

Абсолютные измерения величины α для U^{235} и Pu^{239} в области энергий нейтронов 10 кэв — 1 Мэв

В. Н. КОНОНОВ, Е. Д. ПОЛЕТАЕВ, Ю. С. ПРОКОПЕЦ, А. А. МЕТЛЕВ, Ю. Я. СТАВИССКИЙ

УДК 539.172.4

Цель работы — получение новых экспериментальных данных о величине α для U^{235} и Pu^{239} в наиболее важном для расчетов быстрых реакторов интервале энергий нейтронов 10 кэв — 1 Мэв. Эксперимент проводился на спектрометре по времени пролета на базе импульсного электростатического ускорителя. В основе метода измерения величины α лежало использование большого жидкостного сцинтилляционного детектора (сцинтилляционного бака), загруженного кадмием [1—3], который служил для регистрации событий радиационного захвата нейтронов и деления по мгновенным γ -квантам и идентификации событий захвата и деления путем регистрации нейтронов деления после их замедления и поглощения в кадмии. Величина α в этом методе может быть получена из соотношения

$$\alpha = \frac{\epsilon_{\gamma f} N_1/N_2 [1 - C(1 - P)] - C(1 - P)}{\epsilon_{\gamma c} (1 - P) - N_1 P/N_2}, \quad (1)$$

где N_1 и N_2 — зарегистрированные в детекторе события двух типов: одиночные (преимущественно захват) и события, сопровождающиеся регистрацией в течение некоторого интервала времени ожидания дополнитель-

ных импульсов от нейтронов деления (преимущественно деление); $\epsilon_{\gamma c}$ и $\epsilon_{\gamma f}$ — эффективность регистрации событий захвата и деления по мгновенным γ -квантам; C — вероятность того, что событие деления не будет сопровождаться регистрацией нейтронов деления в интервале времени ожидания; P — вероятность того, что событие сопровождается случайным фоновым импульсом.

Эксперимент по измерению величины α для U^{235} и Pu^{239} проводился на импульсном электростатическом ускорителе Ван де Граафа. Параметры пучка протонов на мишени ускорителя: длительность импульсов тока 20 нсек, величина тока в импульсе ~ 1 ма, частота следования импульсов 300 кгу. Измерения проводились на базе 1,125 м с разрешением 18 нсек/м при использовании непрерывного спектра нейтронов из «толстых» мишеней для диапазона энергий 10—80 кэв и с разрешением 10—30 кэв в области энергий нейтронов 100 кэв — 1 Мэв при работе на моноэнергетических нейтронах. Источником нейтронов служили реакции $Li^7(p, n) Be^7$ и $T(p, n) He^3$. Использовались металлические литиевые и стандартные мишени из T — Ti.

