

## Определение процентного содержания смеси $^{235}\text{U}$ и $^{239}\text{Pu}$ по запаздывающим нейтронам

МАКСЮТЕНКО Б. П., БАЛАКШЕВ Ю. Ф., БУЛАНЕНКО В. И., ЖДАНОВА Г. И., ШИМАНСКИЙ А. А.

Различие относительных выходов запаздывающих нейтронов разных делящихся веществ представляет возможность их идентификации или определения процентного содержания в смеси. Наиболее трудноразличимыми по этому признаку являются  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . В работе [1] показано, что распределения выходов запаздывающих нейтронов в зависимости от периода полураспада для этих двух веществ различаются лишь в интервале 8—35 с, т. е. где основные вкладчики —  $^{137}\text{I}$  и  $^{88}\text{Br}$ . Поэтому наилучший способ различить эти два делящихся вещества в смеси заключается в том, чтобы определить отношения выхода второй группы (смесь выходов от  $^{137}\text{I}$  и  $^{88}\text{Br}$ ) к первой ( $^{87}\text{Br}$ ), используя разложение кривой спада активности по методу наименьших квадратов (м. н. к.), либо расщепить выход второй группы на выходы от  $^{137}\text{I}$  и  $^{88}\text{Br}$  и использовать еще более различающиеся для этих веществ отношения выходов от  $^{137}\text{I}$  к  $^{87}\text{Br}$ . В настоящей работе определено процентное содержание изотопов  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  в их смеси по относительным выходам запаздывающих нейтронов с учетом неизбежного статистического разброса результатов измерений.

Рассчитаем отношение выходов двух групп запаздывающих нейтронов для смеси двух делящихся веществ в зависимости от концентрации, если это отношение известно для каждого из них

$$Y = \frac{\Phi n_a \sigma_{fa} Y_{2a} + \Phi n_b \sigma_{fb} Y_{2b}}{\Phi n_a \sigma_{fa} Y_{1a} + \Phi n_b \sigma_{fb} Y_{1b}}, \quad (1)$$

где индексы  $a$  и  $b$  — для  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ ; индексы 1 и 2 — для выходов запаздывающих нейтронов от первой и второй групп;  $n$  — число атомов делящегося вещества;  $\sigma_j$  — сечение деления;  $Y$  с индексами относится к конкретной группе и веществу;  $Y$  без индексов — к смеси делящихся веществ;  $\Phi$  — поток нейтронов.

Введем обозначения для упрощения записи (1):

$$\eta_a = n_a/n_a + n_b; \quad Y_a = Y_{2a}/Y_{1a}; \quad Y_b = Y_{2b}/Y_{1b}; \\ C = Y_{1b}/Y_{1a}; \quad C_1 = \sigma_{fb}/\sigma_{fa}.$$

Тогда уравнение (1) переписывается так:

$$Y = \frac{Y_a \eta_a + C C_1 (1 - \eta_a) Y_b}{\eta_a + C C_1 (1 - \eta_a)}. \quad (2)$$

Таким образом, зависимость отношения выходов двух групп от концентрации является гиперболической. Более компактный вид уравнение (2) приобретает после приведения к асимптотическим осям:

$$Y' \eta'_a = \frac{C C_1}{(1 - C C_1)^2} (Y_b - Y_a). \quad (3)$$

Координаты асимптотических осей (в старой системе):

$$\left. \begin{aligned} \eta_{ac} &= C C_1 / (C C_1 - 1); \\ Y_{ac} &= \eta_{ac} (Y_b - Y_a / C C_1). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Из приведенных уравнений видно, что для расчета искомой зависимости помимо отношения выходов двух групп запаздывающих нейтронов для чистых делящихся веществ необходимо знать отношение сечений деления и отношение выходов (на акт деления) запаздывающих нейтронов от первой группы. Значение  $C C_1$  (оно везде в виде произведения) может быть определено по опубликованным данным и из нашего экспериментального определения зависимости  $y$  ( $\eta_a$ ). Если найдены отношения выходов запаздывающих нейтронов от двух групп для нескольких смесей этих веществ (обозначим их индексами  $i, k, j$ ) с известной концентрацией, то для любой комбинации трех смесей можно составить систему уравнений:

$$\begin{aligned} (Y_i - Y_{ac})(\eta_i - \eta_{ac}) &= (Y_k - Y_{ac})(\eta_k - \eta_{ac}) = \\ &= (Y_j - Y_{ac})(\eta_j - \eta_{ac}). \end{aligned} \quad (5)$$

