

Спектрометрический анализ использования сусального золота в качестве детекторов тепловых нейтронов

Для измерения на исследовательском ядерном реакторе плотности потока тепловых нейтронов с целью определения распределения его плотности по радиусу и высоте активной зоны, сечению тепловыделяющей сборки, а также в штатных облучательных устройствах использовались специальные метрологические наборы АКН (активационный набор) и АКН-Т (активационный набор тепловой) с детекторами из чистого золота и других особо чистых элементов. В настоящее время такие наборы в Украине не производятся. Предлагается заменить золотые детекторы АКН-Т на метрологически аттестованные детекторы из сусального золота, которые не уступают по эффективности детекторам активационного набора.

Ключевые слова: детектор, нейtron, энергетический спектр, нейтронно-активационный анализ.

П. А. Пономаренко, М. О. Фролова

Спектрометричний аналіз застосування сусального золота як детекторів теплових нейтронів

Для вимірювання на дослідницькому ядерному реакторі щільності потоку теплових нейтронів з метою визначення розподілу його щільності за радіусом і висотою активної зони, після тепловидільної збірки, а також у штатних опромінювальних пристроях використовувалися спеціальні метрологічні набори АКН (активаційний набір) і АКН-Т (активаційний набір тепловий) з детекторами з чистого золота та інших особливо чистих елементів. В даний час такі набори в Україні не виробляються. Пропонується замінити золоті детектори АКН-Т на метрологично аттестовані детектори з сусального золота, які не поступаються за ефективністю детекторам активаційного набору.

Ключові слова: детектор, нейtron, енергетичний спектр, нейтронно-активаційний аналіз.

© П. А. Пономаренко, М. А. Фролова, 2010

Для проведения нейтронно-активационного анализа на исследовательских реакторах используют импортные, достаточно дорогостоящие, аналогов которым пока нет, наборы детекторов активационных тепловых [7]. На исследовательском реакторе ИР-100 Севастопольского университета ядерной энергии и промышленности предложено использовать детекторы тепловых нейтронов, изготовленные из сусального золота диаметром 10 мм марки ЗлСр 75-25 [4]. Содержание золота позволяет измерять плотность потока тепловых нейтронов нейтронно-активационным методом с точностью, достаточной для радиационных технологий и обеспечения теплотехнической безопасности твэлов и активной зоны при ее эксплуатации.

Перед использованием детекторов из сусального золота, активность которых предполагалось измерять на гамма-спектрометрическом комплексе марки КАНБЕРРА, выполнен спектрально-активационный анализ энергии гамма-квантов радионуклидов, составляющих сусальное золото, после облучения их в поле тепловых нейтронов.

В сплав ЗлСр 75-25 входят золото (74,77–75,3 %), серебро (24,7–25,3 %), свинец (0,005 %), железо (0,15 %), сурьма (0,005 %) и висмут (0,005 %) [5]. Каждый из перечисленных природных элементов состоит из нуклидов, процентный состав которых представлен в табл. 1 [3].

Таблица 1. Нуклидный состав химических элементов, составляющих сусальное золото

| Химический элемент | Процентный состав нуклида | Химический элемент | Процентный состав нуклида |
|--------------------|----------------------------------|--------------------|----------------------------------|
| Au | $^{197}_{79}\text{Au}$ – 100 % | Fe | $^{54}_{26}\text{Fe}$ – 5,84 % |
| Ag | $^{107}_{47}\text{Ag}$ – 51,35 % | | $^{56}_{26}\text{Fe}$ – 91,68 % |
| | $^{109}_{47}\text{Ag}$ – 48,65 % | | $^{57}_{26}\text{Fe}$ – 2,17 % |
| Pb | $^{204}_{82}\text{Pb}$ – 1,48 % | Sb | $^{58}_{26}\text{Fe}$ – 0,31 % |
| | $^{206}_{82}\text{Pb}$ – 23,6 % | | $^{121}_{51}\text{Sb}$ – 57,25 % |
| | $^{207}_{82}\text{Pb}$ – 22,6 % | Bi | $^{123}_{51}\text{Sb}$ – 42,75 % |
| | $^{208}_{82}\text{Pb}$ – 52,3 % | | $^{209}_{83}\text{Bi}$ – 100 % |