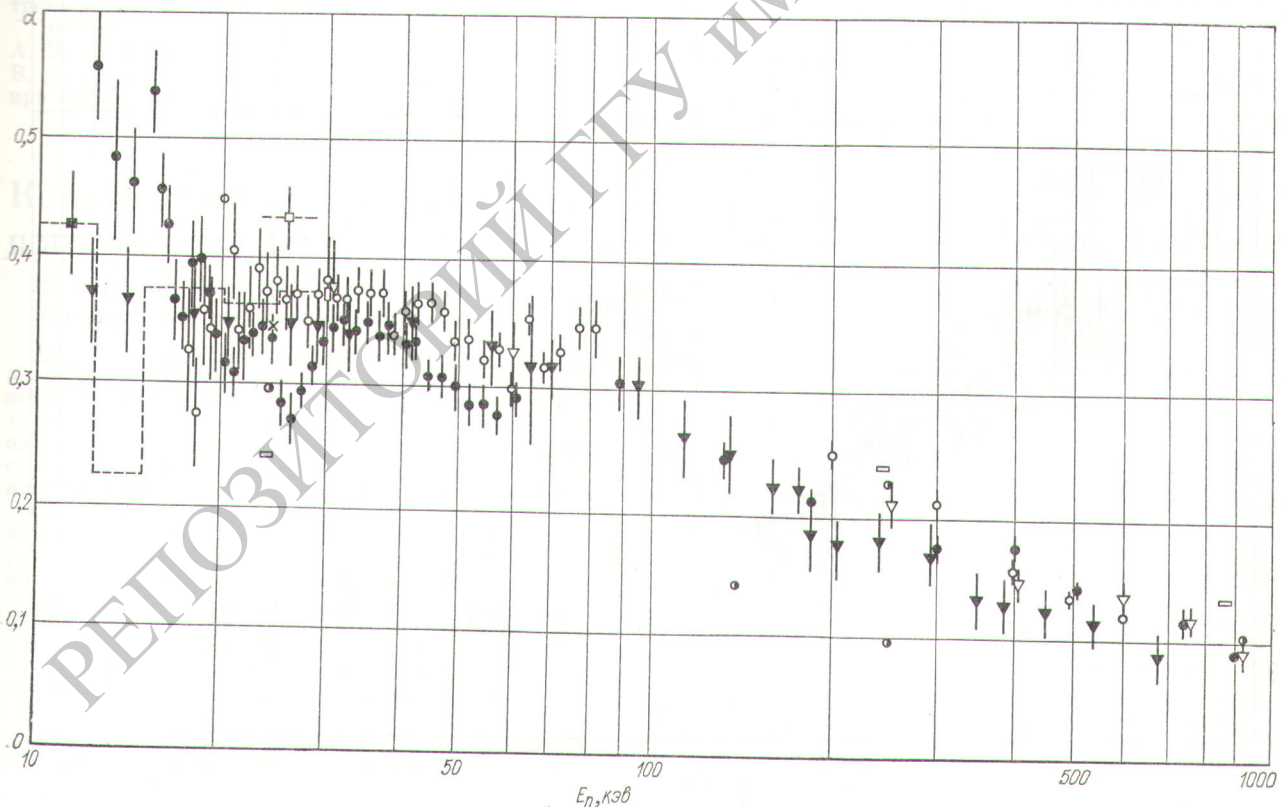


Рис. 1. Зависимость величины α для U^{235} от энергии нейтронов:

● — ФЭИ, 1970 г., данная работа; ▽ — LASL, 1962 г., [1]; ▼ — ORNL, 1964 г., [2]; ○ — ORNL, 1967 г., [3]; ⊙ — ИАЭ, 1956 г., [5]; □ — ФЭИ, 1958 г., [6]; × — ФЭИ, 1965 г., [7]; --□-- — UCRL, 1970 г., [9]; --■-- — ОИЯИ, 1965 г., [10].

Детектор представлял собой сцинтилляционный бак объемом 400 л, в центральной части которого находилась цилиндрическая полость, заполненная водным раствором азотнокислого кадмия, являющаяся конвертором при регистрации нейтронов деления. Такая конструкция детектора позволила получить высокую концентрацию ядер кадмия ($N : Cd = 100 : 1$) и тем самым уменьшить время жизни нейтронов в детекторе. На основе измерения распределения времени жизни нейтронов деления в детекторе, проведенного с помощью быстродействующей камеры деления с Cf^{252} [4], длительность интервала ожидания выбрана равной 6 мксек. Электронная аппаратура, использованная в эксперименте, позволяла измерять энергию нейтронов методом времени пролета, производить идентификацию событий радиационного захвата нейтронов и событий деления, измерять амплитудные спектры импульсов детектора при регистрации событий захвата и деления, а также измерять с помощью ионизационных камер деления вероятности C и в процессе эксперимента вероятности P . При определении величины α использовался образец из металлического Pu^{239} диаметром 40 мм

