

Измерение активности ^{93m}Nb в нейтронно-активационных детекторах

Е. И. ГРИГОРЬЕВ, В. С. ТРОШИН

Рассмотрены особенности измерения активности ^{93m}Nb в реальных нейтронно-активационных детекторах по характеристическому излучению 16,6 и 18,7 кэВ. Предложен подход к обеспечению единства таких измерений.

The peculiarities of the measurements of ^{93m}Nb activity for real neutron-activation detectors are considered for 16,6 and 18,7 keV X-rays. The approach for ensuring the uniformity of these measurements is suggested.

Нейтронно-активационный детектор по реакции ^{93}Nb (n, n') ^{93m}Nb общепризнан как монитор, наиболее полно удовлетворяющий условиям облучения объектов в экспериментах реакторного материаловедения. Это объясняется низким порогом реакции к нейтронам реакторного спектра вблизи 1 МэВ и большим периодом полураспада продукта реакции ^{93m}Nb (16 лет), позволяющим мониторировать флюенс нейтронов в длительных облучениях (до десятков лет).

Практическое применение этого детектора встречает существенные трудности на стадии измерения наведенной активности ^{93m}Nb в реальных ниобиевых детекторах, которая вызвана схемой распада изомера Nb , показанной на рис. 1 [1]. Практически 100 % переходов в основное состояние происходит за счет испускания электронов внутренней конверсии и сопровождается характеристическим излучением, соответствующим атому ниобия с энергиями фотонов 16,6 кэВ (k_α) и 18,7 кэВ (k_β). Для достижения согласуемости результатов измерения активности ^{93m}Nb , получаемых различными экспериментаторами, необходимо обеспечить разумный уровень стандартизации при:

- установлении параметров схемы распада ^{93m}Nb ;
- учете характеристического излучения ниобия, инициированного радиоактивными примесями в облученном детекторе (инициированного излучения);

градуировке аппаратуры для измерения активности ^{93m}Nb ;

учете самопоглощения фотонов в материале детектора для реальной геометрии измерения активности.

Результаты решения этих задач, представленные в настоящей работе, опробованы авторами в измерениях с ниобиевыми детекторами и предлагаются вниманию специалистов для разработки общих рекомендаций.

Параметры схемы распада ^{93m}Nb . С точки зрения измерения активности важнейшими параметрами являются пе-

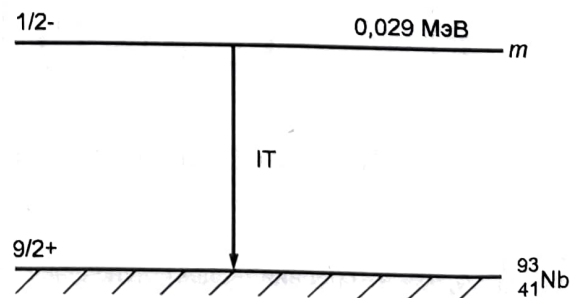


Рис. 1. Схема распада ^{93m}Nb

риод полураспада $T_{1/2}$ и абсолютные интенсивности фотонов с энергией 16,6 кэВ (η_α) и 18,7 кэВ (η_β).

Значения $T_{1/2}$ претерпели изменения в 60—70-е гг.: от 11,4 [1] до 16,4 лет [2]. Многолетние измерения с последовательным уточнением промежуточных результатов Лоре завершил в 1981 г. рекомендацией $T_{1/2} = 16,11 \pm 0,19$ лет [3]. В 1982 г. из существующего массива данных Альберте принял к оценке два значения: $15,9 \pm 1,0$ лет и $16,11 \pm 0,19$ лет и в качестве рекомендованного предложил $16,0 \pm 0,5$ лет [4]. В 1983 г. получен экспериментальный результат $16,13 \pm 0,15$ лет [5], находящийся в хорошем согласии с исследованием Лоре [3], что позволяет с одинаковой надежностью пользоваться любым из двух результатов до принятия оцененного рекомендованного значения. Следует учитывать, что в соответствии с международной практикой в качестве погрешности справочных данных указывается среднее квадратическое отклонение (СКО).

Наиболее сложная ситуация существует до сих пор со значениями абсолютных интенсивностей фотонов с энергиями 16,6 и 18,7 кэВ.

