

сивных полос в спектре при 1190 см^{-1} , а также полос 1230 и 1290 см^{-1} указывает, по-видимому, на то, что сульфатная группа в комплексе имеет хелатную структуру.

Вся совокупность полученных экспериментальных данных подтверждает, что в этих условиях экстрагируется полимерный комплекс, в котором еще больше, чем в комплексе II, молекул сульфата уранила замещено молекулами серной кислоты.

Высокая комплексообразующая способность фосфиноксидов иллюстрируется образованием нейтральных комплексов с уранилсульфатом в области низких концентраций серной кислоты (до 1 н.). При более высоких концентрациях серной кислоты фосфиноксиды, подобно трибутилфосфату, экстрагируют комплексные урановые кислоты.

Итак, сопоставление изученных свойств фосфиноксидов подтверждает прежде всего значительное влияние природы замещающего радикала (ароматический, алкильный или алициклический), а затем его строения (бензил $>$ фенил; октил $>$ цетил; циклогексилметил $<$ циклогексил).

Наряду с этим показано, что увеличение числа фосфорильных групп в молекуле фосфиноксида способствует улучшению экстракции урана; длина же алкиленового мостика между атомами фосфора является одним из основных факторов, определяющих свойства полифосфиноксидов.

Поступила в Редакцию 14/V 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Pickard, Kenyon. J. Chem. Soc., 89, 264 (1906).
2. Challenger, Wilkinson. J. Chem. Soc., 125, 2675 (1924).
3. В. М. Плещ. Органические соединения фосфора. М., Оборонгиз, 1940.
4. О. Брайн. Токсические эфиры кислот фосфора. М., «Мир», 1964.
5. J. Whit. ORNL-2161. Цитируется по Chem. Abstr., 51, 4205 (1957).
6. W. Boldwin, C. Higgins. Patent USA 2864, 668, 16/12 (1958).
7. Б. Н. Ласкорин, Д. И. Скороваров, В. В. Шаталов. Экстракция. Вып. 1. М., Госатомиздат, 1962, стр. 163.
8. C. Blake, K. Brown, C. Coleman. ORNL-1964, Aug. 26, 1955.
9. В. Г. Тимошеви др. Экстракция. Вып. 1. М., Госатомиздат, 1962, стр. 88.
10. B. Martin, D. Ockenden, J. Foreman. J. Inorg. Nucl. Chem., 21, 1/2, 96 (1962).
11. T. Ishimori et al. J. Atomic Energy Soc. Japan, 4, No. 2, 117 (1962).
12. J. Mroschek, C. Banks. J. Inorg. Nucl. Chem., 27, No. 3, 589, 629 (1965).
13. Е. С. Левченко, Ю. В. Пивено, А. В. Кирсанов. «Ж. орган. хим.», XX, 6, 1976 (1966).
14. J. Bell, J. Neisler. J. Amer. Chem. Soc., 76, 20, 5785 (1954).
15. U. Berger. J. Phys. Soc., 62, 5, 590 (1958).
16. М. И. Кабачник. Химия и применение фосфорорганических соединений. М., АН СССР, 1962.
17. А. М. Розен, Н. А. Константинова. «Докл. АН СССР», 166, № 1, 132 (1966).
18. Б. Н. Ласкорини др. Там же, 174, № 6, 1334 (1967).

Физические исследования мишени электроядерного генератора нейтронных потоков

В. И. БОЛЬШОВ, А. А. ДУБИНИН, В. М. ДМИТРИЕВ, С. П. КАПЧИГАШЕВ,
В. А. КОНЬШИН, Е. С. МАТУСЕВИЧ, В. П. ПОЛИВАНСКИЙ, В. Я. ПУПКО,
В. И. РЕГУШЕВСКИЙ, Ю. Я. СТАВИССКИЙ, Ю. С. ЮРЬЕВ

УДК 621.313.12:539.172.12

Потоки тепловых нейтронов порядка 10^{17} — 10^{18} нейтр/см²·сек открывают новые возможности исследований во многих областях науки и техники.

