

**Ю. Г. Щепкін\*, Н. І. Мазіна, В. І. Слісенко, Д. П. Стратілат***Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна*

\*Відповідальний автор: nadin\_v@ukr.net

**ПРЕЗЕНТАТИВНА І ВИСОКОЧУТЛИВА ЕКСПРЕС-МЕТОДИКА  
ВИМІРЮВАННЯ  $f$ -АКТИВНОСТІ**

Розглядається методика для визначення  $f$ -активності (спонтанного поділу) зразків, заснована на поєднанні спектрометрії множинності, енергії випромінювання і часу реєстрації довгопробіжних продуктів поділу. Методика є презентативною, високочутливою і експресною. Мінімально визначене значення питомої активності речовини, що ділиться, зразка становить  $1,4 \cdot 10^{-3}$  Бк/г.

*Ключові слова:*  $f$ -активність, спектрометрія, множинність, енергія, випромінювання, спонтанний поділ, кратність, збіг, сцинтилятор, методика.

**1. Вступ**

Серед різних видів спонтанного випромінювання ядер –  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $f$  – визначення активності останнього є найбільш складним. У той же час, визначення  $f$ -активності досліджуваних зразків має велике значення в області дозиметрії, оскільки є найбільш небезпечним за ступенем впливу на людину, для запобігання несанкціонованого поширення і використання матеріалів, що діляться, при виникненні нештатних ситуацій, що вимагають проведення оперативного контролю за наявністю матеріалів, що діляться, а також можливого використання процесу спонтанного поділу в промисловому збагаченні речовин, що діляться, у руді.

Основні вимоги, пред'явлені до методики вимірювання радіоактивності зразків – експресність (неруйнівний спосіб), презентативність (велика маса досліджуваного зразка в одному циклі вимірювання) і висока чутливість (високі значення ефективності реєстрації процесу спонтанного поділу при низькому фоні).

Складність у рамках однієї методики задовольнити вказані вимоги у випадку вимірювання  $f$ -активності обумовлена великими значеннями періодів спонтанного поділу і складності реєстрації основних характерних продуктів поділу – уламків – унаслідок малого їхнього пробігу. Вимірювання  $f$ -активності за реєстрацією супутніх  $\gamma$ - або нейтронного випромінювання ускладнене на фоні інших джерел випромінювання. Вимірювання  $f$ -активності за реєстрацією  $\alpha$ -активності, що конкурує з  $f$ -розпадом, має широке використання, внаслідок значно менших значень періодів  $\alpha$ -розпаду (порівняно зі спонтанним поділом), але має також аналогічний недолік – малий пробіг  $\alpha$ -частинок. Отже, задовольнити розглянуті критерії в межах однієї методики не вдається,

що і показав порівняльний аналіз способів вимірювання  $f$ -активності, наведений наприкінці статті.

Тому в даній роботі створена методика вимірювання  $f$ -активності через реєстрацію всіх довгопробіжних частинок поділу (миттєвих  $\gamma$ -променів і нейтронів) на основі поєднання трьох видів спектрометрії – множинності [1], енергії та часу реєстрації вказаних продуктів, що дає змогу виділити процес поділу на фоні інших джерел випромінювання і задовольняє вищезазначені критерії.

**2. Спектрометр**

Для реалізації розглянутого підходу вимірювання  $f$ -активності створено спектрометр на основі сцинтилятора NaJ(Tl). Детектор спектрометра (рис. 1) являє собою 4 $\pi$ -збірку із 14 світлоізованих секцій 1 із NaJ(Tl) з фотопомножувачами із загальним об'ємом 38 л. Кристал секції має форму циліндра діаметром і довжиною 150 мм. Секції розміщено щільно одна до одної боковими поверхнями, утворюючи дві кільцеві збірки по шість секцій, які притиснені з боку торців секцій. В утворену в центрі збірки порожнину з кожного торця детектора вставляються дві секції (по одній з кожного боку), відстань між якими 210 мм. У залишковому просторі порожнини розміщується конвертер двох нейтронів із гомогенної суміші парафіну і порошку кадмію, щільність кадмію 0,08 г/см<sup>3</sup>. Діаметр конвертера 160 мм, довжина вздовж осі детектора 210 мм.

У конвертері відбувається поглинання нейтронів і їхнє наступне захоплення в кадмії. У центрі конвертера знаходиться наскрізний канал, співвісний осі детектора, для розміщення досліджуваного зразка 4, завантажений з обох боків

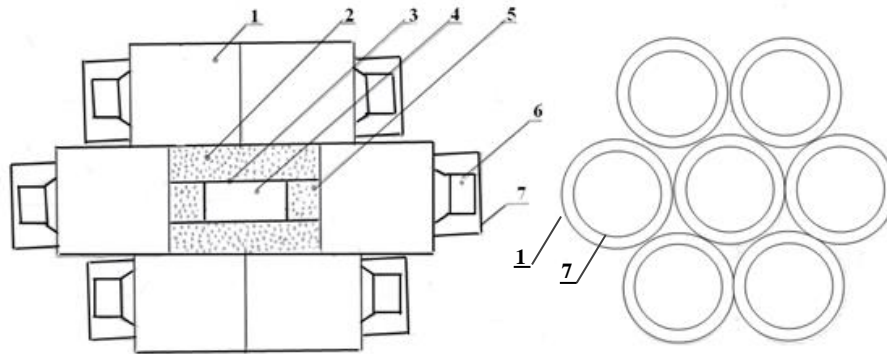


Рис. 1. Конструкція детектора: 1 - скінтілятор, 2 - конвертер нейтронів, 3 - канал, 4 - досліджуваний зразок, 5 - вставки, 6 - фотоелектронний помножувач, 7 - кожух.