Следуя Тейлору [6], абсолютную интенсивность фотонов с оболочки атома ниобия определяют по конверсионному отношению (α_k/α) и флуоресцентному выходу ω_k для K -оболочки:

$$\eta_k = \eta_\alpha + \eta_\beta = (\alpha_k/\alpha) \omega_k \quad (1)$$

Значение $\omega_k = 0,71$ [6] используется во всех работах, в то время как значения (α_k/α) имеют разброс от 0,116 до 0,173, предопределяя тем самым разброс в измеряемой активности. В 1982 г. выполнено прямое измерение абсолютных интенсивностей фотонов при распаде ^{93m}Nb и получены результаты [4]:

$$\begin{aligned} \eta_\alpha &= 0,0892 \pm 0,0025 \quad (16,6 \text{ кэВ}); \\ \eta_\beta &= 0,0174 \pm 0,0005 \quad (18,7 \text{ кэВ}); \\ \eta_k &= 0,107 \pm 0,003 \quad (16,6 + 18,7 \text{ кэВ}), \end{aligned}$$

что соответствует согласно (1) значению конверсионного отношения $(\alpha_k/\alpha) = 0,151$. В настоящее время за отсутствием основания для корректной оценки мы используем результаты из [4].

Иницированное излучение. На практике ниобиевый детектор облучается большими флюенсами нейтронов (10^{16} — 10^{21} нейтр./см² по быстрым нейтронам). В таких условиях даже микроскопические примеси в материале детектора могут образовывать значительную примесную активность, опасность которой состоит в возбуждении примесным излучением уровней нейтральных атомов ниобия и получении иницированного характеристического излучения 16,6 и 18,7 кэВ, не связанного с ^{93m}Nb . Наиболее опасна примесная реакция на тантале (спутнике ниобия по месторождению) ^{181}Ta (n, γ) ^{182}Ta с $T_{1/2} = 151,1$ сут с высокоинтенсивными электронным и фотонным излучениями продукта реакции. Отметим, что вклад иницированного излучения в измеряемую активность ^{93m}Nb зависит от содержания примеси тантала, продолжительности выдержки детектора и его толщины. Наиболее тщательное исследование этого эффекта выполнено в [1, 7]. Результаты позволяют утверждать, что вклад иницированного танталом излучения в отклике пиков 16,6 и 18,7 кэВ существенно превосходит долю активности ^{93m}Nb при чистоте ниобия по танталу 10^{-2} %, толщине счетного образца 0,05 мм и выдержке 100 дн. Для своих стандартизованных детекторов авторы исследования [7] получили соотношение для учета вклада иницированного излучения

$$A_{\text{Nb}}(t) \approx A_{\text{изм}}(t) - 0,49A_{\text{Ta}}(t), \quad (2)$$

где $A_{\text{изм}}$ — значение наблюдаемой активности детектора во времени; A_{Ta} — активность ^{182}Ta в детекторе, независимо измеренная в то же самое время.

Очевидно, что соотношение (2) и конкретные результаты различных исследований, проведенных другими экспериментаторами, можно рассматривать как качественные, дающие представление о возможном размере эффекта. Разработка общих рекомендаций для пользователей неизбежно связана с необходимостью стандартизации ниобиевого детектора и его материала, причем экспериментальное исследование вклада иницированного излучения должно включить и влияние продуктов сопутствующих реакций на ниобии, в частности ^{94}Nb ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^4$ лет), что не предусмотрено схемой эксперимента в [1, 7].

Безусловной рекомендацией в данном случае может служить применение ниобия с чистотой по танталу менее 10^{-3} %. Отечественная промышленность выпускает металлургический ниобий марок Н6Р-00 (ТУ 48-0531-322—85) и Н6Р-1 (ТУ 48-0531-322—87) чистотой по танталу соответственно не более $5 \cdot 10^{-4}$ и $3 \cdot 10^{-3}$ %, хотя реальная чистота исследованных нами партий той и другой марки составила менее $3 \cdot 10^{-4}$ %. Желательно также выдерживать детекторы после облучения более 100 дн. Однако при этих условиях следует ожидать завышения измеряемой активности ^{93m}Nb . Чтобы существенно снизить эффект образования радиоактивных примесей, мы облучали ниобиевые детекторы в кадмиевых или борных экранах.

