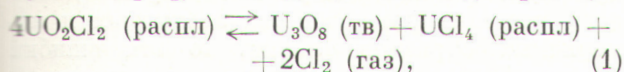


рех, термодинамически неустойчивы при температурах наших опытов [9].

Полученные экспериментальные данные показывают, что при отводе хлора из газовой фазы над хлоридными расплавами, содержащими UO_2Cl_2 , в последних может идти реакция

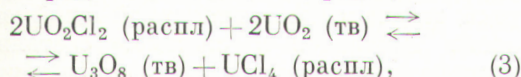


которая, как это следует из термодинамического расчета, более вероятна, чем реакция



Наблюдаемое в проведенных опытах отклонение состава оксидных осадков от U_3O_8 , по-видимому, обусловлено тем, что остаточное давление хлора в газовой фазе было ниже равновесного по реакции (1) и обеспечивало более глубокое восстановление по реакции (2).

Взаимодействие двуокиси урана с расплавами уранилхлорида можно описать реакцией



константа которой

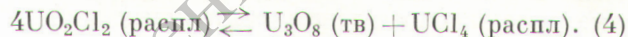
$$\lg K = 2,24 - \frac{5600}{T}$$

и при $750^\circ C$ равна $6 \cdot 10^{-4}$. Это означает, что в хлоридном расплаве в равновесии со смесью двуокиси и закиси-окиси урана подавляющая часть урана находится в шестивалентном состоянии. Однако становится заметной и концентрация четырехвалентного урана.

Вполне возможно, что на первой стадии восстановления UO_2Cl_2 через газовую фазу и его взаимодействия с UO_2 в хлоридных расплавах образуется пентавалентный уран. Однако, когда при данных условиях его концентрация достигает равновесного значения,

он может диспропорционировать на U_3O_8 и UCl_4 . С другой стороны, с накоплением равновесной концентрации тетрахлорида урана взаимодействие его двуокиси с хлоридом уранила практически прекращается, так как реакция (3) обратима. Действительно, при электролизе хлоридного расплава тетрахлорида урана, к которому была добавлена закись-окись, на катоде выпадал осадок, состав которого близок к UO_2 .

Образование закиси-окиси урана в хлоридных урансодержащих расплавах может быть одной из причин отклонения катодного осадка двуокиси от стехиометрического состава. Действительно, как видно из рис. 2 (кривая 1), на катоде наряду с осаждением двуокиси идет процесс перезарядки UO_2^{2+} до UO_2^+ , доля которого зависит от катодной плотности тока. Если же в расплаве четырехвалентный уран отсутствует, то следует ожидать реакцию диспропорционирования



По-видимому, эта реакция будет идти до тех пор, пока в системе не накопится равновесная для данных условий концентрация тетрахлорида урана.

Поступила в Редакцию 2/VII 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Wilks. J. Nucl. Materials, **7**, 157 (1962).
2. D. Wenz et al. Inorg. Chem., **7**, 989 (1964).
3. M. Adams et al. J. Phys. Chem., **67**, 1939 (1963).
4. R. Stromatt. J. Electrochem. Soc., **110**, 107 (1963).
5. М. В. Смирнов, О. В. Скиба. «Труды Института электрохимии», УФАН СССР, вып. 4, 3 (1963).
6. Дж. Кац, Е. Рабинович. Химия урана. М., Изд-во иностр. лит., 1954.
7. М. В. Смирнов, О. В. Скиба. «Труды Института электрохимии», УФАН СССР, вып. 4, 17 (1963).
8. О. В. Скиба, М. В. Смирнов. «Труды Института электрохимии», УФАН СССР, вып. 2, 3 (1961).
9. D. Hill et al. J. Electrochem. Soc., **107**, 698 (1960).

Метод определения среднего времени жизни тепловых нейтронов по измерениям на небольших образцах вещества

В. В. МИЛЛЕР

УДК 539.125.525:550.3

Описан метод определения среднего времени жизни тепловых нейтронов τ по измерениям на образцах вещества, размеры которых порядка длины переноса тепловых нейтронов. Метод основан на использовании импульсного генератора нейтронов и предназначен для определения τ в горных породах по измерениям на керне. Он может быть использован также для оценки концентрации в горных породах элементов с большим сечением поглощения тепловых нейтронов.