До сих пор увеличение потока нейтронов достигалось в основном за счет роста удельной мощности ядерных реакторов, что приводило к резкому уменьшению срока работы реактора без перегрузки топливных элементов и росту его стоимости. Поэтому большой интерес представляет изучение возможности повышения потоков тепловых нейтронов при использовании процесса множественного рождения нейтронов

при взаимодействии нуклонов с энергией в сотни мегаэлектронвольт с тяжелыми ядрами. Наиболее полно эти вопросы рассмотрены в работах [1—3]. В настоящей статье изложены результаты экспериментов и расчетов по нейтроннофизическим характеристикам мишени электроядерной установки для генерации нейтронных потоков.

Измерение выхода нейтронов и распределения числа реакций в тяжелой мишени и замедлителе. Измерения были проведены на синхротронном ОИЯИ при энергии протонов 660 Мэв . Пучок протонов направлялся или

в блок свинца, или в бак высотой 150 см с водой, внутри которого находилась мишень из свинца. Число протонов, попавших в мишень, определялось по абсолютным измерениям чисел реакций $\text{Bi} (n, f)$; $\text{U}^{238} (n, f)$ и $\text{Al}^{27} (p, 3pn)$ Na^{24} . Потoki медленных и резонансных нейтронов определили с помощью реакций $\text{In}^{115} (n, \gamma)$ In^{116} , $\text{Au}^{197} (n, \gamma)$ Au^{198} , $\text{U}^{238} (n, f)$. О пространственном распределении быстрых нейтронов сведения были получены из распределения чисел реакций $\text{Al}^{27} (n, \alpha)$ Na^{24} и $\text{Bi} (n, f)$.

Полное число нейтронов, вышедших в воду из свинцовой мишени диаметром 11,2 см и длиной 30 см, было определено методом пространственного интегрирования и оказалось равным 11 ± 2 нейтр/протон.

На рис. 1 приведены числа реакций N либо вдоль образующей свинцовой мишени при $r = 6$ см, либо по радиусу при $z = 12,5$ м, т. е. в плоскости с максимальным значением теплового потока. Определенное по числам реакций максимальное значение потока подкадмиевых нейтронов для тока протонов 1 протон/сек оказалось равным $1,8 \cdot 10^{-2}$ нейтр/см²·сек.

Было измерено такое распределение чисел делений M уранового и висмутового индикаторов в плоскости, перпендикулярной пучку протонов, для свинцовой мишени размерами $41 \times 45 \times 41$ см³. Распределение числа делений уранового индикатора изображено на рис. 2. Анализ распределения чисел делений по объему мишени показал, что измеренная для такого блока форма распределения числа делений висмута практически сохранится и для ограниченной по радиусу ($\sim 6-7$ см) мишени.

Расчет пространственно-энергетического распределения потока нейтронов в замедлителе. Рассчитывалось поведение потока нейтронов в гидриде циркония ($\text{ZrH}_{1,8}$), дейтериде циркония ($\text{ZrD}_{1,8}$) и бериллии для двух типов источников нейтронов: осевого (рис. 3, а) и кольцевого (рис. 3, б). При переходе от осевого источника к кольцевому происходит существенное уменьшение удельного тепловыделения в мишени при той же мощности протонного пучка, что дает возможность повысить его общую мощность.

В работе использовали метод суперпозиции точечных источников. Результирующие поля нейтронов в мишени получили интегрированием результатов решения одномерного уравнения переноса нейтронов для точечных изотропных источников, распределение которых задавалось экспериментальной функцией, изображенной на рис. 2. Пространственно-энергетическое рас-