Градуировка аппаратуры. Измерение активности ^{93m}Nb выполняют на спектрометрах с рентгеновским полупроводниковым детектором (ППД): Si(Li) или Ge. Аттестованной характеристикой спектрометра служит эффективность регистрации фотонов (имп./фотон) в пике полного поглощения (ППП) энергии фотонов, определяемая как отношение скоростей чета импульсов S (имп./с) в ППП и внешнего фотонного излучения A_γ (фотон/с) с энергией E из невесомого точечного источника:

$$\varepsilon(E) = S / A_\gamma(E).$$

Набор градуировочных источников с различными энергиями фотонов E позволяет получить экспериментальные точки ε_E , которые аппроксимируются зависимостью $\varepsilon(E)$. Стандартизованный набор источников рентгеновского излучения СОИРИ-2, выпускаемый ГП ВНИИФТРИ, дает возможность детально описать используемый энергетический диапазон экспериментальными точками: 12,6 кэВ (^{207}Bi); 13,9 кэВ (^{241}Am); 14,4 кэВ (^{57}Co); 17,6 кэВ (^{241}Am); 21 кэВ (^{241}Am); 22,1 кэВ (^{109}Cd); 25,1 кэВ (^{109}Cd); 26,3 кэВ (^{241}Am); 31 кэВ (^{133}Ba); 36 кэВ (^{133}Ba); 39,8 кэВ (^{152}Eu). На рис. 2 показана градуировочная зависимость $\varepsilon(E)$ с экспериментальными точками в диапазоне 12—60 кэВ для спектрометра с Ge рентгеновскими ППД для телесного угла регистрации около $0,1\pi$ ср. Эта счетная геометрия использовалась нами для измерения активности Nb-детекторов.

Самопоглощение в Nb-детекторе. В реально применяемых Nb-детекторах толщиной 50—100 мг/см² в материале детектора поглощается до половины фотонного излучения ^{93m}Nb . В этой связи правильность определения поправки на самопоглощение приобретает решающую роль при измерении активности.

Поправка на самопоглощение $k_{\text{сн}}$ вводится как множитель при $S_{\text{изм}}$ — измеренном отклике спектрометра (скорости счета в ППП энергии регистрируемых фотонов), приводя-

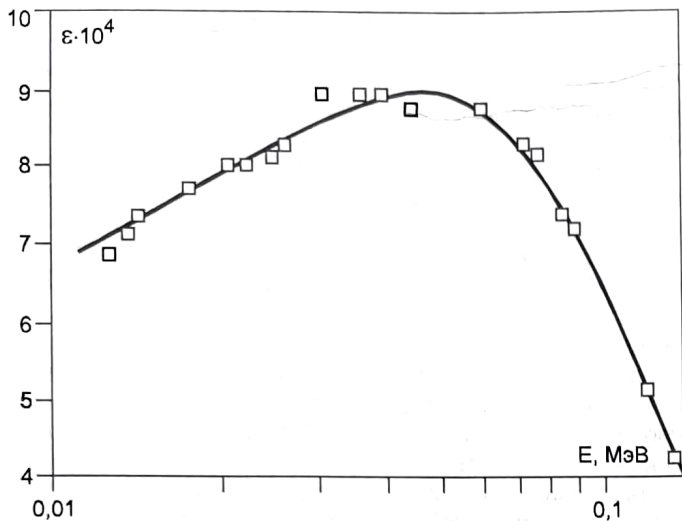


Рис. 2. Энергетическая зависимость эффективности регистрации фотонов для Ge-ППД с углом регистрации $0,076\pi$ ср

щий измеренный отклик к условиям отсутствия поглощения фотонов (условиям градуировки):

$$S = k_{\text{сн}} S_{\text{изм}}$$

На практике широко применяют расчетные методы определения поправки $k_{\text{сн}}$, основанные на использовании массового коэффициента ослабления μ , измеренного для данного материала. Для металлического Nb в [8] получены значения $\mu = 19,55 \pm 0,02 \text{ см}^2/\text{г}$ для энергии 16,6 кэВ и $\mu = 14,03 \pm 0,02 \text{ см}^2/\text{г}$ для энергии 18,7 кэВ. В [9] предложены приближенные соотношения для расчета $k_{\text{сн}}$:

$$k_{\text{сн}} = \mu^* d / (1 - e^{-\mu^* d}), \quad (3)$$

где d — массовая толщина детектора, $\text{г}/\text{см}^2$;

$$\mu^* = \mu \frac{\ln \cos \alpha}{\cos \alpha - 1}, \quad (4)$$

α — половина угла раствора конуса наблюдения в системе образец — кристалл датчика. Телесный угол регистрации связан с α соотношением

$$\Omega = 2\pi (1 - \cos \alpha).$$

Для низкоэнергетических фотонов (меньше 0,1 МэВ) применение расчетных методов ограничено появлением специфических эффектов, основной из которых — анизотропность пучка фотонов в телесном угле регистрации, вызывающая неопределенность эффективности регистрации фотонов пучка по поверхности кристалла. Рассчитать поправку не представляется возможным, а реальные условия эксперимента с Nb-детектором обычно не позволяют обеспечить достаточно малый телесный угол регистрации, в котором можно было бы пренебречь анизотропностью пучка фотонов.

