокое разрешение, которым обладают Ge-детекторы. При длительных выдержках для измерений могут использоваться CdZnTe-детекторы, разрешение которых на порядок хуже, но другие свойства весьма привлекательны: они могут работать при комнатной температуре; имеют малые размеры; обладают высокой радиационной стойкостью. Эти достоинства важны, например, при измерениях в хранилищах ОТВС, при подготовке партий ОТВС для транспортировки и др.

## **Применение стандартных образцов**

Рассмотрение формул (B2.2) и (B2.3) приводит к выводу, что для прямого определения выгорания по результату гамма-спектрометрического измерения необходимо использовать ряд коэффициентов. Каждый из этих коэффициентов известен с некоторой погрешностью, которая дает вклад в общую погрешность результата анализа. Повысить точность можно путем использования стандартных образцов и перехода от прямых измерений к относительным.

В упрощенном виде формула для определения выгорания при этом будет выглядеть следующим образом:

$$B = B^{\text{co}} (n_m / n_m^{\text{co}}), \quad (\text{B2.4})$$

где  $n_m$  и  $n_m^{\text{co}}$  – скорости счета импульсов в пиках нуклида-монитора в спектрах исследуемого и стандартного образцов (СО),  $B^{\text{co}}$  – выгорание стандартного образца.

В качестве СО используют специально аттестованную ОТВС (в опытах на ЛАЭС) или твэлы (в опытах на реакторе МР-1М). В процессе аттестации из них вырезали образцы топлива и анализировали их нуклидный состав. Такой путь изготовления СО является высокотрудоемким и дорогим.

Для аттестации СО, служащих для определения выгорания ОТВС ИРТ (и других исследовательских реакторов), применим другой подход, основанный на неразрушающих измерениях. Аттестуемую ОТВС и свежую, паспортизованную на заводе-изготовителе ТВС, подвергают кратковременному (несколько часов) нейтронному облучению, помещая в позицию вблизи активной зоны ИРТ. После этого в спектрах свежей и отработавшей ТВС измеряют пик 1596 кэВ продукта деления  $^{140}\text{La}$  (его период полураспада равен 12,8 дня) – (рис. В2.4). Высокоэнергетическое излучение  $^{140}\text{La}$  обладает высокой проникающей способностью и ТВС ИРТ являются для него «прозрачными».

Отношение скоростей счета импульсов в пиках 1596 кэВ в спектрах ОТВС и свежей ТВС характеризует остаточное содержание  $^{235}\text{U}$  в ОТВС, а по разности его начального (паспортного) и остаточного содержания можно определить выгорание. Этот метод дает возможность с помощью неразрушающих измерений определять выгорание с рекордной точностью (около 2 %). Таким путем были аттестованы ОТВС, используемые в лабораторном практикуме на ИРТ МИФИ.

Схема измерительной установки, включающая перегрузочный контейнер с размещенной в ней ОТВС и германиевый детектор, показана на рис. В2.5. Поворотное устройство для вращения ОТВС в процессе измерения спектра показано на рис. В2.6.

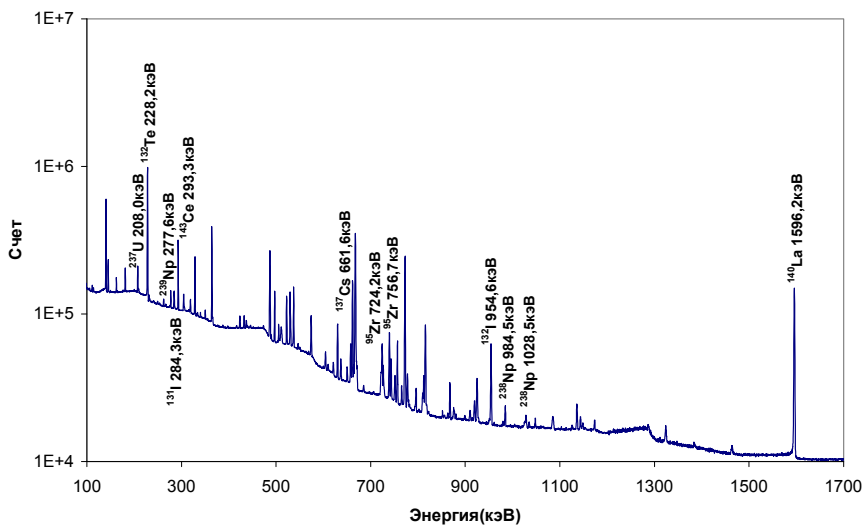


Рис.В2.4. Гамма-спектр отработавших ТВС через семь суток после повторного облучения

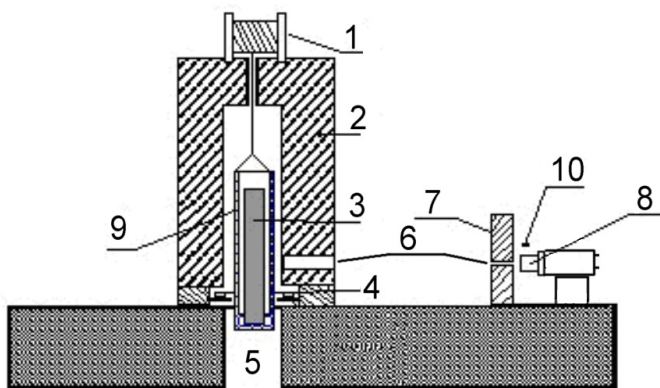


Рис. В2.5. Схема экспериментального устройства по определению выгорания ОТВС:

1 – лебедка для подъема ТВС, 2 – перегрузочный контейнер, 3 – ОТВС, 4 – устройство для вращения ТВС, 5 – перегрузочный канал шахты-хранилища, 6 – коллимационные отверстия, 7 – свинцовая защита детектора, 8 – Ge-детектор, 9 – ведро перегрузочного контейнера, 10 – реперный источник  $^{57}\text{Co}$

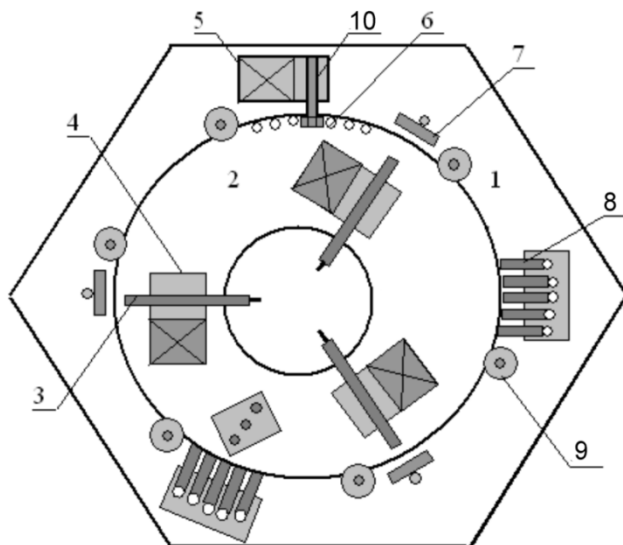


Рис. В2.6. Поворотное устройство:

1 – основание, 2 – поворотное кольцо, 3 – зажимные винты, 4 – шаговые двигатели с редукторами, 5 – ведущий шаговый двигатель, 6 – отверстия под зубья шестерни, 7 – концевые выключатели, 8 – скользящие контакты для питания шаговых двигателей, 9 – ролики, 10 – ведущая шестерня

## Определение выгорания по интенсивности нейтронного излучения ОТВС

Нейтронные измерения выгорания отличаются рядом особенностей. Нуклиды, ответственные за испускание нейтронов, образуются в результате нескольких последовательных реакций радиационного захвата (рис. В2.7). Поэтому связь между нейтронной активностью топлива и выгоранием нелинейная, ее аппроксимируют степенной функцией.