Из этой цепочки сразу же определяются  $Y_{ac}$  и  $\eta_{ac}$ , и по последнему из них находится значение  $C C_1$  (4).

Таким образом, может быть решена и другая задача: определено отношение выходов первой группы запаздывающих нейтронов для двух делящихся веществ. Этот способ имеет явное преимущество перед прямыми измерениями, так как в данном случае не применяется двукратная калибровка потока, а определяется искомая величина одновременно по нескольким точкам.

Процентное содержание двух смесей делящихся веществ можно различить, если разность значений  $Y$  превышает сумму абсолютных оши-

бок, т. е.

$$Y_i - Y_k \geq \Delta Y_i + \Delta Y_k. \quad (6)$$

Полагая, что относительная погрешность  $\delta_Y$  в сравниваемых точках одинакова, в системе координат (асимптотических осей гиперболы) находим

$$\delta Y' \leq \frac{1}{2} (\Delta \eta' / \eta'_i), \quad (7)$$

где  $\Delta \eta' = \eta'_k - \eta'_i$ . Таким образом, шаг по оси  $\eta'$  вдвое превышает относительную погрешность  $Y$ . Чтобы различить две смеси с концентрацией, отличающейся на 5%, необходимо знать отношение выходов двух групп с точностью 2,5%. Из выражения (7) следует также, что с увеличением концентрации  $\eta'_i$  требования к точности ужестчаются. Поэтому для определения большой концентрации <sup>235</sup>U необходимо знать относительный выход с большой точностью.

**Экспериментальные результаты.** Шесть образцов смеси массой ~1 г каждый, отличающихся друг от друга приблизительно 20%-ным содержанием одного из делящихся веществ, поочередно облучались тепловыми нейтронами, и при этом регистрировался спад активности запаздывающих нейтронов. Смесь порошков UO<sub>2</sub> (90%-ного обогащения) и PuO<sub>2</sub> помещалась в контейнер диаметром 30 мм. Тепловые нейтроны получались при замедлении быстрых нейтронов из  $T(p, n)^3$ He-реакции в блоке полиэтилена, окружавшем мишень и облучаемый образец (после облучения он сбрасывался в счетный блок на расстояние 2,5 м). Эксперименты проводились на ускорителе КГ-2,5 при энергии протонов 1,7 МэВ. Для каждого из образцов регистрировалось несколько серий спада нейтронной активности после пятиминутного облучения, так чтобы интегральный счет составлял ~700 000 импульсов на серию за время регистрации (1024 с).

Из одних и тех же экспериментальных результатов можно извлечь два типа отношений, необходимых для анализа процентного содержания смеси. Первый тип — отношение выхода второй группы запаздывающих нейтронов к первой при традиционном шестигрупповом описании спада активности при обработке по м. н. к. Второй — отношение выхода запаздывающих нейтронов от <sup>137</sup>I к <sup>87</sup>Bg. Последнее отношение для <sup>239</sup>Pu по сравнению с <sup>235</sup>U приблизительно вдвое превышает отношение выхода смешанной второй группы к первой, и, таким образом, при той же точности может быть получено лучшее разрешение.

