

Сечения образования γ -квантов при неупругом рассеянии нейтронов спектра деления

А. Т. БАКОВ, В. Г. ДВУХШЕРСТНОВ, Ю. А. КАЗАНСКИЙ

УДК 539.171.017

При расчетах защиты и особенно энерговыделения как в защите, так и в конструкционных материалах, расположенных вблизи активной зоны реактора, важно знать сечения выхода γ -квантов, сопровождающих неупругое рассеяние нейтронов в этих материалах. Хотя в литературе и имеются такие данные, однако зависимость от энергии нейтронов ограничена диапазоном 4—6 Мэв. Целесообразно иметь сечения выхода γ -квантов, усредненные, например, по спектру нейтронов деления [1]. Это оправдано тем, что, во-первых, такие данные можно получить со сравнительно небольшими затратами; во-вторых, спектры нейтронов, прошедших через толстые слои защиты, в области энергий выше 1—2 Мэв претерпевают незначительную деформацию.

В настоящей работе на спектре нейтронов, близком к спектру деления, были измерены средние сечения выхода γ -квантов (отдельные линии или группы неразрешенных линий) для некоторых элементов. Средние сечения существенно зависят от вида нейтронного спектра. Поэтому для расчета количества γ -квантов неупругого рассеяния, образованного в данной точке защиты реактора, где спектр нейтронов может сильно отличаться от спектра деления, предлагается использовать более консервативную, т. е. слабее зависящую от формы спектра нейтронов, величину. Эту величину можно образовать из измеренных средних сечений выхода γ -квантов при неупругом рассеянии $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$, если их нормировать на усредненное по тому же спектру нейтронов сечение неупругого рассеяния $\langle \sigma_{in} \rangle$, т. е.

$$\langle \xi_{\gamma i} \rangle = \frac{\int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{\gamma i}(E_n) dE_n}{\int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n} = \frac{\int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) \xi_{\gamma i}(E_n) dE_n}{\int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n}, \quad (1)$$

где $E_{гр}$ — значение энергии нейтронов, при которой появляется возможность испускания γ -кванта с энергией $E_{\gamma i}$ при неупругом рассеянии нейтрона с энергией $E_n \geq E_{гр}$.

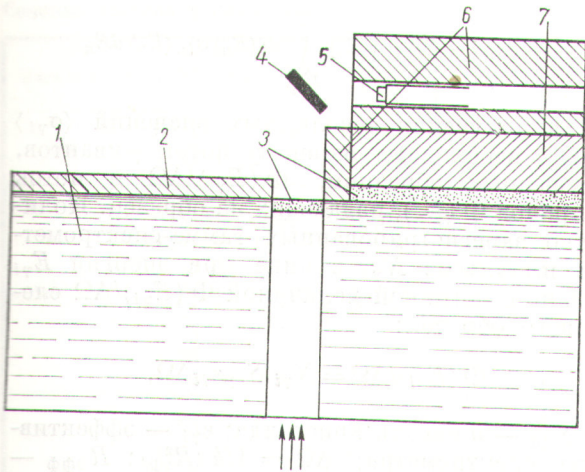
Тогда выход γ -квантов i -й энергии при неупругом рассеянии нейтронов спектра $\Phi(E_n)$ можно рассчитать, используя $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$, следующим образом:

$$B'_{\gamma i} = \langle \xi_{\gamma i} \rangle \int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi'(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n. \quad (2)$$

Заметим, что при вычислении $\int_{E_{гр}}^{\infty} \Phi'(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n$ следует пользоваться теми же сечениями $\sigma_{in}(E_n)$, которые были взяты при получении опорных значений $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$. При расчете $B'_{\gamma i}$ по формулам (2) делается предположение, что выход γ -квантов на одно неупругое взаимодействие, усредненный по спектру $\Phi'(E_n)$, такой же, как и при усреднении по спектру $\Phi(E_n)$.

Это предположение выполняется достаточно хорошо для спектров быстрых нейтронов, которые формируются в быстрых и тепловых реакторах и их защитах. Например, расчеты величин $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$ и $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ для γ -квантов, испускаемых железом, показали, что при усреднениях по спектру деления, спектру нейтронов после прохождения 40 см железа, спектру, характерному для активной зоны быстрого реактора, и по другим часто встречающимся на практике спектрам нейтронов максимальное отличие в $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$ составляет: для γ -квантов с энергией 0,84 Мэв — 5%, для $E_{\gamma} = 1,23$ Мэв — 11% и для $E_{\gamma} = 1,81$ Мэв — 4%. В то же время аналогичные отклонения в величинах $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ составляют соответственно 40, 20, и 8%.