В настоящее время в Советском Союзе и за рубежом широко развиваются нейтронные методы ядерной геофизики [1—5]. Для количественной интерпретации показаний этих методов при оценке концентрации полезных ископаемых необходимо знать нейтронные параметры горных пород, в частности среднее время жизни тепловых нейтронов τ .

В связи с этим возникла задача определения τ по измерениям на кернах — образцах горных пород, извлекаемых из скважины. Размеры этих образцов порядка нескольких сантиметров, т. е. соизмеримы с транспортной длиной пробега тепловых нейтронов в горных породах. Измерения следует проводить без разрушения самих кернов, так как при неравномерном распределении элементов с большими сечениями поглощения тепловых нейтронов макроскопическое сечение поглощения зависит не только от среднего химического состава, но и от формы и размеров неоднородностей вследствие эффекта самоэкранировки. Для образцов таких больших размеров нельзя применять известные методы определения нейтронных сечений в пучке тепловых нейтронов из-за трудности учета многократного рассеяния нейтронов в образце. С другой стороны, размеры кернов слишком малы, чтобы можно было использовать известные экспериментальные методы определения нейтронных диффузионных параметров вещества. Например, при использовании метода «нестационарной диффузии» [6—8] размеры системы должны быть больше 7—10 транспортных длин пробега тепловых нейтронов. Для проведения измерений стационарными методами необходимо еще большее количество вещества. Ниже рассматривается один из возможных методов определения τ в веществе, если размеры измеряемого образца порядка длины переноса тепловых нейтронов.

Теория

Принцип метода. Метод основан на изучении возмущающего влияния образца, помещенного в замедлитель конечных размеров, на декремент затухания плотности тепловых нейтронов в системе, облученной импульсом быстрых нейтронов. Если размеры замедлителя достаточно велики, то, спустя некоторое время после вспышки нейтронов, в системе устанавливается равновесный спектр нейтронов, близкий к тепловому. Благодаря этому поглощение нейтронов в образце будет таким же, как и в бесконечной среде.

Так как замедлитель существенно выравнивает поле нейтронов в образце, то рассеивающие свойства образца незначительно влияют на декремент затухания нейтронов в системе. Поэтому для данного замедлителя декремент затухания нейтронов изменяется в основном в зависимости от поглощающих свойств образ-

ца. Измерив эту зависимость на эталонных образцах, строят градуировочную кривую, при помощи которой определяют τ для неизвестных образцов. Неопределенность в их рассеивающих свойствах будет вносить дополнительную ошибку в измеренную величину τ . Однако если рассеивающие свойства эталонных и измеряемых образцов близки, то эта ошибка будет небольшой, кроме того, ее можно уменьшить соответствующим подбором размеров замедлителя.

Точность определения величины τ зависит от того, насколько сильна связь между декрементом затухания плотности нейтронов и величиной τ , а также от статистической точности определения самого декремента затухания. Это приводит к тому, что имеется оптимальный замедлитель, позволяющий измерить τ с минимальной ошибкой.

Выбор замедлителя. Для выбора оптимального замедлителя была теоретически рассмотрена задача о нестационарной диффузии тепловых нейтронов в системе, состоящей из сферического образца, помещенного внутри сферической оболочки (замедлителя). Для плотности тепловых нейтронов в системе получено решение в виде суммы гармоник, экспоненциально убывающих со временем; причем каждая гармоника имеет свой декремент затухания α_n . Величины α_n зависят от размеров и нейтронных свойств системы. Они являются корнями трансцендентного уравнения, которое решалось на ЭВМ для наборов параметров, соответствующих замедлителям из легкой и тяжелой воды, графита и бериллия. В каждом случае нейтронные параметры и размеры образца, а также размеры замедлителя менялись в широких пределах. Рассчитывались величины декрементов затухания первых трех гармоник $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$. Расчеты показали возможность выделения основной гармоники с декрементом затухания α_1 для всех рассчитанных случаев при сравнительно небольших временах задержки, слабую зависимость α_1 от рассеивающих свойств образца, которая практически исчезает, когда $\tau_1 \approx \frac{1}{\alpha_1} (\tau_1 - \text{среднее время жизни тепловых нейтронов в изучаемой среде})$. Анализ результатов расчетов позволил выбрать замедлитель, оптимальный с точки зрения точности определения τ_1 . Им оказался замедлитель из легкой воды или вещества, близкого к ней по нейтронным свойствам. При радиусе образца 2 см оптимальный радиус замедлителя составляет ~6 см. Если учесть, что условия