Стартовые нуклиды, из которых образуются нейтронные эмиттеры в низкообогащенном и высокообогащенном топливе, одни и те же: это  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$ , но соотношение между их вкладами может различаться в десятки раз. Разные нейтронные эмиттеры имеют разные периоды распада (табл. В2.3). Поэтому со временем меняются их доли в нейтронном излучении топлива. Простая связь ме-

жду выгоранием и интенсивностью нейтронного излучения ус-  
навливаются в случае, когда это излучение создает один эмиттер.

В облученном низкообогащенном топливе с выгоранием более  
15 МВт·сут/кг и временем охлаждения более двух лет определяю-  
щий вклад в эмиссию нейтронов дает  $^{244}\text{Cm}$ , в высокообогащенном  
топливе с длительным временем охлаждения (20-30 лет и более),  
нейтронное излучение в основном создает  $^{238}\text{Pu}$ .

Таблица В2.3

*Данные о нуклидах-эмиттерах нейтронов*

Нуклид	Период $\alpha$ -распада	Период спонтанного деления, лет	Выход нейтронов спонтанного деления, нейтр./с г	Выход нейтронов ( $\alpha,n$ )-реакции в оксидном топливе, нейтр./с г
$^{238}\text{Pu}$	87,74 г.	$4,77 \cdot 10^{10}$	$2,59 \cdot 10^5$	$1,34 \cdot 10^4$
$^{240}\text{Pu}$	$6,56 \cdot 10^3$ г.	$1,16 \cdot 10^{11}$	$1,02 \cdot 10^3$	$1,41 \cdot 10^{20}$
$^{242}\text{Pu}$	$3,76 \cdot 10^5$ г.	$6,84 \cdot 10^{10}$	1,72·10	2,00
$^{242}\text{Cm}$	163 дн.	$6,56 \cdot 10^{10}$	$2,10 \cdot 10^7$	$3,76 \cdot 10^6$
$^{244}\text{Cm}$	18,1 г.	$1,35 \cdot 10^7$	$1,08 \cdot 10^7$	$7,73 \cdot 10^4$

Важной особенностью нейтронных измерений является невоз-  
можность выделения излучения с определенных участков поверх-  
ности ОТВС, поскольку быстрые нейтроны плохо поддаются кол-  
лимации. Поэтому проводимые в практикуме измерения нейтрон-  
ного излучения дают информацию о среднем выгорании по ТВС,  
но не максимальном.

Как показано на рис. В2.7 (схема цепочек, ведущих к образова-  
нию  $^{244}\text{Cm}$ ), трансурановые нуклиды-эмиттеры нейтронов образу-  
ются в результате нескольких последовательных захватов. В ре-  
зультате из ядер массой  $A$  образуются ядра с массами  $A+1$ ,  $A+2$ ,  
 $A+3$  и т.д. Система дифференциальных уравнений, описывающая  
изменение содержания нуклидов со временем, имеет вид:



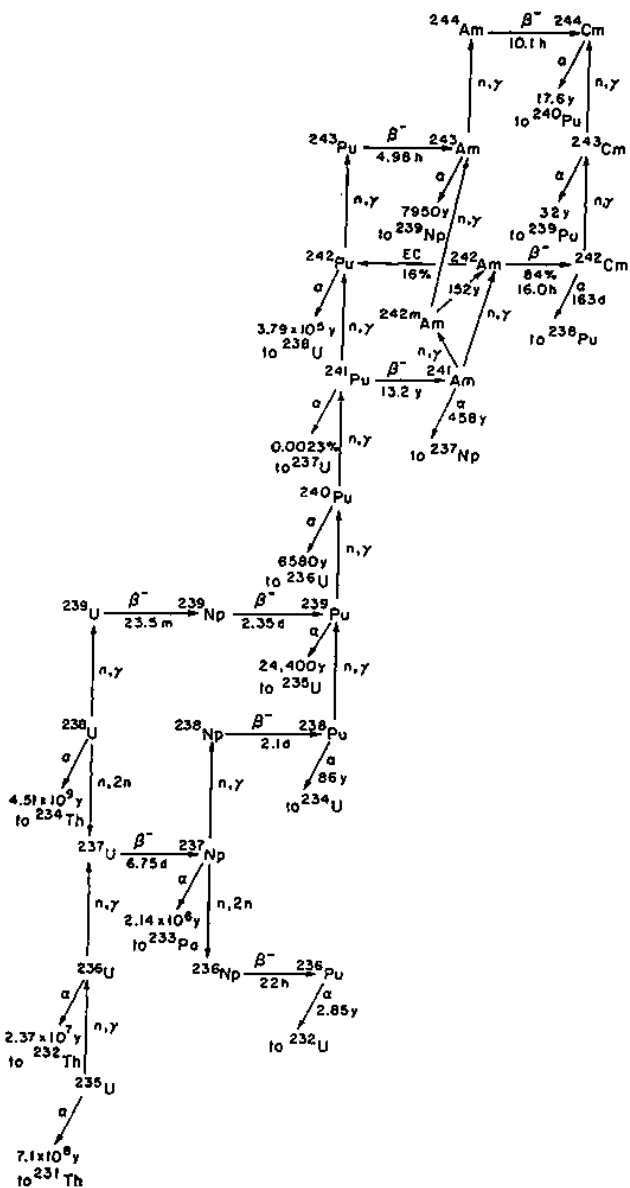
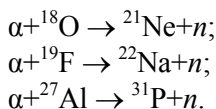


Рис.В2.7. Цепочки образования плутония, америция и кюрия



Ступенчатый режим работы ИРТ приводит к чередованию периодов накопления и распада  $^{242}\text{Cm}$ , что затрудняет интерпретацию результатов нейтронных измерений ОТВС с малыми временами выдержки, т.к. появляется необходимость знать историю их облучения. При нейтронных измерениях выгорания ОТВС ИРТ-2М с большим временем выдержки данных об истории облучения не требуется.

Тяжелые ядра испытывают распады с испусканием  $\alpha$ -частиц. Под действием  $\alpha$ -частиц могут происходить  $(\alpha, n)$ -реакции на легких ядрах, имеющих низкий кулоновский барьер отражения. Этот источник нейтронов в некоторых случаях можно сравнить по интенсивности со спонтанным делением. Примерами  $(\alpha, n)$ -реакций являются:



Указанные реакции могут происходить в ОТВС ИРТ, где образуются тяжелые нуклиды, а топливо представляет собой частицы  $\text{UO}_2$ , диспергированные в алюминиевую матрицу.

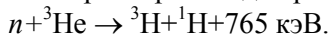
Некоторое дополнительное число нейтронов может рождаться в результате активных делений урана, вызванных нейтронами спонтанных делений и  $(\alpha, n)$ -реакций.

