

Методы аттестации стандартных образцов ^{235}U , ^{238}U и ^{237}Np с толщиной слоя нуклида-мишени 0,5–3 мг/см²

В. Д. СЕВАСТЬЯНОВ, В. И. ЛЯГУШИН

Изложены методы аттестации стандартных образцов (СО) делящихся веществ с толщиной слоя делящегося вещества 0,5–3 мг/см². Аттестация СО урана и нептуния проводится методами счета α -частиц и γ -квантов с применением альфа- и гамма-спектрометров и опорных СО, для которых число ядер нуклида-мишени установлено несколькими независимыми методами.

The certification methods for reference materials (RM) ^{235}U , ^{238}U and ^{237}Np with the nuclide layer thickness from 0,5 to 3 mg/sm² are described. The certification of RM of uranium and neptunium is made with α -particles and γ -quantum methods using alpha- and gamma-spectrometers and other certified RMs for which the number of nuclei of nuclide-target has been determined by the several independent methods.

Стандартные образцы (СО) делящихся веществ нашли широкое применение для исследования характеристик полей нейтронов на ядерно-физических установках (ЯФУ) [1, 2]. Кроме того, они применяются для измерений в низкоинтенсивных полях нейтронов, реализуемых на космических орбитальных станциях и на больших расстояниях от ЯФУ [3–6]. Диапазон использования таких СО по флюенсу

нейтронов велик и простирается от 1 до 10^{15} нейтр./см². Для измерения характеристик полей нейтронов в таком диапазоне флюенса используются СО с толщиной слоя делящегося вещества 10^{-5} — 15 мг/см². Аттестация таких СО требует применения большого количества принципиально отличающихся методов [7–11].

Ниже рассмотрены некоторые методы аттестации СО с толщиной слоя делящегося вещества 0,5—3 мг/см². Такого типа СО представляют собой диски из алюминия диаметром 26 и толщиной 0,1 мм. На одну сторону диска методом термодиффузии наносится слой делящегося вещества. Длина пробега осколков деления и α -частиц, излучаемых делящимися нуклидами в слое делящегося вещества СО, составляет около 10 мг/см². Следовательно, рассматриваемые методы аттестации предназначены для СО с толщиной слоя делящегося вещества менее длины пробега осколков деления и α -частиц, излучаемых делящимися нуклидами. Такой тип СО использовали для исследования характеристик полей нейтронов на орбитальных станциях СКАЙЛЭБ и МИР совместно с трековыми регистраторами осколков деления [3, 4].

Для аттестации СО ²³⁵U, ²³⁸U и ²³⁷Np применены ядерные методы анализа: методы счета α -частиц и γ -квантов, излучаемых делящимися нуклидами либо их дочерними продуктами, которые находились в радиоактивном равновесии с основными нуклидами. Ядерные константы распада для нуклидов урана и нептуна, их дочерних ядер, а также некоторых примесных нуклидов, приведены в табл. 1. Гамма-активность нуклидов в СО измеряли на гамма-спектрометре с полупроводниковым детектором из германия. Энергетическое разрешение гамма-спектрометра для фотонов с энергией 1332 кэВ (⁶⁰Co) составляло 2,5 кэВ. Гамма-спектрометр был отгрудуирован по чувствительности к фотонному излучению в диапазоне энергии 0,06—3 МэВ с погрешностью не более 1,9 %.

Альфа-активность исследуемых образцов измеряли на 1 π -счетчике [12], аналогичном счетчику, предложенному в

[13]. Геометрия измерений альфа-активности СО в таком счетчике обеспечивает регистрацию α -частиц по углам более 15°, тем самым исключает регистрацию α -частиц, рассеянных от подложки образца. Так как толщина слоя делящегося вещества в исследуемых СО значительно меньше, чем пробег α -частиц в веществе делящегося слоя, то все они регистрируются детектором α -частиц 1 π -счетчика.

Из изложенного следует, что при измерении на 1 π -счетчике не требовалось введения поправок на поглощение α -частиц в слое делящегося вещества и на обратное рассеяние α -частиц, что обеспечило высокую точность измерения активности (погрешность 1—2 %*).

