

## Эффективные сечения поглощения нейтронов ядрами калифорния, эйнштейния и фермия в центральном канале реактора СМ-2

АНУФРИЕВ В. А., ГАВРИЛОВ В. Д., ЗАМЯТНИН Ю. С., ИВАНЕНКО В. В.

УДК 539.125.5.173

Использование высокопоточных реакторов для получения трансурановых элементов поставило на реальную основу накопление значительных количеств тяжелых изотопов актиноидных элементов. Возможности оптимизации процессов накопления во многом определяются точностью знания эффективных сечений взаимодействия нейтронов с ядрами этих элементов. В настоящее время данные об эффективных сечениях захвата и деления для изотопов калифорния, эйнштейния и фермия носят оценочный характер и существенно отличаются друг от друга [1—3].

Для получения новой информации в центральном канале реактора СМ-2 были облучены пять капсул, содержащих 50 мишеней с индикаторными количествами  $^{252}\text{Cf}$ . Схема основных ядерных превращений при облучении изотопов калифорния показана на рис. 1.

Стартовый изотопный состав калифорния определен масс-спектрометрическим методом, анализ облученных мишеней проводили на  $\alpha$ -спектрометре и 2л-проточном счетчике.

Выгорание  $^{252}\text{Cf}$  определяли по изменению  $\alpha$ -активности и состава  $\alpha$ -излучения до и после облучения. Принимались во внимание дополнительные поправки, обусловленные присутствием в мишенях легких изотопов калифорния и влиянием цепочек, приводящих к образованию  $^{252}\text{Cf}$ :  $a - ^{252}\text{Cf} \xrightarrow{n\gamma} \dots \rightarrow ^{253}\text{Es} \xrightarrow{\alpha} ^{249}\text{Bk} \xrightarrow{n\gamma} \dots \rightarrow$

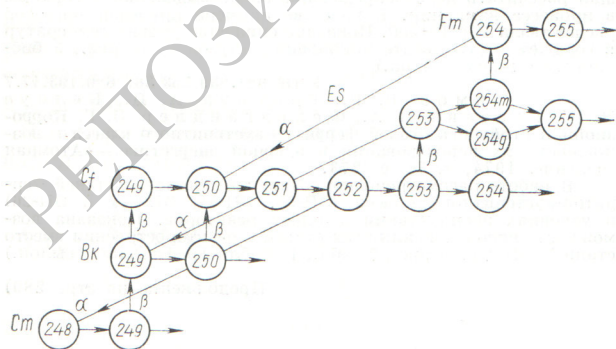


Рис. 1. Схема основных ядерных превращений при облучении изотопов калифорния.

$\rightarrow ^{252}\text{Cf} \rightarrow$ ;  $b - ^{252}\text{Cf} \xrightarrow{n\gamma} \dots \rightarrow ^{254}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha} ^{250}\text{Cf} \rightarrow \dots \rightarrow ^{252}\text{Cf} \rightarrow$ ;  $e - ^{252}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha} \dots \rightarrow ^{248}\text{Cm} \xrightarrow{n\gamma} \dots \rightarrow ^{252}\text{Cf} \rightarrow$ , а также вкладом низкоэнергетического распределения осколков деления в  $\alpha$ -спектр.

В первых двух капсулах использовали калифорний, содержащий 21% легких изотопов. При облучении мишеней потоком  $\sim 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> из этих примесей образуется  $\sim 6\%$   $^{252}\text{Cf}$ , что в значительной мере компенсирует убыль ядер  $^{252}\text{Cf}$  за счет выгорания и вносит погрешность в определение величин сечений. В дальнейшем для получения  $^{252}\text{Cf}$ , практически свободного от легких изотопов, использовали предварительное облучение калифорния в потоке  $\geq 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup>, обеспечивающем выгорание  $^{249}\text{Cf}$ ,  $^{250}\text{Cf}$  и  $^{251}\text{Cf}$  более чем на порядок, с последующей выдержкой мишеней в течение года.