вставками 5, які є частинами конвертера. Діаметр каналу 53 мм, об'єм проби 0,2 л. Щільність кадмію вибиралась із оптимальних умов, виходячи із часу життя нейтронів у конвертері, ймовірності їхнього захоплення і поглинання в кадмії  $\gamma$ -променів поділу. Надмірно велика щільність призведе до зменшення ефективності реєстрації  $\gamma$ -променів у кристалах і збільшення вкладу нейтронів, що поглинаються в кадмії в початковий інтервал часу після процесу поділу, коли відбувається реєстрація  $\gamma$ -променів поділу. Обидва вказані фактори призводять до зменшення ефективності  $\epsilon_f$  реєстрації процесу поділу. З іншого боку, надмірно низька щільність кадмію призведе до втрати нейтронів, тобто до зменшення  $\epsilon_f$ , а також до збільшення часу життя нейтронів до моменту захоплення їх у кадмії і, отже, до збільшення часового інтервалу реєстрації їх та до збільшення фону детектора. Оптимальне значення щільності кадмію було обрано на основі розрахунку часу життя нейтронів та ймовірності захоплення їх у кадмії, дослідження, проведеного за методом Монте - Карло. Зовні кристали захищені шаром свинцю товщиною  $\sim 10 - 15$  см.

Реєстрація процесу поділу в спектрометрі відбувається таким чином. Спочатку реєструються

миттєві  $\gamma$ -промені поділу з проведенням спектрометрії виділеної в кристалах енергії і множинності  $\gamma$ -каскадів і формується «стартовий» імпульс. Енергія каскаду миттєвих  $\gamma$ -променів і множинності лежить у межах 6,5 - 9,5 і 6,5 - 11,5 MeV [2] відповідно. Нейтрони поділу з множинністю 2,0 [2] (для  $^{238}\text{U}$ ) після сповільнення захоплюються в кадмії, у результаті утворюється каскад  $\gamma$ -квантів із сумарною енергією 9,1 MeV і множинністю 3 - 7 [3]. Як і у випадках миттєвих  $\gamma$ -квантів поділу проводиться спектрометрія виділеної в детекторі енергії і множинності, у результаті чого формується «стоповий» імпульс протягом часу життя нейтронів до поглинання в кадмії. При наявності «стартового» і «стопового» імпульсів у заданому інтервалі часу відбувається реєстрація процесу поділу. Таким чином, для реєстрації процесу поділу використовується висока множинність, енергія  $\gamma$ -променів поділу, захоплення нейтронів поділу в кадмії конвертера та розділення у часі реєстрації довгопробіжних частинок поділу – миттєвих  $\gamma$ -квантів і нейтронів.

Для реалізації розглянутого алгоритму реєстрації поділу створено відповідний електронний тракт, блок-схема якого наведена на рис. 2.

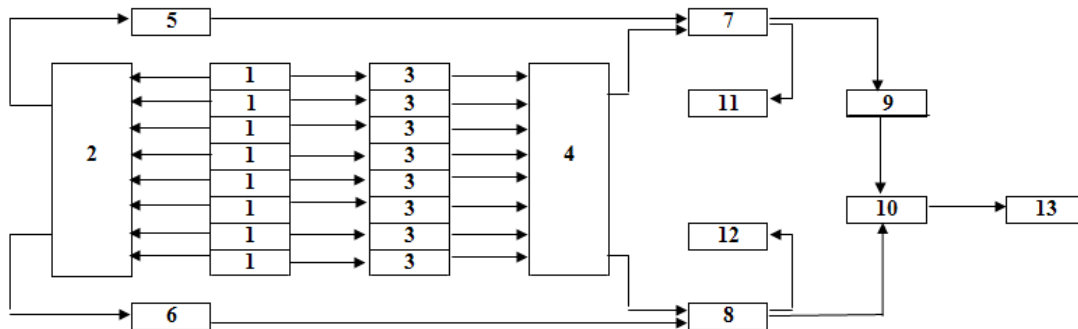


Рис. 2. Блок-схема електронного тракту. 1 - секції детектора, 2 - багатовхідний суматор аналогових імпульсів, 3 - інтегральні дискримінатори в секціях, 4 - кодувальник кратності збігів, 5, 6 - диференціальні дискримінатори імпульсів, 7, 8 - схема збігів, 9 - лінія затримки, 10 - схема пропускання, 11, 12, 13 - лічильники.

З виходу кожної секції 1 імпульс надходить на суматор 2 аналогових імпульсів і на інтегральний дискримінатор 3. Імпульси від усіх дискримінаторів 3 надходять на кодувальник кратності збігів 4, в якому підраховується кількість секцій (кратності збігів), з яких надійшов сигнал. З виходу суматора аналоговий імпульс подається на диференціальні дискримінатори 5 і 6. На виході схеми збігів 7 формується «стартовий» імпульс при реєстрації миттєвих  $\gamma$ -променів поділу в детекторі за умов виділення енергії в діапазоні  $D_{H1} - D_{B1}$  і з кратністю збігів  $k \geq k_{cp}$  ( $D_{H1}$  і  $D_{B1}$  – рівні дискримінації у блоці 5). Аналогічно на виході схеми збігів 8 формується «стоповий» сигнал при реєстрації в детекторі  $\gamma$ -променів від захоплення нейтронів у кадмії за умови виділення енергії в діапазоні  $D_{H2} - D_{B2}$  і з кратністю збігів  $k \geq k_{cn}$  ( $D_{H2}$  і  $D_{B2}$  – рівні дискримінації у блоці 6). «Стартовий» імпульс тривалістю  $T_e$  після схеми затримки 9 і «стоповий» імпульс подаються на схему пропускання 10, на виході якої формується імпульс при збігу «стартового» і «стопового» імпульсів протягом часу  $T_e$  і часу  $T_z$  після моменту процесу поділу.