выделения основной гармоники с увеличением размеров замедлителя ухудшаются, то оптимальный радиус должен быть несколько меньше.

Экспериментальные исследования

Экспериментальная установка. В качестве импульсного источника быстрых нейтронов использовался генератор нейтронов откачного типа. Он представляет собой линейный ускоритель дейтронов на энергию 100 кэВ. Средний выход нейтронов с энергией 14 МэВ составлял 10^7 нейтр/сек.

Регистрирующая аппаратура состояла из сцинтилляционного датчика с фотоумножителем ФЭУ-24, предусилителя, формирователя импульсов и 256-канального временного анализатора АИ-256. В качестве сцинтиллятора использовался порошок из смеси бора с серпистым цинком, засыпанный в плоскую кассету.

Общий вид экспериментальной установки показан на рис. 1. Материал замедлителя и его размеры выбраны с учетом результатов расчетов по выбору оптимального замедлителя. Так как керны имеют цилиндрическую форму, то замедлитель был сделан в форме цилиндра. В качестве материала замедлителя выбран флексиглас, нейтронные свойства которого близки к свойствам воды. Диаметр замедлителя

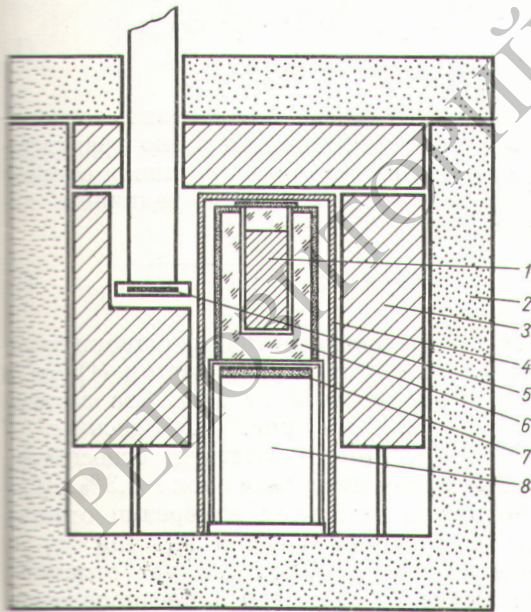


Рис. 1. Общий вид установки.

1 — образец; 2 — H_3BO_3 ; 3 — парафин + H_3BO_3 ; 4 — кадмий; 5 — мишень; 6 — оргстекло; 7 — В + ZnS; 8 — ФЭУ.

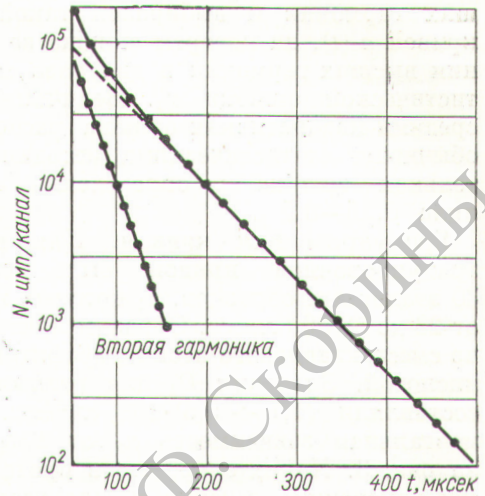


Рис. 2. Характерная экспериментальная кривая $n(t)$.

8 см, высота 12 см. Диаметр образцов 4 см, высота 8 см. Для повышения начальной плотности нейтронов замедлитель окружен отражателем из смеси парафина с бором (толщина отражателя около 5 см). Вся система с детектором нейтронов находится внутри бор-кадмиевого экрана.

