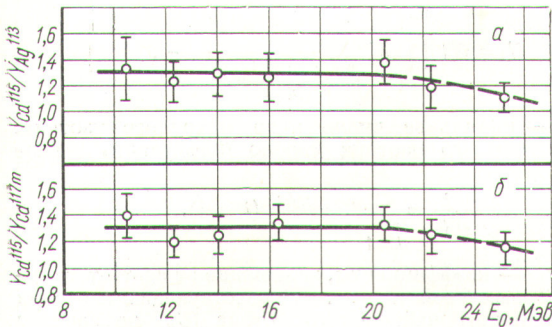


Р и с. 2. Зависимость абсолютных выходов  $\text{Ba}^{140}$  от максимальной энергии тормозного спектра.



Р и с. 3. Отношения выходов осколков в области симметричного деления в зависимости от максимальной энергии тормозного излучения.

симметрии. При нормировке к 200% было получено значение выхода  $\text{Ba}^{140}$  при  $E_0 = 14 \text{ МэВ}$ , равное 5,6%. Сравнение кривой выхода масс с аналогичной кривой для фотоделения  $\text{U}^{238}$  при той же энергии [8] показывает обычно наблюдаемый сдвиг в области легких осколков при совпадении пиков тяжелых осколков.

Отношения выходов осколков Таблица 2 фотоделения  $\text{U}^{235}$  в симметричной области

$E_0, \text{МэВ}$	$Y_{\text{Cd}^{115}}/Y_{\text{Ag}^{113}}$	$Y_{\text{Cd}^{115}}/Y_{\text{Cd}^{117m}}$
10,45	$1,33 \pm 0,24$	$1,40 \pm 0,17$
12,30	$1,23 \pm 0,16$	$1,20 \pm 0,12$
14,00	$1,29 \pm 0,17$	$1,25 \pm 0,14$
16,35	$1,26 \pm 0,19$	$1,34 \pm 0,14$
20,50	$0,39 \pm 0,17$	$1,33 \pm 0,13$
22,30	$1,19 \pm 0,16$	$1,25 \pm 0,13$
25,20	$1,12 \pm 0,11$	$1,16 \pm 0,12$

## Образование $\text{Pu}^{238}$ при облучении $\text{U}^{235}$ и $\text{Np}^{237}$ нейтронами

М. А. БАК, А. С. КРИВОХАТСКИЙ, Ю. Ф. РОМАНОВ

Известно шесть долгоживущих изотопов плутония:  $\text{Pu}^{238-242, 244}$ . При облучении природного урана в реакторе образуется в основном изотоп  $\text{Pu}^{239}$ , тогда как более тяжелые изотопы накапливаются в относительно малых количествах. При этом наиболее легкий из

Среди особенностей полученного распределения масс можно отметить некоторое превышение выхода при  $A = 115$  по сравнению с соседними массами в области симметричного деления. В табл. 2 и на рис. 3, а приведены отношения выходов  $\text{Cd}^{115}$  и  $\text{Ag}^{113}$ , полученные в одной из серий опытов при различных энергиях возбуждения. Несмотря на значительную ошибку, указанное отношение превышает единицу во всем диапазоне энергии. Поведение изотопов с массой 117, «зеркальной» по отношению к  $A = 115$ , остается неясным, так как выход определялся для изомера  $\text{Cd}^{117m}$ . В схеме данной  $\beta$ -цепочки неизвестно соотношение ветвей распада  $\text{Ag}^{117}$ , так что выход  $\text{Cd}^{117m}$  может быть лишь нижним пределом полного выхода массы 117. В табл. 2 и на рис. 3, б показаны отношения выходов  $\text{Cd}^{115}$  и  $\text{Cd}^{117m}$  при различных энергиях. Если принять полный выход массы 117 равным выходу  $A = 115$ , можно оценить долю распада  $\text{Ag}^{117} (1,1 \text{ мин}) \rightarrow \text{Cd}^{117m} (3 \text{ ч})$  величиной порядка 82%. Выход изомера  $\text{Sn}^{125}$  лежит значительно ниже кривой выхода масс, что согласуется с результатами работы [9].