### 3. Вибір параметрів вимірювання

Основними характеристиками створеної установки, що визначають її якість, є фон  $n_\phi$  детектора і ефективність  $\varepsilon_f$  реєстрації процесу поділу. Значення цих двох величин залежать від вибору параметрів електронного тракту – рівнів дискримінації  $D_{H1}$ ,  $D_{H2}$ ,  $D_{B1}$  і  $D_{B2}$ , області кратності виділення збігів  $k_{cp}$  і  $k_{cn}$ , часу затримки  $T_z$  і тривалості  $T_e$  «стартового» імпульсу.

Рівні дискримінації вибираються із умови отримання найкращого співвідношення між досліджуваним ефектом і фоном. При збільшенні значень  $D_{H1}$  і  $D_{H2}$  зменшується рівень фону, але при цьому і зменшується ефективність реєстрації ефекту. При зменшенні значень верхніх порогів дискримінації  $D_{B1}$  і  $D_{B2}$  також зменшується рівень фону, але при цьому також зменшується і ефективність реєстрації ефекту. Тому вибір значень рівнів дискримінації полягає у визначенні їхніх оптимальних значень. У роботі [4] досліджувалась залежність ефективності реєстрації  $\gamma$ -каскадів захоплення нейтронів у різних ядрах з широким діапазоном значень сумарної енергії каскадів  $\gamma$ -променів (6,2 - 11,1 МеВ) і їхньої множинності (3 - 7) для 4 $\pi$ -сцинтиляційного детектора об'ємом 23 л залежно від області

реєстрації цих величин. Зокрема, для  $\gamma$ -каскадів у реакції захоплення нейтронів у кадмії при збільшенні рівня дискримінації  $D_H$  з 1 до 2 МеВ ефективність реєстрації  $\gamma$ -каскаду при відборі всіх кратностей збігів ( $k \geq 1$ ) зменшується з 93 до 87%. При реєстрації процесів захоплення з більш високими значеннями кратностей збігів, зокрема  $k \geq 3$ , ефективність реєстрації процесу захоплення зменшується на  $\sim 22\%$  [5].

Кількість реєстрованих подій захоплення при значенні верхнього рівня  $D_B$  дискримінації, що дорівнює 5 МеВ, повністю охоплює всі події захоплення.

Аналіз результатів [4] ефективності реєстрації  $\gamma$ -каскадів розпаду  $^{60}\text{Co}$ , що мають середню енергію ( $\sim 1,25$  МеВ), близьку із середньою енергією миттєвих  $\gamma$ -променів поділу, вказує, що оціночне значення ефективності реєстрації процесу поділу становить  $\sim 78\%$ . Вимірювання залежності інтенсивності числа відліку процесів поділу  $^{252}\text{Cf}$  від рівнів дискримінації [6] показує, що при відборі всіх значень кратності збігів ( $k \geq 1$ ) при збільшенні рівня дискримінації  $D_H$  до  $\sim 1,5$  МеВ ефективність реєстрації миттєвих  $\gamma$ -променів поділу становить  $\sim 87\%$ , а при відборі подій з  $k \geq 3$  ефективність зменшується не більше, ніж на 2%, тобто ефективність реєстрації падає до  $\sim 85\%$ . Таким чином, для процесу поділу ефективність реєстрації миттєвих  $\gamma$ -променів поділу лежить у межах 78 - 85%.

На основі проведених оцінок було обрано такі значення параметрів схеми:  $D_{H1} = 1,0$  МеВ,  $D_{B1} = 5,0$  МеВ,  $D_{H2} = 1,5$  МеВ,  $D_{B2} = 5,0$  МеВ, рівень дискримінації на інтегральних дискримінаторах 50 кеВ,  $k_{cp} = 3$ ,  $k_{cn} = 3$ , тривалість  $T_e$  і затримки  $T_z$  «стартового» імпульсу 8,5 і 1,5 мкс відповідно.

Завдяки обраному режиму вимірювань зниження рівня фону значно суттєвіше, ніж зменшення значень вищерозглянутих ефективностей реєстрації процесів захоплення і поділу. Зокрема, інтенсивність числа відліків фону детектора на входах схеми пропускання менша у  $\sim 30$  разів порівняно з інтенсивністю фону на вході електронного тракту, тобто у випадку відбору всіх подій, що надходять із детектора спектрометра.

Зазначимо, що в спектрометрах, створених раніше, в якості поглиначів нейтронів конвертера використовували бор, в якому при поглинанні нейтрона утворюється лише один  $\gamma$ -квант з малою енергією 480 кеВ і не проводилася спектрометрія за кратністю збігів.

У нашій роботі в якості поглиначів нейтронів поділу використовується кадмії. Один із ізотопів

кадмію ( $A = 113$ ) відноситься до тих небагатьох ядер, в яких поєднуються великі значення перерізу захоплення нейтронів, енергія зв'язку нейтрона і множинність захоплюваного  $\gamma$ -випромінювання. Завдяки відбору із спектрів кратності збігів подій з високими значеннями  $k$  і енергетичного спектра з великою енергією, що виділяється в детекторі, зменшується рівень фону з одночасно великим значенням ефективності реєстрації нейтрона, а в результаті і процесу поділу. Це забезпечує виконання одного із важливих критеріїв, які пред'явлені до розробки методики високої чутливості.

