

Развитие методов контроля качества и аттестации стандартных образцов делящихся веществ

В. Д. СЕВАСТЬЯНОВ, Г. Н. МАСЛОВ, Ю. В. ПЕРМЯКОВ

Изложены методы контроля изотопного состава стандартных образцов (СО) плутония с применением стандартного поля нейтронов ядерного реактора БИР-2, а также метод аттестации СО урана рентгенофлуоресцентным методом.

Methods of control of plutonium isotopic composition certified reference materials (CRM) using standard neutron field of the nuclear reactor BIR-2 and also the method of certification of uranium CRM by X-ray fluorimetry method are considered.

Стандартные образцы (СО) состава и свойств делящихся веществ широко применяются при исследовании характеристик нейтронных полей на ядерно-физических установках (ЯФУ) [1—3]. Они аттестуются по числу ядер основного нуклида-мишени, а также по примесям других делящихся нуклидов, которые могут существенно повлиять на измерения исследуемых полей нейтронов на ЯФУ. Методы аттестации таких СО изложены в [4—7]. Однако с момента начала серийного выпуска СО постоянно проводилась работа по совершенствованию методик с целью повышения качества выпускаемых образцов.

В настоящей работе рассмотрены некоторые из таких методов, в частности, методики контроля качества ^{239}Pu и ^{238}Pu , а также методика аттестации СО изотопов урана с применением рентгенофлуоресцентного спектрометра.

Нейтронно-активационные методы контроля качества ^{239}Pu и ^{238}Pu . Конструкция указанных СО была идентична серийно выпускаемым образцам типа ДКН. Диаметр активного пятна на подложке СО — 8 мм, толщина слоя делящегося вещества 0,01—0,7 мкг/см².

В образцах ^{239}Pu осуществлялась дополнительная проверка на наличие в них других делящихся веществ, имеющих большое сечение деления тепловыми нейтронами. К таким нуклидам, например, относится нуклид урана ^{235}U . Он имеет незначительную удельную активность: $A_{\text{уд}} \approx 80$ Бк/мг. Наличие ^{235}U в ^{239}Pu при содержании его в образце 0,01—0,1 мкг/см² проконтролировать альфа- или гамма-спектрометрическими методами практически невозможно. Однако загрязнение СО технологически может происходить, например, в результате загрязнения нуклидом ^{235}U беличьей кисточки, которой наносятся слои раствора ^{239}Pu на подложку образца.

Для контроля содержания нуклидов типа ^{235}U в ^{239}Pu использовали стандартное поле нейтронов, созданное на базе реактора БИР-2, для которого были установлены скорости реакций деления нуклидов трансурановых элементов с погрешностью 1—3 % ($P = 0,95$) [8, 9]. Исследуемые СО ^{239}Pu , изготовленные в разное время, облучали в указанном поле нейтронов. Измеренные в них количества делений Q при энерговыделении в активной зоне реактора 1 МДж в расчете на одно ядро ^{239}Pu приведены в табл. 1. Измерения

количества делений в СО ^{239}Pu выполняли с применением трековых регистраторов из слюды-мусковит по методикам работы [8]. Количество зарегистрированных треков от осколков деления при облучении нейтронами каждого исследуемого образца было не менее 10^4 .

Из табл. 1 видно, что для двух СО плутония (9Pu9/075 и 9Pu9/085) наблюдается завышенное значение количества делений (на 40 %). Установленное для нуклида ^{239}Pu в стандартном поле нейтронов количество делений составляет $2,87 \cdot 10^{-10}$ с погрешностью 2,0 %. Завышенное количество делений в указанных выше СО плутония означает, что они загрязнены примесными нуклидами, наличие которых не удалось обнаружить при спектрометрии их α - и γ -излучений.

В образцах СО ^{238}Pu осуществлялся контроль изотопного состава делящегося вещества. Полное разделение изотопов плутония возможно только на специальных дорогостоящих электромагнитных сепараторах. Чтобы снизить стоимость СО ^{238}Pu , при их изготовлении использовали плутоний, получаемый без электромагнитного разделения изотопов. Изотопный состав такого плутония на 01.01.83 был следующий (атомн. %): ^{238}Pu — 81,7 %; ^{239}Pu — 15,1 %; ^{240}Pu — 3,2 %. Методика измерений с СО ^{238}Pu такого изо-

Таблица 1

Маркировка СО плутония	Количество делений $10^{10} Q$ в СО при энерговыделении 1 МДж на одно ядро нуклида-мишени	Среднее значение $10^{10} Q$
9 Pu 9/085	4,08	$4,11 \cdot 10^{-10}$
9 Pu 9/085	4,10	
9 Pu 9/085	4,23	
9 Pu 9/075	4,05	
9 Pu 9/075	4,10	
9 Pu 9/075	4,10	
1 Pu 9/065	2,96	$2,93 \cdot 10^{-10}$
1 Pu 9/065	3,00	
1 Pu 9/065	2,80	
1 Pu 9/065	2,83	
1 Pu 9/064	3,10	
1 Pu 9/067	2,98	
1 Pu 9/067	2,81	

топного состава в исследуемых полях нейтронов на ЯФУ предусматривает совместное облучение $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ и ^{239}Pu , что позволяет исключить эффект от присутствия ^{238}Pu в образце. Поэтому контроль содержания ^{239}Pu в $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ является обязательным на стадии их изготовления и аттестации.