и толщиной $2,9 \cdot 10^{21}$ ядер/см² с содержанием Pu^{240} 0,2% и образец из U_3O_8 , обогащенный изотопом U^{235} до 90% толщиной $4,1 \cdot 10^{21}$ ядер/см². Кроме того, для измерения зависимости уровня фона от времени пролета использовались эквивалентные рассеивающие образцы из углерода и свинца. Величину C определяли с помощью быстродействующих ионизационных камер деления [4] со слоями U^{235} и Pu^{239} . Эта величина для нашего детектора в экспериментах с плутонием была равна $C_{Pu^{239}} = 0,2955 \pm 0,0073$, а в экспериментах с ураном $C_{U^{235}} = 0,2962 \pm 0,0053$. Кроме того, для контроля условий опыта в процессе эксперимента величина C периодически определялась при регистрации событий спонтанного деления Pu^{240} и Cf^{252} . Во время обработки экспериментальных результатов для высоких энергий нейтронов вводилась небольшая поправка на зависимость вероятности C от среднего числа нейтронов деления $\bar{\nu}$.

Полученные в эксперименте значения величины α для U^{235} и Pu^{239} представлены на рис. 1 и 2. Они являются результатом усреднения пяти для U^{235} и девяти для Pu^{239} независимых серий измерений. Указанная

