

на 5–20% нержавеющей стали (см. рисунок), полнота расплавления.

Полученные сплавы циркония обладают высокой пластичностью, низким поверхностным натяжением, поэтому они растекаются по дну тигля.

Сплавы циркония в различной степени смачивают оксиды урана. Наибольший краевой угол смачивания имеют сплавы цирконий — железо  $[(68 \div 75) \pm 5 \text{ градуса}]$  (см. таблицу). При температуре  $1250\text{--}1300^\circ \text{C}$  наблюдается незначительное взаимодействие циркония, находящегося в расплаве, с твердой двуокисью урана:  $Zr + UO_2 = ZrO_2 + U$ . Восстановленный уран растворяется в расплаве. Наибольшее количество урана переходит в сплавы циркония с никелем (2,2%), нержавеющей сталью (0,92%), наименьшее — в сплавы с железом (0,18%) и медью (0,48%).

Таким образом, экспериментально установлены условия смачивания циркония с некоторыми металлами при температуре до  $1300^\circ \text{C}$ . Показано отсутствие значи-

тельного взаимодействия и смачиваемости двуокиси урана расплавами циркония с присадками. Полученные данные позволяют приступить к исследованию термического вскрытия твэлов с циркониевой оболочкой оплавлением ее в присутствии металлических присадок.

Авторы выражают благодарность Н. А. Ниловой за интерес и помощь в работе, а также Е. М. Валуеву и Э. В. Комарову за помощь в выполнении экспериментов.

Поступило в Редакцию 12/VIII 1971 г.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Г. П. Новоселов, А. Т. Агеенков. «Атомная энергия», 16, 230 (1969).
2. E. Hayes et al. Trans. ASM, 43, 888 (1951).
3. C. Lundin et al. J. Metals, 5, 273 (1953).
4. Б. Ластмен, Ф. Кера. Металлургия циркония. М., Изд-во иностр. лит., 1959.

## Рентгенофлуоресцентный анализ тяжелых элементов методом $\alpha X$ -совпадений

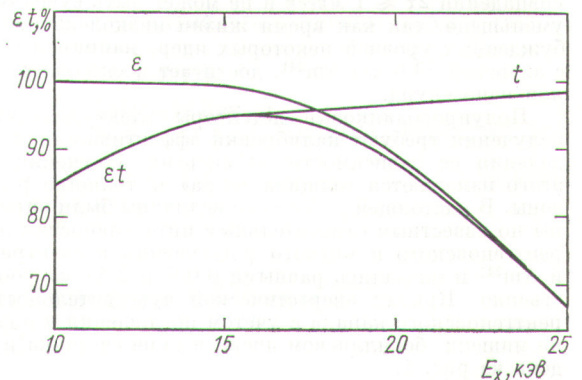
Б. М. АЛЕКСАНДРОВ, С. М. СОЛОВЬЕВ, Л. И. ТЫВИН, В. П. ЭЙСМОНТ

УДК 543.53

Одним из важных методов радиоизотопного анализа тяжелых элементов является  $\alpha$ -спектрометрия. В настоящее время известно около 1000  $\alpha$ -линий 40 естественных и 200 искусственных  $\alpha$ -излучателей [1]. Однако более 90% этих линий сосредоточено в узком энергетическом интервале (4,5–8,0 Мэв). Естественно поэтому, что  $\alpha$ -линии многих элементов оказываются очень близкими друг к другу и не могут быть разрешены применяемыми для изотопного анализа полупроводниковыми  $\alpha$ -спектрометрами, лучшие образцы которых имеют разрешение 10–15 кэв. Причем получить такое разрешение можно лишь с очень тонкими источниками.