#### 4. Вимірювання і результати

Основні характеристики спектрометра – фон  $n_\phi$  детектора і ефективність  $\varepsilon_f$  реєстрації процесу поділу. Джерелами фону є космічні промені, випромінювання приміщення (зал реактора) і матеріалів детектора (кристали, конструкції, захист детектора). Фон складається із двох компонент –  $n_k^\phi$  корельованої і  $n_{нк}^\phi$  некорельованої. Некорельована складова є фоном випадкових збігів подій, зареєстрованих у каналах «старт» і «стоп», які відбуваються протягом часу, що дорівнює тривалості імпульсу «старту»  $T_B$ . Якщо інтенсивність подій фону в каналах «старт» і «стоп» (що знімаються на лічильниках  $I1$  і  $I2$  відповідно; див. рис. 2) дорівнює  $n_{cp}^\phi$  і  $n_{cn}^\phi$ , тоді значення рівня фону  $n_{нк}^\phi$  випадкових збігів визначається із вказаних вимірювальних інтенсивностей як:

$$n_{нк}^\phi = n_{cp}^\phi \cdot n_{cn}^\phi \cdot T_B \quad (1)$$

і виявилася такою, що дорівнює  $3,57 \cdot 10^{-2} \text{ с}^{-1}$ . Повне значення фону  $n_\phi$ , зняте з лічильника  $I3$  (див. рис. 2) на виході схеми пропускання, виявилось таким, що дорівнює  $25,1 \cdot 10^{-2} \text{ с}^{-1}$ . Тобто, основною компонентою фону є корельована його складова:

$$n_\phi = n_\phi - n_{нк}^\phi \quad (2)$$

Можливим джерелом кореляційного фону є космічне випромінювання, значну частину якого складає адронна компонента. При взаємодії з матеріалом детектора відбувається утворення частинок, у тому числі нейтронів. У момент утворення нейтронів у кристалах детектора створюються «стартові» імпульси, нейтрони після сповільнення в конвертері і матеріалах детектора захоплюються, а утворені  $\gamma$ -промені реєструються в кристалах, створюючи «стоповий» імпульс.

Для визначення ефективності  $\varepsilon_f$  реєстрації процесу поділу проводилися вимірювання зі зразком, розміщеним у детекторі, що містить речовину, що ділиться, з відомою  $f$ -активністю. В якості такої використовувався природний уран у кількості 6,79 г. Уран знаходився в матриці зразка із двоокисом кремнію масою 362 г, який імітував породу. Весь зразок розміщено в дюралевому контейнері, що завантажувався в канал конвертера (див. рис. 1).

Вимірювались інтенсивності  $n_{cp}$  і  $n_{cn}$  рахунку в каналах «старт» і «стоп» відповідно і інтенсивність рахунку  $n_\Sigma$  на виході схеми пропускання. Інтенсивність рахунку  $n_U$  від реєстрованих процесів поділу визначалась як:

$$n_U = n_\Sigma - n_k^\phi - n_{cp} \cdot n_{cn} \cdot T_B, \quad (3)$$

де значення корельованого фону знаходиться із співвідношення (2) з вимірювань фону у відсутності зразка. Тоді значення  $\varepsilon_f$  визначалося із співвідношення

$$\varepsilon_f = n_U / A_f, \quad (4)$$

де  $A_f$  –  $f$ -активність використаного урану, визначається як [7]:

$$A_f = CP / AT_f, \quad (5)$$

де  $C = 1,32 \cdot 10^{16}$ , а  $P$  (г),  $A$  і  $T_f$  (років) – маса, атомна маса і період  $f$ -розпаду  $^{238}\text{U}$ . Знайдені із співвідношення (4) значення ефективності виявилися такими, що дорівнюють  $(48,3 \pm 7,1) \%$ .

Для визначення  $f$ -активності  $A_x$  досліджуваного зразка проводилися вимірювання інтенсивності рахунку  $n_x$  процесів поділу цього зразка (аналогічно вищерозглянутих вимірювань  $n_U$ ) і на основі співвідношення (4) знаходили потрібне значення  $A_x$ , використовуючи одержане значення  $\varepsilon_f$ .

При розміщенні досліджуваного зразка в детекторі збільшується інтенсивність рахунку з виходу детектора в 6,5 раза внаслідок  $\alpha$ -розпаду урану і радіоактивності ланцюга продуктів його розпаду. Однак завдяки обраному режиму вимірювання, розглянутому вище, інтенсивність фону на входах схеми пропускання в каналах «старт» і «стоп» у  $\sim 80 - 120$  разів менше, ніж інтенсивність рахунку на виході детектора, тобто на вході електронного тракту. Обраний режим

роботи спектрометра налаштований на реєстрацію великих значень енерговиділення і кратності збігів  $\gamma$ -каскадів миттєвого  $\gamma$ -випромінювання поділу і від захоплення нейтронів у кадмії, в той час як основна частина фонового випромінювання не відповідає умовам для можливої реєстрації при обраному режимі спектрометра, що дає змогу значно знизити ймовірність реєстрації фону. Розділення у часі реєстрації  $\gamma$ -квантів і нейтронів поділу за допомогою сповільнених нейтронів і затриманих збігів не призводить до зменшення ймовірності реєстрації процесу поділу, оскільки реєстрація цих частинок є корельованими подіями, у той час як різко знижується фон, що має характер випадкових збігів.