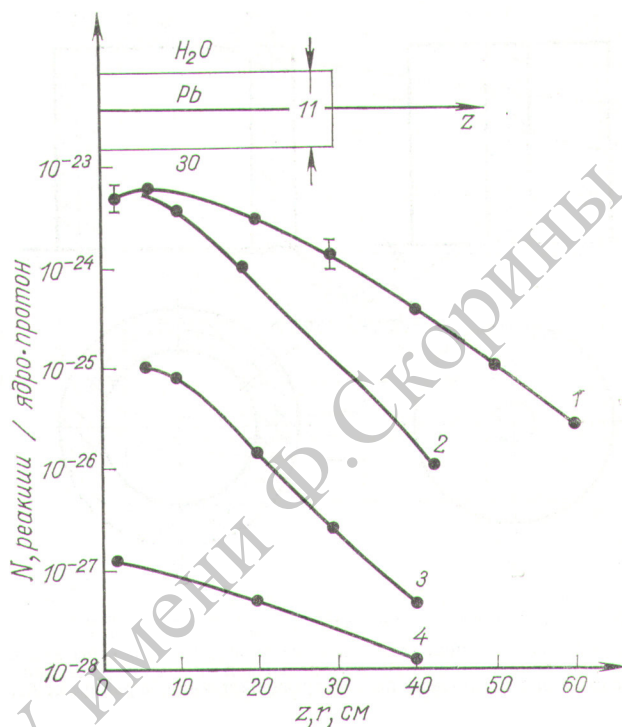


Рис. 1. Распределение чисел реакций по объему замедлителя: 1 — $\text{In} (n, \gamma)$, $r = 6$ см; 2 — $\text{In} (n, \gamma)$, $r = 12,5$ см; 3 — $\text{U} (n, f)$, $z = 12,5$ см; 4 — $\text{Bi} (n, f)$, $r = 6$ см.

пределение нейтронов от точечного источника определяли по программе, описанной в работе [4]. При получении констант для расчета была использована систематика по микросечениям, проведенная в работах [5—7].

На рис. 4 сравниваются по абсолютному значению расчетные (в $\text{ZrH}_{1,8}$) и эксперименталь-

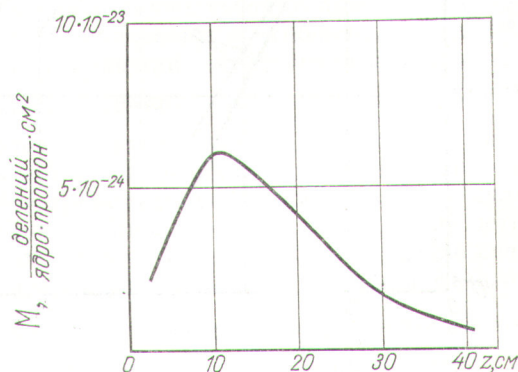


Рис. 2. Число делений уранового индикатора, размещенного в свинцовом блоке, в плоскости, перпендикулярной оси z.

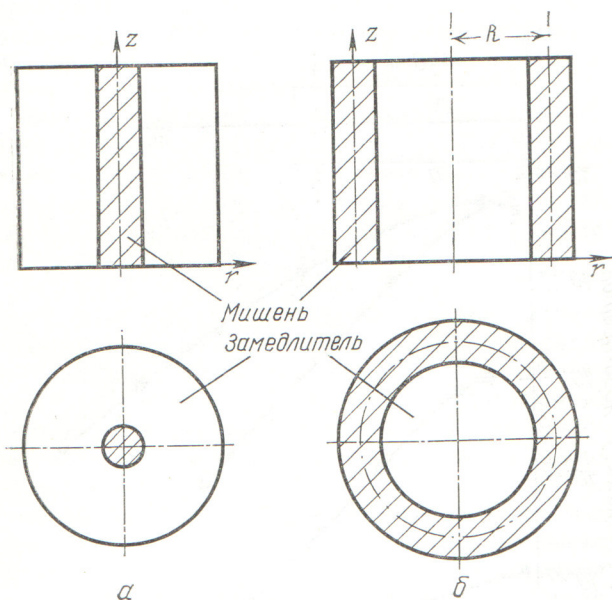


Рис. 3. Расчетная геометрия:

а — осевой источник (источники нейтронов расположены вдоль осевой линии цилиндра); б — кольцевой источник (источники нейтронов расположены по образующей цилиндра с радиусом R).