Энергетический спектр альфа-излучения от СО измеряли спектрометром с полупроводниковым кремниевым поверхностно-барьерным детектором. Энергетическое разрешение спектрометра по альфа-линии 5499 кэВ (²³⁸Pu) 17 кэВ. Так как толщина делящегося вещества в СО более 0,5 мг/см², то выделение отдельных линий альфа-излучения не представлялось возможным. Однако альфа-спектрометр позволял определить наличие мешающих примесных нуклидов в СО, излучающих α -частицы в определенных диапазонах энергии.

Исследование образцов СО ²³⁵U.

Для изготовления СО ²³⁵U использовали уран, обогащенный по нуклиду ²³⁵U — 89,7 %. Удельная альфа-активность ($c_{уд}$) такого урана согласно паспортным данным составляла 2440 ± 20 Бк/(мг·с). Число ядер ²³⁵U в СО ($N_{я}^{235}$) определяли методом счета α -частиц по альфа-активности СО на 1 π -счетчике и вычисляли по формуле

$$N_{я}^{235} = 1 \cdot 10^{-3} \frac{c}{c_{уд}} \frac{N_A}{A} k^{235}$$

где c — альфа-активность СО; N_A — число Авогадро; A — массовое число ²³⁵U; k^{235} — содержание ²³⁵U в уране.

Контроль возможного технологического загрязнения СО ²³⁵U высокоактивными примесными альфа-излучателями (например, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu) осуществляли на альфа-спектрометре. С этой целью оценивали вклад импульсов в аппаратурном спектре в диапазоне энергии 5—6 МэВ, в котором указанные изотопы плутония излучают α -частицы.

Числа ядер нуклида-мишени в СО ²³⁵U, измеренные методом счета α -частиц, приведены в табл. 2.

Числа ядер нуклида-мишени в СО ²³⁵U определяли также на отгрудуированном гамма-спектрометре. С этой целью снимали аппаратурный спектр импульсов, обусловленный гамма-излучением СО урана. Анализ проводили по фотопикам от гамма-излучения ²³⁵U с энергиями 144 и 185 кэВ, а также от гамма-излучения дочернего нуклида ²³¹Th с энергией 89,95 кэВ. Число ядер нуклида-мишени в СО рассчитывали по формуле

$$N_{я}^{235} = \frac{T^{235}}{0,69315} \frac{n_j}{\epsilon_j \eta_j} \prod_j k_j$$

где T^{235} — период полураспада ²³⁵U; n_j — скорость счета импульсов в фотопике от гамма-квантов с энергией E_j ; ϵ_j , η_j — соответственно чувствительность регистрации и эмиссия гамма-квантов с энергией E_j ; k_j — поправочные коэффици-

* Здесь и далее погрешность приводится для доверительной вероятности 0,95.

Таблица 1

Нуклид	Период полураспада	Энергия и эмиссия альфа-излучения, кэВ (%) (интенсивные группы)	Энергия и эмиссия гамма-излучения, кэВ (%) (интенсивные группы)
²³⁵ U	$7,038 (5) \cdot 10^8$ год	4599 (5,4) 4558 (4,5) 4398 (54) 4367 (17) 4327 (4,7) 4218 (5,7)	205 (5,0) 185,7 (57,5) 163,4 (5,0) 143,7 (10,9)
²³⁸ U	$4,4689 (24) \cdot 10^9$ год	4200 (77) 4150 (23) 4042 (0,23)	49,6 (0,071)
²³⁷ Np	$2,144 (7) \cdot 10^6$ год	4788 (46) 4771 (20) 4766 (13) 4664 (3,0) 4639 (6,4)	29,37 (15,7) 86,49 (12,44) 94,65 (0,68) 143,25 (0,445)
²³¹ Th	25,60 (6) ч	—	25,64 (14,5) 84,214 (6,6) 89,95 (1,00)
²³³ Pa	27,0 (1) сут	—	312,(36,0) 340,5 (3,9) 410 (2,6)
²³⁹ Pu	$2,410 (3) \cdot 10^4$ год	5157 (73,0) 5144 (15,0) 5106 (11,9)	51,6 (0,027)
²³⁸ Pu	87,74 (3) год	5499 (70,9) 5456 (29,0) 5358 (0,105)	$43,50 (3,90) (8) \cdot 10^{-2}$