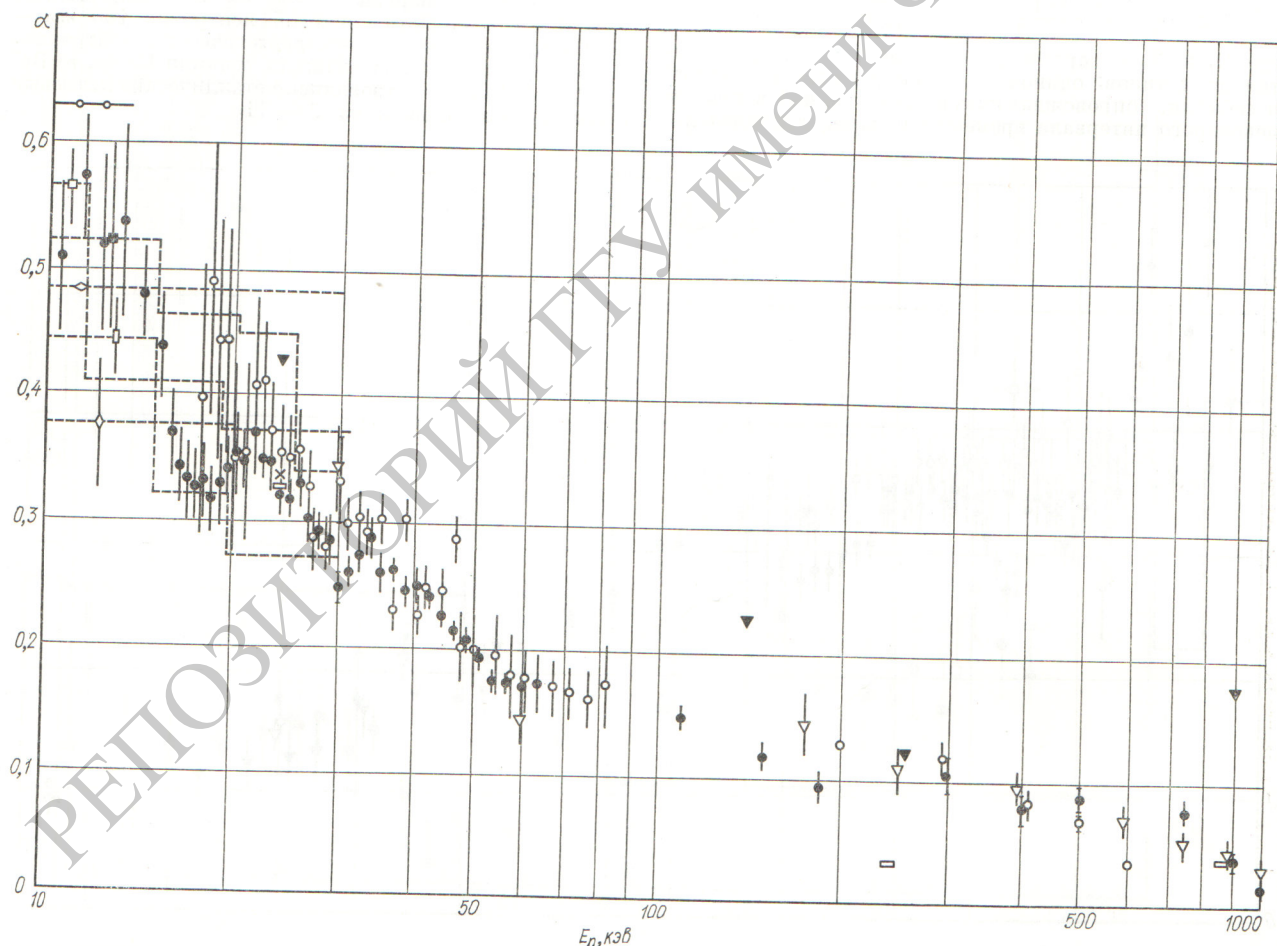


Рис. 2. Зависимость величины α для Pu^{239} от энергии нейтронов:

● — ФЭИ, 1970 г., данная работа; ▽ — LASL, 1962 г., [1]; ○ — ORNL, 1967 г., [3]; ▽ — ИАЭ, 1956 г., [5]; □ — ФЭИ, 1958 г., [6]; × — ФЭИ, 1965 г., [7]; -- □ --- UCRL, 1970 г., [9]; -- ◇ --- ОИЯИ, 1970 г., [14]; -- □ --- ORNL — RPI, 1970 г., [11]; -- ■ --- Harw, 1970 г. [12]; -- ◇ --- ОИЯИ — ФЭИ, 1970 г., [13].

на рисунках ошибка является среднеквадратичной, полученной в результате усреднения, и не включает неопределенность констант экспериментальной установки $\epsilon_{\gamma}/\epsilon_{\text{гс}}$ и C , характеризующая тем самым неопределенность в относительном энергетическом ходе величины α . Полная абсолютная ошибка величины α , включающая неопределенность всех величин выражения (1), составляет 10—15%. На рисунках приведено также большинство имеющихся в настоящее время экспериментальных данных о величине α в области энергий нейтронов 10 кэв — 1 Мэв.

Можно отметить хорошее согласие всех экспериментальных данных по Pu^{239} , полученных на ускорителях Ван де Граафа аналогичным методом. Для U^{235} наши данные в области энергий нейтронов 20—100 кэв лежат систематически ниже на ~15% результатов работ [1—3]. Однако необходимо отметить, что в этих работах использовались значительно более толстые образцы (в ~6 раз), и для детального сравнения, по-видимому, требуется учитывать различные эффекты резонансной блокировки. Обращает на себя внимание заметная структура в полученной нами зависимости величины α от энергии нейтронов как для U^{235} , так и для Pu^{239} . Эта структура может быть причиной значительных расхождений в случае U^{235} в результатах измерений η методом пропускания в сферической геометрии на фото-нейтронных источниках $\text{Sb} - \text{Be}$ [5—7]. Наличие такой структуры в величине α не является неожиданным и может быть связано с сильной структурой в сечении деления, которая для U^{235} в этой области энергий нейтронов недавно была обнаружена [8].

В заключение авторы выражают благодарность А. И. Лейпуискому, Л. Н. Усачеву, А. И. Абрамову, В. А. Романову за постоянное внимание и содействие при выполнении настоящей работы, а также В. С. Шо-

рину, М. В. Боховко, Н. С. Косулину, В. И. Володину, В. Н. Канаки за участие в подготовке и проведении экспериментов.