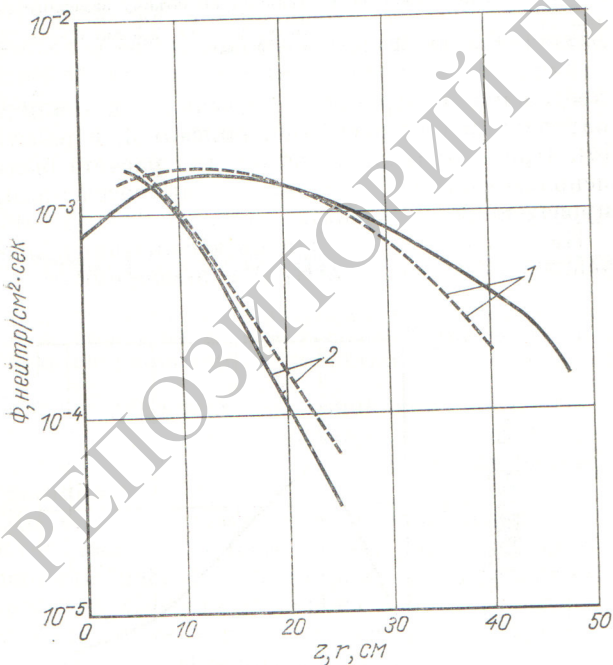


Рис. 4. Сравнение расчетного (сплошная линия) потока подкадмиевых нейтронов в ZrH_{1,8} и экспериментального (пунктир) в воде:

1 — $r = 6$ см; 2 — $z = 12,5$ см.

ные (в воде) распределения потока подкадмиевых нейтронов. Расчет нормирован на экспериментальную величину выхода — 11 нейтр/протон.

На рис. 5, 6 приведены выборочные кривые, передающие наиболее характерные особенности поля нейтронов в замедлителе. Все кривые нормированы на 1 нейтр/сек, возникающий на оси цилиндра (см. рис. 3, а), либо по кольцу (штрихпунктирная линия на рис. 3, б). Распределение источников вдоль оси пучка в обоих случаях считалось таким же, как и измеренное распределение чисел деления в свинцовом блоке (см. рис. 2).

В расчетах предполагалось, что в осевой и кольцевой геометриях цилиндры имеют неограниченную высоту, а спектр нейтронов источника описывается распределением $\Phi(E) = \text{const} \sqrt{E} e^{-E/T}$ с $T = 2,5$ Мэв [8]. Материал тяжелой мишени — свинец, диаметр цилиндра или толщина стенок — по 10 см.

Из рис. 5 видно, что распределение потока нейтронов вдоль оси z следует за распределением источников нейтронов с максимумом при $z \approx 12$ см. Это соответствует приблизительно 0,8 длины свободного пробега в свинце первичного протона до неупругого взаимодействия. Естественно, что в замедлителе с меньшим сечением захвата градиент потока по z меньше.

В системе с кольцевым источником достигается заметное выравнивание потока нейтронов по радиусу (внутри кольца), особенно существен этот эффект для бериллия.

Спектры нейтронов близки к фермиевским. Следует заметить, что в среде будут присутствовать также нейтроны с большими энергиями, возникающие в каскадной стадии взаимодействия первичного протона с ядрами свинца и попавшие в замедлитель после малого числа рассеяний или совсем без рассеяния. Оценки показывают, что число таких нейтронов незначительно даже вблизи поверхности свинцовой мишени и пренебрежимо мало при больших r .

Сравнение потоков нейтронов в замедлителях из ZrH_{1,8}, бериллия и ZrD_{1,8} показывает, что наиболее подходящим материалом с точки зрения ядернофизических свойств является бериллий. Максимальный поток нейтронов в нем при использовании ускорителя протонов с током 100 ма и энергией 1000 Мэв составляет $4,5 \times 10^{17}$ нейтр/см²·сек, в то время как в ZrD_{1,8} и ZrH_{1,8} $\sim 8 \cdot 10^{16}$ нейтр/см²·сек. Кроме того, объем зоны с высоким потоком в бериллиевом замедлителе гораздо больше, чем в гидридноциркониевых замедлителях.