Изменение количества  $^{252}\text{Cf}$  за счет цепочек  $a$  и  $b$  при интегральных потоках  $\sim 1,5 \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> составляет соответственно  $\sim 0,2$  и  $0,02\%$ . Влияние цепочки  $e$  зависит как от интегрального потока, так и от количества  $^{248}\text{Cm}$ , накопившегося в калифорнии до начала эксперимента. При содержании  $^{248}\text{Cm} \approx 30\%$  относительно  $^{252}\text{Cf}$  расчет цепочки  $e$  дает величину дополнительного образования  $^{252}\text{Cf} \approx 0,3\%$ . Следует отметить, что при интегральных потоках

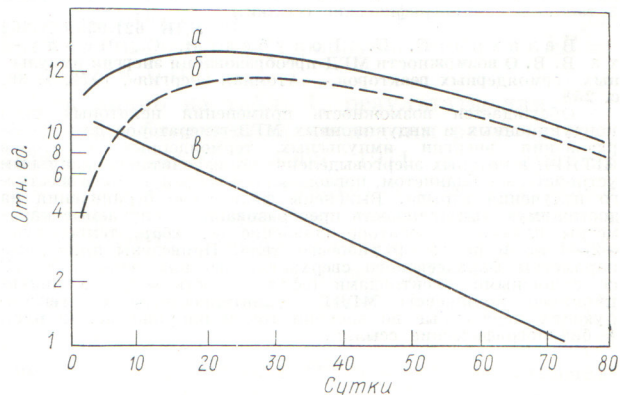


Рис. 2. Соотношение активностей  $^{253}\text{Es}$  и  $^{252}\text{Cf}$ :  $a$  — суммарная (экспериментальная) кривая;  $b$  — накопление  $^{253}\text{Es}$  из  $^{252}\text{Cf}$ ;  $e$  — распад  $^{253}\text{Es}$ .

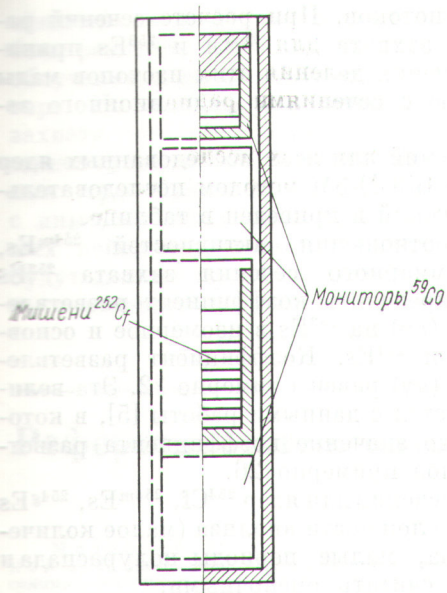


Рис. 3. Ампула.

$\sim 10^{22} - 10^{23}$  нейтр/см<sup>2</sup> вклады цепочек *a* и *b* могут достигнуть  $\sim 10 - 15\%$  содержания <sup>252</sup>Cf.

Содержание <sup>253</sup>Cf, являющегося β-излучателем, определяли по накоплению его дочернего продукта <sup>253</sup>Es. Измерения α-активности <sup>253</sup>Es проводили на α-спектрометре в течение 40 суток, что позволило получить зависимость изменения содержания <sup>253</sup>Es относительно <sup>252</sup>Cf (рис. 2). Кривая показывает эти изменения во времени и определяет количество <sup>253</sup>Cf и <sup>253</sup>Es в мишенях на конец облучения. Аналитическое разложение этой кривой на две составляющие позволило определить содержание <sup>253</sup>Cf и <sup>253</sup>Es в мишенях с индикаторным количеством излучателей с точностью  $\sim 5 - 7\%$ . Дополнительный анализ калифорниевой и эйнштейниевой фракций, полученных в контрольном радиохимическом разделении, подтвердил результаты аналитического разложения в пределах 1%.