Детекторы из сусального золота при использовании их для определения распределения плотности потока нейтронов тепловых энергий с помощью нейтронно-активационного анализа будут облучаться в поле тепловых нейтронов (активироваться), а наведенная активность детекторов будет измеряться путем регистрации гамма-квантов спектрометрическим комплексом с известной разрешающей энергетической способностью. Каждый из нуклидов (табл. 1), присоединив тепловой нейtron, дает радиоактивный изотоп, испускающий позитроны, электроны, гамма-кванты, либо претерпевающий К-захват. В свою очередь, каждый из образовавшихся радионуклидов характеризуется присущими лишь ему одному уровнями возбуждения ядра и,

освобождаясь от энергии возбуждения, испускает частицы не только различного вида, но и различных энергий. Так как спектрометрический комплекс регистрирует гамма-кванты только определенного диапазона энергий, то, учитывая выход гамма-квантов на распад и имея количественную характеристику гамма-квантов определенной энергии за 1 с, можно определить наведенную активность в поле тепловых нейтронов. Последняя однозначно связана с плотностью потока нейтронов формулой [6]

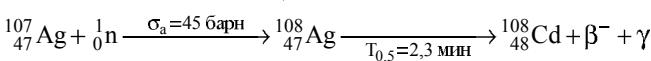
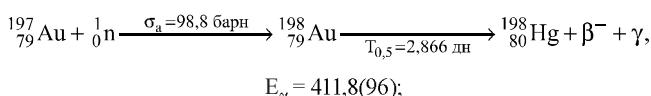
$$A = \frac{\lambda_D \cdot \varphi_{TH} \cdot \sigma_M \cdot N_M}{\lambda_D + \varphi_{TH} \cdot \sigma_D - \varphi_{TH} \cdot \sigma_M} \times \\ \times \left(e^{-\varphi_{TH} \cdot \sigma_M \cdot t_{obl}} - e^{-(\lambda_L \varphi_{TH} \cdot \sigma_M) \cdot t_{obl}} \right) \times \\ \times e^{-\lambda_D (t_{vid} + t_{izm})}, \quad (1)$$

где A — наведенная активность, Бк ; φ_{TH} — плотность потока тепловых нейтронов, в поле которых происходит облучение детекторов, $\text{n/cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; σ_M — микросечение активации материнского нуклида (детектора), cm^2 ; σ_D — микросечение активации дочернего нуклида, cm^2 ; N_M — число ядер материнского нуклида в детекторе до облучения; λ_D — постоянная распада дочернего радионуклида, s^{-1} ; t_{obl} — время облучения, s ; t_{vid} — время выдержки от конца облучения до начала измерений, s ; t_{izm} — время измерения, s .

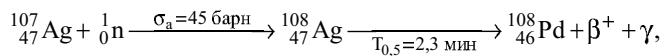
Однако не всегда энергия излучаемых гамма-квантов присуща только одному гамма-радионуклиду. При наличии в активационном детекторе двух и более радионуклидов с одинаковым энергетическим спектром гамма-квантов истинную активность отдельно взятого нуклида измерить не удастся. Более того, энергия гамма-радионуклидов может попасть в один диапазон энергетической разрешающей способности измерительного прибора. Тогда энергия гамма-квантов, по которым измеряется активность, будет находиться в «тени» энергий гамма-квантов других нуклидов.

В нашем случае особый интерес представляет ^{197}Au , ядро которого, поглотив тепловой нейtron, превращается в радионуклид ^{198}Au , излучающий при распаде гамма-кванты только с энергией, равной $E_\gamma = 411,879 \text{ кэВ}$, с вероятностью выхода 96 % на распад. Определив активность детектора после облучения по числу измеренных гамма-квантов, можно по формуле (1) найти плотность потока тепловых нейтронов в точке детектирования.