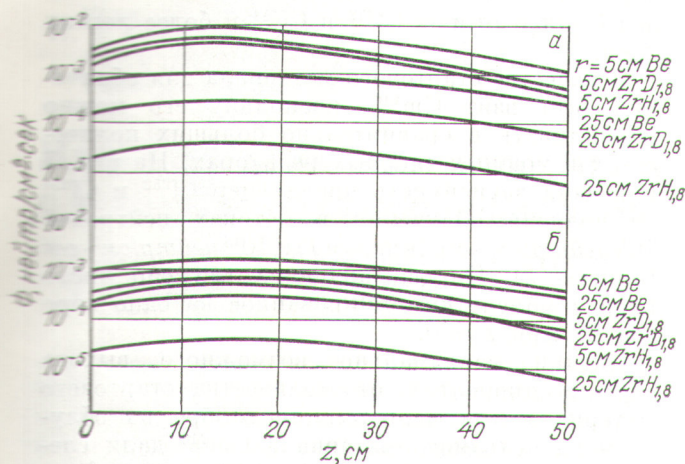


Рис. 5. Поток нейтронов всех энергий в функции z для осевого (а) и кольцевого (б) источников ($R = 25$ см). Нормирован на один нейтрон, возникающий в тяжелой мишени.

Расчет накопления трансурановых элементов в системе с большим потоком нейтронов. Одно из возможных применений электроядерной установки с потоками нейтронов $> 10^{17}$ нейтр/см² × сек — получение далеких трансурановых элементов при последовательном захвате нейтронов изотопами урана или трансурановых элементов, образующихся в больших количествах в ядерных реакторах. Накопление далекого трансуранового элемента осуществляется в цепочках взаимосвязанных (n, γ) -реакций и β -распадов и описывается системой неоднородных линейных дифференциальных уравнений.

Основная трудность в определении выхода трансурановых элементов состоит в выборе констант для расчета. Отсутствие нужной информации о сечениях взаимодействия и периодах полураспада заставило использовать при расчетах ряд допущений. Так, было принято, что все нейтроны — тепловые. Данные по сечениям и периодам полураспада взяты из работ [9–12].

Были произведены оценки периодов полураспада и тепловых сечений изотопов Pu^{246} , Am^{245} , Am^{246} , Am^{247} , Cm^{251} , Cm^{252} , Bk^{251} , Bk^{252} . При оценке периодов β -распада использовали результаты работы [13]. Принято, что $\lg(f_0 T_{1/2})$ для всех рассмотренных изотопов равен 5.

Теоретически вычислить с разумной точностью тепловое сечение для произвольного ядра невозможно. Один из путей — оценка сечений неизвестного ядра по измеренному сечению соседнего ядра с близкими свойствами.

Сечение захвата тепловых нейтронов оценивалось отдельно для четно-четных и нечетно-

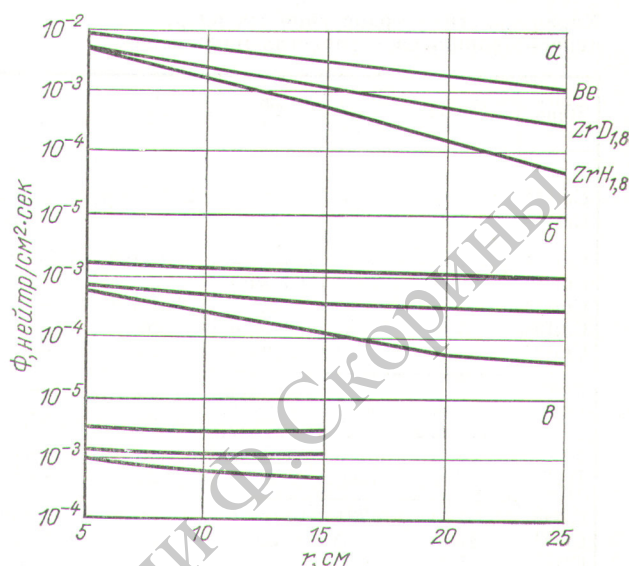


Рис. 6. Поток нейтронов всех энергий в функции r для осевого и кольцевого источников. (Нормирован на один нейтрон, возникающий в тяжелой мишени):

а — осевой источник; б — кольцевой источник, $R = 25$ см; в — кольцевой источник, $R = 15$ см.