Содержание изотопов <sup>254m</sup>Es и <sup>254</sup>Fm определяли также разложением кривой изменения количества <sup>254</sup>Fm во времени на две составляющие.

Поскольку содержание <sup>254g</sup>Es в мишенях очень мало, его определяли по интенсивности α-линии в эйнштейниевой фракции. Радиохимическое разделение калифорниевой фракции позволило устранить влияние низкоэнергетичной части спектра осколков деления <sup>252</sup>Cf на α-спектр изотопов эйнштейния. Последующая выдержка Es-фракции в течение четырех месяцев уменьшила содержание <sup>253</sup>Es до такого уровня, что

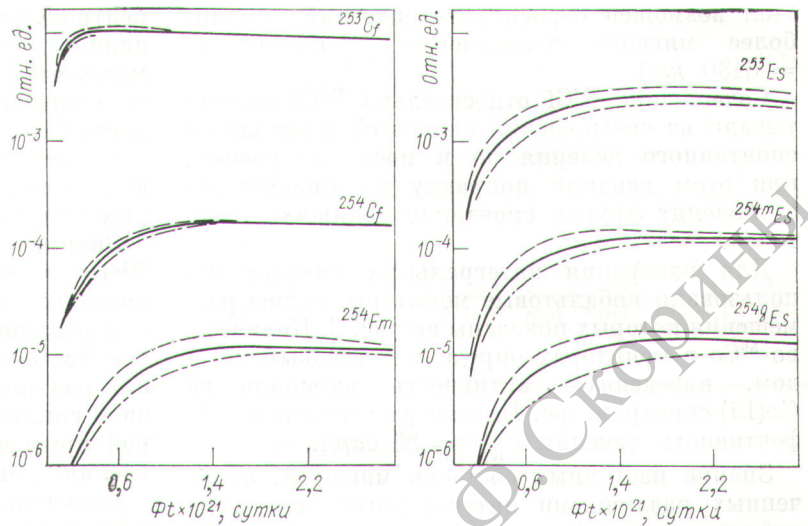


Рис. 4. Накопление изотопов при облучении <sup>252</sup>Cf:

$\Phi = 1 \cdot 10^{15}$  (—);  $0,65 \cdot 10^{15}$  (---) и  $1,5 \cdot 10^{15}$  (-·-·-) нейтр/см<sup>2</sup> · сек.

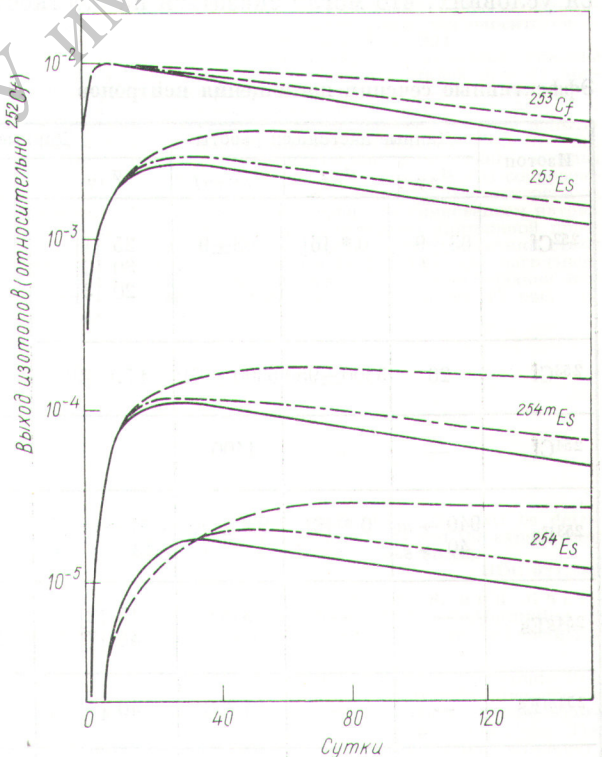


Рис. 5. Накопление изотопов при облучении <sup>252</sup>Cf потоком  $1,1 \cdot 10^{15}$  нейтр/см<sup>2</sup> · сек в различных режимах:

-·-·- 5 суток выдержки; --- реальный режим; — непрерывное облучение.