Методика проведения измерений и обработка экспериментальных данных. Импульсный генератор работал с частотой 1000 гу, длительность ионного импульса составляла 5 мксек. Ширина канала временного анализатора 4 мксек. Задержка начала измерений относительно ионного импульса составляла 60—200 мксек. На рис. 2 приведена характерная кривая $n(t)$, полученная после вычитания фона. Начиная с 60 мксек эту кривую можно представить как сумму двух экспонент:

$$n(t) = 1,8e^{-16 \cdot 10^3 t} + 5,5e^{-45 \cdot 10^3 t}.$$

В этом случае параметры образца были: $\tau_1 = 3 \cdot 10^{-3}$ сек, коэффициент диффузии $D_1 = 5,5 \cdot 10^5$ см²/сек. Здесь амплитуда второй гармоники в три раза больше амплитуды первой гармоники. Приблизительно в таком же соотношении находятся декременты затухания α_2 и α_1 . При меньших значениях τ_1 высшие гармоники вымирают раньше. Для $\tau_1 \leq 100$ мксек уже через 60 мксек практически остается одна основная гармоника. Амплитуды и декременты затухания высших гармоник существенно зависят от D_1 . С уменьшением D_1 их вклад при данном времени t уменьшается.

При определении величины α_1 , по экспериментальным данным, оценивалось влияние выс-

ших гармоник и выбирался такой интервал кривой $n(t)$, на котором ошибка за счет влияния высших гармоник в два раза меньше статистической ошибки α_1 . Величина α_1 и ее средняя квадратичная ошибка рассчитывались обычными статистическими методами. Относительная ошибка в определении α_1 составляла 0,25—0,5%.

Градуировочная кривая. Для построения градуировочной кривой было изготовлено 30 эталонных образцов, τ_1 которых изменялось от 23 до 38 000 мксек. Образцы приготавливались из смеси кварцевого песка с графитом и борной кислотой. Значения D_1 для разных образцов составляли $(1,7 \div 5,5) \cdot 10^5$ см²/сек. Экспериментальная зависимость α_1 от $1/\tau_1$ показана на рис. 3. Характерно, что в пределах точности измерений значения α_1 для всех образцов ложатся на одну плавную кривую независимо от D_1 . Ошибка в измерениях α_1 составляла 0,4%.

С точки зрения измерений нейтронных параметров горных пород наибольший интерес представляет диапазон τ_1 , равный 200—3000 мксек. Результаты замеров эталонных образцов в этом интервале изменения τ_1 приведены на рис. 4. Из рисунка видно, что в диапазоне $\tau_1 = (200 \div 3000) \cdot 10^{-6}$ сек экспериментальные данные хорошо описываются линейной зависимостью

$$\alpha_1 = a + b \frac{1}{\tau_1}.$$

В результате обработки экспериментальных данных по методу наименьших квадратов по-

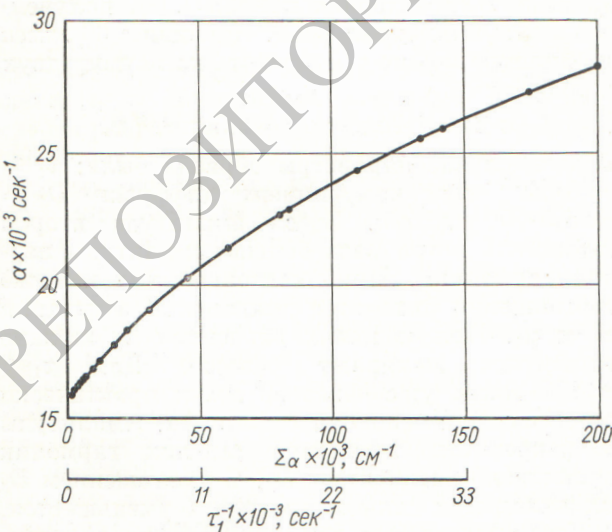


Рис. 3. Экспериментальная градуировочная кривая.