Презентативність методики та її чутливість виразимо у вигляді мінімально можливої детектованої питомої активності, що визначається як:

$$(\alpha_A)_{\min} = n_{\phi} / \varepsilon_f. \quad (6)$$

Тоді при одержаних параметрах установки маємо  $(\alpha_A)_{\min} = 1,4 \cdot 10^{-3}$  Бк/г.

Досягнуте низьке значення наведеної вище величини показує презентативність і високу чутливість методики, що стало можливим завдяки використанню для реєстрації процесу поділу довгопробіжних частинок поділу одночасно – миттєвих  $\gamma$ -квантів і миттєвих нейтронів поділу. За рахунок використання в сукупності методів спектрометрії множинності, енергії і методу затриманих збігів виявляється можливим використовувати сприятливі для реєстрації процесу поділу фактори:

1. у каналі «старт» виділяються події з високою кратністю збігів і енергією завдяки високій множинності та енергії каскадів миттєвих  $\gamma$ -квантів поділу;

2. у каналі «стоп» здійснюється поширення множинності продуктів поділу (а саме – нейтронів поділу) за рахунок конвертування миттєвих нейтронів поділу з множинністю  $\sim 2$  в каскаді захопленого  $\gamma$ -випромінювання в кадмії конвертера з множинністю 3 - 7 і більшої енергії, завдяки чому в каналі «стоп» також як і в каналі «старт» представляється можливим виділити події з великими значеннями кратності збігів і енергії;

3. реєстрація миттєвих  $\gamma$ -променів і миттєвих нейтронів поділу розділені у часі, завдяки чому реєстрація процесу поділу здійснюється по затриманим збігам вказаних продуктів поділу і з високою ефективністю внаслідок вказаних в п. 1 і п. 2 обставин. Унаслідок використання методу затриманих збігів виділяються кореговані процеси реєстрації  $\gamma$ -променів і нейтронів поділу, в той

час як значно знижується фон, що має характер випадкових збігів.

## 5. Порівняння методів вимірювання $f$ -активності

Порівняння методів вимірювання  $f$ -активності проведено на основі точності її визначення в кожному методі за певний відведений для вимірювання час  $T_A$  зразка вагою  $P$ .

Методи визначення  $f$ -активності можна розділити на дві групи залежно від типу реєстрованих частинок – короткопробіжні (уламки,  $\alpha$ -частинки) або довгопробіжні (нейтрони,  $\gamma$ -промені).

Уламки поділу забирають основну частину енергії, що виділяється при поділі. Однак внаслідок малого пробігу уламків у речовині маса досліджуваного зразка повинна бути невеликою, щоб уламки змогли вийти із досліджуваного зразка і зареєструватися в детекторі. У випадку вимірювання  $f$ -активності зразків з великою масою речовини необхідно розділити зразок на окремі порції з такою масою досліджуваної речовини, яка дала б змогу уламкам вийти із порції і потрапити до детектора. Крім того, залишена в уламках енергія повинна бути достатньою для того, щоб виділена уламками в детекторі енергія перевищувала рівень шумів і енергію, що виділяється в детекторі супутнім до поділу  $\alpha$ -розпадом, а при великій  $\alpha$ -активності й енергію від випадкового у часі накладання окремих процесів  $\alpha$ -розпаду.

Розглянемо статистичну точність визначення  $f$ -активності в даному методі. Якщо пробіг уламка у матеріалі зразка  $\lambda_f$ ,  $W_f$  допустима втрата енергії уламка в порції, тоді товщина  $L$  порції повинна бути  $\lambda_f \cdot W_f$  або менше. Якщо площа порції  $S$ , тоді маса  $P_1$  порції становить  $L \cdot S$ , а кількість  $n$  порцій, на які необхідно розділити весь зразок масою  $P$ , дорівнює  $P/P_1$ .

Якщо час, відведений на вимірювання  $f$ -активності всього зразка, дорівнює  $T_A$ , то на вимірювання порції відводиться час  $t_1$ , що має вигляд:

$$t_1 = T_A / n - t_n, \quad (7)$$

де  $t_n$  – час, необхідний для підготовки однієї порції до вимірювання.

Число відліків  $n_f$ , реєстрованих процесів поділу від порції за відведений для вимірювання час, є

$$n_f = Ct_1 P_1 \varepsilon_f \beta / AT_f, \quad (8)$$

де  $\beta$  – частка речовини, що ділиться, у зразку.

Повне число  $N_f$  відліків процесів поділу, що реєструються детектором від усіх порцій зразка, дорівнює  $n_f \cdot n$ , а повне число  $N$  відліків детектора за весь час вимірювань має вигляд:

$$N = N_f + n_\phi t_1 n, \quad (9)$$

де  $n_\phi$  (с<sup>-1</sup>) – фон детектора. Тоді вимірjana

$f$ -активність  $A_f$  дорівнює  $A_f = N_f / nt_1$ , а статистична точність  $\delta A_f$  визначення активності є

$$\delta A_f = \Delta A_f / A_f = \sqrt{N_f + 2n_\phi t_1 n} / N_f. \quad (10)$$

Використовуючи визначення вищезгаданих величин, отримаємо:

$$\delta A_f = \sqrt{CP_1 \beta \varepsilon_f / AT_f + 2n_\phi} \cdot AT_f \sqrt{T_A - t_n P / P_1} / CP_1 \beta \varepsilon_f. \quad (11)$$

У розглянутому варіанті порція виготовлялася із вихідної речовини досліджуваного зразка. Проте використовується й інший спосіб – із досліджуваного зразка за допомогою радіохімічної процедури проводиться екстрагування речовини, що ділиться, а потім із екстрагованої речовини виготовляються порції. У цьому випадку значно зменшується кількість вимірювальних порцій, а отже, і час на підготовку їх до вимірювання, але витрачається час на процес екстрагування речовин, і можливі втрати при екстрагуванні, що призводить до помилки кінцевого результату.