стал возможен  $\alpha$ -спектрометрический анализ более мягкого  $\alpha$ -излучения  $^{254g}\text{Es}$  ( $E_\alpha = 6430$  кэВ).

Содержание  $^{254}\text{Cf}$  относительно  $^{252}\text{Cf}$  рассчитывали из соотношения скоростей  $\alpha$ -распада и спонтанного деления до и после облучения, при этом вводили поправку на присутствие в мишенях других спонтанно делящихся изотопов.

Для измерения интегральных потоков использовали кобальтовые мониторы, схемы размещения которых показаны на рис. 3. Количество  $^{59}\text{Co}$  в мониторах определяли весовым методом, наведенную активность измеряли на  $\text{Ge(Li)}$ -спектрометре. Потоки рассчитаны из эффективного сечения  $\sigma_{n\gamma}^{59\text{Co}} = 35$  барн.

Знание изотопных составов мишеней, облученных различными интегральными потоками нейтронов, позволяет рассчитывать  $\sigma_{n\gamma}$  и  $\sigma_{nf}$  для исследуемых изотопов. Однако нахождение сечений путем решений системы двух уравнений вряд ли имеет смысл в нашем случае, так как капсулы облучались в несколько отличающихся условиях, что могло сказаться на жесткости

нейтронных потоков. При расчете сечений радиационного захвата для  $^{252}\text{Cf}$  и  $^{253}\text{Es}$  принимали, что сечения деления этих изотопов малы по сравнению с сечениями радиационного захвата [4].

Расчет сечений для всех исследованных ядер выполнен на БЭСМ-3М методом последовательных приближений и приведен в таблице.

Знание соотношения активностей  $^{254m}\text{Es}$ ,  $^{254g}\text{Es}$  и суммарного сечения захвата  $^{253}\text{Es}$  позволило определить коэффициент разветвления реакции ( $n\gamma$ ) на  $^{253}\text{Es}$  в изомерное и основное состояния  $^{254}\text{Es}$ . Коэффициент разветвления реакции ( $n\gamma$ ) равен примерно 22. Эта величина согласуется с данными работы [5], в которой приведено значение коэффициента разветвления, равное примерно 26.

Величины сечений для ядер  $^{254}\text{Cf}$ ,  $^{254m}\text{Es}$ ,  $^{254g}\text{Es}$  и  $^{254}\text{Fm}$  из-за сложности анализа (малое количество вещества, малые периоды полураспада и др.) следует считать оценочными.

Эффективные сечения захвата и деления (см. таблицу) существенно превышают данные для других реакторов. Очевидно, одной из причин является жесткость нейтронного спектра реактора СМ-2.

На рис. 4 приведены экспериментальные данные и расчетные кривые накопления изотопов калифорния, эйнштейния и фермия из  $^{252}\text{Cf}$ .

Величины сечений захвата и деления использованы для поиска оптимального режима облучения при получении изотопов эйнштейния. На рис. 5 показаны кривые накопления изотопов эйнштейния при непрерывном режиме облучения и чередовании циклов облучения и выдержки. Выход изотопов эйнштейния в результате чередования циклов облучения и выдержки можно увеличить почти вдвое.