Экспериментальное устройство и методика измерений. Измерение выхода γ -квантов, сопровождающих неупругое рассеяние нейтронов на ядрах различных элементов, производилось на спектре нейтронов реактора РИЗ [2] (рис. 1). Гамма-кванты неупругого рассеяния регистрировались под углом 90° относительно пучка нейтронов с помощью однокристалльного сцинтилляционного спектрометра с кристаллом стильбена диаметром 30 мм и высотой 20 мм [3].



Р и с. 1. Геометрия эксперимента:

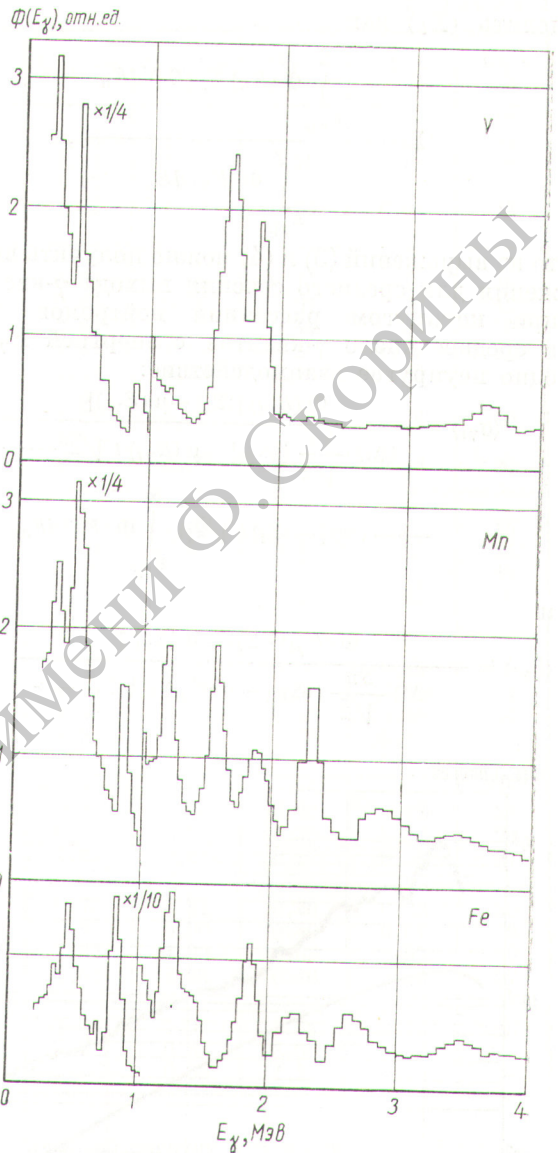
1 — стальной бак с водным раствором борной кислоты; 2, 6 — свинцовая защита; 3 — карбид бора; 4 — исследуемый образец; 5 — детектор.

Спектр нейтронов, падающих на образец, был измерен в месте помещения образца тем же спектрометром в режиме дискриминации γ -квантов. Образцы выбирались плоскими, угол наклона плоскости образца к пучку составлял 45° . Преобразование амплитудных распределений импульсов в энергетические спектры нейтронов и γ -квантов осуществлялось методикой, описанной в работах [4, 5].

Поток γ -квантов $\Phi(E_{\gamma i})$ с энергией $E_{\gamma i}$ через 1 см^2 площади детектора (кристалла) в 1 сек можно записать так:

$$\Phi(E_{\gamma i}) = k\Delta\Omega \frac{Sn}{\sqrt{2}} \int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \int_0^{t\sqrt{2}} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) \times \xi_{\gamma i}(E_n) \exp[-\Sigma_t(E_n)x - \mu(E_{\gamma i}) \times (t\sqrt{2}-x)] dE_n dx, \quad (3)$$