## Детектирование нейтронного излучения ОТВС

Чаще всего для измерений нейтронного излучения отработавшего топлива используют камеры деления, представляющие собой газонаполненные детекторы, внутренняя поверхность стенки которых покрыта слоем делящегося вещества. Часть энергии деления (около 160 мэВ) передается осколкам, которые производят ионизацию газа, регистрируются детектором. Обычно при изготовлении камер деления используют  $^{235}\text{U}$  с поверхностной плотностью от 0,02 до 2 мг/см<sup>2</sup>. Пробег осколков деления в уране составляет около 7 мкм. Поскольку толщина чувствительного слоя мала, эффективность регистрации тепловых нейтронов не превышает 0,5-1,0 %. Прибор работает в режиме ионизационной камеры. Из-за большой энергии осколков деления камеры деления наименее чувствитель-

ны к гамма-излучению. Их применение дает возможность проводить измерения нейтронного излучения ОТВС без дополнительной защиты от гамма-лучей.

Еще один часто используемый детектор нейтронов – счетчик заполненный газом  $^3\text{He}$ , в котором происходит реакция:



Сечение реакции для тепловых нейтронов, равное 5330 барн, уменьшается с ростом энергии по закону  $1/v$ . Эффективность регистрации тепловых нейтронов при давлении газа, равном 4 атм, достигает 71 %. Для опытов в лабораторном практикуме был выбран именно  $^3\text{He}$ -счетчик, при этом руководствовались следующими соображениями.

1. Для обеспечения биологической защиты экспериментаторов ОТВС устанавливают в толстостенный свинцовый контейнер. При облучении детектора нейтронами с энергией около 1 МэВ в присутствии гамма-квантов с энергией 1 МэВ слой свинца толщиной 5 см поглощает 0,1 % нейтронов и 90 % квантов. Таким образом, разместив  $^3\text{He}$ -счетчик вне контейнера, можно снизить гамма-фон до приемлемого уровня.

2. Для повышения эффективности регистрации нейтронов  $^3\text{He}$ -счетчиком, следует окружить его слоем замедлителя – водородсодержащего вещества.

3. Возможно изготовление  $^3\text{He}$ -счетчиков, по длине соразмерных с ТВС ИРТ. Это позволяет одновременно регистрировать нейтроны, испускаемые из всей ОТВС, обеспечив достаточно высокую скорость набора статистики.

Схема измерительной системы, применяемой для опытов с ОТВС ИРТ, показана на рис. В2.8.

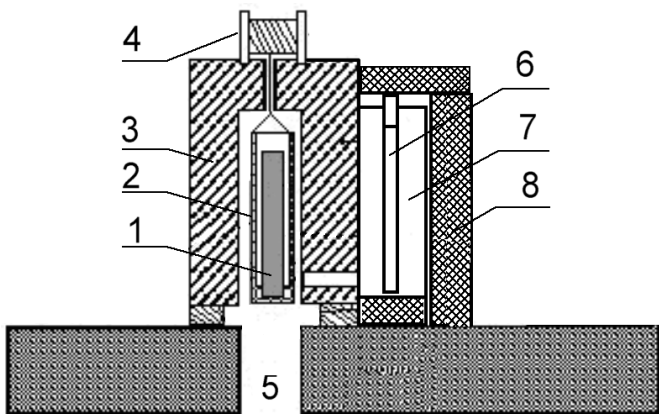


Рис. В2.8. Схема экспериментального устройства для измерений нейтронной активности ОТВС:

1 – ОТВС, 2 – ведро перегрузочного контейнера, 3 – перегрузочный канал шахты-хранилища, 4 – лебедка для подъема ТВС, 5 – перегрузочный канал шахты-хранилища, 6 –  $^3\text{He}$ -счетчик нейтронов, 7 – водородосодержащий замедлитель, 8 – нейтростоп

### **Порядок выполнения лабораторных работ в практикуме «Методы определения выгорания топлива отработавших ТВС»**

1. Работа выполняется в течение двух занятий, первое проводится в здании ИРТМИФИ, второе – в лабораторном корпусе 31.

2. Каждое занятие продолжается 4 часа.

3. Каждая работа выполняется бригадой из двух-трех участников.

4. Прошедшие медосмотр и проинструктированные участники проходят краткое собеседование о целях выполняемой работы и методе их достижения. Необходимый минимум знаний содержится в данном пособии.

5. Отобранные для экспериментов ОТВС последовательно перемещаются оператором–сотрудником ИРТ из бассейна выдержки на позицию для измерений внутри защитного контейнера.

6. В соответствии с заданием преподавателя производятся измерения излучения выбранных ОТВС в течение определенных интервалов времени в одном или нескольких положениях.

7. После завершения опыта с одной ОТВС оператор производит ее замену на другую, с которой проводят подобные же измерения.

8. Радиационная обстановка на рабочих местах во время проведения измерений контролируется дозиметристом.

9. По завершении экспериментов участники получают первичные результаты измерений (измеренные спектры, зарегистрированные числа отсчетов) для их последующей обработки.

10. Второе занятие посвящается компьютерной обработке полученных результатов, снабженных соответствующими программами, анализу результатов и расчету их погрешностей.

11. По итогам проделанной работы бригада оформляет отчет. Проводится защита отчета перед преподавателем, включающая ответы на дополнительные вопросы. В процессе защиты определяется и оценивается уровень знаний участников по рассматриваемой теме.

## Работа 7

### Определение выгорания отработавших ТВС методом гамма-сканирования

**Цель работы** – определение выгорания отработавшей ТВС с выдержкой более 3 лет по гамма-излучению продукта деления  $^{137}\text{Cs}$ .

**Аппаратура:** полупроводниковый коаксиальный HPGE-детектор с предусилителем, цифровой спектрометр *DSpec Junior 2.0*, компьютер с управляющей программой *Maestro*, поворотное устройство с блоком управления в стандарте КАМАК.

Набор образцовых стандартных гамма-источников (ОСГИ).

#### 1. Подготовка спектрометра к измерениям

На цифровом спектрометре запустите управляющую программу *Maestro* в режим связи с измерительным блоком.

Найдите в меню программы *Analyze – MCB Properties* окно включения высокого напряжения *High voltage*. Подайте высокое напряжение на детектор, нажав кнопку *On*. Убедитесь, что на блоке *DSpec* включился соответствующий индикатор.

#### 2. Градуировка энергетической шкалы спектрометра

В меню программы *Analyze – MCB Properties* перейдите в окно *Preset*. Установите режим измерения по живому времени 100 с.

Поместите на поверхность детектора источники  $^{241}\text{Am}$  и  $^{60}\text{Co}$  из набора ОСГИ. Запустите измерение, нажав кнопку *Go*. Проконтролируйте начало набора спектра на экране монитора. В правом верхнем углу экрана можно найти информацию о текущем времени измерения и величине мертвого времени спектрометра;

Используя всплывающие окна в меню *Calculation – Calibration*, удалите предыдущую градуировку и прокалибруйте по энергии набранный спектр по двум гамма-линиям: 1332,5 кэВ  $^{60}\text{Co}$  (правый пик) и 59,54 кэВ  $^{241}\text{Am}$  (левый пик).