Использование эффективных сечений взаимодействия нейтронов значительно упрощает все расчеты по накоплению трансурановых элементов, по выбору оптимальных условий облучения и дает возможность оценить выходы изотопов калифорния,

#### Эффективные сечения поглощения нейтронов

Изотоп	Данные настоящей работы			Данные других авторов		
	$\sigma_{n\gamma}$	$\sigma_{nf}$	$\sigma_{n\gamma+nf}$	$\sigma_{n\gamma}$	$\sigma_{nf}$	$\sigma_{n\gamma+nf}$
$^{252}\text{Cf}$	$63 \pm 9$	$0^* [6]$	$63 \pm 9$	$25 [1]$ $30 [2]$ $20 [3]$	$0 [7]$ $0 [8]$	$40-50 [4]$
$^{253}\text{Cf}$	26	$5300 \pm 950$	$5300 \pm 950$	17,6 [9]		2550 [9]
$^{254}\text{Cf}$	—	—	1400			
$^{253}\text{Es}$	$940 \rightarrow m$ $40 \rightarrow g$	$0^* [6]$	$980 \pm 90$	$338 \rightarrow m [5]$ $13 \rightarrow g [5]$		
$^{254g}\text{Es}$	—	—	9 000	$15 [2]$ $40 [7]$	$3060 [10]$ $2000 [11]$	
$^{254m}\text{Es}$	—	—	14 300	$40 [7]$		
$^{254}\text{Fm}$	—	—	1 400	—		

\* Расчетные данные.

эйнштейния и фермия в реальном режиме работы реактора СМ-2, когда чередуются циклы облучения и профилактические остановки реактора. Но зависимость сечений радиационного захвата от жесткости нейтронного спектра может существенно изменить накопление тяжелых трансурановых элементов в реакторах с иным соотношением тепловых и резонансных нейтронов. Поэтому более однозначными будут данные по измерению тепловых сечений  $\sigma_0$  и резонансных интегралов  $I_{рез}$ .

Поступила в Редакцию 30/VII 1973 г.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Magnusson L. «Phys. Rev.», 1970, v. 96, p. 1576.
2. Harwey B. «Phys. Rev.», 1954, v. 95, p. 581.
3. Halperin J. «Nucl. Sci. and Engng», 1969, v. 37, p. 228.
4. Burch W., Bigelow J., King L. ORNL-4376, 1969.
5. Fields P. «Nucl. Phys.», 1967, v. A96, p. 440.
6. Prince A. Proc. Symp. Sponsored by the New York metropoliten, Sect. of ANS, Oct. 22, 1968.
7. Huges D. BNL-325, 1958.
8. Vandenbosch S. ANL-6252, 1961.
9. Bemis C. «Nucl. Sci. and Engng», 1970, v. 41, p. 146.
10. Diamond H. «J. Inorg. and Nucl. Chem.», 1968, v. 30, p. 2553.

## Рефераты статей, опубликованных в настоящем выпуске

Медведев Ю. А., Метелкин Е. В., Труханов Г. Я. Замедление нейтронов при наличии неупругого рассеяния.—«Атомная энергия», 1973, т. 36, с. 277.

Аналитически исследовано замедление нейтронов с учетом неупругого рассеяния в тяжелой (массовое число ядра замедлителя  $M \gg 1$ ) бесконечной однородной среде от стационарного, равномерно распределенного по пространству источника. Полученные результаты приемлемы для большинства веществ, используемых в реакторостроении. (2 библиографические ссылки.)

УДК 539.185

Александрова З. А., Большов В. И., Кузнецов В. Ф., Смиренин Г. Н., Тараско М. З. Спектры мгновенных нейтронов спонтанного деления  $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  и  $^{240}\text{Pu}$ .—«Атомная энергия», 1974, т. 36, с. 282.

Измерены спектры мгновенных нейтронов спонтанного деления  $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  и  $^{240}\text{Pu}$  в интервале энергий нейтронов 1—14 Мэв методом однокристалльного сцинтилляционного спектрометра на основе стильбена с дискриминацией  $\gamma$ -квантов по времени высвечивания. Результаты описываются распределением типа Максвелла. Для трех изотопов определены параметры этого распределения, которые сравниваются с опубликованными данными. (1 рис., 2 табл., 18 библиографических ссылок.)