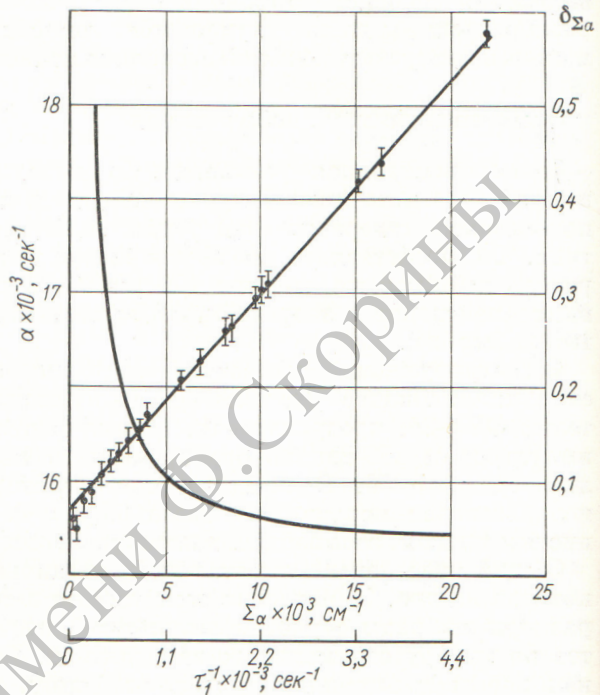


Рис. 4. Градуировочная кривая и относительная ошибка определения величины τ_1 ($\delta_{\tau_1} \equiv \delta_{\Sigma_\alpha}$).

лучено:

$$\left. \begin{aligned} a &= (15,86 \pm 0,03) \cdot 10^3 \text{ сек}^{-1}; \\ b &= 5,17 \pm 0,014. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Такая обработка позволила оценить относительную ошибку определения τ_1 по градуировочной кривой при среднеквадратичной ошибке в индивидуальном измерении величины α_1 , равной σ :

$$\delta = \frac{1}{b} \sqrt{(\sigma_\alpha^2 + \sigma^2) \tau_1^2 + \sigma_b^2}, \quad (2)$$

где σ_α и σ_b — среднеквадратичные ошибки величин a и b . По формуле (2) с учетом (1) была построена зависимость δ от $1/\tau_1$. Эта зависимость приведена на рис. 4. Здесь $\sigma^2 = 1,6 \cdot 10^3 \text{ сек}^{-2}$, что соответствует относительной ошибке в этом интервале около 0,3%. При такой ошибке в отдельном измерении относительная ошибка определения τ_1 при $\tau_1 = 1$ мсек составляет 10%. Следует отметить, что выражение (2) получено в предположении линейной зависимости α_1 от $1/\tau_1$ и не является точным. Оно может быть использовано для оценки ошибки в ограниченном интервале изменения τ_1 , где зависимость α_1 от $1/\tau_1$ близка

к линейной. Вне этого интервала выражение (12) не справедливо.

Зависимость α_1 от D_1 . На рис. 5 приведена экспериментальная зависимость α_1 от D_1 . Образцы с различными значениями D_1 готовились из смеси тяжелой и легкой воды. Величина τ_1 образцов была одинаковой (210 мксек), что достигалось добавлением в образец соответствующего количества борной кислоты. Образец с $D_1 = 5,5 \cdot 10^5 \text{ см}^2/\text{сек}$ был изготовлен из кварцевого песка. Из графика видно, что в диапазоне $D_1 = (1,7 \div 5,5) \times 10^5 \text{ см}^2/\text{сек}$ зависимостью α_1 от D_1 можно пренебречь в пределах точности измерений. Это объясняет, почему значения α_1 для всех эталонных образцов легли на одну градуировочную кривую.

Опробование метода. Были измерены значения τ_1 нескольких кернов, отобранных из нефтяных скважин в Татарии, а также τ_1 образцов из материала, слагающего модели пластов, на которых проводится отработка нейтронных методов. Кроме того, измерялись образцы с различной концентрацией киновари в кварцевом песке для оценки возможной чувствительности и точности определения концентрации киновари в горной породе. Результаты измерений представлены в табл. 1, там же для сравнения приведены результаты расчета по данным химического анализа.