По окончании градуировки определите энергию другого пика, принадлежащего  $^{60}\text{Co}$ .

Данные о выполненной градуировке занесите в табл. 7.1.

Таблица 7.1

Результаты градуировки энергетической шкалы

Источник	$^{241}\text{Am}$	$^{60}\text{Co}$	$^{60}\text{Co}$
Энергия гамма-излучения, кэВ	59,54	1173,25	1332,5
Положение центра пика, канал			

### 3. Сканирование ОТВС

1. В меню программы *Analyze-MSB Properties* перейдите в окно *Preset*. Установите режим измерения по живому времени 600 с.

2. После того, как аттестованная ОТВС будет установлена в перегрузочном контейнере, поверните вручную маховик редуктора на три оборота против часовой стрелки. При этом нижний край активной части ТВС окажется напротив отверстия коллиматора.

3. На блоке управления нажмите кнопку ПУСК несколько раз, пока световые индикаторы не покажут, что кассета захвачена поворотным устройством.

4. Запустите одновременно набор спектра от ТВС, нажав на индикатор *Go*, и поворотное устройство, нажав кнопку *Start* на устройстве управления. Наблюдайте на экране монитора процесс набора спектра. Мигающий светодиод на блоке управления будет свидетельствовать о том, что ТВС внутри контейнера вращается вокруг своей оси.

5. В процессе набора найдите в спектре гамма-линию, принадлежащую  $^{137}\text{Cs}$ . Выделите область пика 661,66 кэВ с помощью компьютерной мыши.

6. По окончании набора спектра выполните предварительную обработку спектра с помощью программы *Maestro*, нажатием правой кнопки мыши на индикатор *Peak Info*. Результат определения площади пика  $^{137}\text{Cs}$  запишите в табл. 7.2.

7. На блоке управления измените направление движения устройства захвата на противоположное, отжав кнопку со стрелкой

« → ». Затем нажмите несколько раз на кнопку ПУСК, пока световые индикаторы не покажут, что ТВС отпущена поворотным устройством.

Таблица 7.2

*Предварительные результаты определения числа отсчетов в пике  $^{137}\text{Cs}$*

Число оборотов маховика	Число отсчетов в пике $^{137}\text{Cs}$ аттестованной ОТВС	Число отсчетов в пике $^{137}\text{Cs}$ исследуемой ОТВС
3		
6		
9		
12		
15		
18		
21		
24		

8. Подойдите к перегрузочному контейнеру и поверните вручную маховик редуктора еще на три оборота против часовой стрелки.

9. На блоке управления зафиксируйте кнопку со стрелкой « → » в нажатом положении и нажмите кнопку ПУСК несколько раз, пока световые индикаторы не покажут, что кассета захвачена поворотным устройством.

10. Выполните набор спектра с одновременным вращением для второго положения ОТВС по высоте.

11. Повторяйте процедуру измерений с одновременным вращением ОТВС по всей длине ее активной части.

***Внимательно следите за тем, чтобы не перемещать ОТВС в положении, когда она захвачена поворотным устройством, так как это может привести к его поломке.***

12. После окончания сканирования аттестованной ОТВС попросите оператора заменить ее на исследуемую ОТВС из шахты-хранилища.

13. Выполните для исследуемой ОТВС ту же процедуру измерений, что и для аттестованной.

14. Предварительные результаты определения площадей пиков в набираемых спектрах занесите в табл. 7.2.

### **Обработка измеренных спектров и все последующие расчеты выполняются в лабораторном корпусе №31**

1. Выполните обработку измеренных спектров с помощью программы *Gamma Vision*.

2. Результаты определения площадей пиков занесите в табл. 7.3, аналогичную табл. 7.2. Сравните полученные результаты.

3. Постройте графики распределения выгорания для аттестованной и исследуемой ОТВС.

4. Определите примерную длину активной части исследуемой ОТВС.

5. Рассчитайте коэффициент неравномерности выгорания по высоте активной части исследуемой ОТВС.

6. Рассчитайте среднее значение выгорания исследуемой ОТВС. Оцените величину погрешности выгорания данным методом.

7. Оформите отчет по проведенной работе.

Таблица 7.3

*Результаты определения числа отсчетов в пике  $^{137}\text{Cs}$  по программе *Gamma Vision**

Число оборотов маховика	Число отсчетов в пике $^{137}\text{Cs}$ аттестованной ОТВС	Число отсчетов в пике $^{137}\text{Cs}$ исследуемой ОТВС
3		
6		
9		
12		
15		
18		
21		
24		



## Работа 8

### Определение выгорания по интенсивности нейтронного излучения отработавших ТВС

**Цель работы** – определение среднего выгорания отработавшей ТВС с выдержкой более 3 лет по ее нейтронному излучению.

**Аппаратура:**  $^3\text{He}$ -счетчик нейтронов с предусилителем, цифровой спектрометр *Dspec Junior 2.0*, компьютер с управляющей программой *Maestro*.

PuBe-источник нейтронов.

#### 1. Подготовка счетчика нейтронов к измерениям

1. На вход цифрового спектрометра подайте сигнал с выхода предусилителя нейтронного счетчика;
2. Включите тумблер на блоке питания нейтронного счетчика;
3. На цифровом спектрометре запустите управляющую программу *Maestro* в режим связи с измерительным блоком.

#### 2. Проверка работы измерительной системы

1. В меню программы *Analyze – MCB-properties* перейдите в окно *Preset*. Установите режим измерения по живому времени 100 с.

2. Проведите контрольное измерение с использованием PuBe-источника нейтронов. Поднесите PuBe-источник к стенке защиты нейтронного счетчика. Запустите измерение, нажав кнопку *Go*. Проконтролируйте начало набора спектра на экране монитора. В правом верхнем углу экрана можно найти информацию о текущем времени измерения и величине «мертвого времени» спектрометра.

3. С помощью компьютерной мыши выделите в спектре область пика, образованного в результате  $(n,p)$ -реакции в гелиевом счетчике.

4. По окончании набора спектра выполните предварительную обработку спектра с помощью программы *Maestro*, нажатием правой кнопки мыши на индикатор *Peak Info*. Результат определения числа отсчетов в пике запишите в табл. 8.1.

5. Проверьте стабильность работы измерительной системы, проводя ряд последовательных измерений с PuBe-источником нейтронов и сравнив полученные результаты.

Таблица 8.1

*Результаты проверки стабильности работы измерительной системы с нейтронным счетчиком*

Номер измерения	1	2	3	4
Число отсчетов в пике				

### **3. Измерение интенсивности нейтронного излучения ОТВС с разным выгоранием**

1. Уберите PuBe-источник и выполните измерение фона нейтронов при отсутствии ОТВС в перегрузочном контейнере в течение 5 мин. Результаты измерения занесите в табл. 8.2.

2. Попросите оператора поднять в перегрузочный контейнер ОТВС с известным выгоранием из шахты-хранилища.

3. Выполните три измерения скорости счета от контейнера с расположенной в нем ОТВС. Время одного измерения 10 мин. Результаты измерений занесите в табл. 8.2.

4. Попросите оператора заменить ОТВС в контейнере и выполните с новой ОТВС те же измерения, что и с предыдущей кассетой.

5. Используйте время перегрузки ОТВС для измерения фона помещения.