УДК 539.125.5.173

Ануфриев В. А., Гаврилов В. Д., Замятин Ю. С., Иваненко В. В. Эффективные сечения поглощения нейтронов ядрами калифорния, эйнштейния и фермия в центральном канале реактора СМ-2.—«Атомная энергия», 1974, т. 36, с. 286.

В центральном канале реактора СМ-2 измерены эффективные сечения поглощения нейтронов для ядер  $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{253}\text{Cf}$ ,  $^{253}\text{Es}$ . Описана методика эксперимента и дан анализ факторов, влияющих на точность результатов. Из полученных сечений сделаны оценки накоплений изотопов калифорния и эйнштейния в центральном канале реактора СМ-2. Отмечена большая величина соотношения сечений деления и радиационного захвата для  $^{253}\text{Cf}$ . (5 рис., 1 табл., 11 библиографических ссылок.)

УДК 621.039.548.535

Иолтуховский А. Г. Некоторые вопросы взаимодействия оболочечных сталей с натриевым теплоносителем.—«Атомная энергия», 1974, т. 36, вып. 3, с. 291.

В обзорной статье рассматриваются различные стороны поведения нержавеющей хромоникелевых сталей при их контакте с натрием в интервале температур 500—800°С; селективный унос из состава стали ее компонентов (Ni, Cr, Fe, Mn, C, N и др.), влияние на протекание этого процесса условий испытаний, взаимодействие сталей с примесями натрия (C, N, O) и пр. Кроме того, показано, что изменение химического состава аустенитной стали в связи с уносом ее компонентов сопровождается появлением в структуре стали  $\alpha$ -феррита, ускоренным выпадением  $\sigma$ -фазы по границам зерен, проникновением натрия вглубь образца, а также резким снижением длительной прочности в случае значительного коррозионного поражения стали или уноса из ее состава углерода и азота. В натрии, загрязненном углеродом или азотом, происходит науглероживание или азотирование сталей с потерей ими пластичности. (7 рис., 56 библиографических ссылок.)

## Abstracts of Articles in This Issue

UDC 621.039.526

Bobolovich V. N., Koryakin Yu. I., Levental G. B., Chernavski S. Ya., Baskakova N. A. and Chernysheva T. P. The Role of Fast Reactors in the Structure of the Developing Nuclear Power System.—Atomnaya energiya, 1974, v. 36, p. 251.

This report is devoted to the investigation of certain aspects of fast reactor introduction in the developing nuclear power system. The investigation is conducted by means of mathematical modeling methods for determining its optimal structure from an economic viewpoint. There are considered hypotheses of nuclear power growth rates, various strategies with respect to reactor types and schedules for mass introduction of fast reactors etc.

It is shown that such reactors should occupy a significant place in an optimal nuclear power structure before the year 2000 from the standpoint of effectively improving the economic competitiveness of nuclear power and solving its fuel problem. The most expedient nuclear power structure consists of three components—fast breeder reactors, thermal burn-up reactors and plutonium-producing reactors.

Delaying their introduction until after 1990 will be detrimental from the standpoint of economic costs and the expenditure of natural uranium. (6 figures, 3 tables, 2 references).

UDC 621.039

Velikhov E. P., Golubev V. S. and Chernukha V. V. On the Possibility of MHD Transformation of Energy from Pulsed Thermonuclear Reactors.—Atomnaya energiya, 1974, v. 36, p. 258.

There is discussed the possibility of using certain conduction and induction MHD-generator schemes for transforming energy from pulsed thermonuclear reactors in which energy release occurs in a blanket that absorbs the major part of hard radiation. The physical limitations on achievable transformation efficiency, obtainable plasma parameters in the reactor (pressure  $\sim 1$  kbar, temperature  $\sim 2-3$  eV), and choice of working body are elucidated. Approximate parameters of a Faraday ultrasonic plasma MHDG with solid electrodes (efficiency  $\sim 0.4$ ) and a piston induction MHDG (efficiency 0.6), generating current and voltage alternating in time, are presented. (2 figures, 4 references).

(Continued on page 304)