Метод  $\alpha$ -,  $\gamma$ -совпадений в некоторых случаях оказывается малоэффективным, например для четно-четных ядер. Всем им свойственна ротационная природа низколежащих (наиболее интенсивно заселяемых) уровней возбуждения, энергии которых мало отличаются от ядра к ядру. Кроме того, переходы с этих уровней сильно конвертированные (коэффициент внутренней конверсии  $\sim 1000$ ), так что на  $\gamma$ -излучение приходится очень малая доля. Однако в результате внутренней конверсии возникает интенсивное рентгеновское  $L$ -излучение с выходом порядка 0,1 кванта на  $\alpha$ -распад. На основе энергетического распределения флуоресцентного  $L$ -излучения (полученного ионизационными методами), известны три больших пика  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$  и  $L_\gamma$ , энергии которых монотонно увеличиваются с ростом заряда ядра  $Z$ , сдвигаясь при  $\Delta Z = 1$  примерно на 300, 500 и 700 эв соответственно [2]. Этого сдвига оказывается достаточно для четкого разделения соседних по  $Z$  элементов, что для измерения спектров использовать обычные полупроводниковые Si (Li)- или Ge (Li)-спектрометры. Энергетическое разрешение которых составляет несколько сот электронвольт. Ограничение рентгенофлуоресцентного метода, связанное с трудностью его использования для анализа изотопов одного и того же элемента, оказывается несущественным, так как чаще всего в силу известных закономерностей  $\alpha$ -распада совпадают  $\alpha$ -спектры ядер, отличающихся по  $A$  и  $Z$ . Например, оказываются близкими линии  $Pu^{238}$

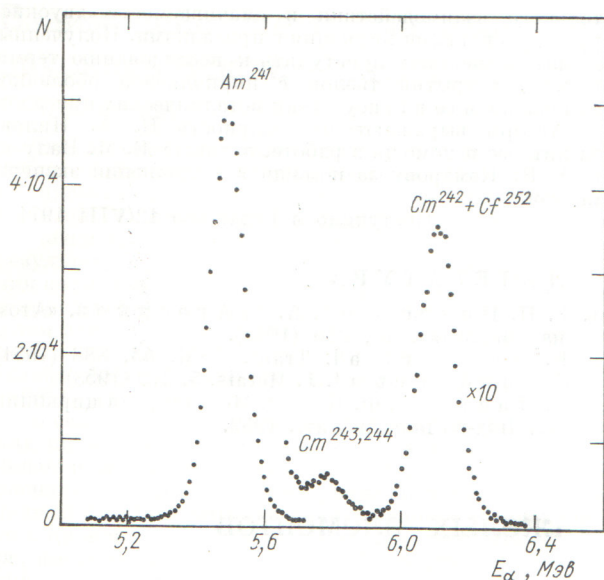
(5499 кэв, 71%; 5456 кэв, 29%) и  $Am^{241}$  (5486 кэв, 86%; 5443 кэв, 13%); а также  $Cm^{242}$  (6112 кэв, 74%; 6068 кэв, 26%) и  $Cf^{252}$  (6118 кэв, 84%); 6075 кэв, 16%)\*. Кроме того, при отсутствии энергетических сдвигов  $L$ -излучения (у изотопов одного элемента) возможен анализ по числу квантов  $L$ -излучения на акт распада, которое может быть различным для различных изотопов. Эти соображения и привели к разработке метода  $\alpha X$ -совпадений для анализа тяжелых элементов.



Р и с. 1. Зависимость чувствительности  $et$  спектрометра от энергии излучения ( $\epsilon$  — эффективность,  $t$  — проницаемость).

Для измерения энергетических распределений  $\alpha$ -частиц и рентгеновских квантов используются соответственно поверхностно-барьерный Si (Au)- и диффузионно-дрейфовый Si (Li)-детекторы. Они заключены в одну

\* В процентах указаны относительные интенсивности линий.



Р и с. 2. Спектр  $\alpha$ -частиц анализируемой мишени.