Для проведения измерений керны предварительно экстрагировались и обтачивались по размеру эталонных образцов. Для всех

Значения τ для различных образцов

Таблица 1

Среда	$\Sigma_a, \times 10^3 \text{ см}^{-1}$		$\tau_{\text{эксп}}, \text{ мксек}$
	расчет	эксперимент	
$\text{SiO}_2 + 0,028\% \text{ HgS}$	2,52	$2,7 \pm 0,5$	1680 ± 330
$\text{SiO}_2 + 0,056\% \text{ HgS}$	2,93	$3,0 \pm 0,5$	1540 ± 300
$\text{SiO}_2 + 0,11\% \text{ HgS}$	3,76	$3,6 \pm 0,4$	1260 ± 150
$\text{SiO}_2 + 0,22\% \text{ HgS}$	5,42	$5,8 \pm 0,5$	780 ± 70
$\text{SiO}_2 + 0,5\% \text{ HgS}$	10,4	$9,8 \pm 0,7$	460 ± 50
Керн № 1 (известняк)	5,95	$6,0 \pm 0,7$	760 ± 80
Керн № 2 (известняк)	6,3	$5,7 \pm 0,7$	800 ± 100
Керн № 5 (известняк)	6,3	$6,0 \pm 0,7$	760 ± 80
Либерецкий песок, $q=1,64 \text{ г/см}^2$	2,16	$3,1 \pm 0,4$	1460 ± 170
Силикатный кирпич, $q=1,9 \text{ г/см}$	9,1	$9,4 \pm 1$	485 ± 50

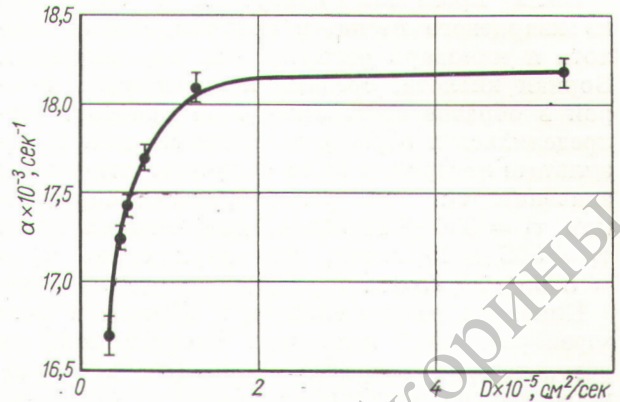


Рис. 5. Экспериментальная зависимость декремента затухания основной гармоники плотности нейтронов в системе образец — замедлитель от рассеивающих свойств образца.

образцов было получено удовлетворительное согласие результатов эксперимента с данными химического анализа, исключение составляет образец из либерецкого песка. В этом образце, возможно, имеются микропримеси поглощающих элементов, которые не учтены при химическом анализе.

Концентрация киновари SiO_2 при ее равномерном распределении по объему образца рассчитывалась по формуле

$$C = \frac{\Sigma_a - \Sigma_a \text{SiO}_2}{\Sigma_a \text{HgS} - \Sigma_a \text{SiO}_2} \cdot 100\%, \quad (3)$$

где Σ_a — измеренные величины; $\Sigma_a \text{SiO}_2$ и $\Sigma_a \text{HgS}$ — значения, рассчитанные по нейтронным сечениям соответствующих элементов. В табл. 2 приведены значения концентрации, рассчитанные по формуле (3) и полученные экспериментально. Там же указана ошибка в определении величины концентрации.

При данной точности измерений чувствительность к содержанию киновари в SiO_2 составляет около 0,05%.