В работе принимали участие сотрудники кафедры ядерной физики ЛТИ им. Ленсовета Ю. А. Соловьев, Г. А. Тутин и С. П. Шамонов, которым авторы выражают искреннюю благодарность.

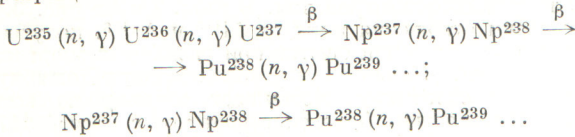
Поступило в Редакцию 29/V 1967 г.

### ЛИТЕРАТУРА

- R. Duffield et al. Proc. of the Second Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy. Geneva, UN, 1958, vol. 15, paper 678.
- М. Я. Кондратько, К. А. Петржак. «Атомная энергия», 20, 514 (1966).
- М. Я. Кондратько, О. П. Никотин, К. А. Петржак. «Приборы и техника эксперимента», № 3, 47 (1964).
- Б. С. Дзержелев, Л. К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. М., Изд-во АН СССР, 1958. Б. С. Дзержелев, Л. К. Пекер, В. О. Сергеев. Схемы распада радиоактивных ядер.  $A \geq 100$ . М., Изд-во АН СССР, 1963.
- S. Katsoff. Nucleonics, 18, No. 11, 201 (1960).
- H. Levy. Phys. Rev., 106, 1265 (1957).
- М. Я. Кондратько, О. П. Никотин, К. А. Петржак. Тезисы докладов Научно-технической конференции ЛТИ им. Ленсовета (секция радиохимии и сорбционной техники). Л., Госхимиздат, 1967, стр. 30.
- К. А. Петржак, Р. В. Седлецкий. «Атомная энергия», 15, 308 (1963).
- Н. И. Борисова, В. В. Курчатов и др. В сб.: «Физика деления атомных ядер». М., Госатомиздат, 1962, стр. 48.

УДК 539.172.4

интерес. Этот изотоп может быть получен в реакторе при облучении  $U^{235}$  и  $Np^{237}$  по следующим цепочкам превращений:



Для нахождения оптимальных условий облучения, обеспечивающих наибольшую величину накопления  $Pu^{238}$ , были проведены расчеты образования  $Pu^{238}$  в различных потоках нейтронов ( $10^{13}$ ,  $10^{14}$ ,  $10^{15}$  и  $10^{16}$  нейтр/см<sup>2</sup> · сек). При расчетах использовались опубликованные данные [1,2] о периодах полураспада и сечениях взаимодействия медленных нейтронов с ядрами, приведенные в табл. 1. Зависимость сечений

Периоды полураспада  $T$ , сечения захвата  $\sigma^c$  и деления  $\sigma^f$  изотопов урана, нептуния и плутония Таблица 1

Изотоп	$T$	$\sigma^c$ , барн	$\sigma^f$ , барн
$U^{235}$	$7,13 \cdot 10^8$ лет	407	580
$U^{236}$	$2,39 \cdot 10^7$ лет	9	0
$U^{237}$	6,75 дня	0	0
$Np^{237}$	$2,14 \cdot 10^6$ лет	470	0,019
$Np^{238}$	2,16 дня	0	1600
$Pu^{238}$	86,4 года	454	18

от реального спектра нейтронов в реакторе во внимание не принималась, т. е. предполагалось, что нейтроны имеют максвелловское распределение при средней скорости 2200 м/сек. Последовательные многократные превращения изотопов в ядерном реакторе описываются известной системой дифференциальных уравнений [3]:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1;$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda'_1 N_1 - \lambda_2 N_2;$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda'_2 N_2 - \lambda_3 N_3;$$

$$\dots$$

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda'_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i.$$