Контроль изотопного содержания $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ гамма-спектрометрическим методом невозможен из-за низкой чувствительности этого метода, а также из-за незначительной массы плутония в образце (порядка 10^{-7} г). Контроль изотопного состава $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ альфа-спектрометрическим методом затруднителен, во-первых, вследствие существенно разных удельных активностей нуклидов ^{238}Pu и ^{239}Pu : соответственно $6,39 \cdot 10^8$ и $2,28 \cdot 10^6$ Бк/мг; во-вторых, поскольку импульсы в аппаратном спектре α -излучения образца от α -частиц с энергией 5,1 МэВ, излучаемых нуклидом ^{239}Pu , лежат на «хвосте» пика от α -частиц с энергией 5,4 МэВ, излучаемых нуклидом ^{238}Pu .

На рис. 1 в качестве иллюстрации показан аппаратный спектр импульсов от $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$. Энергетическое разрешение спектрометра составляло 17 кэВ по линии 5,4 МэВ ^{238}Pu .

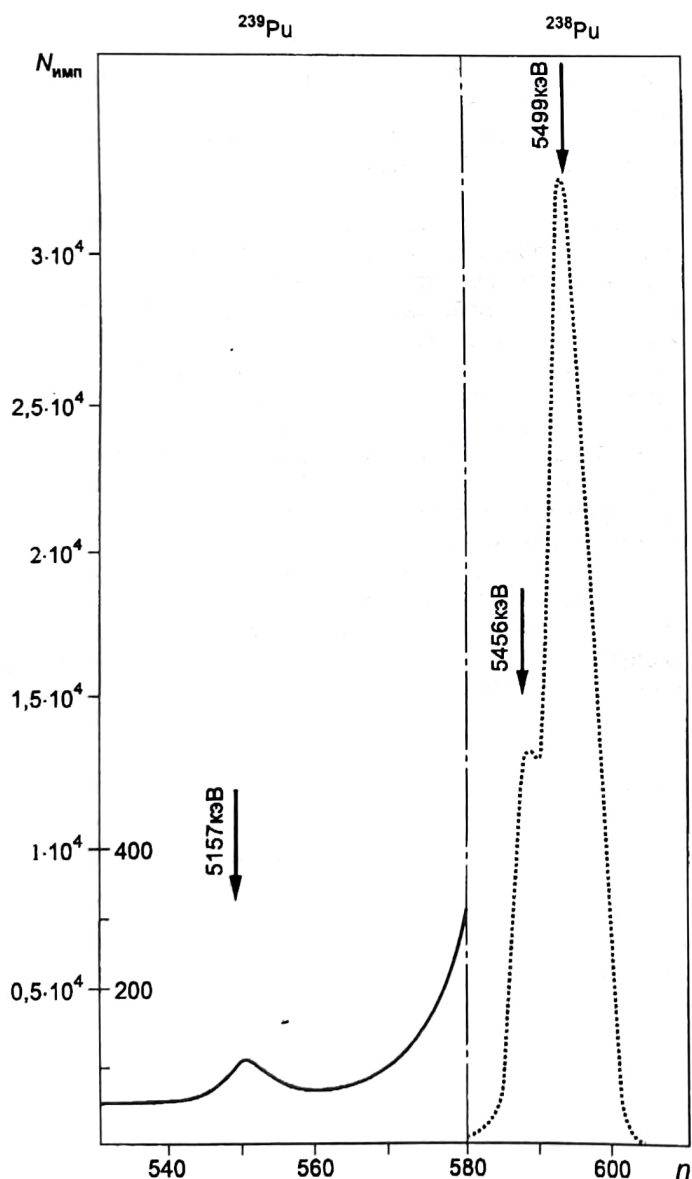


Рис. 1. Аппаратурный спектр импульсов $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ и ^{239}Pu (n — номер канала, $N_{\text{имп}}$ — число импульсов в канале)

Для контроля изотопного состава $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ мы использовали высокочувствительный нейтронно-активационный метод с применением стандартного поля нейтронов реактора БИР-2 [8], для которого с высокой точностью известны сечения реакций деления ряда трансурановых нуклидов. Это поле нейтронов контролируется по флюенсу нейтронов со случайной погрешностью не более 1%. В измерениях на реакторе БИР-2 использовали $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ также в конструктиве детекторов типа ДКН. Акты деления в CO фиксировались регистраторами осколков деления на основе естественной слюды-мусковит.