В данном случае поправку на самопоглощение определяли экспериментально. С этой целью из облученного Nb-образца путем последовательного проката готовили счетные образцы диаметром 10 мм, толщиной 148,3; 74,3; 45,8 $\text{мг}/\text{см}^2$, и для каждого измеряли скорость счета в ППП энергией 16,6 и 18,7 кэВ. Скорость счета на единицу массы ниобия аппроксимировали с использованием соотношений (3) и (4), где вместо μ ввели $\mu_{\text{эфф}}$ — эффективный коэффициент

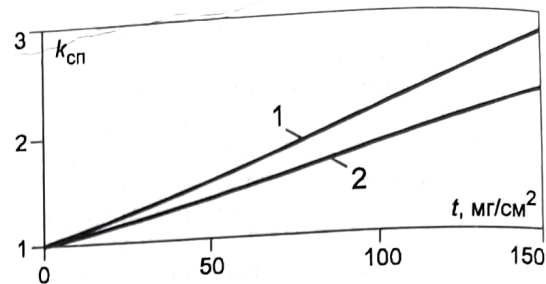


Рис. 3. Поправки на самопоглощение в металлических Nb-детекторах для фотонов энергий 16,6 и 18,7 кэВ (1 и 2) в зависимости от толщины детекторов для геометрии измерений в данной работе

ослабления, учитывающий анизотропность пучка. Определенные по трем экспериментальным точкам значения $\mu_{\text{эфф}}$ составили 17,25 $\text{см}^2/\text{г}$ для 16,6 кэВ и 16,34 $\text{см}^2/\text{г}$ для 18,7 кэВ. Телесный угол регистрации был равен $0,076 \pi$ ср. На рис. 3 показана полученная зависимость поправки на самопоглощение $k_{\text{сн}}$ от толщины образца для металлического ниобия. Активность Nb-детекторов вычисляли по формуле

$$A = S_{\text{изм}} k_{\text{сн}} / (\epsilon \eta).$$

При используемой толщине ниобия 75 $\text{мг}/\text{см}^2$ значения поправок на самопоглощение составили 1,75 для 16,6 кэВ и 1,55 для 18,7 кэВ.

Учитывая массовый характер применения Nb-детекторов в нейтронных измерениях на ядерных реакторах, актуально обеспечение единства измерений активности $^{93\text{m}}\text{Nb}$ в реальных детекторах. Рациональной представляется следующая схема метрологического обеспечения в данной области. В компетентной метрологической организации создается эталонная радиометрическая установка, на которой аттестуют специализированные градуировочные источники-имитаторы облученных Nb-детекторов наиболее распространенной толщины. Аттестованные источники поставляют потребителям вместе с рекомендованной поправкой на вариацию толщины Nb-детекторов в небольшом диапазоне. При такой схеме потребитель получает стандартизованное решение вопросов, связанных со схемой распада $^{93\text{m}}\text{Nb}$, градуировкой измерительной аппаратуры и учетом самопоглощения. Правильность воспроизведения единицы активности $^{93\text{m}}\text{Nb}$ в специальных условиях (для реального Nb-детектора) в этом случае обеспечивается централизованно, в частности путем международных сличений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Hegedus F. // Second ASTM — EURATOM Symp. — Palo Alto, 1977. — V. 3. — P. 217.
2. Lloret R. // Radiochem. Radioanal. Lett. — 1977. — V. 29. — N 4. — P. 165.
3. Lloret R. // Radiochem. Radioanal. Lett. — 1981. — V. 50. — N 2. — P. 113.
4. Alberts W. A. e. a. // Proc. Forth ASTM — EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry, NUREG / CP-0029, 1982. — V. 1. — P. 433.
5. Vaininbroukx R. // Int. J. Appl. Radioact. Isot. — 1983. — V. 34. — P. 1222.
6. Taylor W. H. // Second ASTM — EURATOM Symp. — Palo Alto, 1977. — V. 3. — P. 207.
7. Wille P. // Atomkernenergie (ATKE). — 1977. — Bd. 29. — S. 166.
8. Рязанов Д. К., Теллин А. И., Маркина Н. В. // Вопросы атомной науки и техники. Ядерные константы. — 1994. — Вып. 3—4. — С. 82.
9. Брисман Б. А., Генералова В. В., Трошин В. С. Внутри-реакторная дозиметрия. — М.: Энергоатомиздат. — 1985. — С. 138.