нечетных ядер по соотношению

$$\sigma_{n, \gamma}^{Z, A} = \sigma_{n, \gamma}^{Z_0, A_0} \frac{\sigma_{n, \gamma}^{A, Z}(E = 20 \text{ кэв})}{\sigma_{n, \gamma}^{A_0, Z_0}(E = 20 \text{ кэв})},$$

где $\sigma_{n, \gamma}^{Z_0, A_0}$ — известное тепловое сечение изотопа A_0, Z_0 ; $\sigma_{n, \gamma}^{A_0, Z_0}(E = 20 \text{ кэв})$ и $\sigma_{n, \gamma}^{A, Z}(E = 20 \text{ кэв})$ — сечения радиационного захвата нейтронов при энергии 20 кэв, которые вычислялись по данным работы [14].

Практически невозможно предсказать и тепловые сечения деления по теории, поэтому для оценки необходимых сечений пришлось прибегнуть к эмпирическим соотношениям. Удобным в этом отношении эмпирическим параметром

оказалась величина $\frac{\sigma_f}{\sigma_f + \sigma_{n, \gamma}}$, которая является наиболее важной характеристикой процесса накопления. По величине этого отношения все изотопы трансурановых элементов четко делятся на две группы: изотопы, содержащие четное число нейтронов, и изотопы, содержащие нечетное число нейтронов. Для изотопов с четным числом нейтронов величина $\frac{\sigma_f}{\sigma_f + \sigma_{n, \gamma}}$ весьма мала и в расчетах принималась равной нулю.

При захвате нейтрона ядром с нечетным числом нейтронов вносимая энергия связи больше энергии активации и ядро делится тепловыми

Характеристики трансурановых ядер, использовавшиеся в расчетах накопления

Ядро	σ_n, γ , барн	σ_n, f , барн	$T_{1/2}^\beta$	$T_{1/2}^f$	$T_{1/2}^\alpha$
Cm ²⁴⁶	15	0	∞	$2 \cdot 10^7$ лет	5370 лет
Cm ²⁴⁷	180	200	∞	∞	$4 \cdot 10^7$ лет
	2,2	0	∞		
Cm ²⁴⁸	3000	2000	64 мин	$4,6 \cdot 10^6$	$4,7 \cdot 10^5$
Cm ²⁴⁹					
Cm ²⁵⁰	4,2	0	∞	$2,3 \cdot 10^4$	—
Cm ²⁵¹	180	720	50 мин	∞	—
Cm ²⁵²	7	0	1 день	∞	—
Bk ²⁴⁹	800	0	300 дней	∞	—
Bk ²⁵⁰	350	2000	3,22 ч	∞	—
Bk ²⁵¹	800	0	1,5 ч	∞	—
Bk ²⁵²	390	1560	5 мин	∞	—
Cf ²⁴⁹	270	1735	∞	∞	360 лет
Cf ²⁵⁰	1500	0	∞	$1,5 \cdot 10^4$	10,9 лет
Cf ²⁵¹	500	3000	∞	∞	800 лет
Cf ²⁵²	9	0	∞	66 лет	2,2 года
Cf ²⁵³	2	0	48 дней	∞	—
Cf ²⁵⁴	2	0	∞	56,2 дня	—

Примечание. Оценочные значения, полученные по описанной в тексте методике, обведены рамкой.

нейтронами. Для этих ядер отношение $\frac{\sigma_f}{\sigma_f + \sigma_n, \gamma}$ при тепловых энергиях изменяется от ядра к ядру слабо. Средняя величина такого отношения по 18 ядрам от U²³³ до Md²⁶⁰ равна 0,8. Она использовалась в расчетах.

В таблице представлены данные о сечениях и периодах полураспада, которые использовались в расчетах накопления. Эти расчеты прове-

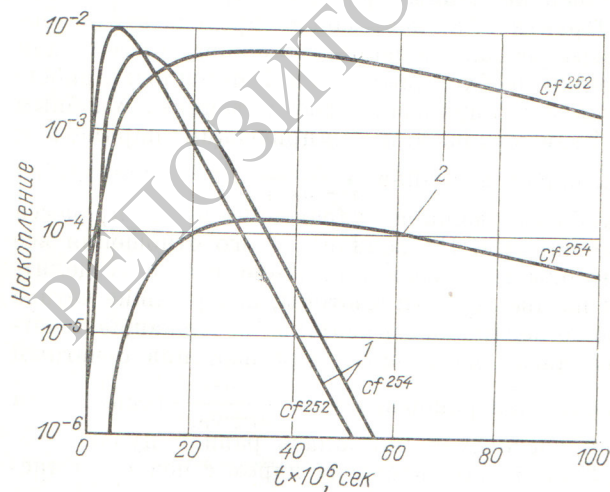


Рис. 7. Накопление Cf²⁵² и Cf²⁵⁴.