6. После измерения четвертой ОТВС с известным выгоранием попросите поставить исследуемую ОТВС, выгорание которой нужно определить.

7. Выполните с исследуемой ОТВС те же измерения, что и с предыдущими. Время измерения выберите, исходя из скорости счета исследуемой ОТВС.

Таблица 8.2.

*Результаты измерения нейтронного излучения ОТВС с разным выгоранием*

Выгорание ОТВС	Время измерения фона	Фон помещения	Время измерения ОТВС	Суммарный счет от ОТВС
5 %				
12 %				
25 %				
35 %				
Исследуемая ОТВС				

**Обработка результатов измерений и все последующие расчеты выполняются в лабораторном корпусе №31**

1. Рассчитайте средние значения фона помещения и скоростей счета нейтронов для каждой ОТВС с учетом статистической погрешности каждого измерения. Для расчетов средних значений можно воспользоваться программой «Среднее с весами». Результаты расчетов занесите в табл. 8.3.

2. По полученным результатам для ОТВС с известным значением выгорания постройте градуировочную зависимость скорости счета нейтронов от выгорания.

Таблица 8.3

*Результаты определения средних значений фона и скоростей счета ОТВС*

Выгорание ОТВС	Среднее значение фона	Средняя скорость счета от ОТВС	Средняя скорость счета нейтронов после вычитания фона
5 %			
12 %			
25 %			
35 %			
Исследуемая ОТВС			

3. Полученные результаты аппроксимируйте подходящей функцией.

4. Определите выгорание исследуемой ОТВС, используя полученную в лабораторной работе градуировочную зависимость.

5. Оцените погрешность определения выгорания данным методом.

6. Оформите отчет по проведенной работе.

### **Контрольные вопросы к работам 7, 8**

1. Что ограничивает глубину выгорания ядерного топлива?

2. Чем ТВС исследовательских реакторов отличаются от ТВС энергетических реакторов?

3. Какие последствия может вызвать снижение обогащения топлива исследовательских реакторов?

4. Как связаны величины выгорания и остаточного содержания делящихся изотопов в отработавшем топливе?

5. Что ограничивает плотность потока нейтронов в исследовательских реакторах? Какое максимальное значение плотности потока может быть достигнуто?

6. Какой параметр характеризует качество исследовательского реактора?

7. Почему выгруженные из реактора ОТВС нельзя оставлять без теплосъема?
8. Почему стремятся увеличить глубину выгорания топлива?
9. Почему изотопный состав накапливающегося в урановом топливе плутония зависит от глубины выгорания топлива?
10. Как изменится соотношение  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{244}\text{Cm}$  в топливе ИРТ с ростом выгорания?
11. Почему в качестве мониторов выгорания используют долгоживущие радиоактивные нуклиды?
12. Как выглядит связь между интенсивностью нейтронного излучения и выгоранием при малом времени выдержки ОТВС после их извлечения из реактора?

### Рекомендуемая литература

1. Бушуев А.В., Алеева Т.Б. Методы и приборы измерений ядерных материалов. М.: МИФИ, 2011.
2. Резников Р.С., Сельдяков Ю.П. Промышленные полупроводниковые детекторы. М.: Атомиздат, 1975.
3. Балдин С.А., Варганов Н.А., Ерыхайлов Ю.В. и др. Прикладная спектрометрия с полупроводниковыми детекторами. М.: Атомиздат, 1974.
4. Дорин А.Б., Чибисов С.А. Выбор оптимальной структуры и параметров формирующих цепей спектрометрического усилителя// Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерное приборостроение. Вып.1-2. 1990. С. 32.
5. D.T. Vo, P.A. Russo, T. E. Sampson. Comparisons between digital Gamma-ray spectrometer (DSpec) and standard nuclear instrumentation methods (NIM) systems, Los Alamos National Laboratory report LA-13393.
6. D.T. Vo. Comparisons of the DSpec and DSpec-Plus spectrometer systems, Los Alamos National Laboratory report LA-13671.
7. D.T. Vo. Extended Evaluations of the Commercial Spectrometer Systems for Safeguards Applications, Los Alamos National Laboratory report LA-13604-MS, 1999.
8. Бать Г.А., Коченов А.С., Кабанов А.П. Исследовательские ядерные реакторы. М.: Энергоатомиздат, 1985.

9. Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Жуньдун Ли и др. Определение выгорания ТВС исследовательских реакторов методом их повторного облучения// Атомная энергия. Т.97. Вып.2. 2004. С. 138-145.
10. Андрияшин И.А., Юдин Ю.А. Риски распространения и проблема энергетического плутония. Саранск: Тип. «Крас. Окт.», 2007.
11. Акимов. Ю.К. Полупроводниковые детекторы ядерных излучений. ОИЯИ, Дубна, 2009.

## Приложение 1

Таблица П1.1

Данные о  $\gamma$ -излучении источников из набора ОСГИ<sup>2</sup>

Радио- нуклид	A, кБк	$\delta A$ , %	Дата аттеста- ции	E, кэВ	I, %	$\delta I$ , %	$T_{1/2}$ , сут	$\delta T_{1/2}$
Со-57	104,4	1	30.09.1998	14,41	9,16	0,15	271,79	0,09
				122,1	85,6	0,17		
				136,5	10,68	0,08		
Со-60	105,8	1	30.09.1998	1173,2	99,857	0,022	1925,5	0,5
				1332,5	99,983	0,006		
Ва-133	116,1	1	30.09.1998	79,631	2,5	0,4	3862	15
				80,998	34,11	0,28		
				276,398	7,147	0,03		
				302,853	18,3	0,06		
				356,017	61,94	0,14		
				383,851	8,905	0,029		
Cs-137	107,7	1	30.09.1998	661,662	85,1	0,2	11020	60
Am-241	103,4	1	30.09.1998	26,345	2,4	0,1	157861	47
				59,537	36	0,4		
Eu-152	54,3	2	30.11.2006	121,78	28,38	0,23	4865,13	0,49
				244,7	7,51	0,063		
				344,3	26,6	0,015		
				411,11	2,23	0,013		
				443,98	2,8	0,025		
				778,91	12,96	0,7		
				867,39	4,21	0,042		
				964,13	14,49	0,06		
				1085,9	9,92	0,048		
				1112,1	13,56	0,06		
				1212,9	1,4	0,019		
				1408	20,85	0,08		

<sup>2</sup> ОСГИ – образцовые спектрометрические гамма-источники.

### Инструкция по работе с программой PC/FRAM

Управление программой реализовано через набор команд меню. Эти команды сгруппированы в пять заголовков верхнего уровня меню (рис. П2.1).