Здесь  $N_1$  — число ядер исходного вещества;  $N_i$  — число ядер  $i$ -го изотопа. Величина  $\lambda'_i$  в зависимости от вида превращения определяется как  $nv\sigma^c_i$  или  $\ln 2/T_i$ , т. е. является постоянной скорости образования изотопа, а величина  $\lambda_i$  характеризует скорость убывания  $i$ -го изотопа по всем возможным каналам реакции. Для рассматриваемых цепочек превращений величину  $\lambda_i$  в общем виде можно представить как

$$\lambda_i = nv(\sigma^c + \sigma^f_i) + \frac{\ln 2}{T_i}. \quad (2)$$

Решение системы уравнений имеет вид:

$$N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t};$$

$$N_2 = N_1^0 \lambda'_1 \left( \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right);$$

$$N_3 = N_1^0 \lambda'_1 \lambda'_2 \left[ \frac{e^{\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right];$$

$$\dots$$

$$N_i = N_1^0 \prod_{k=1}^{i-1} \lambda'_k \sum_{k=1}^i \frac{e^{-\lambda_k t}}{\prod_{n \neq k} (\lambda_n - \lambda_k)}, \quad (3)$$

где  $N_i^0$  — начальное число ядер исходного изотопа. Накопление  $i$ -го изотопа удобно представить в виде

$$\frac{N_i}{N_1^0} = \sum_{k=1}^i C_{ki} e^{-\lambda_k t} \quad (i > 1). \quad (4)$$

Здесь  $C_{ki}$  — коэффициенты, зависящие от соответствующих ядерных свойств всех предшествующих изотопов и от величины нейтронного потока ( $C_{ki}$  не зависит от времени). Коэффициенты  $C_{ki}$  связаны между собой соотношением

$$\sum_{k=1}^i C_{ki} = 0, \quad (5)$$

поскольку в начальный момент времени ( $t = 0$ ) отсутствуют все дочерние изотопы.

Представляет интерес проанализировать выражение (4) в общем случае. Так как при  $t = 0$  и  $t \rightarrow \infty$  это выражение равно нулю, то, очевидно, для каждого нейтронного потока существует такое оптимальное время, при котором накапливается максимальное число ядер исследуемого изотопа. В самом деле, если продифференцировать выражение (4) по времени, то некоторые коэффициенты  $C_{ki}$  благодаря произведению разностей  $(\lambda_n - \lambda_k)$  будут положительными, а другие — отрицательными, т. е. производная выражения (4) при изменении  $t$  в общем случае проходит через нуль. Таким образом, можно записать

$$\left( \frac{N_i}{N_1^0} \right)_{t=t_{\text{опт}}} = \left( \frac{N_i}{N_1^0} \right)_{\text{макс}} = \sum_{k=1}^i C_{ki} e^{-\lambda_k t_{\text{опт}}}, \quad (6)$$

причем  $t_{\text{опт}}$  определяется из уравнения

$$\sum_{k=1}^i C_{ki} \lambda_k e^{-\lambda_k t} = 0. \quad (7)$$

Проанализируем выражение (4) с учетом величины нейтронного потока  $nv$ . Если  $nv = 0$ , то дочерние изотопы отсутствуют. При  $nv \rightarrow \infty$  экспоненциальные множители убывают быстрее, чем величины  $C_{ki}$ . Так как функция  $N_i/N_1^0$  положительна, то должна существовать такая величина нейтронного потока, при которой значение  $N_i/N_1^0$  будет максимально. Следовательно, при  $t = t_{\text{опт}}$  и  $nv = (nv)_{\text{опт}}$

$$\left( \frac{N_i}{N_1^0} \right)_{t=t_{\text{опт}}, nv=(nv)_{\text{опт}}} = \left( \frac{N_i}{N_1^0} \right)_{\text{макс. макс}}, \quad (8)$$