Изотопное отношение K ($^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$), равное отношению числа ядер нуклидов ^{239}Pu и ^{238}Pu в $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$, рассчитывали по формуле

$$K = \frac{N_T}{\epsilon_f F N_{\text{я}}^8 \frac{\sigma_f^8}{\sigma_f^9}} - \frac{\sigma_f^8}{\sigma_f^9},$$

где N_T — число треков осколков деления в регистраторе из слюды за время облучения $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$ в стандартном поле нейтронов; ϵ_f — чувствительность регистрации актов деления в CO , $\epsilon_f = 0,915$; $N_{\text{я}}^8$ — число ядер ^{238}Pu в CO , в $\text{OPu } 8/046$ $N_{\text{я}}^8 = 1,15 \cdot 10^{14}$ ядер; F — флюенс нейтронов, которым облучался $\text{CO } ^{238}\text{Pu}$; σ_f^8 и σ_f^9 — сечения деления нуклидов ^{238}Pu и ^{239}Pu в спектре нейтронов стандартного поля, равные соответственно 1716 и 1766 мбарн.

Число ядер ^{238}Pu в CO определяли методом счета α -частиц на установке УОР-1 с погрешностью не более 1% [10]. Энерговыведению в активной зоне 1 МДж в стандартном поле реактора БИР-2 соответствовал флюенс $1,63 \cdot 10^{14}$ нейтр./см². Образцы ^{238}Pu облучали таким флюенсом, чтобы число треков в регистраторе от осколков деления было не менее 10^4 .

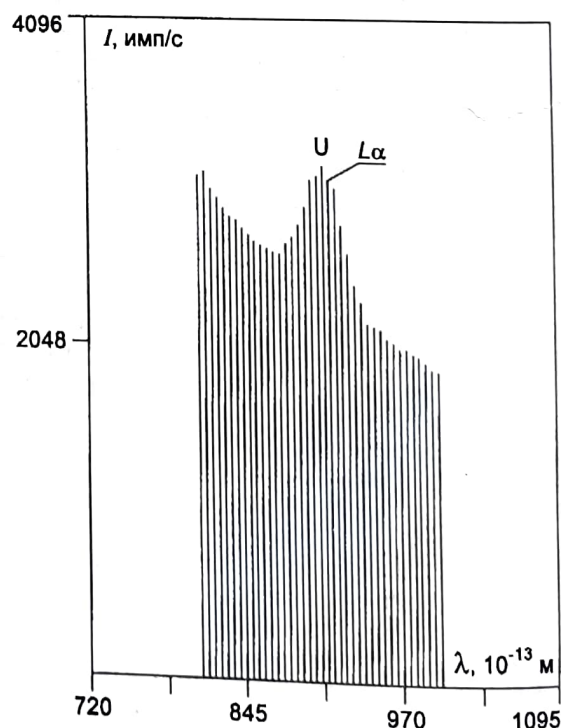


Рис. 2. Спектр $\text{CO } ^{235}\text{U}$ (1U5/030), измеренный на спектрометре «Спектроскан» (I — интенсивность, λ — длина волны)

Таблица 2

Образец	Маркировка СО урана	Толщина слоя по нуклиду-мишени, мкг/см ²	Число ядер нуклида-мишени в образцах урана, измеренных методами		Отличие результатов измерений, %
			рентгенофлуоресценции	альфа-спектроскопии	
²³⁵ U	703/82	174	—	$2,24 \cdot 10^{17}$	—
	1U5/032	12,1	$1,58 \cdot 10^{16}$	$1,53 \cdot 10^{16}$	3,3
	1U5/030	11,6	$1,46 \cdot 10^{16}$	$1,53 \cdot 10^{16}$	4,8
	8U5/229	752	$9,68 \cdot 10^{17}$	—	—
²³⁸ U	702/1	16,0	$2,02 \cdot 10^{16}$	$2,11 \cdot 10^{15}$	4,5
	702/93	147	$1,89 \cdot 10^{17}$	$1,82 \cdot 10^{17}$	3,8
	702/85	134	$1,71 \cdot 10^{17}$	$1,71 \cdot 10^{17}$	0
	702/86	148	$1,88 \cdot 10^{17}$	$1,88 \cdot 10^{17}$	0
	8U8/229	1242	$1,58 \cdot 10^{18}$	—	—

Измеренное изложенным выше методом изотопное отношение K для СО ²³⁸Pu составило 0,189. Согласно паспортным данным (полученным масс-спектрометрическим методом) сырью, из которого изготовлены слои делящегося вещества СО, это отношение на дату измерений составляло 0,184. Незначительное отличие в 2,7 % измеренного значения K от паспортного обусловлено, по нашему мнению, присутствием примесного нуклида ²⁴⁰Pu, имеющего высокий энергетический порог деления.