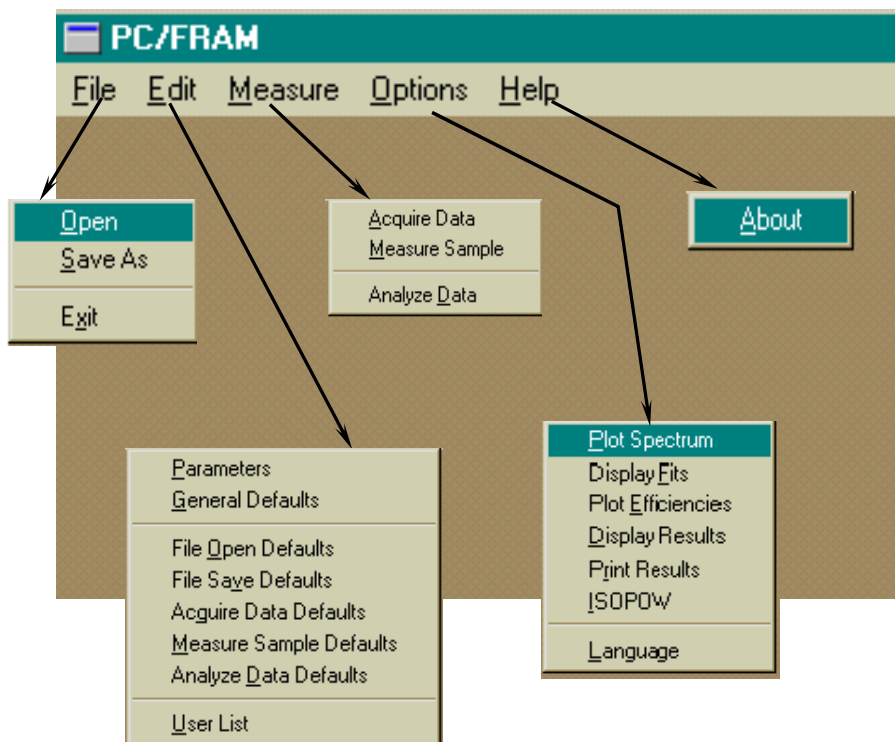


Рис. П2.1. Вид главного меню программы FRAM

#### Обзор опций основного меню

##### File

Команда позволяет открыть файл спектральных данных, передать его в память, сохранить спектральные данные на диске или выйти из программы PC/FRAM.



## **Edit**

Команда позволяет редактировать установочные параметры в наборе параметров и устанавливать пароли и авторизованные коды пользователя.

## **Measure**

Команда позволяет управлять набором данных в многоканальном анализаторе непосредственно из программы PC/FRAM. Анализ данных начинается сразу после того, как закончен набор данных. Эта команда требует установки соответствующего оборудования и связанных с ним драйверов устройств. Кроме того, эта опция позволяет анализировать предварительно измеренные спектры, сохраненные на жестком диске или дискете.

## **Options**

Команда позволяет вывести на экран спектральные данные, проанализированные или открытые программой. Также позволяет вывести на экран аналитическое описание различных энергетических областей последнего проанализированного спектра. Можно выбрать просмотр кривой относительной эффективности и ошибок подгонки. Кроме того, имеется возможность распечатать результаты последнего анализа с различной степенью детализации. Можно открыть файлы, содержащие результаты предыдущих проанализированных спектров, а также запустить программу, которая обновляет и корректирует изотопный состав плутония с учетом распада изотопов. Также имеется возможность выбора языка (Английский или Русский).

## **Help**

Команда позволяет получить информацию о названии и номере версии программы, информацию по авторскому праву.

## **Порядок работы с программой**

### **Запуск программы**

Для того чтобы вызвать программу, достаточно щелкнуть по пиктограмме **FRAM** на рабочем столе компьютера.

## 1. File

*Open* команда позволяет считывать спектральные данные из файла.

*Save As* опция позволяет записать данные из памяти в файл.

*Exit* команда выхода из программы PC/FRAM.

## 2. Edit

*Parameters* Анализом спектров управляют защищенные паролем, редактируемые пользователем файлы параметров. Они применимы для большинства обычных задач и чаще всего не требуют каких-либо модификаций или изменений. Тем не менее при необходимости пользователь может легко модифицировать файлы для специальных применений; при этом не требуется навыков программирования, необходимо только знание принцип гамма-спектрометрии урана и плутония и ядерные данные. Данная опция позволяет создавать новый набор параметров, удалять старый из базы данных или модифицировать имеющиеся наборы параметров.

*General Defaults* позволяет изменять основные параметры конфигурации, такие как число каналов многоканального анализатора, число итераций при подгонке, пути сохранения файлов спектров и отчетов, и др.

*File Open Defaults* управляет параметрами окна Open File, используемыми по умолчанию.

*File Save Defaults* управляет параметрами окна Save File, используемыми по умолчанию.

*Acquire Data Defaults* управляет параметрами набора и сохранения спектров, используемыми по умолчанию.

*Measure Sample Defaults* управляет параметрами набора, обработки и сохранения спектров и результатов, используемыми по умолчанию.

*Analyze Data Defaults* управляет параметрами обработки спектров и сохранения результатов, используемыми по умолчанию.

*User List* позволяет управлять информацией о пользователях, имеющих доступ к работе с программой.

### 3. Measure

Это меню содержит опции, управляющие набором и обработкой спектра. Возможны два варианта набора спектра: с последующей обработкой (**Measure Sample**) и без нее (**Acquire Data**). Третья опция (**Analyze Data**) позволяет анализировать уже измеренные спектры, хранящиеся на диске.

Диалоговое окно измерения спектра с последующей обработкой разделяется на три части: **Input** (рис. П2.2.), **Acquire** и **Output**.

#### 3.1. Input

##### Sample ID

Идентификационная информация (до 15 символов) об измеряемом образце.

##### Operator ID

Идентификационная информация (до 15 символов) об операторе, выполняющем измерение.

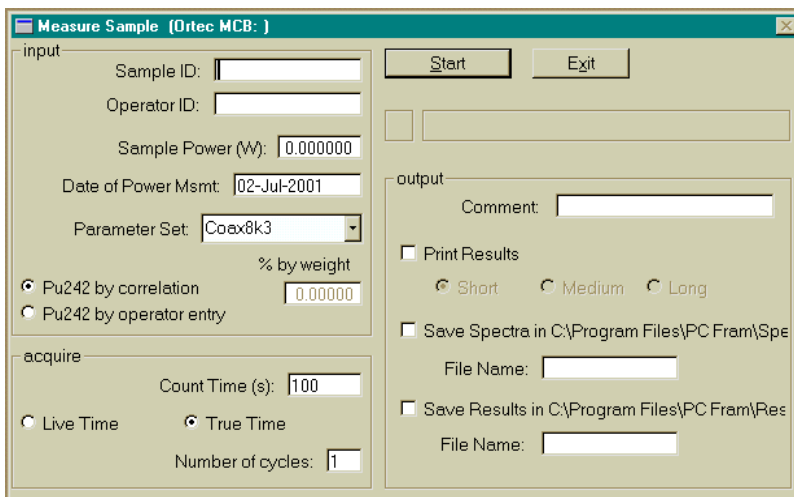


Рис. П2.2. Диалоговое окно измерения спектра **Input**

**Sample Power (watts)** Если ввести энерговыделение и дату calorиметрического измерения образца плутония, то программа определит и покажет общую массу плутония на момент calorиметрического анализа. Если calorиметрические

измерения не проводились, или в случае анализа уранового образца оставьте значение равным 0,0.

**Date of Power Msmt** Дата проведения калориметрического анализа.

**Parameter Set** Из перечня параметров, имеющихся в базе данных, необходимо выбрать нужный набор параметров обработки спектра. Краткое описание имеющихся наборов параметров представлено в приложении 3.