Следует оговорить, что при обработке по м. н. к. разложение проводилось на четыре

Отношение выходов групп запаздывающих нейтронов

Таблица 1

Номер образца	Число серий	$\eta_a$	Разложение по м.н.к.	Отношение выходов <sup>137</sup> I/ <sup>87</sup> Bg
			$Y$	$Y$
12	6	0	8,51±0,16	8,40±0,27
11	1	0,206	7,69±0,08	7,01±0,20
10	3	0,415	7,307±0,060	5,76±0,16
9	2	0,628	6,91±0,16	5,04±0,16
8	2	0,812	6,452±0,092	4,35±0,01
7	7	1	6,209±0,055	3,91±0,14

экспоненты, а не на шесть, так как анализ спада активности начинался с 6-й секунды после конца облучения, когда вклад двух короткоживущих групп (с периодами ~0,2 и ~0,5 с) уже пренебрежимо мал. Разложение проводилось при заданных периодах полураспада, и в качестве последних использовались периоды для <sup>239</sup>Pu [2]. При определении отношения выходов запаздывающих нейтронов от <sup>137</sup>I и <sup>88</sup>Bg задавались следующие периоды полураспада: 55,6; 24,7; 16,3; 6,1; 4,45; 2,5; 2,0; 1,5; 1,0; 0,5 с. Ошибки при разложении по м. н. к. и при выделении отношения выходов запаздывающих нейтронов от <sup>137</sup>I и <sup>88</sup>Bg определялись как среднеквадратические по соответствующему числу серий (табл. 1, 2).

Первая задача заключалась в определении положения асимптотических осей из уравнений (5) и нахождении  $C$  по уравнению (4) ( $C$  — отношение абсолютных выходов запаздывающих нейтронов на деление от <sup>87</sup>Bg для двух веществ). Для нахождения каждой пары значений  $\eta_{ac}$  и  $Y_{ac}$  требуются три точки (значения  $Y$  при

Отношение выходов, приведенное к асимптотическим осям

Таблица 2

Номер образца	$\eta'$	Расположение по м.н.к.		Отношение выходов <sup>137</sup> I/ <sup>87</sup> Bg	
		$Y'$	$Y'\eta'_a$	$Y'$	$Y'\eta'_a$
12	1,040	4,700	4,888	9,160	9,526
11	1,246	3,880	4,834	7,770	9,681
10	1,455	3,497	5,088	5,520	9,487
9	1,668	3,100	5,171	5,800	9,674
8	1,852	2,642	4,893	5,109	9,462
7	2,040	2,399	4,894	4,670	9,527
ср. 4,961±0,055				ср. 9,560±0,03	

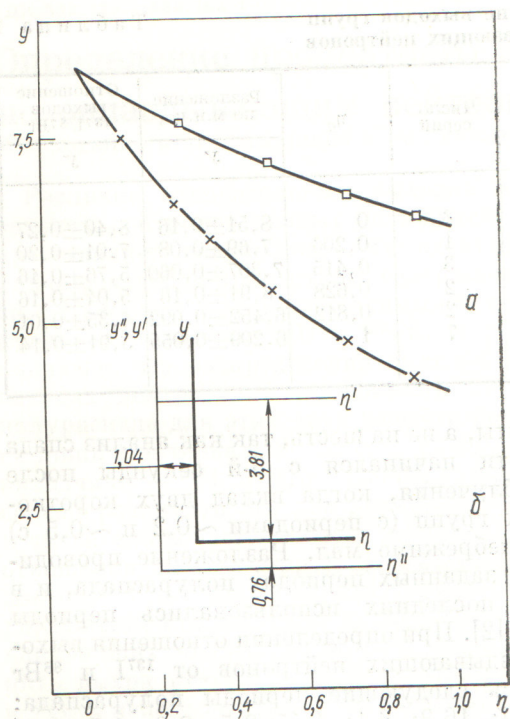


Рис. 1. Зависимость отношения выходов групп запаздывающих нейтронов от концентрации  $^{235}\text{U}$  (а)  
 □ — отношение выходов 2/1 групп (м. н. к.); × —  $^{137}\text{I}/^{87}\text{Br}$ . Схема расположения натуральных ( $\eta$ ,  $Y'$ ) и асимптотических ( $\delta$ ) осей при разложении по м. н. к. ( $\eta'$ ,  $Y''$ ) и для отношения выходов  $^{137}\text{I}/^{87}\text{Br}$  ( $\eta''$ ,  $Y''$ )