дены для изотопов Cf²⁵² и Cf²⁵⁴ и более легких ядер.

В качестве стартового материала для облучения был взят Cm²⁴⁶, поскольку его можно накапливать в сравнительно больших количествах в мощных ядерных реакторах. На рис. 7 показана зависимость числа ядер Cf²⁵² и Cf²⁵⁴ от времени облучения в потоках нейтронов 10^{17} нейтр/см²·сек (кривые 1) и 10^{16} нейтр/см²·сек (кривые 2). По оси ординат отложено число ядер в момент t , нормированное на одно ядро Cm²⁴⁶ при $t = 0$.

Оценки максимального возможного выхода Cf²⁵² в процентах от количества стартового материала при непрерывном отборе из облучаемого исходного материала Cm²⁴⁶ дали следующие значения: 5% для $\Phi = 10^{16}$ нейтр/см²·сек и 7,4% для $\Phi = 10^{17}$ нейтр/см²·сек. Согласно расчетам, большие потоки нейтронов очень эффективны при получении тяжелых изотопов трансурановых элементов. Кроме роста максимального выхода при увеличении нейтронного потока с 10^{16} до 10^{17} нейтр/см²·сек время максимального накопления продукта уменьшается в 5—10 раз.

Авторы глубоко благодарны А. И. Лейпунскому за интерес к работе и ценные замечания, а также А. А. Абагяну, Н. И. Булееву, Б. Г. Дубовскому, В. А. Коновалову, Ю. А. Казанскому, В. И. Иванову, Г. Н. Смиренину, М. Ф. Троянову, С. Г. Цыпину, Л. Н. Усачеву, обсуждение с которыми отдельных вопросов было весьма полезным.

Поступила в Редакцию 10/VIII 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. AECL-2600, 1966.
2. Р. Г. Васильков и др. «Атомная энергия», 25, 479 (1968).
3. W. Colman, R. Alsmiller. Nucl. Sci. Engng, 34, № 2, 104 (1968).
4. Т. А. Гермогенова и др. В сб. «Вопросы физики защиты реакторов». М., Госатомиздат, 1966, стр. 57.
5. И. В. Гордеев, Д. А. Кардашев, А. В. Малышев. Ядерно-физические константы. М., Госатомиздат, 1963.
6. Бюллетень информационного центра по ядерным данным. Вып. I, II. М., Атомиздат, 1964/65.
7. Л. П. Абагян и др. Групповые константы для расчета ядерных реакторов. М., Атомиздат, 1964.
8. V. Konshin, E. Matusevich. Atomic Energy Review, VI, No. 4, 3 (1968).
9. В. И. Гольдманский. Новые элементы в периодической системе Д. И. Менделеева. М., Атомиздат, 1964.

10. Э. Хайд, И. Перлман, Г. Сиборг. Транс-урановые элементы. М., Атомиздат, 1967.
 11. Б. С. Делепов, Л. К. Пекер, В. О. Сергеев. Схемы распада радиоактивных ядер. М., Изд-во АН СССР, 1963.

12. J. Milsted, P. Fields, D. Metta. ANL-6756, 1963.
 13. V. Viola, G. Seaborg. J. Inorg. Nucl. Chim., 28, 741 (1966).
 14. A. Cameron et al. Can. J. Phys., 44, 151 (1966).