Таблица 2

Маркировка СО ²³⁵ U	Число ядер нуклида-мишени в СО ²³⁵ U, измеренных методом счета		Отличие результатов измерений, %**
	γ-квантов, ×10 ¹⁹	α-частиц, ×10 ¹⁹	
125—126	3,69*	—	—
127—128	3,92	—	—
135—136	3,82	—	—
145—146	4,30	4,58	6,5
147—148	4,46	4,49	0,7
159—160	4,33	4,54	4,9
167—168	4,93	4,95	0,4
177—178	4,42	4,90	10,9
169—170	4,70	4,62	1,7
171—172	5,08	5,11	0,6
173—174	4,21	4,48	6,4
175—176	4,51	4,65	3,1
179—180	5,05	5,10	1,0
181—182	4,64	4,85	4,5
183—184	4,87	4,98	2,3
185—186	4,61	4,78	3,7
133—134	3,96	—	—
129—130	4,49	—	—
137—138	4,08	—	—
131—132	4,24	—	—
139—140	4,46	4,68	4,9
143—144	4,40	4,50	2,3
141—142	4,74	4,84	2,1

Примечания. * Числу ядер $3,69 \cdot 10^{19}$ соответствует толщина слоя ²³⁵U 1356 мкг/см².

** Среднее значение отличия результатов измерений для 16 образцов составило 3,5 %.

циенты, учитывающие отличие в геометрии измерений для СО и точечных источников гамма-излучения, используемых для градуировки спектрометра.

Измеренные методом счета гамма-квантов числа ядер нуклида-мишени в СО ²³⁵U приведены в табл. 2.

Из экспериментальных данных табл. 2 следует, что числа ядер ²³⁵U в СО, измеренные указанными выше методами, совпадают в пределах погрешностей, присущих этим методам.

Исследование образцов СО ²³⁸U.

Сырьем для изготовления СО ²³⁸U служил природный уран. Его изотопный состав: ²³⁸U (99,2745 %), ²³⁵U (0,7200 %) и ²³⁴U (0,0055 %) [14]. Удельная альфа-активность природного урана по данным работы [15] составляет 25,0 Бк/(мг · с). Однако, исходя из более точных данных по удельным активностям, приведенных в [16], и указанного выше изотопного состава, для удельной активности урана получаем 25,636 Бк/(мг · с). Именно это значение удельной активности было использовано для определения числа ядер ²³⁸U методом счета α-частиц. Метод основан на измерении альфа-активности СО ²³⁸U на 1 π-счетчике и расчете числа ядер ²³⁸U по формуле

$$N_{\text{я}}^{238} = 1 \cdot 10^{-3} \frac{c N_A}{c_{\text{уд}} A} \varepsilon,$$

где c — активность СО; $c_{\text{уд}}$ — удельная активность природного урана; A — массовое число ²³⁸U; ε — содержание ²³⁸U в природной смеси изотопов.

Однако в процессе изготовления СО ²³⁸U они могут быть загрязнены примесными альфа-излучателями, имеющими высокую удельную активность (например, изотопами плутония). В результате этого активность СО может существенно увеличиться, что неизбежно приведет к необоснованному увеличению в них числа ядер нуклида-мишени.

Чтобы исключить систематическую погрешность при определении числа ядер нуклида-мишени в СО ²³⁸U для аттестации отдельных детекторов применяли метод, основанный на измерении гамма-активности ²³⁵U, содержащегося в СО (0,72 %). Метод состоял в измерении гамма-спектрометром аппаратного спектра импульсов, обусловленного гамма-излучением ²³⁵U, который содержится в СО ²³⁸U. Анализ проводили по наиболее интенсивному фотопику от γ-квантов с энергией 185 кэВ (57,3%). Число ядер ²³⁸U в СО ²³⁸U при измерении этим методом рассчитывали по формуле

$$N_{\text{я}}^{235} = \frac{T^{235}}{0,69315} \frac{n^{235}}{\varepsilon_{\gamma} \eta} \prod_j k_j,$$

где A — изотопное отношение для нуклидов ²³⁸U и ²³⁵U в СО; ε_{γ} — чувствительность гамма-спектрометра к фотонам с энергией 185 кэВ; η — эмиссия фотонов с энергией 185 кэВ на один распад ядра ²³⁵U.