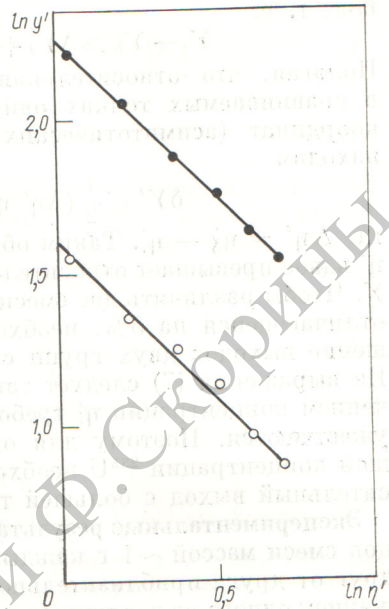


Рис. 2. Зависимость отношения выходов групп запаздывающих нейтронов от концентрации  $^{235}\text{U}$  в системе асимптотических осей координат:  
 ● —  $^{137}\text{I}/^{87}\text{Br}$ ; ○ — отношение выходов 2/1 групп м. н. к.

трех концентрациях). Так как их всего шесть, то можно составить 20 таких комбинаций, т. е. получить 20 пар значений. Однако не все они равноценны. Иногда могут быть получены физически бессмысленные результаты (например, отрицательные значения  $C$ ). Это связано с тем, что матрица такой системы плохо обусловлена. Надежными являются решения для наиболее удаленных точек — граничных значений ( $\eta_a = 0$  и 1) и одной из соседних к ним. Большая точность связана и с тем, что граничные значения получены в результате усреднения 6—7 серий измерений, а все промежуточные — 1—3 серий, т. е. они и статистически определены лучше. Приведенные результаты рассчитаны по значениям  $\eta$  и  $Y'$  для образцов 7, 8, 12 и 7, 11, 12. Сравнение полученных и опубликованных данных подтверждает, что достигаемая точность значений  $C$  (12%) значительно лучше [2], чем прямых измерений (42%):  $C = 0,397 \pm 0,047$  (данная работа);  $C = 0,41 \pm 0,17$  [2]. Полученное значение  $C$  рассчитано в предположении  $\sigma_f^{235\text{U}} = 577,1 \pm 0,9$  б;  $\sigma_f^{239\text{Pu}} = 740 \pm 3,5$  б [3].

Второй задачей и конечной целью настоящей работы является нахождение достижимой точности определения относительной концентрации смеси двух делящихся веществ  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$

как наиболее трудноразличимых по относительным выходам запаздывающих нейтронов. После того как найдено положение асимптотических осей, критерием точности является разброс значений величины  $Y'\eta' = \text{const}$ . Если считать значение  $\eta$  точным, то  $Y'\eta'$  характеризует отклонение  $Y'$ . В табл. 1 и 2 приведены значения  $\eta'$  и  $Y'$  и их произведения. В случае обработки по м. н. к. погрешность среднего значения составляет 1%, поэтому можно гарантировать разрешение (т. е. определение процентного содержания  $^{235}\text{U}$ ) не хуже 5%, а при обработке по новому методу — не хуже 3% (рис. 1, а).

Как видно из уравнений (4), положение асимптоты  $Y'$  не зависит от типа обработки результатов, но положение  $\eta'$  — разное при обработке по м. н. к. и при определении отношения выхода запаздывающих нейтронов от  $^{137}\text{I}$  и  $^{87}\text{Br}$  (рис. 1, б; 2). При обработке по м. н. к.  $Y_{ac} \sim +4$ , а во втором случае  $Y_{ac} \sim -1$ . Если экспериментальное значение  $\Delta Y$  в обоих типах обработки одинаково, относительная погрешность во втором случае меньше и достигаемое разрешение лучше.

Поступила в Редакцию 9/IV 1975 г.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Максютенко Б. П., Тараско М. З. Препринт ФЭИ-370, 1972.
2. Кишин Дж. Физические основы кинетики ядерных реакторов. М., Атомиздат, 1967.
3. BNL-325, USA, 1965.