где $\Phi(E_n)$ — поток нейтронов с энергией E_n через 1 см^2 поверхности образца в 1 сек ; $\xi_{\gamma i} = \sigma_{\gamma i}/\sigma_{in}$; $\sigma_{\gamma i}(E_n)$ — сечение выхода γ -квантов с энергией $E_{\gamma i}$ при неупругом рассеянии нейтронов с энергией E_n ; $\sigma_{in}(E_n)$ и $\Sigma_t(E_n)$ — сечение неупругого рассеяния и полное макроскопическое сечение при энергии нейтронов E_n соответственно; $\mu(E_{\gamma i})$ — полный коэффициент поглощения γ -квантов с энергией $E_{\gamma i}$ материалом образца; S и t — площадь и толщина образца; $\Delta\Omega$ — геометрический фактор; n — число ядер в 1 см^3 образца; $k = 1 + \frac{\Phi(E_{\gamma i})_{\text{MH}}}{\Phi(E_{\gamma i})_{\text{O}}}$ —



Р и с. 2. Энергетические спектры γ -квантов.

коэффициент, учитывающий эффект от многократного рассеяния нейтронов в образце; $\Phi(E_{\gamma i})_{\text{O}}$ — поток γ -квантов, обусловленный однократным неупругим рассеянием нейтронов в образце; $\Phi(E_{\gamma i})_{\text{MH}}$ — поток γ -квантов, обусловленный неупругим рассеянием нейтронов после одного, двух и т. д. упругих соударений нейтронов с ядрами образца.

Если использовать то обстоятельство, что полное сечение $\Sigma_t(E_n)$ в рассматриваемой области слабо зависит от энергии нейтронов и опре-

делить $\langle \Sigma_t \rangle$ как

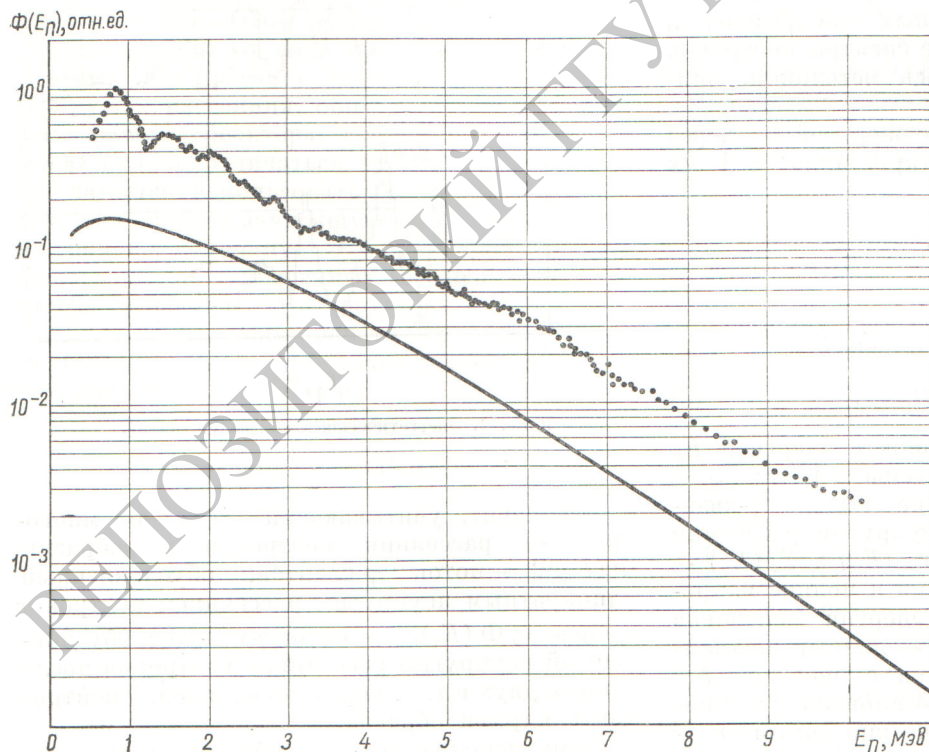
$$\langle \Sigma_t \rangle = \frac{\int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \Phi(E_n) \Sigma_t(E_n) dE_n}{\int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \Phi(E_n) dE_n}, \quad (4)$$