Накопление  $Pu^{238}$  при облучении  $U^{235}$

Таблица 2

$N_{U^{235}}/N^0_{U^{235}}$								$N_{Pu^{238}}/N^0_{U^{235}}$							
1013 *		1014		1015		1016		1013		1014		1015		1016	
t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%
5 лет	33,3	1 год	11,1	1 мес.	16,4	5 дней	4,90	5 лет	0,0061	1 год	0,026	1 мес.	0,0043	5 дней	0,00075
10 лет	11,1	3 года	0,14	3 мес.	0,44	10 дней	0,24	10 лет	0,031	3 года	0,15	3 мес.	0,056	10 дней	0,0034
50 лет	0	5 лет	0	6 мес.	0	20 дней	0	50 лет	0,22	5 лет	0,21	6 мес.	0,10	20 дней	0,0066
70,7 года	0	7,15 года	0	268 дней	0	28,1 дня	0	70,7 года **	0,23	7,15 года **	0,22	268 дней **	0,11	28,1 дня **	0,0073
100 лет	0	10 лет	0	1 год	0	60 дней	0	100 лет	0,22	10 лет	0,21	1 год	0,10	60 дней	0,0058

\* Величина нейтронного потока,  $нейтр/см^2 \cdot сек.$   
 \*\* Оптимальное время облучения в данном потоке, обеспечивающее максимальный выход  $Pu^{238}$ , т. е. величину  $(N_i/N^0_3)_{t=t_{опт}}$ .

Накопление  $Pu^{238}$  при облучении  $Np^{237}$

Таблица 3

$N_{Np^{237}}/N^0_{Np^{237}}$								$N_{Pu^{238}}/N^0_{Np^{237}}$							
1013 *		1014		1015		1016		1013		1014		1015		1016	
t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%
30 дней	99,6	30 дней	95,6	10 дней	86,2	1 день	86,2	30 дней	0,4	30 дней	3,49	10 дней	6,58	1 день	1,22
90 дней	98,7	90 дней	87,5	20 дней	74,2	2 дня	74,2	90 дней	1,25	90 дней	9,69	20 дней	11,4	2 дня	2,65
180 дней	97,3	180 дней	76,3	30 дней	64,1	3 дня	64,1	180 дней	2,51	180 дней	15,6	30 дней	13,7	3 дня	3,50
1 год	94,1	1,08 года	55,7	41 день	54,4	4,25 дня	53,2	1 год	4,86	1,08 года **	19,6	41 день **	14,4	4,25 дня **	3,87
3 года	85,0	3 года	19,8	100 дней	22,6	10 дней	22,6	3 года	12,0	3 года	10,3	100 дней **	8,7	10 дней **	2,17
5 лет	76,3	5 лет	6,7	—	—	—	—	5 лет	16,4	5 лет	3,7	—	—	—	—
10,7 года	56,0	—	—	—	—	—	—	10,7 года **	19,3	—	—	—	—	—	—

$N_{Np^{238}}/N^0_{Np^{237}}$								$(N_{Np^{238}}) + N_{Pu^{238}}/N^0_{Np^{237}}$							
1013		1014		1015		1016		1013		1014		1015		1016	
t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%	t	%
30 дней	4,45	30 дней	4,14	10 дней	2,73	1 день	0,75	30 дней	4,85	30 дней	7,63	10 дней	9,31	1 день	1,97
90 дней	4,41	90 дней	3,79	20 дней	2,35	2 дня	0,64	90 дней	5,66	90 дней	13,48	20 дней	13,75	2 дня	3,29
180 дней	4,35	180 дней	3,30	30 дней	2,03	3 дня	0,55	180 дней	6,86	180 дней	18,90	30 дней	15,73	3 дня	4,05
1 год	4,21	1,08 года	2,41	41 день	1,72	4,25 дня	0,46	1 год	9,05	1,08 года	22,01	41 день	16,12	4,25 дня	4,33
3 года	3,80	3 года	0,86	100 дней	0,72	10 дней	0,19	3 года	15,80	3 года	11,16	100 дней	9,42	10 дней	2,36
5 лет	3,41	5 лет	0,29	—	—	—	—	5 лет	19,81	5 лет	3,99	—	—	—	—
10,7 года	2,50	—	—	—	—	—	—	10,7 года	21,80	—	—	—	—	—	—

\* Величина нейтронного потока,  $нейтр/см^2 \cdot сек.$   
 \*\* Оптимальное время облучения в данном потоке, обеспечивающее максимальный выход  $Pu^{238}$ , т. е. величину  $(N_i/N^0_3)_{t=t_{опт}}$ .