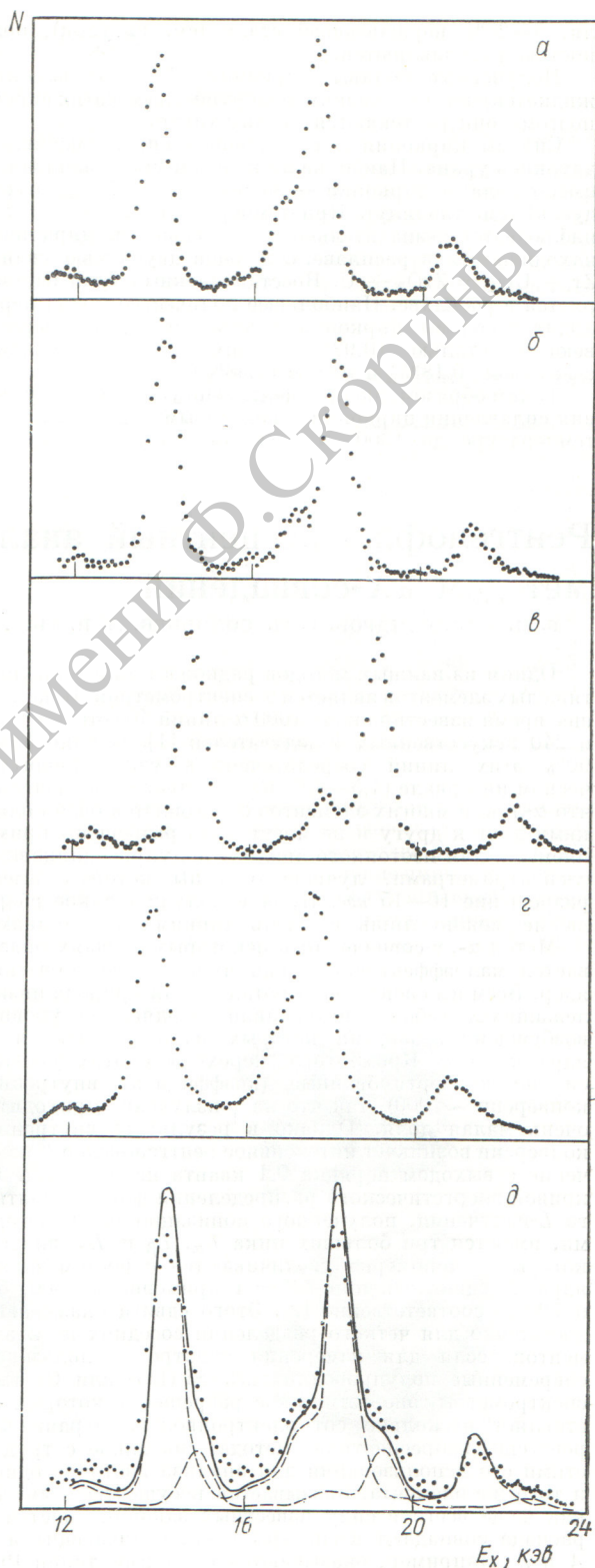
вакуумную камеру, в которую введен хладопровод. На хладопроводе, опускаемом в дьюар с жидким азотом, смонтирован детектор рентгеновского излучения и полевой транзистор [3]. Над детектором, прикрытым бериллиевым диском толщиной 0,1 мм, на расстоянии несколько миллиметров от золотого слоя помещается анализируемая мишень, над которой, в свою очередь, располагается детектор  $\alpha$ -излучения. Энергетическое разрешение рентгеновского канала около 700 эв, а канала  $\alpha$ -частиц 80 кэв. Разрешающее время схемы совпадений  $2\tau \approx 1$  мксек и не может быть существенно уменьшено, так как время жизни низколежащих возбужденных уровней некоторых ядер, например уровня с энергией 59,6 кэв  $Am^{241}$ , достигает нескольких десятков наносекунд.

Полупроводниковые детекторы электромагнитного излучения требуют калибровки эффективности и определения ее зависимости от энергии излучения. Для этого измеряются толщина «окна» и толщина рабочей зоны. В настоящей работе эти величины были определены по известным относительным интенсивностям линий рентгеновского и мягкого  $\gamma$ -излучения в спектре  $Co^{57}$  и  $Am^{241}$  и оказались равными 0,007 и 2,45 мм соответственно. Кривая энергетической чувствительности  $\epsilon$  рентгеновского канала с учетом поглощения в подложке мишени, бериллиевом диске и окне счетчика приведена на рис. 1.