При визначенні  $f$ -активності  $A_f^\alpha$  шляхом вимірювання активності  $A_\alpha$   $\alpha$ -розпаду потрібне значення визначається як  $A_f^\alpha = A_\alpha T_\alpha / T_f$ . Як і уламки,  $\alpha$ -частинки є короткопробіжними частинками, тому процедура вимірювань  $\alpha$ -активності  $A_\alpha$  цілковито аналогічна вищезгаданій процедурі визначення  $A_f$ -активності, а саме – досліджуваний зразок розбивається на окремі порції. Однак товщина порції повинна не тільки забезпечувати вихід  $\alpha$ -частинки, але й унеможливити помітну втрату енергії  $\alpha$ -частинки в порції. Це пов'язано з тим, що для того, щоб по вимірjній  $\alpha$ -активності зразка визначити  $f$ -активність, необхідно не просто реєструвати  $\alpha$ -частинки, але й визначити енергію їх, тобто товщина порції повинна забезпечити можливість зняти енергетичний спектр  $\alpha$ -частинок. Тоді по вимірjній енергії  $\alpha$ -частинок ідентифікується речовина, що ділиться, зразка. А разом з тим і значення  $T_\alpha$  і  $T_f$ , необхідні для визначення  $A_f$  із вимірjного значення  $A_\alpha$ .

Серед ядер з періодом розпаду  $T_\alpha$  більше одного місяця близько 72 ядер із значеннями енергії  $E_\alpha$   $\alpha$ -частинок у діапазоні від 4 до 10 МеВ, тобто енергетична відстань між  $\alpha$ -лініями ядер у середньому становить 83 кеВ, а якщо розпад відбувається не в основний стан дочірнього ядра, то кількість ліній збільшується. Повна ж кіль-

кість дочірніх ядер становить ~ 552. Тоді енергетична відстань між лініями може бути ~ 11 кеВ. Використані в  $\alpha$ -спектроскопії детектори  $\alpha$ -частинок мають роздільну здатність  $R \approx 19$  кеВ [8], тобто забезпечують можливість ідентифікації речовини, що ділиться, по знятому  $\alpha$ -спектру. Тому необхідно, щоб товщина  $L_\alpha$  порції була такою, щоб втрата енергії  $\Delta E_\alpha$   $\alpha$ -частинок у прошарку була не більше, ніж значення  $R$ , тобто  $\Delta E_\alpha \sim R$ .

Як і у випадку методу визначення  $f$ -активності по реєстрації уламків, можливі варіанти вимірювань  $\alpha$ -спектрів як з матеріалом порції із матеріалу зразка, так і з екстрагованою субстанцією речовини, що ділиться. Співвідношення для точності та спосіб його отримання повністю аналогічні розглянутим вище співвідношенням  $\delta A_f$  і способу його одержання з тією лише різницею, що у співвідношеннях величини  $T_f$  та  $\varepsilon_f$  змінюються на відповідні величини  $T_\alpha$  та  $\varepsilon_\alpha$ .

Методи вимірювання  $f$ -активності шляхом реєстрації уламків і  $\alpha$ -частинок мають низький рівень власного фону використаних напівпровідникових детекторів (~1 імп/год [8, 9]), відносно прийнятну ефективність реєстрації  $\alpha$ -частинок і уламків (приблизно до декількох десятків процентів), однак не презентативні і є руйнуючими і не експресними.

Використання для визначення  $f$ -активності нейтронів дає змогу аналізувати відносно велику масу зразка внаслідок їхнього великого пробігу. Схема установки даного методу повинна бути аналогічною використаній у нашій роботі, а саме – досліджуваний зразок оточується сповільнювачем нейтронів, що в свою чергу оточується газовими лічильниками, які реєструють сповільнені нейтрони. Крім того, можливе розміщення частини лічильників і серед сповільнювача. Наприклад, при дослідженні зразка масою, що використовувалася в нашій роботі, необхідно ~ 100 стандартних газових лічильників високого тиску (10 - 20 атм.) і великих розмірів (довжина ~ 15 - 30 см і діаметр 18 - 30 мм). Наприклад, у роботі

[10] для реєстрації нейтронів створено установку зі 120 гелієвих лічильників типу СНМ-43, розміщених на відстані один від одного на 20 - 30 мм у поліетиленовому паралелепіпеді розміром  $540 \times 490 \times 180$  мм. Збірка має високу ефективність реєстрації нейтронів (50 - 90 %), власний фон детектора 1 імпл/с, рівень дискримінації енергії, виділеної у лічильнику становить  $\sim 150$  кеВ. Недоліком методу є складна експлуатація детектора через виникнення пробоїв уже при вологості 60 %, можливість реєстрації  $\gamma$ -променів при осьовому проходженні електронів у лічильнику, при великих об'ємах досліджуваного зразка значна частина нейтронів буде поглинатися в матеріалі зразка, не досягаючи об'єму лічильника, тобто не реєструється.