что определяет максимально возможное накопление  $i$ -го изотопа из выбранного исходного количества.

Результаты расчета образования  $Pu^{238}$  из  $U^{235}$  приведены в табл. 2 и на рис. 1. В табл. 2 дается количество остающегося изотопа  $U^{235}$  в зависимости от времени облучения и накапливающегося количества ядер  $Pu^{238}$ , отнесенное к исходному числу ядер  $U^{235}$ . Полученные данные показывают, что максимальное накопление  $Pu^{238}$  составляет всего 0,2% по отношению к исходному количеству  $U^{235}$  при практически полном выгорании последнего. С увеличением потока нейтронов выход  $Pu^{238}$  в области оптимальных времен облучения уменьшается, что связано с выгоранием промежуточного ядра  $Np^{238}$ . Точнее, при увеличении потока отношение вероятностей  $\beta$ -распада  $Np^{238}$ , приводяще-

го к образованию  $Pu^{238}$ , и деления  $Np^{238}$  уменьшается.

При облучении  $U^{235}$  с целью получения относительно чистого  $Pu^{238}$  необходимо использовать уран 100%-ного обогащения по  $U^{235}$ , так как если облучать  $U^{235}$  в смеси с  $Pu^{238}$ , то  $Pu^{239}$  будет накапливаться значительно больше, чем  $Pu^{238}$ . Что касается оптимального времени облучения, то оно практически обратно пропорционально величине потока нейтронов и соответствует интегральному потоку нейтронов  $nvt \approx 2 \cdot 10^{22}$   $нейтр/см^2$ . Следует отметить, что в проведенных расчетах не учитывалось самоэкранирование образца, что может исказить энергетический спектр нейтронов и изменить величину нейтронного потока. По-видимому, лучшее совпадение экспериментальных и расчетных данных будет получено при облучении тонких образцов.

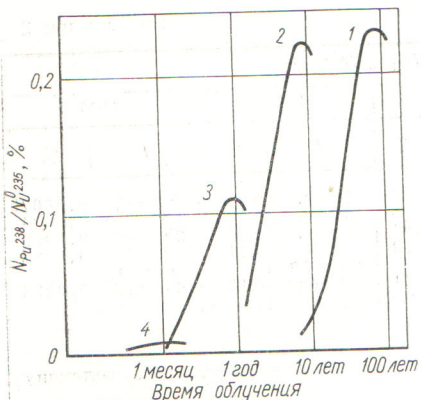


Рис. 1. Накопление  $Pu^{238}$  при различных режимах облучения  $U^{235}$  нейтронными потоками,  $нейтр/см^2 \cdot сек$ :  
1 —  $10^{13}$ ; 2 —  $10^{14}$ ; 3 —  $10^{15}$ ; 4 —  $10^{16}$ .

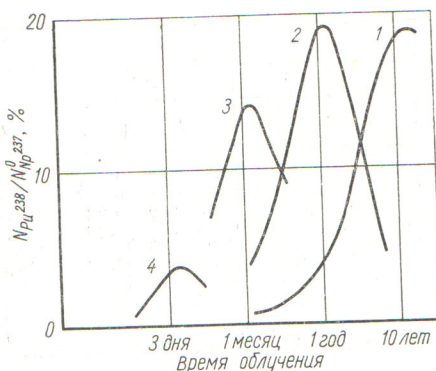


Рис. 2. Накопление  $Pu^{238}$  при различных режимах облучения  $Np^{237}$  нейтронным потоком,  $нейтр/см^2 \cdot сек$ :  
1 —  $10^{13}$ ; 2 —  $10^{14}$ ; 3 —  $10^{15}$ ; 4 —  $10^{16}$ .