В качестве контрольного примера решали задачу определения малого количества калифорния в мишени  $Am^{241} + Cm^{242-244} + Cf^{252}$ . Как уже отмечалось,  $\alpha$ -линии  $Cf^{252}$  и  $Cm^{242}$  близки друг к другу и прямое определение  $Cf^{252}$  по  $\alpha$ -спектру затруднено. Спектр  $\alpha$ -частиц анализируемой мишени показан на рис. 2.

Р и с. 3. Спектры характеристического L-излучения, сопровождающего  $\alpha$ -распад:

$Am^{241}$  (а);  $Cm^{242}$  (б);  $Cf^{252}$  (в); смеси изотопов  $Am^{241} + Cm^{242-244} + Cf^{252}$  (г) и смеси  $Cm^{242} + Cf^{252}$  (д). На последнем рисунке показаны отдельно спектры  $Cm^{242}$  и  $Cf^{252}$  (в пропорции, найденной по числу спонтанных делений) и их сумма.



Видны линии  $Am^{241}$ ,  $Cm^{243}$ ,  $^{244}$  и  $Cm^{242} + Cf^{252}$ ; последние включают также несколько переходов на нижние уровни  $Cm^{242}$ ; их доля в этой линии может составлять несколько процентов. При использовании метода  $\alpha X$ -совпадений для количественного анализа относительных вкладов калифорния и америция в общую  $\alpha$ -линию предполагается, что относительные выходы рентгеновского излучения на акт  $\alpha$ -распада для этих элементов известны. Для определения относительных выходов излучения  $Cm^{242}$  и  $Cf^{252}$  изготовили дополнительно две мишени:  $Am^{241} + Cm^{242}$  и  $Am^{241} + Cf^{252}$ . Все три мишени были изготовлены методом термического распыления в вакууме смешанных растворов соответствующих элементов, тем самым достигалась не только высокая равномерность, но и идентичность поверхностных распределений калифорния, калифорния и америция. Это позволяло использовать америций как репер, свой для каждой мишени. Относительно этого репера и проводились все измерения для каждой мишени путем последовательного выделения соответствующих  $\alpha$ -линий (с помощью дифференциального дискриминатора  $\alpha$ -канала). Измерялся спектр  $L$ -излучения, совпадающего с этой линией, и определялось число  $\alpha L$ -совпадений на одну  $\alpha$ -частицу  $N_{\alpha L}/N_{\alpha}$  для америция и соответствующих элементов (для их смеси). Таким образом были определены относительные выходы  $L$ -излучения на  $\alpha$ -распад для  $Cm^{242}$ ,  $Cf^{252}$  и  $Cm^{242} + Cf^{252}$ :

$$\delta N' = \frac{N'_{\alpha L}/N'_{\alpha}}{N_{\alpha L}/N_{\alpha}}; \quad \delta N'' = \frac{N''_{\alpha L}/N''_{\alpha}}{N_{\alpha L}/N_{\alpha}}$$

$$\text{и } \delta N''' = \frac{N'''_{\alpha L}/N'''_{\alpha}}{N_{\alpha L}/N_{\alpha}}$$

В каждом случае было зарегистрировано более 10 000 совпадений и найдено, что  $\delta N' = 0,310$ ;  $\delta N'' = 0,147$  и  $\delta N''' = 0,277$ . Уровень фона был большим лишь для  $Cm^{242} + Cf^{252}$ , где он составил около 50% от полного числа совпадений. Однако фон мог быть определен с требуемой точностью, так что относительная ошибка величин  $\delta N$  не превышала 2%. Обозначив через  $p$  долю  $\alpha$ -активности  $Cf^{252}$  в его общей с  $Cm^{242}$   $\alpha$ -линии, нетрудно получить соотношение  $p = \frac{\delta N' - \delta N''}{\delta N' - \delta N''}$  и найти, что  $p = 0,20 \pm 0,05$ . (При этом доля активности калифорния в полной  $\alpha$ -активности мишени оказывается равной  $0,016 \pm 0,002$ .)