то из выражений (3) и (4) можно получить выражения для среднего сечения выхода γ -квантов при неупругом рассеянии нейтронов $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ и среднее число γ -квантов с энергией $E_{\gamma i}$ на одно неупругое взаимодействие:

$$\langle \sigma_{\gamma i} \rangle = \frac{\Phi(E_{\gamma i}) [\langle \Sigma_t \rangle - \mu(E_{\gamma i})]}{k \Delta \Omega \frac{S_n}{\sqrt{2}} \{ \exp[-\mu(E_{\gamma i}) t \sqrt{2}] \} \rightarrow \rightarrow \exp[-\langle \Sigma_t \rangle t \sqrt{2}] \int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \Phi(E_n) dE_n}$$

и

$$\langle \xi_{\gamma i} \rangle = \frac{\Phi(E_{\gamma i}) [\langle \Sigma_t \rangle - \mu(E_{\gamma i})]}{k \Delta \Omega \frac{S_n}{\sqrt{2}} \{ \exp[-\mu(E_{\gamma i}) t \sqrt{2}] \} \rightarrow \rightarrow \exp[-\langle \Sigma_t \rangle t \sqrt{2}] \int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \Phi(E_n) dE_n}. \quad (5)$$



Р и с. 3. Энергетический спектр нейтронов, падающих на образец (точки), и спектр нейтронов деления [9] (сплошная линия).

$$\rightarrow \exp[-\langle \Sigma_t \rangle t \sqrt{2}] \int_{E_{\text{гр}}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n$$

Для получения абсолютных значений $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ и $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$ необходимо измерить поток γ -квантов, испущенных образцом, $\Phi(E_{\gamma i})/\Delta \Omega$ и поток нейтронов $\Phi(E_n)$, падающих на образец. Количество зарегистрированных гамма-спектрометром импульсов $N_{\gamma i}$ в пике при энергии $E_{\gamma i}$ связано с истинной величиной $\Phi(E_{\gamma i})/\Delta \Omega$ следующим образом:

$$\Phi(E_{\gamma i})/\Delta \Omega = N_{\gamma i}/S_{\text{кр}} \epsilon_{\gamma i} \Delta \Omega,$$

где $S_{\text{кр}}$ — площадь кристалла, $\epsilon_{\gamma i}$ — эффективность спектрометра; $\Delta \Omega = 1/4\pi R_{\text{эфф}}^2$; $R_{\text{эфф}}$ — эффективное расстояние от образца до кристалла.

Величина $S_{\text{кр}} \epsilon_{\gamma i} \Delta \Omega$ была измерена с помощью гамма-источников Cs^{137} известной активности с погрешностью $\pm 4\%$. Количество импульсов, зарегистрированных детектором при измерении потока нейтронов, можно записать в виде $N_n = \Phi(E_n) S_{\text{кр}} \epsilon_n$. Поскольку измерение потоков γ -квантов и нейтронов производилось одним

и тем же спектрометром, для получения $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ достаточно измерить отношение

$$\begin{aligned} \Phi(E_{\gamma i})/\Phi(E_n) \Delta \Omega &= \\ &= N_{\gamma i} \epsilon_n / N_n \epsilon_{\gamma i} \Delta \Omega. \end{aligned}$$

Среднеквадратичная ошибка этого отношения, связанная с неточным значением $\Delta \Omega$, ϵ_n и $\epsilon_{\gamma i}$, составляла $\sim 7\%$. Поправка на многократное рассеяние нейтронов в образцах была рассчитана способом, изложенным в работе [6].

С целью более корректного учета фона, связанного с возмущением нейтронного и γ -полей исследуемым образцом, были проведены измерения с графитовым образцом. Этот фон составляет $\sim 30-50\%$ от эффекта в об-