Идентификация элементов 102 и 104 с помощью коллимационного метода

Ю. П. ОГАНЕСЯН, Ю. В. ЛОБАНОВ, С. П. ТРЕТЬЯКОВА, Ю. А. ЛАЗАРЕВ,
 И. В. КОЛЕСОВ, К. А. ГАВРИЛОВ,
 В. М. ПЛОТКО, Ю. В. ПОЛУБОЯРИНОВ

УДК 533.061:546.799

Хорошо известно, что спонтанное деление является одним из основных свойств, определяющих стабильность тяжелых ядер. Вместе с тем теоретическое описание процесса спонтанного деления связано с большими трудностями, поэтому предсказания времени жизни ядер по отношению к этому типу распада весьма неопределенны. Однако большой экспериментальный материал, накопленный за последние 30 лет, позволяет построить полуэмпирическую систематику, представленную на рис. 1.

Из анализа данных, приведенных на этом рисунке, следует, что при продвижении от урана в сторону больших Z время жизни ядер по отношению к спонтанному делению уменьшается значительно быстрее, чем по отношению к α -распаду. Поэтому можно ожидать, что стабильность четно-четных ядер с $Z > 102$ будет определяться, по всей вероятности, их временем жизни относительно спонтанного деления. В случае деления нечетных ядер запреты равны $\sim 10^2$ – 10^5 .

Исходя из этого, можно было предположить, что четно-четный изотоп 104^{260} должен испытывать в основном спонтанное деление, так как из простой экстраполяции свойств следовало, что время жизни его по отношению к спонтанному делению должно лежать в интервале 10^{-3} – 1 сек, а по отношению к α -распаду — в интервале 0,1–1 сек.

История открытия элемента 104 хорошо известна [1]; не описывая опыты, кратко напомним основные результаты.

В 1964 г. в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ при облучении Pu^{242} ускоренными ионами Ne^{32} были синтезированы ядра, испытывающие спонтанное деление с периодом полураспада $\tau_{S.F.} \approx 0,3$ сек. Функция возбуждения для этого излучателя имела максимум при энергии ионов Ne^{22} 112–113 Мэв с шириной на полувысоте ~ 8 –10 Мэв. В реакциях типа $U^{238}(Ne^{22}, xn)$, $Pu^{242}(Ne^{20}, xn)$, $Pu^{242}(O^{16}, ^{18}, xn)$

эта активность не наблюдалась. Из совокупности данных можно было предположить, что в наших опытах образуется изотоп элемента 104 (по всей вероятности, четно-четный с массой 260) в реакции полного слияния с последующим испарением из возбужденного ядра 104^{264} определенного числа нейтронов.

На основании полученных результатов были проведены эксперименты, в которых была сделана попытка идентифицировать наблюдаемый спонтанно делящийся изотоп с помощью химических методов с учетом того, что актиноидный ряд элементов заканчивается на $Z = 103$. Было убедительно показано, что по химическим свой-

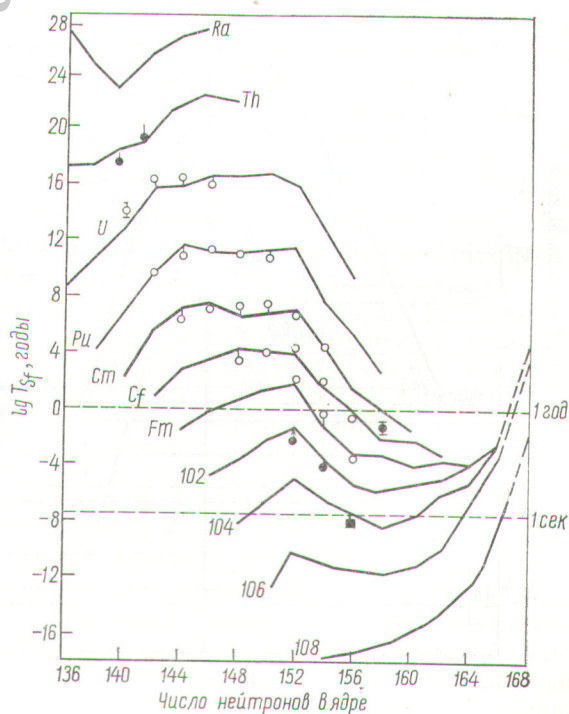


Рис. 1. Систематика периодов спонтанного деления (Вайола и Сиборг).