Новую информацию о содержании изотопа и его атомном номере (когда состав элементов неизвестен)

можно получить из спектров  $L$ -излучения. На рис. 3 приведены полученные в работе энергетические распределения  $L$ -серий характеристического излучения, возникающего при  $\alpha$ -распаде  $Am^{241}$  (а)  $Cm^{242}$  с указанной ранее примесью  $Cm^{243}$  (б),  $Cf^{252}$  (в), а также спектры  $L$ -излучения анализируемой мишени без совпадения с какой-либо  $\alpha$ -линией (г) и в режиме совпадений с  $\alpha$ -линией  $Cm^{242} + Cf^{252}$  (д). Видно, что в полном спектре рентгеновского излучения мишени его подавляющая часть приходится на америций. В спектре же, соответствующем  $\alpha$ -линии  $Cm + Cf$ , вклад калифорния оказывается уже заметным.

В настоящей работе пара  $Cm^{242}$  и  $Cf^{252}$  была выбрана не случайно. У изотопа калифорния высокая скорость спонтанного деления, что допускает независимую оценку его содержания в мишени. Было найдено, что доля  $\alpha$ -активности  $p$  калифорния в линии  $Cm + Cf$  составляет  $0,26 \pm 0,02$ , что в пределах ошибок определения совпадает с приведенной выше величиной. Значение  $\frac{\delta N'}{\delta N''} = 2,11 \pm 0,06$ , поэтому вычисленный та-

ким образом вклад калифорния в  $L$ -излучение двух изотопов оказывается равным  $0,15 \pm 0,02$  (в полном  $L$ -излучении мишени  $0,0033 \pm 0,0004$ ). В соответствующей по площадям пропорции  $(1 - 0,15)/0,15$  были сложены распределения для  $Cm^{242}$  и  $Cf^{252}$ . Эти компоненты и результат их сложения показаны на рис. 3, д. Сравнение показывает, что измеренное распределение  $L$ -излучения смеси этих изотопов соответствует вычисленному. Некоторое уширение спектра смеси по сравнению с суммой спектров отдельных компонентов связано с большей в этом случае загрузкой рентгеновского канала, чем при измерениях спектров отдельных изотопов.

На наш взгляд, приведенный пример подтверждает возможность и целесообразность использования полупроводникового спектрометра  $\alpha X$ -совпадений для анализа сложной смеси тяжелых элементов.

Авторы благодарят Н. А. Перфилова за внимание к работе.

Поступило в Редакцию 17/VIII 1971 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. J. P o s t. Actinides Rev., 1, 55 (1967).
2. E. S t o r m, H. I s r a e l. Nucl. Data Tables, A7, 565 (1970).
3. С. М. Соловьев и др. «Приборы и техника эксперимента», № 1 (1972).

## Эффективные сечения поглощения нейтронов $Cf^{252}$ и $Cf^{253}$ в центральном канале реактора СМ-2

В. А. АБУФРИЕВ, В. Д. ГАВРИЛОВ, Ю. С. ЗАМЯТНИН, В. В. ИВАНЕНКО, Г. Н. ЯКОВЛЕВ

УДК 539.125.5.173

Эффективные сечения поглощения нейтронов изотопа калифорния, измеренные для различных реакторов, отличаются друг от друга на величину, значительно превышающую погрешности эксперимента [1, 2].

Отличие характеристик нейтронных спектров реакторов, являющееся одной из причин отмеченного разброса, ограничивает возможности использования указанных сечений в расчетах процессов накопления изотопов в неоднотипных реакторах.

Для определения эффективных сечений поглощения нейтронов в центральном канале реактора СМ-2 были облучены две мишени, содержащие  $Cf^{252}$  с примесью более легких изотопов калифорния ( $\sim 20\%$ ). Изотопный состав облученных мишеней исследовался на полупроводниковом  $\alpha$ -спектрометре с энергетическим разрешением  $\sim (25 \div 30)$  кэВ. Интегральные потоки нейтронов, измеренные кобальтовыми мониторами, составляли  $1,8 \cdot 10^{21}$  и  $1,1 \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup>. Сечение выгорания  $Cf^{252}$  найдено равным  $72 \pm 18$  барн. Принимая во внимание