Поступило в Редакцию 29/IV 1971 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Hopkins, B. Diven. Nucl. Sci. Engng. 12, 169 (1962).
2. L. Weston, G. de-Saussure, R. Gwin. Nucl. Sci. Engng, 20, 80 (1964).
3. G. de Saussure et al. Nucl. Data for Reactors. Vol. II, Vienna, IAEA, 1967, p. 233.
4. В. Н. Кононов и др. «Приборы и техника эксперимента», № 6, 51 (1969).
5. П. Е. Спивак и др. «Атомная энергия», № 3, 21 (1956).
6. В. Н. Андреев. Там же, 4, 185 (1958).
7. А. А. Ваньков, Ю. Я. Стависский. Там же, 19, 41 (1965).
8. B. Patrick et al. AERE-R 6350, 1970.
9. Y. Czirr, J. Lindsey. Nucl. Data for Reactors. Vol. I, Vienna, IAEA, 1970, p. 331.
10. Ван-Ши-Ди и др. Phys. and Chem. Fission. Vol. I, Vienna, IAEA, 1965, p. 287.
11. R. Gwin et al. Nucl. Sci. Engng, 40, 306 (1970).
12. M. Schomberg et al. Nucl. Data for Reactors. Vol. I, Vienna, IAEA, 1970, p. 315.
13. В. Н. Кононов и др. Препринт Р-3-5112, Дубна, 1970.
14. Ю. В. Рябов и др. Препринт Р-3-5113, Дубна, 1970.

Кокильный метод битумирования природных сорбентов, поглотивших Ir^{192} *

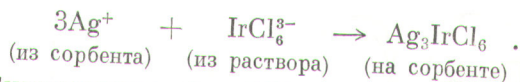
Х. ДАВЕР, Г. ДЕЛЧЕВ, Г. ГРАДЕВ, С. СИМОВ, В. ЖЕЛЯЗКОВ
(Физический институт Болгарской академии наук, София)

УДК 546.93

В работах [1—3] описан кокильный метод битумирования изотопов Cs^{137} , $\text{Ag}^{110\text{м}}$, Tl^{204} , Sr^{90} и Ca^{45} , задержанных на природных сорбентах (цеолите с клиноптилолитом и вермикулите). Настоящая работа посвящена изучению сорбции Ir^{192} некоторыми природными сорбентами и их битумированию путем разработанного нами метода.

В отличие от перечисленных выше элементов ионы иридия в водных растворах склонны к образованию различных комплексов [4,5], что усложняет процессы их сорбции. Имеются данные о сорбции иридия только на синтетических смолах [6], но не на природных сорбентах. По-видимому, сложное соотношение между различными формами иридия затрудняет его сорбцию на определенном катионите или анионите. С другой стороны, в литературе [4, 7] описаны малорастворимые соединения иридия с серебром, ртутью, свинцом, таллием и т. д. типа M_3IrA_6 , где М — серебро, ртуть, свинец или таллий, а IrA_6 — комплексы иридия, включающие

в качестве $\text{A} - \text{Cl}^-$, OH^- , NO_2^- и пр. Сорбенты указанного типа обладают большой сорбционной емкостью в отношении серебра, ртути, свинца и таллия. В связи с этим мы исследовали создание условий сорбции иридия путем реакций осаждения, т. е. приводили соответствующую пробу сорбента в серебряную, ртутную, свинцовую или таллиевую формы, подходящие для реакций осаждения, и пропускали через нее раствор иридия. Например, для серебряной формы сорбента реакция этого типа может быть изображена в следующем виде:



Были изучены сорбции Ir^{192} на природных сорбентах (цеолите и вермикулите) и битумирование сорбентов, задержавших указанный изотоп.

Химический состав сорбентов, использованных в естественном состоянии, приведен в табл. 1; крупность зерен соответствует классу (−3,0; +0,3 мм). Начальный раствор, содержащий иридий в виде хлороиридата аммония $(\text{NH}_4)_3\text{IrCl}_6$, имел удельную активность 2040 имп/мин·мл. Определенный объем

* Исследования проведены в рамках контракта, заключенного с МАГАТЭ в Вене.