Сечение выхода γ -квантов

Таблица 1

Элемент	$E_{\gamma i}, \text{Мэв}$	$E_{\text{гр}}, \text{Мэв}$	$\langle \sigma_{\gamma i} \rangle, \text{барн}$	$\langle \xi_{\gamma i} \rangle$	СКО, %	Элемент	$E_{\gamma i}, \text{Мэв}$	$E_{\text{гр}}, \text{Мэв}$	$\langle \sigma_{\gamma i} \rangle, \text{барн}$	$\langle \xi_{\gamma i} \rangle$	СКО, %						
Na	0,44 1,64	0,44 2,08	0,5 0,15	1,0 0,24	30 17	Ni	0,83 1,33 1,45 1,80	2,16 1,45 3,13	0,13 0,76 0,05	0,14 0,94 0,04	17 8 12						
Al	0,84 1,01 1,73 1,96 2,21 2,73 2,98	0,84 1,0 2,73 2,21 2,73 2,98	0,08 0,19 0,07 0,20 0,06 0,13	0,18 0,38 0,10 0,30 0,07 0,17	11 10 11 11 22 10		Cu	0,67 0,76 0,97 1,11 1,43 1,46 1,54 1,86 2,06	0,67 0,76 0,97 1,11 1,43 1,86 2,06	0,14 0,07 0,44 0,29 0,44 0,07 0,04	0,18 0,09 0,44 0,29 0,39 0,06 0,03	10 12 8 10 8 10 20					
	Ti	0,99 1,31 1,45 2,43	1,0 2,43 2,43	0,65 0,53 0,11	1,12 0,51 0,10			9 11 10	Zn	0,82 1,02 1,38 1,85	1,82 1,0 2,32 1,85	0,41 0,90 0,24 0,24	0,42 1,27 0,19 0,25	15 14 13 8			
		V	0,92 1,62 1,83 ~ 3,6	0,92 1,62 1,83 3,6	0,40 0,28 0,16 0,10	0,11 0,28 0,15 0,09		10 10 10 17		Zr	0,93 1,21 1,42 2,2	0,93 1,21 2,35 2,2	0,51 0,07 0,11 0,51	0,59 0,06 0,08 0,37	9 11 14 8		
			Mn	0,86 1,16 1,53 1,88 2,3 2,85	0,98 1,29 1,53 1,88 2,43 2,85	0,24 0,11 0,18 0,12 0,19 0,12		0,21 0,08 0,13 0,06 0,10 0,06			8 8 9 9 8 18	Pb	0,80 1 ÷ 2 2,62	0,80 0,85 2,62	0,62 0,33 0,67	0,78 0,40 0,39	31 20 27
				Fe	0,85 1,25 1,41 1,86 2,12 2,25 2,66 3,6	0,85 2,08 2,66 2,96 2,66 3,6		0,74 0,25 0,22 0,20 0,16 0,26			0,88 0,21 0,18 0,15 0,13 0,20		7 8 10 8 18 18	Bi	0,70 0,90 1,62 2,62	1,62 0,90 1,62 2,62	0,26 0,49 0,62 0,46
U ²³⁸	1,06 1 ÷ 2 2 ÷ 3				1,0 0,85 0,85	1,54 3,0 1,5		0,67 1,3 0,7	15 — —								

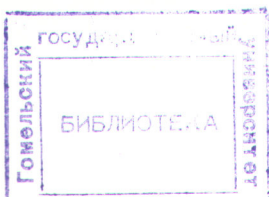
ласти непрерывных энергетических распределений и существенно меньше в области отдельных линий.

Результаты измерений. Для большинства исследованных элементов получены линейчатые спектры γ -квантов. Энергии отдельных линий согласуются с известными схемами возбужденных энергетических уровней ядер [7, 8]. Примеры спектров приведены на рис. 2. Во всех измеренных спектрах имеется фоновый пик при энергии $\sim 0,5 \text{ Мэв}$, интенсивность которого зависит от материала образца.

Для ядер кадмия, вольфрама и U²³⁸ спектры оказались практически непрерывными, поскольку среднее расстояние между возбужденными

Усредненные по спектру нейтронов сечения выхода γ -квантов Таблица 2

Элемент	$E_{\gamma i}, \text{Мэв}$	$\langle \sigma_{\gamma i} \rangle, \text{барн}$	$\langle \sigma_{\gamma i} \rangle_{\text{расч}}, \text{барн}$	Литература
Fe	0,84 1,86	0,74 0,22	0,75 0,16	[11—13] [11—14]
	Ti	0,99	0,65	0,61
Al	0,84 1,01	0,08 0,19	0,11 0,20	[11, 13, 15]
	Na	0,44 1,64	0,51 0,15	0,48 0,11



уровнями в этих ядрах меньше, чем энергетическое разрешение спектрометра. На рис. 3 приведен энергетический спектр нейтронов, измеренный в месте расположения образцов. Для сравнения там же сплошной линией показан спектр деления, взятый из работы [9].