Аттестация СО урана рентгенофлуоресцентным методом.

Образцы отдельных изотопов урана так же как и СО плутония используются для измерения характеристик полей нейтронов на ЯФУ. Для исследований применяются СО урана с толщиной слоя делящегося вещества 0,1—1000 мкг/см². Аттестация СО²³⁵U и ²³⁸U с толщиной слоя делящегося вещества менее 10 мкг/см² невозможна методами альфа- и гамма-спектрометрии из-за низкой удельной активности указанных нуклидов (80 и 12 Бк/мг соответственно). Поэтому в настоящей работе была предпринята попытка аттестации СО урана рентгенофлуоресцентным методом.

Измерения проводились на рентгенофлуоресцентном кристалл-дифракционном сканирующем портативном спектрометре «Спектроскан», разработанным и выпускаемым серийно в России. Авторы использовали относительный метод аттестации СО урана. В качестве «эталонного» образца был взят СО ²³⁵U (703 / 82). Обогащение по ²³⁵U в нем составляло 90 %. Эталонный образец ранее аттестовали по числу ядер ²³⁵U с погрешностью 1 % ($P = 0,95$) двумя методами: счета делений и счета α -частиц. Исследуемые СО ²³⁸U изготовлены из естественного урана, а СО ²³⁵U из урана, обогащенного по ²³⁵U до 90 %.

На рис. 2 приведена спектральная характеристика СО ²³⁵U (1U5/030), содержащего $1,46 \cdot 10^{16}$ ядер нуклида ²³⁵U (11,6 мкг/см²). В табл. 2 представлены результаты измерений восьми СО урана рентгенофлуоресцентным методом. Измерения проводились по линии U ($L\alpha$) — $911,7 \cdot 10^{-13}$ м

(13,6 кэВ). Для устранения влияния неравномерного нанесения урана по поверхности СО измерения проводились четырьмя, последовательно вращая каждый СО. Время каждого из четырех измерений составляло 200 с. Случайная погрешность измерений, максимальная для СО ²³⁵U с толщиной слоя делящегося вещества 12,1 мкг/см², не превышала 2 % ($P = 0,95$) и в основном была обусловлена неравномерностью нанесения урана на поверхность образца. В табл. 2 также приведены результаты измерений числа ядер нуклида-мишени в исследуемых образцах методом альфа-спектрометрии с погрешностью 1—4 %.

Из табл. 2 следует, что отклонения результатов измерений числа ядер нуклида-мишени в исследуемых образцах находятся в пределах погрешностей обоих методов. Отметим, что рентгенофлуоресцентный метод анализа проще и требует меньше времени, в частности, СО не нужно помещать внутрь вакуумной камеры. При увеличении времени экспозиции с 200 до 2000 с рентгенофлуоресцентный метод позволяет реально аттестовать СО с толщиной слоя урана более 0,4 мкг/см².

ЛИТЕРАТУРА

1. Галиев Н. Б. и др. // Методы и аппаратура для точных измерений параметров ионизирующих излучений / Тр. ВНИИФТРИ. — М., 1978. — Вып. 36 (66). — С. 44.
2. Галиев Н. Б. и др. Нейтронно-активационные средства измерений для массового применения // Материалы 3 Всесоюз. совещ. по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. — М.: ЦНИИАтоминформ, 1983. — Т. 1. — С. 116.
3. Nimis M. e. a. // Nucl. Instr. and Meth. — 1973. — V. 109. N 2. — P. 285.
4. Севастьянов В. Д., Тютиков Н. В. // Методы и аппаратура для точных измерений параметров ионизирующих излучений / Тр. ВНИИФТРИ. — М., 1984. — С. 77.
5. Севастьянов В. Д., Александров Б. М. // Измерительная техника. — 1988. — № 5. — С. 60.
6. Федотов П. И. // Тр. 2 Всесоюз. совещ. по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. — М.: ЦНИИАтоминформ, 1974. — Т. 1. — С. 158.
7. Laner F. F. // Nucl. Instr. and Meth. — 1972. — V. 102. — P. 589.
8. Севастьянов В. Д., Кошелев А. С., Маслов Г. Н. // Атомная энергия. — 1994. — Т. 76. — Вып. 1. — С. 55.
9. Севастьянов В. Д. и др. // Тез. докл. 5 Всесоюз. совещ. по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. — М.: НПО ВНИИФТРИ, 1990. — С. 131.
10. Васильев Р. Д. и др. / Методы и аппаратура для точных измерений параметров ионизирующих излучений / Тр. ВНИИФТРИ. — М., 1975. — Вып. 22 (52) — С. 39.