Результаты измерений содержания киновари в различных образцах

Истинное значение концентрации киновари, %	Экспериментальное значение концентрации киновари, рассчитанное по формуле (3), %
0,028	$0,03 \pm 0,03$
0,056	$0,05 \pm 0,03$
0,11	$0,09 \pm 0,02$
0,22	$0,24 \pm 0,03$
0,55	$0,51 \pm 0,05$

Были проведены измерения с образцами из кварцевого песка, в котором борная кислота и киноварь распределены неравномерно. Борная кислота, средняя концентрация которой в образце составляла один процент, распределялась в образце тонкими слоями. В результате измерений были получены следующие значения τ_1 : при равномерном распределении $\tau_1 = 336 \pm 12$ мксек, для четырех слоев $\tau_1 = 396 \pm 16$ мксек, для двух слоев $\tau_1 = 500 \pm 20$ мксек.

Киноварь распределялась в образце в виде зерен различной величины. Рассчитанная по результатам измерения концентрация киновари меньше истинной в два раза при величине зерен 1 мм и в пять раз при величине зерен 2 мм.

Проведенные измерения показали влияние неравномерного распределения элементов с большими сечениями поглощения тепловых нейтронов на измеряемые величины τ_1 и S .

Работа выполнена во Всесоюзном научно-исследовательском институте ядерной геологии и геофизики под руководством Ю. С. Шимелевича. Автор выражает благодарность Е. А. Селинину за проведение численных расчетов на ЭВМ «Стрела», а также Н. М. Арбузову и Ю. Ф. Барышеву, принимавшим участие в экспериментальной работе.

Поступила в Редакцию 15/VII 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Сб. «Ядерная геофизика». Под ред. Ф. А. Алексеева. М., Гостехиздат, 1959.
2. Сб. «Ядерная геофизика при поисках полезных ископаемых». М., Гостехиздат, 1960.
3. Радиоактивные изотопы и ядерные излучения в народном хозяйстве СССР. Труды Всесоюзного совещания (Рига, 12—16 апреля 1960 г.). Т. IV, М., Госатомиздат, 1961.
4. Труды конференции по использованию атомной энергии в мирных целях (Ташкент, ноябрь 1959 г.). Изд-во УзССР, 1960.
5. Сб. «Портативные генераторы нейтронов». Госатомиздат, М., 1962.
6. И. М. Франк. «Труды ФИАН», XIV, 117 (1962).
7. А. В. Антонов и др. В кн. «Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955)». Докл. сов. ученых. Т. 5. М., Изд-во АН СССР, 1958.
8. А. В. Антонов и др. Доклад FM 68/54 на Международном симпозиуме по радиоактивным приборам в промышленности и геофизике (Краков, октябрь 1965 г.). Вена, МАГАТЭ, 1966.

ВНИМАНИЮ АВТОРОВ

Рукописи для журнала должны удовлетворять перечисленным ниже требованиям. Материалы, не отвечающие этим требованиям, не принимаются. Отклоненные статьи не возвращаются.

1. Тексты и иллюстративные материалы представляются в трех экземплярах в окончательно отработанном для печати виде и должны быть подписаны всеми авторами.

После подписей авторов должны быть указаны: фамилии, имя и отчество полностью, домашний адрес и номер телефона.

2. Объем обзорных статей, как правило, должен превышать 20—22 стр., оригинальных статей — 10—12 стр., аннотаций депонированных статей — 2 стр., писем в редакцию — 5 стр. машинописного текста (включая рисунки и список литературы).

3. Текст рукописи должен быть напечатан на машинке через два интервала на одной стороне листа, с полями с левой стороны не менее 4 см; рукописные вставки не допускаются.

4. К статьям и письмам в редакцию прилагаются краткие авторефераты, в которых следует коротко и ясно сформулировать цель, результаты и область практического применения работы, а также перевод названия на английский язык.

5. Оформление текста (написание формул, выделение греческих и латинских, строчных и прописных букв, сокращение слов, оформление цитируемой литературы и т. д.) производится в соответствии с общими правилами, принятыми для научно-технических журналов. Трудно различимые в рукописном обозначении буквы и знаки поясняются на полях.

Размерность всех приведенных величин должна соответствовать Международной системе единиц измерений. В отдельных случаях могут быть приведены пересчетные формулы.

6. Рисунки выполняются черной тушью на бумаге размером 15 × 20 см; фотографии должны иметь контрастное изображение; размер фотографий не менее 9 × 12 см. Подписи должны быть напечатаны на отдельном листе.