$= t_{опт}$ , причем при использовании потоков больше  $10^{14}$   $нейтр/см^2 \cdot сек$  накопление меньше, чем при  $nv = 10^{13} - 10^{14}$   $нейтр/см^2 \cdot сек$ . При этом в отличие от облучения  $U^{235}$  конечные продукты содержат значительное количество исходного изотопа  $Np^{237}$ , который может быть регенерирован. Изотоп  $Np^{238}$  практически находится в равновесии с  $Np^{237}$ .

Поступило в Редакцию 8/VI 1967 г.

Результаты подобного расчета образования  $Pu^{238}$  из  $Np^{237}$  приведены в табл. 3 и на рис. 2. Поскольку длительность облучения в данном случае меньше, чем при облучении  $U^{235}$ , то необходимо учитывать накопление  $Np^{238}$  на момент окончания облучения. Распад  $Np^{238}$  после облучения приводит к образованию дополнительного количества  $Pu^{238}$ . Суммарный выход ядер с массовым числом 238 практически определяется интегральным потоком, который в оптимуме составляет  $\sim 3,4 \times 10^{21}$   $нейтр/см^2$ . Как видно из рис. 2, накопление  $Pu^{238}$  проходит без ярко выраженного максимума при  $t =$

### ЛИТЕРАТУРА

1. В. С. Бентли. Доклад № 809, представленный США на Международную конференцию по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955).
2. С. Темпсон, М. Муга. Доклад № 825, представленный США на Вторую международную конференцию по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958).
3. R. Van Wye, J. Beckerley. Nucleonics, 9, No. 4, 17 (1951).

## Гамма-спектрометрический анализ осколков деления урана ионами неона

С. А. КАРАМЯН, Я. ЛИПТАК, Ю. Ц. ОГАНЕСЯН, Ю. Э. ПЕНИОНЖКЕВИЧ, Я. УРБАНЕЦ

УДК 539.173.17:539.173.8

Измерение распределений осколков деления тяжелых ядер по массам и зарядам дает важную информацию о механизме процесса деления. Особый интерес представляет выяснение зависимости вида массового и зарядового распределений от энергии возбуждения, параметра  $Z^2/A$  и квантовых характеристик делящегося ядра. Для получения этой информации в качестве частиц, вызывающих деление, целесообразно использовать тяжелые ионы, так как в этом случае легко получить делящиеся составные ядра в очень широком диапазоне  $Z^2/A$  и энергии возбуждения. Однако в настоящее время очень мало проведено экспериментов по измерению массовых и зарядовых распределений осколков деления из реакций с тяжелыми ионами.

Массовые распределения, полученные в работах [1—3], при помощи методики регистрации парных энергий осколков измерены до сравнительно небольших значений асимметрии разделения, в то время как основной интерес представляет поведение «хвостов» массового распределения. Массовое распределение осколков в области его резкого спада при большой асимметрии деления можно измерять радиохимическим способом. Однако до настоящего времени из-за трудоемкости этого метода измерено только два мас-

совых и зарядовых распределения осколков [4, 5] в реакциях  $Au^{197}(C^{12}, f)$  и  $U^{238}(Ne^{22}, f)$ .

В работе [6] показано, что, используя для  $\gamma$ -спектро스코пии осколков  $Ge(Li)$ -детектор с высоким разрешением, можно выделять в  $\gamma$ -спектре всех осколков  $\gamma$ -линии, принадлежащие тому или иному изотопу, не прибегая к химическому разделению продуктов деления. Это обстоятельство позволяет надеяться на возможность измерения массового и зарядового распределения осколков деления путем измерения общего  $\gamma$ -спектра всех продуктов реакции деления. Осуществление такой возможности позволило бы упростить процедуру измерения массовых распределений по сравнению с радиохимической методикой без существенного ухудшения точности и чувствительности к изотопам, имеющим малый выход в реакции деления.

Для проверки высказанных соображений была предпринята попытка измерить  $\gamma$ -спектрометрическим способом массовое распределение осколков деления в реакции  $U^{238}(Ne^{22}, f)$  при той же энергии частиц, что и в работе [5]. При использовании частиц одинаковой энергии имелась возможность сравнить полученные данные с ранее измеренными.