**Pu242** Вы выбираете, должно ли содержание  $^{242}\text{Pu}$  определяться по корреляционному соотношению, или должна использоваться известная величина (в процентах к массе плутония).

### 3.2. Acquire Count time (s)

Введите время измерения спектра в секундах и укажите, по живому (**Live Time**) или реальному (**True Time**) времени оно должно проводиться.

**Number of cycles** В случае необходимости проведения повторных измерений, можно задать число циклов (повторов) измерения данного образца (от 1 до 99).

### 3.3. Output Comment

Можно ввести произвольный комментарий (текстовая строка разметом до 59 символов), который воспроизводится при выводе результатов.

**Print Results** Поставьте флажок напротив опции **Print Results**, если вы хотите, чтобы результаты каждого анализа автоматически распечатывались. Можно выбрать конкретный вид отчета (**Short, Medium, Long**).

**Save Spectra** Пометьте эту опцию, если вы хотите сохранить спектр на диске и укажите путь к ката-

логу, в котором хотите поместить файл. По умолчанию используется каталог **C:\Program Files\PC Fram\Spectra**. Изменить его можно в меню **Edit→General Defaults**. Размер имени файла не должен превышать 8 символов.

## Save Results

Пометьте эту опцию, если вы хотите сохранить результаты анализа в определенном каталоге. Файл результатов представляет собой полную запись всего анализа. По умолчанию используется каталог **C:\Program Files\PC Fram\Results**. Изменить его можно в меню **Edit→General Defaults**. Размер имени файла не должен превышать восемь символов.

В окне состояния программы, в правом нижнем углу отображается ход анализа.

## 4. Options

Эта команда меню управляет набором утилит, которые позволяют легко проверить качество анализа, графически представить спектральные данные и аппроксимации, вывести на экран результаты для любого выбранного формата печати и осуществить корректировку изотопного состава образца на любую дату с учетом распада изотопов.

### 4.1. Plot Spectrum

Эта опция позволяет построить график исходного спектра в формате, подобном формату многоканального анализатора. Изображенный спектр – это или последний проанализированный спектр, или спектр, открытый в опции **File** (рис. П.2.3).

Щелчок мышью по окну спектра делает его активным. Курсор в виде креста можно перемещать по спектру мышью или клавишами клавиатуры "**←**", "**→**". Номер канала, в котором находится курсор, и число отсчетов в данном канале отображаются внизу окна.

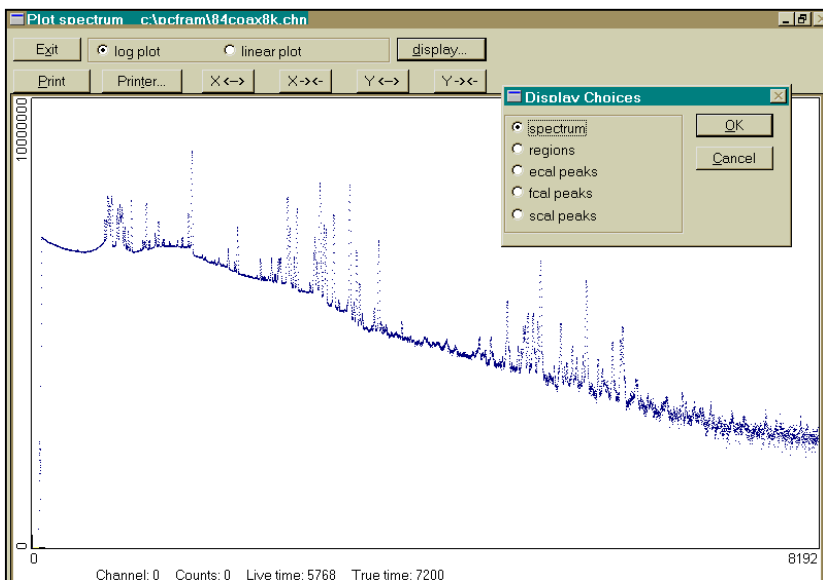


Рис. П2.3. Диалоговое окно **Plot Spectrum**

График может быть построен в логарифмическом или линейном масштабе, вид шкалы задается круглыми кнопками "**log plot**", "**linear plot**". Клавиши "**X <->**", "**X -><-**", "**Y <->**", "**Y -><-**" управляют масштабами по осям X и Y. Клавиша **Print** позволяет распечатать копию рабочего окна. При нажатии клавиши **Printer** появится стандартное окно Windows, которое позволит отредактировать свойства принтера. Кнопка **Display Choices** открывает диалоговое окно с пятью опциями, которые позволяют обозначить диапазоны, которые программа, в зависимости от выбранного набора параметров, обрабатывает как пики или как фон (**regions**), а также пики, используемые для градуировки по энергии (**ecal peaks**), по полуширине (**fcal peaks**) и по форме пика (**scal peaks**). Возврат в главное меню осуществляется нажатием клавиши **Exit**.

#### 4.2. Display Fits

Эта опция позволяет визуально представить результаты аппроксимаций для последнего обработанного спектра. Кривая, описывающая пик, окрашена в красный цвет, фон – в зеленый.

### 4.3. Plot Efficiencies

Позволяет построить график вычисленных значений относительной эффективности и аппроксимирующую их кривую относительной эффективности. В нижней части экрана показано отношение расчетных значений к аппроксимирующим значениям.

### 4.4. Display Results

Опция позволяет отобразить на экране результаты последнего анализа, которые находятся в памяти (**use most recent results**) или любые ранее сохраненные в файле результаты (**use previously saved results**). После выбора результатов, которые вы хотите вывести, выберите формат вывода (**Short, Medium, Long**). Форматы различаются степенью детализации информации о спектре. Поставив флажок напротив опции **Print Parameters**, можно распечатать и набор параметров, с помощью которого проводилась обработка спектра.

### 4.5. Print Results

Эта опция обеспечивает те же возможности, что и предыдущая, с той разницей, что результаты сразу отправляются на печать, а не на экран монитора.

### 4.6. ISOPOW

Опция позволяет обновить или скорректировать изотопный состав плутониевого образца относительно любой произвольной даты либо вперед, либо назад (рис. П2.4).

В подокне **Initial** необходимо ввести исходное процентное содержание изотопов плутония. В подокне **Dates** – дату, к которой относятся исходные значения, и дату, для которой вычисляются поправленные результаты. Следует заметить, величина содержания  $^{241}\text{Am}$  вводится в долях на миллион единиц плутония (**ppm – particles per million**). Для идентификации образца можно ввести в окно **ID** текстовую строку, содержащую до 15 символов. После нажатия кнопки **OK** в окне **Final** появятся результаты, скорректированные на распад. При помощи клавиши **Print** можно распечатать результаты.