Результаты измерений сведены в табл. 1. Следует заметить, что поправка на угловое распределение выходящего γ -излучения не вносилась. Поэтому под $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ и $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$ нужно понимать величины $4\pi \langle \sigma_{\gamma i}(90^\circ) \rangle$ и $4\pi \langle \xi_{\gamma i}(90^\circ) \rangle$. В таблице приводится среднеквадратичная ошибка (СКО) величины $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$. Эту же ошибку можно отнести к величине $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$, так как ошибка в сечении σ_{in} при определении $\int_{E_{gr}}^{\infty} \Phi(E_n) \sigma_{in}(E_n) dE_n$ не учитывалась. При вычислении $\langle \xi_{\gamma i} \rangle$ были использованы среднегрупповые сечения из работы [10].

Для сравнения измеренных величин $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle$ с имеющимися данными сечения выхода γ -квантов отдельных линий при неупругом рассеянии моноэнергетических нейтронов для четырех элементов были усреднены по спектру реактора РИЗ (табл. 2).

В четвертой колонке табл. 2 приведены интегральные эффективные сечения испускания γ -квантов, причем точность этих величин $\pm 20\%$. Можно ожидать, что поправка на угловое распределение выходящего γ -излучения будет составлять не более 10—15% (в табл. 2 эта поправка не вносилась).

Для натрия при вычислении $\langle \sigma_{\gamma i} \rangle_{расч}$ взяты сечения возбуждения уровней 0,44 и 2,08 Мэв при неупругом рассеянии нейтронов с энергией до 4 Мэв.

Авторы выражают свою признательность Е. С. Матусевичу за полезную дискуссию при постановке данной работы, а также М. Н. Николаеву и А. М. Лашуку за ценные замечания при обсуждении результатов.

Поступила в Редакцию 12/XII 1969 г.
В окончательной редакции 14/IV 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ю. А. Казанский, Е. С. Матусевич. «Бюллетень информационного центра по ядерным данным ГКИАЭ СССР». Вып. 4. М., Атомиздат, 1967, стр. 513.
2. С. П. Белов и др. «Атомная энергия», 18, 136 (1965).
3. F. Brooks. Nucl. Instrum. and Methods, 4, No. 3, 151 (1959).
4. Ю. А. Казанский и др. «Атомная энергия», 20, 143 (1966).
5. В. Г. Двухшерстнов и др. «Приборы и техника эксперимента», № 4, 39 (1969).
6. В. Ф. Турчин. «Атомная энергия», 4, 244 (1958).
7. Б. С. Желепов, Л. К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. $A < 100$. М.—Л., «Наука», 1966.
8. Б. С. Желепов, Л. К. Пекер, В. О. Сергеев. Схемы распада радиоактивных ядер. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1963.
9. L. Cranberg, I. Levin. Phys. Rev., 103, 612 (1956).
10. Л. П. Абагян и др. Групповые константы для расчета ядерных реакторов. М., Атомиздат, 1964.
11. Д. Л. Бродер и др. «Атомная энергия», 16, 103 (1964).
12. R. Benjamin et al. Nucl. Phys., 79, No. 2, 241 (1966).
13. В. М. Безотосный и др. «Ядерная физика», 3, № 5, 861 (1966).
14. P. Martin, D. Stewart. F. Nucl. Energy, 19, No. 6, 447 (1965).
15. S. Mathur et al. Nucl. Phys., 73, No. 3, 561 (1965).
16. T. Schmidt KFK 120 (EANDC-E-35V), 1962.

Электролитическое выделение плутония из растворов муравьиной кислоты

А. Г. САМАРЦЕВА, З. А. ЖУРАВЛЕВА

УДК 543.251:546.799.4

Характерная особенность урана и трансурановых элементов в водных растворах — высокий отрицательный потенциал [1] при реакции восстановления $Me^{3+} + 3e^- = Me$. В связи с ограничениями, накладываемыми условиями электрохимического равновесия воды, эти элементы не могут осаждаться на катоде в элементарном состоянии. При электролизе из водных растворов они осаждаются либо в виде труднорастворимых гидроксидов, либо в виде окси-

сей [2]. С поверхностью электрода такие катодные осадки имеют меньшую прочность сцепления, чем металлические покрытия. Однако при практическом нанесении слоев трансурановых элементов на подложки, а также количественном анализе этих элементов метод их электролитического выделения из растворов имеет большое значение.

Известно [3], что при электролитическом осаждении трансурановых элементов из раство-