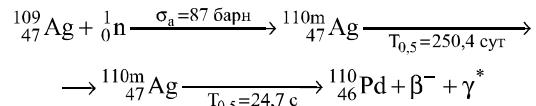
Анализ исходного изотопного состава элементов, входящих в сусальное золото сплава ЗлСр 75-25, и нейтронно-активационной трансформации этого состава после облучения в поле тепловых нейтронов, представлен схемами физических моделей [1, 2]. В системах, представленных физическими моделями превращений активированных тепловыми нейтронами составляющих сусального золота сплава ЗлСр 75-25, указаны все энергии излучаемых гамма-квантов, кэВ, а в скобках — их процентный выход на один распад:



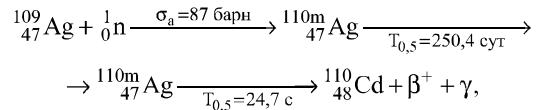
или



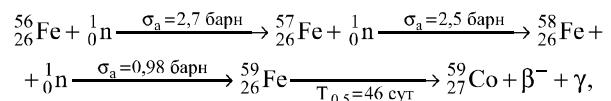
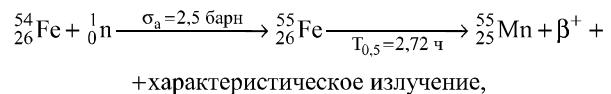
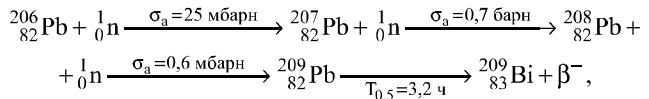
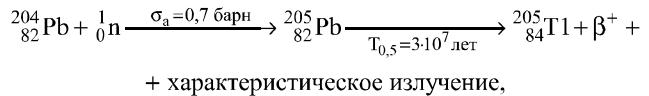
$$E_{\gamma 1} = 841 (0,02), E_{\gamma 2} = 633 (1,7), E_{\gamma 3} = 619 (0,26), \\ E_{\gamma 4} = 511 (0,56), E_{\gamma 5} = 434 (0,45);$$



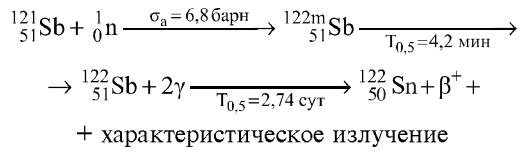
или



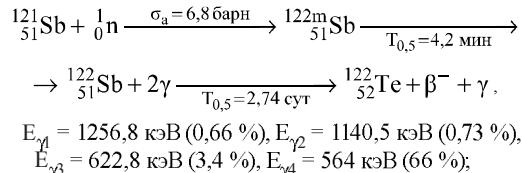
$$E_{\gamma^*} = 657,7 (4,5), \\ E_{\gamma 1} = 1562,2 (1,5), E_{\gamma 2} = 1505 (14), E_{\gamma 3} = 1475,7 (4,3), E_{\gamma 4} = 1384,2 (26), \\ E_{\gamma 5} = 937,4 (34), E_{\gamma 6} = 884,6 (71), E_{\gamma 7} = 818 (6,9), E_{\gamma 8} = 769,3 (23), \\ E_{\gamma 9} = 744,2 (4,9), E_{\gamma 10} = 706,6 (16), E_{\gamma 11} = 687 (6,3), E_{\gamma 12} = 677,6 (9,8), \\ E_{\gamma 13} = 657,7 (94), E_{\gamma 14} = 620,3 (2,3), E_{\gamma 15} = 446,8 (3,4);$$

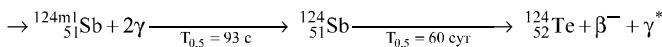
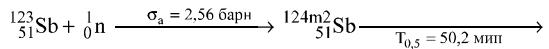


$$E_{\gamma 1} = 1291,6 (44), E_{\gamma 2} = 1099,2 (56), E_{\gamma 3} = 192,2 (2,5), E_{\gamma 4} = 142,4 (0,8);$$

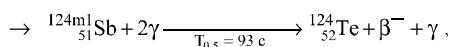
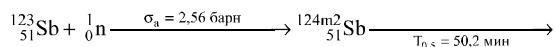