Измеренные двумя методами числа ядер ²³⁸U в СО ²³⁸U приведены в табл. 3. Так как числа ядер ²³⁸U, определенные в СО двумя указанными выше методами, совпадают в пределах погрешностей измерений, это означает, что СО ²³⁸U не загрязнены какими-либо примесными альфа-излучателями.

Исследование образцов СО ²³⁷Np.

Сырье для изготовления СО ²³⁷Np, как правило, содержит в своем составе незначительные примеси изотопов плутония ²³⁹Pu и ²³⁸Pu имеющих высокую удельную активность. Согласно паспортным данным сырье для СО имеет следующий состав альфа-излучения: ²³⁷Np — 62,13 %, ²³⁹Pu — 7,25%,

Таблица 3

Маркировка СО ²³⁸ U	Число ядер нуклида-мишени в СО ²³⁸ U, измеренных методом счета		Отличие результатов измерений, %**
	γ-квантов, ×10 ¹⁹	α-частиц, ×10 ¹⁹	
803—804	4,55*	4,40	3,4
805—806	—	4,79	—
807—808	—	4,23	—
809—810	—	5,08	—
813—814	—	4,67	—
815—816	—	5,31	—
817—818	—	5,38	—
819—820	—	5,53	—
823—824	—	4,49	—
827—828	4,95	5,06	2,2
829—830	—	4,95	—
831—832	—	5,35	—
839—840	—	5,27	—
837—838	—	4,60	—
835—836	—	5,22	—
833—834	—	5,01	—
857—858	—	4,74	—
855—856	—	5,03	—
853—854	—	4,61	—
851—852	—	4,95	—
949—850	—	5,45	—
847—848	—	4,52	—
845—846	—	5,17	—
843—844	—	4,46	—
859—860	—	4,64	—
841—842	6,01	5,79	3,8

Примечания. * Числу ядер $4,55 \cdot 10^{19}$ соответствует толщина слоя ²³⁵U 1638 мкг/см².

** Среднее значение отличия результатов измерений для трех образцов составило 3,1 %.

Таблица 4

Маркировка СО ^{237}Np	Число ядер нуклида-мишени в СО ^{237}Np , измеренные методом счета γ -квантов, $\times 10^{19}$
641—642	5,19
779—780	3,25
769—770	3,27
765—766	3,57
649—650	5,18
643—644	5,46
645—646	4,84
647—648	4,55
651—652	5,48
653—654	4,90
655—656	4,52
657—658	4,77
659—660	4,53
763—764	3,55
767—768	3,29
771—772	3,04
773—774	3,24
775—776	3,47
761—762	3,13
777—778	2,96

Примечание. * Числу ядер $5,19 \cdot 10^{19}$ соответствует толщина слоя ^{237}Np 1924 мкг/см².

^{238}Pu — 30,62 %, т. е. вклад альфа-излучения, обусловленного примесными нуклидами, велик. Поэтому для аттестации СО ^{237}Np применяли метод, который основан на измерении гамма-активности дочернего продукта ^{233}Pa , находящегося в радиоактивном равновесии с ^{237}Np . Для радиоактивного равновесия выполняется соотношение

$$\lambda_{\text{Np}}^{237} N_{\text{Np}}^{237} = \lambda_{\text{Pa}}^{233} N_{\text{Pa}}^{233}$$

После несложных преобразований этого выражения получаем формулу для расчета числа ядер ^{237}Np в СО

$$N_{\text{Np}}^{237} = \frac{T^{237}}{0,69315} \frac{n^{312}}{\epsilon_{\gamma}^{312} \eta^{312}} \prod_j k_j$$

где T^{237} — период полураспада ^{237}Np ; n^{312} — скорость счета импульсов в фотопике от γ -квантов с энергией 312 кэВ, излучаемых ^{233}Pa ; ϵ_{γ}^{312} — чувствительность регистрации γ -квантов с энергией 312 кэВ гамма-спектрометром; η^{312} — эмиссия гамма-квантов с энергией 312 кэВ на один распад ^{233}Pa .

Измеренные этим методом числа ядер нуклида-мишени в СО ^{237}Np приведены в табл. 4.