Співвідношення для статистичної точності  $\delta A_f^n$  визначається аналогічно вищезгаданому раніше способом і має вигляд:

$$\delta A_f^n = \sqrt{CP\varepsilon_f\beta / (AT_f) + 2n_\phi} / (\sqrt{T_A} \cdot CP\varepsilon_f\beta / AT_f). \quad (12)$$

У даній роботі процеси поділу реєструються за допомогою всіх довгопробіжних частинок – як нейтронів, так і  $\gamma$ -квантів, використовуючи поєднання методів спектрометрії множинності, енергії та часу детектування вказаних продуктів. Співвідношення для точності вимірювання одержуємо вищезгадану способом і воно має аналогічний вигляд (12).

Розроблений метод є презентативним (до 370 г досліджуваного зразка), експресним, має високу чутливість.

Таким чином, є дві групи методик вимірювання  $f$ -активності зразків – за реєстрацією короткопробіжних (у різних варіаціях) і довгопробіжних частинок. Порівняння точності визначення  $f$ -активності розглянутих методів, як видно із співвідношень (11) та (12), залежить від багатьох параметрів ( $\beta$ ,  $t_n$ ,  $T_\alpha$ ,  $T_f$ ,  $P$ ,  $P_1$ ) і комбінації їхніх числових значень, однак загальна тенденція така. При відведеному для аналізу зразка часі  $T_A$  при малих об'ємах зразка (мале значення  $P$ ), у граничному випадку  $P = P_1$ , точність вимірювань  $f$ -активності з використанням методик, заснованих на реєстрації  $\alpha$ -частинок, є вищою внаслідок того, що  $T_\alpha \ll T_f$ . Однак у міру збільшення маси  $P$  досліджуваного зразка частка часу, доступного для вимірювання, зменшується (див. співвідношення (11)) і відповідно погіршується точність вимірювання. У міру збільшення маси  $P$  зразка все менша частка часу залишається на вимірювання і зростає частка часу  $t_n$ , що витрачається на підготовку порцій до вимірювання. Напри-

клад, якщо маса порції  $\sim 0,5$  мг, а повна маса зразка  $P = 370$  г (можлива для вимірювання у створеній методиці за один цикл), кількість порцій становить  $\sim 7,4 \cdot 10^5$ , що робить на 100 % нерентабельним проведення аналізу зразка, тоді доводиться обмежуватися вибірковими порціями окремих частинок зразка, що призводить до зниження достовірності методу.

Виготовлення порцій із речовини, що ділиться, екстрагованої із досліджуваного зразка, дасть змогу зменшити кількість порцій і, відповідно, затрати часу на їхнє виготовлення, однак значна частина часу витрачається на процес радіохімічного екстрагування речовини, що ділиться. Крім того, в процесі екстрагування можлива втрата досліджуваної речовини. Значення  $(\alpha_A)_{\min}$  для методів, які засновані на реєстрації короткопробіжних частинок, становить  $\sim 2,2$  Бк/г. У методиці, що використовується для реєстрації нейтронів поділу, значення  $(\alpha_A)_{\min}$  значно менше –  $\sim 5,6 \cdot 10^{-3}$  Бк/г, а в розробленій у даній роботі методиці воно дорівнює  $\sim 1,4 \cdot 10^{-3}$  Бк/г. Як видно, розроблений метод значно перевищує методики, засновані на реєстрації короткопробіжних частинок, а розглянуті вище два методи з використанням довгопробіжних частинок на основі реєстрації нейтронів поділу за допомогою газових лічильників і розроблене в даній роботі поєднання миттєвих  $\gamma$ -квантів поділу і нейтронів з використанням спектрометрії множинності, енергії і часу реєстрації вказаних продуктів поділу, показують перевагу розробленої методики – показник кращий у  $\sim 4$  рази за величину мінімально досягнутої питомої активності  $\alpha_A$  та можливості аналізувати зразки з більшою масою. Тобто в конкуруючому методі при великих масах зразків відбувається поглинання нейтронів у матеріалі зразка, і вони не реєструються в газовому лічильнику. Розроблений метод більш надійний через відсутність впливу зовнішнього середовища, що є суттєвим недоліком при використанні газових лічильників.

## 6. Висновок

Розроблено методику і створено установку для вимірювання  $f$ -активності зразків на основі використання методів спектрометрії множинності і енергії  $\gamma$ -випромінювання і часу реєстрації довгопробіжних продуктів поділу ( $\gamma$ -променів і нейтронів). Установка являє собою 4л-збірку 14-ти секційний сцинтиляційний детектор на основі кристалів NaI(Tl) із загальним об'ємом  $\sim 38$  л. Метод є експресним, презентативним і має високу чутливість. Максимальна маса аналізованого зразка  $\sim 370$  г, мінімально детектована питома активність  $(\alpha_A)_{\min}$  дорівнює  $1,4 \cdot 10^{-3}$  Бк/г.



СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Г.В. Мурадян и др. Исследование нейтронных сечений и квантовых характеристик ядерных уровней на основе спектрометрии множественности излучений. Препринт Ин-та атомной энергии им. И.В. Курчатова. ИАЭ-2634. (Москва, 1976) 31 с.
2. В.М. Горбачев, Ю.С. Замятин, А.А. Лобов. *Взаимодействие излучения с ядрами тяжелых элементов и деление ядер* (Москва: Атомиздат, 1976) 462 с.
3. И.В. Гордеев, Д.А. Кардашев, А.В. Малышев. *Ядерно-физические константы* (Москва: Госатомиздат, 1963) 511 с.
4. В.І. Слісенко та ін. Дослідження взаємодії реакторного випромінювання з речовиною у конденсованому стані. Звіт про науково-дослідну роботу (заключний). Державний реєстраційний номер 0110U007640, Шифр 480/201 (К., 2015) 154 с.
5. Ю.В. Адамчук и др. Методика измерения нейтронных сечений и квантовых характеристик ядерных уровней. В кн.: Матер. 4-й Всесоюз. конф. «Нейтронная физика», Киев, 18 - 22 апреля 1977 г. Ч. 3 (Москва, 1977) с. 113.
6. Г.В. Мурадян и др. Измерение нейтронных сечений и величины  $\alpha$  с высокой точностью методом спектрометрии множественности. Препринт Ин-та атомной энергии им. И.В. Курчатова. ИАЭ-3769(1) (Москва, 1983) 45 с.
7. Л.Р. Кимель, В.М. Машкович. *Защита от ионизирующего излучения*. Справочник (Москва: Атомиздат, 1966) 312 с.
8. В.А. Агеев и др. Оценка степени трансформации топливных частиц в почвах ближней зоны ЧАЭС. Препринт Межотрасл. науч.-техн. центра «Укрытие» НАН Украины. № 97-8 (Чернобыль, 1997) 16 с.
9. В.А. Агеев и др. Оценка содержания  $^{242m}\text{Am}$  в топливе 4-го энергоблока на основе анализа измерений радионуклидного состава выпадений в ближней зоне ЧАЭС. Препринт Межотрасл. науч.-техн. центра «Укрытие» НАН Украины НАН Украины. № 97-9 (Чернобыль, 1997) 12 с.
10. А.В. Шапарь, В.Ф. Ефименко. Разработка и экспериментальные изучения характеристик нейтронов «Гелевые счетчики в замедлителе». Препринт Физико-энергетического ин-та им. А.И. Лейпунского. ФЭИ-431 (Обнинск, 1973) 53 с.

**Yu. G. Shchepkin\*, N. I. Mazina, V. I. Slisenko, D. P. Stratilat**

*Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine*

\*Corresponding author: nadin\_v@ukr.net

**REPRESENTATIVE AND HIGHLY SENSITIVE EXPRESS METHOD OF MEASUREMENT OF  $f$ -ACTIVITY**

The method for determination of  $f$ -activity (spontaneous fission) of samples based on a combination of multiplicity spectrometry, measurement of radiation energy, and registration of time of long-range fission products is considered. The method is representative, highly sensitive, and fast. The minimum determined value of the specific activity is  $1.4 \cdot 10^{-3}$  Bq/g.

*Keywords:*  $f$ -activity, spectrometry, multiplicity, energy, radiation, spontaneous fission, frequency, coincidence, scintillator.

REFERENCES

1. G.V. Muradyan et al. Investigation of neutron cross-sections and quantum characteristics of nuclear levels based on radiation multiplicity spectrometry. Preprint of I.V. Kurchatov Institute of Atomic Energy. IAE-2634. (Moskva, 1976) 31 p. (Rus)
2. V.M. Gorbachev, Yu.S. Zamyatin, A.A. Lobov. *Interaction of Radiation with Nuclei of Heavy Elements and Nuclear Fission* (Moskva: Atomizdat, 1976) 462 p. (Rus)
3. I.V. Gordeev, D.A. Kardashev, A.V. Malyshev. *Nuclear-Physical Constants* (Moskva: Gosatomizdat, 1963) 511 p. (Rus)
4. V.I. Slisenko et al. Study of the reactor radiation interaction with substance in a condensed state. Report on research work (final). State registration number 0110U007640, Code 480/201 (Kyiv, 2015) 154 p. (Ukr)
5. Yu.V. Adamchuk et al. Techniques for measuring neutron cross-sections and quantum characteristics of nuclear levels. In: Proc. of the 4th All-Union. Conf. "Neutron Physics", Part 3, Kyiv, April 18 - 22, 1977 (Moskva, 1977) p. 113. (Rus)
6. G.V. Muradyan et al. Measurement of neutron cross-sections and the value of  $\alpha$  with high accuracy by the method of multiplicity spectrometry. Preprint of I.V. Kurchatov Institute of Atomic Energy. IAE-3769(1) (Moskva, 1983) 45 p. (Rus)
7. L.R. Kimel, V.M. Mashkovich. *Protection Against Ionizing Radiation*. Handbook (Moskva: Atomizdat, 1966) 312 p. (Rus)
8. V.A. Ageev et al. Evaluation of the fuel particles transformation degree in the soils of the Chornobyl Nuclear Power Plant near zone. Preprint of the Interdisciplinary Scientific and Technical Center "Shelter" of the National Academy of Sciences of Ukraine. No. 97-8 (Chornobyl, 1997) 16 p. (Rus)
9. V.A. Ageev et al. Evaluation of  $^{242m}\text{Am}$  content in the fuel of the 4th power unit based on the analysis of measurements of the fallout radionuclide composition in the Chornobyl Nuclear Power Plant near zone. Preprint of the Interdisciplinary Scientific and Technical Center "Shelter" of the National Academy of Sciences of Ukraine. No. 97-9 (Chornobyl, 1997) 12 p. (Rus)
10. A.V. Shapar, V.F. Efimenko. Development and experimental study of the characteristics of neutrons "Gel counters in the moderator". Preprint of A.I. Leypunsky Institute of Physics and Power Engineering. FEI-431 (Obninsk, 1973) 53 p. (Rus)

Надійшла/Received 28.10.2021