или





или



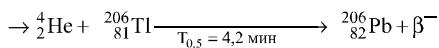
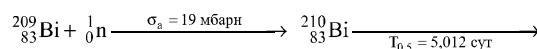
$$E_\gamma = 644 (20), E_{\gamma 2} = 603 (20), E_{\gamma 3} = 505 (20), E_{\gamma 1*} = 2091,1 (6,5),$$

$$E_{\gamma 2*} = 1691 (50), E_{\gamma 3*} = 1433,7 (2,1), E_{\gamma 4*} = 1368,2 (3),$$

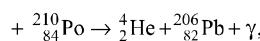
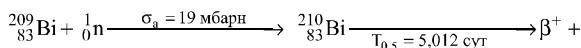
$$E_{\gamma 5*} = 1354 (1,2), E_{\gamma 6*} = 1325,6 (1,6), E_{\gamma 7*} = 1045,1 (2),$$

$$E_{\gamma 8*} = 968,2 (2,3), E_{\gamma 9*} = 722,8 (12), E_{\gamma 10*} = 713,8 (2,8),$$

$$E_{\gamma 11*} = 709,4 (1,8), E_{\gamma 12*} = 645,8 (7,5), E_{\gamma 13*} = 602,7 (99),$$



или



$$E_\gamma = 795,6 (0,0011).$$

Судя по энергиям гамма-квантов, при разрешающей способности гамма-спектрометра не более 22 кэВ регистрации гамма-квантов с энергией 411,8 кэВ ничто не может мешать. Следовательно, определив активность $^{198}_{79}\text{Au}$ по этой линии гамма-спектра, с хорошей точностью можно найти по трансцендентной зависимости (1) плотность потока тепловых нейтронов в точке установки детектора.

Кроме этого, используя активационные детекторы из сусального золота, появляется еще один канал определения плотности потока тепловых нейтронов по измерению активности детектора, наведенной $^{110m}_{47}\text{Ag}$ и определенной по линии гамма-спектра с энергией 884,6 кэВ, которая отличается хорошим выходом в 71 % и не имеет помех от других гамма-квантов. А при достаточной энергетической разрешающей способности гамма-спектрометра активность детектора можно определить и по энергиям гамма-квантов, равным 769,3; 937,4; 657,7 кэВ, которые дают значительный выход гамма-квантов на распад.

Выводы

Использование одного детектора из сусального золота указанного сплава предоставляет возможность измерения плотности потока тепловых нейтронов сразу по пяти и более энергетическим спектрам, что значительно увеличивает точность определения плотности потока.

Следовательно, нейтронно-активационные детекторы, изготовленные из сусального золота сплава ЗлСр 75-25, могут служить для определения плотности потока тепловых нейтронов при помощи гамма-спектрометра с хорошей разрешающей способностью, с высокой точностью, достаточной для решения технологических задач радиационных технологий.

Список использованной литературы

- Гордеев, И. В. Справочник по ядерно-физическими константам для расчета реакторов / И. В. Гордеев, Д. А. Кардашев, А. В. Малышев. — М.: Изд-во Гос. комитета Совета Министров СССР по использованию атомной энергии, 1960. — 280 с.
- Справочник по ядерной физике: Пер. с англ. под ред. Л. А. Ариимовича. — М.: Госиздат физ.-мат. лит-ры, 1963. — 632 с.
- Краткая энциклопедия атомной энергии. — М.: Госнаучиздат «БСЭ», 1958. — 610 с.
- Золото та сплави на його основі. Марки: ДСТУ ГОСТ 6835:2004.— [Чинний від 2004-07-01]. — К.: Держпоживстандарт України, 2004. — 6 с. — (Нац. стандарти України).
- Золото и серебро сусальное. Технические условия: ГОСТ 6902-75. — [Введен в действие 1977-01-01]. — М.: Изд-во стандартов, 2001. — 5 с. — (Межгосударственный стандарт).
- Левин, В. И. Получение радиоактивных изотопов: [техническая литература] / В. И. Левин. — М.: Атомиздат, 1972. — 256 с.
- Набор активационных комплектов нейтронных тепловых. АКН-Т-10. Техническое описание и инструкция по использованию. ТУ 50. ПИ2.809.023.ТО. — М.: Изд-во ВНИИФТРИ, 1987. — 12 с.

Получено 30.09.2011.