**ISOPOW**

initial		final
<input type="text" value="0.00867"/>	wt% Pu238	<input type="text"/>
<input type="text" value="93.78357"/>	wt% Pu239	
<input type="text" value="6.01466"/>	wt% Pu240	
<input type="text" value="0.16838"/>	wt% Pu241	
<input type="text" value="0.02470"/>	wt% Pu242	
<input type="text" value="0.00000"/>	wt% Pu244	
<input type="text" value="1950.4"/>	ppm Am241/Pu	
<input type="text" value="100.0000"/>	total grams Pu	

dates

Initial Pu date	<input type="text" value="15-Jan-1995"/>
Initial Am date	<input type="text" value="15-Jan-1995"/>
Final date	<input type="text" value="02-Jul-2001"/>

Sample ID:

Specific Power (mW/gPu)

Sample Power (W):

Percent Pu240 Effective

Рис. П2.4. Диалоговое окно **ISOPOW**



## Наборы параметров для PC/FRAM

### Описание используемых в работе наборов параметров для коаксиального детектора

#### 1. Coax8k3

Набор параметров, аналогичный **wr6Planar**. Этот набор применяется при обработке спектров длиной 8192 канала, полученных в измерениях на коаксиальном детекторе, с усилением 0,125 кэВ/канал и нулевым смещением. Анализируемый диапазон энергий гамма-квантов – 120÷451 кэВ. Предполагается, что измерения проводятся на коаксиальном детекторе с эффективностью 20-25 %, разрешением <1,75 кэВ при энергии 1332 кэВ. Спектр длиной 8192 канала измеряется для того, чтобы при невозможности проведения анализа в диапазоне энергий 120÷451 кэВ (обычно это происходит, когда образец помещен в защитный контейнер) иметь возможность проанализировать этот же спектр, используя диапазон более высоких энергий при помощи набора параметров SC42hiE. При использовании **Coax8k** предполагается равновесие  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$  и гомогенность по Am/Pu.

#### 2. SC42

Применяется при обработке спектров, полученных в измерениях на коаксиальном детекторе со шкалой анализатора 8192 канала, с усилением 0,125 кэВ/канал и нулевым смещением. Анализируемый диапазон энергий гамма-квантов – 203÷780 кэВ, используется, как уже отмечалось, при отсутствии пиков ниже 200 кэВ. Такие спектры характерны для плутониевых образцов, находящихся за защитой или в толстостенном контейнере. Содержание  $^{240}\text{Pu}$  определяется по гамма-линии 642,5 кэВ, а  $^{238}\text{Pu}$  – по гамма-линии 766,4 кэВ.

#### 3. ULoEnr

Данный набор параметров используется для определения содержания  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  в образцах, содержащих только уран (без плутония). Он использует для анализа данные в энергетическом

диапазоне 120-1001 кэВ, измеренные на коаксиальном детекторе. Набор параметров предполагает установившееся равновесие в распаде  $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$ . Набор параметров применим для обработки результатов измерений урановых образцов в диапазоне обогачений 0,2-70 %, но предпочтительнее его использовать для обогачений <20 %.

### 1. UHiEnr

Используется для определения содержания  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  в образцах, содержащих только уран (без плутония). Он использует для анализа данные в энергетическом диапазоне 120-1001 кэВ, измеренные на коаксиальном детекторе. Набор параметров предполагает установившееся равновесие в распаде  $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$ . Набор параметров применим для обработки результатов измерений урановых образцов в диапазоне обогачений 10-99 %, но наилучшие результаты получаются для обогачений >20 %.

## Описание используемых в работе наборов параметров для планарного детектора

### 1. wr6Planar

Стандартный набор параметров, используемый при анализе образцов в широком диапазоне обогачений. Применяется при обработке данных, полученных в измерениях на планарном детекторе с высоким разрешением (обычно это детектор с чувствительной областью  $\varnothing 16$  мм, толщиной 13 мм и разрешением  $\leq 510$  эВ при энергии 120 кэВ). Шкала анализатора 4096 каналов, усиление 0,1 кэВ/канала со смещением нуля на 10 кэВ (канал №0=10,0 кэВ), что соответствует энергетическому диапазону 10-420 кэВ. Данный набор параметров используется при содержании в образце  $^{238}\text{Pu}$  от 2 % до 38 %,  $^{241}\text{Am}$  – свыше 3 %. В набор параметров заложена проверка на присутствие в спектре гамма-квантов  $^{235}\text{U}$ ,  $^{243}\text{Am}$ - $^{239}\text{Np}$ ,  $^{237}\text{Np}$  и проверка равновесия  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ .

### Инструкция по работе с устройством сканирования твэлов

#### Технические характеристики

Конструкция сканирующего устройства обеспечивает линейное перемещение твэла над Ge-детектором на расстояние, равное длине его активной части, т. е. приблизительно на 300 мм. Величина линейного перемещения за один пуск установки может быть установлена в пределах 0,1-12,0 мм. Погрешность позиционирования твэла в процессе сканирования в одном направлении не превышает 0,1 мм. При изменении направления движения твэла возникает сдвиг в позиционировании на величину около 0,5 мм, что определяется суммарным люфтом механического привода каретки. Концевой выключатель обеспечивает точность повторной установки начального положения твэла не хуже, чем 0,1 мм. Для визуального контроля за перемещением твэла устройство сканирования снабжено шкалой с указателем. Расстояние от поверхности детектора до твэла в процессе сканирования практически не изменяется.

Основой электрической части установки является модуль управления шаговым двигателем. Управление направлением вращения, скоростью и числом шагов (углом поворота) шагового двигателя осуществляется вручную с помощью кнопок, размещенных на передней панели модуля.

Левый вертикальный ряд кнопок с цифрами от 1 до 128 определяет период переключения полюсов шагового двигателя, т. е. скорость его вращения. Минимальный период, который можно применить для данного типа двигателя, равен 8. При меньшем периоде возможны сбои в работе устройства и погрешности в позиционировании твэла.

Переключением правого вертикального ряда кнопок с цифрами от 1 до 64 устанавливается количество шагов двигателя, т. е. величина перемещения твэла. Каждая единица соответствует 0,1 мм. Таким образом, чтобы переместить твэл на 5,0 мм, следует нажать кнопки 32, 16 и 2. Запуск устройства осуществляется нажатием кнопки START. При этом каретка с закрепленным на ней твэлом передвинется на 50 шагов по 0,1 мм, т. е. на 5,0 мм в направлении,

определяемом кнопкой "⇒". Если кнопка со стрелкой нажата, то каретка будет двигаться вправо, а если отжата, то влево. После того, как модуль отработал установленное число шагов, в верхней части панели управления загорится индикатор STOP. Повторный запуск устройства осуществляется нажатием кнопки START.

**ВНИМАНИЕ!** Не следует повторно нажимать кнопку START до тех пор, пока не закончится предыдущий цикл. Это приведет к ошибке позиционирования твэла.

Для установки твэла в начальное положение нужно выполнить следующие операции:

1. Отжать кнопку направления движения "⇒" и нажать START. Убедиться в том, что каретка с твэлом переместилась влево.

2. Нажать кнопку непрерывного вращения "X2" и дождаться того момента, когда каретка переместится в крайнее левое положение и остановится на концевом выключателе. При этом на панели управления должен загореться индикатор "L".

**ВНИМАНИЕ!** Если вы хотите остановить режим непрерывного вращения, нажмите кнопку START!

3. Нажать кнопку "⇒", установить количество шагов "1" и нажать на кнопку START несколько раз до тех пор, пока не погаснет индикатор концевого выключателя "L".

4. Установить с помощью переключателей необходимую величину перемещения, которая обычно равна ширине щели коллиматора, установленного на Ge-детекторе. Устройство готово к началу сканирования.