Чтобы проверить правильность определения числа ядер нуклида-мишени в СО ^{237}Np описанным выше методом, были выполнены измерения числа ядер ^{237}Np одновременно в четырех опорных образцах ^{237}Np (5 Np 401, 402, 405, 407), для которых ранее несколькими методами анализа число ядер ^{237}Np было установлено $N_{\text{Np}}^{237} = 2,22 \cdot 10^{18}$. Измеренное значение числа ядер ^{237}Np в четырех указанных образцах составило $N_{\text{Np}}^{237} = 2,28 \cdot 10^{18}$. Отличие в числе ядер ^{237}Np от установленного для четырех образцов составило 2,7 %, что говорит об отсутствии систематической погрешности для описанного метода аттестации СО ^{237}Np .

Выводы. 1. Разработаны методы аттестации стандартных образцов ^{235}U , ^{238}U и ^{237}Np с толщиной слоя делящегося вещества 0,5—3 мг/см², обеспечивающие высокую точность аттестации их по числу ядер нуклида-мишени (погрешность 1—3 %).

2. При изготовлении следующих серий СО делящихся веществ с толщиной слоя 0,5—3 мг/см² целесообразно изготавливать одновременно контрольные СО с толщиной слоя не более 100 мкг/см² с целью их прецизионной альфа-спектрометрии, что повысит точность аттестации методом счета α -частиц и позволит исключить систематические погрешности при аттестации СО с толщиной слоя делящегося вещества в указанном выше диапазоне и установить более точно константы распада для делящихся нуклидов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Галиев Н. Б. и др. // Материалы 3-го Всесоюз. совещ. по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. — М.: ЦНИИатоминформ, 1983. — Т. 1. — С. 116.
2. Nimis M. e. a. // Nucl. Instr. and Meth. — 1973. — V. 109. — N 2. — P. 285.
3. Quist T. C. // Space Sci. Inst. — 1977. — V. 3. — P. 243.
4. Севастьянов В. Д., Тарновский Г. Б., Лягушин В. И. // Космические исследования. — 1997. — Т. 35. — № 2. — С. 215.
5. Севастьянов В. Д. и др. // ПТЭ. — 1995. — № 3. — С. 28.
6. Севастьянов В. Д. и др. // Вопросы атомной науки и техники. Физика радиационного воздействия на радиоэлектронную аппаратуру. — 1994. — Вып. 3—4. — С. 65.
7. Севастьянов В. Д., Тютиков Н. В. // Методы и аппаратура для точных измерений параметров ионизирующих излучений / Тр. ВНИИФТРИ. М., 1984. — С. 77.
8. Севастьянов В. Д., Александров Б. М. // Измерительная техника. — 1988. — № 5. — С. 60.
9. Федотов П. И. // Тр. 2-го Всесоюз. совещ. по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. — М.: ЦНИИатоминформ, 1974. — Т. 1. — С. 158.
10. Laner F. F. // Nucl. Instr. and Meth. — 1972. — V. 102. — P. 589.
11. Севастьянов В. Д., Маслов Г. Н., Пермяков Ю. В. // Измерительная техника. — 1997. — № 9. — С. 65.
12. Васильев Р. Д. и др. // Методы и аппаратура для точных измерений параметров ионизирующих излучений / Тр. ВНИИФТРИ. — М., 1975. — Вып. 22 (52). — С. 39.
13. Робинсон Г. Н. // Метрология ионизирующих излучений / Пер. с англ. под ред. К. К. Аглинцева и Г. А. Дорофеева. — М.: Госатомиздат, 1962. — С. 107.
14. Физические величины: Справочник / Под ред. И. С. Григорьевой и Е. З. Мейлихова. — М.: Энергоатомиздат, 1991.
15. Хайд Э., Перлман И., Сиборг Г. Ядерные свойства тяжелых элементов. Вып. 4. Изотопы тория, протактиния и урана. Естественная и искусственная радиоактивность / Пер. с англ. под ред. Г. Н. Флерова. — М.: Атомиздат, 1969. — С. 131.
16. Сурин В. М., Фомушкин Э. Ф. // Вопросы атомной науки и техники. Ядерные константы. — 1982. — Вып. 4 (48). — С. 3.