

УДК 539.173.84

Измерение отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U в диапазоне энергии нейтронов 0,024—7,4 МэВ

ФУРСОВ Б. И., КУПРИЯНОВ В. М., ИВАНОВ В. И., СМЕРЕНКИН Г. И.

Сечение деления ^{239}Pu — одна из важнейших ядерно-физических констант для расчета реакторов на быстрых нейтронах. Погрешность отношения $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$ по современным требованиям в сочетании с требованием к стандарту (сечению деления ^{235}U) в области энергии нейтронов от нескольких единиц электронвольт до 10 МэВ составляет 1—2% [1]. Совокупность экспериментальных данных по сечениям деления ^{239}Pu , ^{235}U и их отношению такой точности не обеспечивает, что заметно снижает надежность оценок технико-экономических параметров реакторов на быстрых нейтронах. В этой связи необходимо провести дополнительные измерения с высокой точностью в широком диапазоне энергии нейтронов.

Эта статья посвящена измерению отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U в интервале энергии нейтронов 0,024—7,4 МэВ и является завершающим этапом [2]. Настоящая работа опирается на предварительные результаты, представленные в [2], но содержит ряд изменений, обусловленных проведением дополнительных измерений второй независимой калибровки по α -счету, более тщательным анализом поправок и структуры погрешностей. Кроме того, использованы последние согласованные данные по тепловым сечениям, g_7 -факторам и периодам полураспада ^{239}Pu и ^{235}U [3].

Применялась методика, описанная в [2, 4]. Измерения проводились на электростатических ускорителях. Источниками нейтронов служили $\text{Li}(p, n)$ -, $\text{T}(p, n)$ - и $\text{D}(d, n)$ -реакции, осуществлявшиеся на твердых мишенях из гидрида титана или фторида лития на молибденовых подложках. Диапазон энергии нейтронов ниже 127 кэВ достигался проведением измерений на $\text{Li}(p, n)$ -реакции под углом 120° к направлению падающих на мишень протонов. Измерения на этой реакции под углом 0° позволили изучить диапазон 0,127—0,320 МэВ. $\text{D}(d, n)$ -реакция использовалась как источник нейтронов в области 3,6—7,4 МэВ.

Энергетическая зависимость отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U изучалась детектором, состоящим из двух размещенных последовательно сдвоенных ионизационных камер, содержащих две пары слоев ^{239}Pu и ^{235}U , что позволило одновременно получить два независимых набо-

ра данных. Применение неполного пробега осколков деления в ионизационных камерах обеспечило надежное разделение импульсов, обусловленных осколками и α -частицами.

В работе применялись слои из окислов урана и плутония диаметром 10 и 15 мм, толщиной 0,5 мг/см², нанесенных на тонкие (0,06 мм) подложки из полированного алюминия. В ионизационной методике использовались слои следующего изотопного состава, %: ^{239}Pu (^{239}Pu 99,891, ^{240}Pu 0,109); ^{235}U (^{235}U 99,9955, ^{234}U 0,0010, ^{236}U 0,0035, ^{238}U \leq 0,0005). В описанной ниже методике со стеклянными детекторами, которая применялась для измерения абсолютных значений отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U , в целях удобства проведения калибровки по α -активности использовался слой ^{235}U , содержащий значительное количество ^{234}U (^{235}U 91,2326%, ^{234}U 1,1003 \pm 0,0073%, ^{236}U 0,0036%, ^{238}U 7,6635%).

Измерения проводили в два этапа. На первом с помощью ионизационной методики детально изучали энергетическую зависимость отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U во всем диапазоне от 24 кэВ до 7,4 МэВ, изучали различные компоненты нейтронного фона. После введения необходимых поправок результаты двух сдвоенных камер усредняли.

На втором этапе использовали вспомогательную методику, состоящую из пары слоев ^{239}Pu и ^{235}U и двух цилиндрических стеклянных детекторов, помещенных в вакуумированную камеру. С помощью этой методики на ускорителях измеряли отношение делений в слоях ^{239}Pu и ^{235}U для 13 значений энергии нейтронов, распределенных равномерно по всему изучаемому диапазону. Затем для этой пары слоев двумя независимыми способами измеряли отношение количеств делящихся ядер ^{239}Pu и ^{235}U . Первым способом это отношение было определено проведением измерений в тепловой колонне реактора БР-5 (БР-10), вторым — по отношению α -активностей слоев.

Использование методики стекол для определения абсолютных значений отношения сечений деления обусловлено удобством ее применения для измерений в тепловой колонне реактора и постоянной эффективностью регистрации осколков деления стеклами, что особенно важно

при проведении разделенных во времени экспериментов на ускорителях и реакторе. С другой стороны, применение этой методики для детального изучения отношения сечений деления во всем диапазоне энергий нейтронов связано с просмотром большого числа стеклянных детекторов, что очень трудоемко.

Тепловую калибровку проводили дважды с интервалом около двух лет — в начале и в конце всего цикла экспериментов. Измерения проводили в графитовой колонне реактора БР-5 (во втором случае реактор был модернизирован в БР-10) на тепловом спектре с соотношением эпитепловых и тепловых нейтронов $\sim 10^{-4}$. Для определения отношения количеств делящихся ядер в слоях ^{239}Pu и ^{235}U необходимо знать температуру максвелловского спектра нейтронов тепловой колонны и отношение сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U для этого спектра.

Температуру спектра нейтронов определяли пропусканием через золотой фильтр [5]. Детектором служил двусторонний слой ^{239}Pu (или ^{235}U) толщиной $0,5 \text{ мг/см}^2$, нанесенный на тонкую ($0,06 \text{ мм}$) алюминиевую подложку и заключенный между золотыми фольгами толщиной 349 мг/см^2 . Осколки деления регистрировались тонкими (20 мкКи) слюдяными детекторами, помещенными в контакте со слоем. Сравнение чисел деления слоя с золотым поглотителем и без него дало возможность оценить температуру спектра нейтронов. В первом опыте было получено значение $22 \pm 12 \text{ }^\circ\text{C}$, во втором $27 \pm 11 \text{ }^\circ\text{C}$. В то же время результаты тепловых калибровок систематически не различались, в связи с чем они были усреднены и им была приписана усредненная по двум опытам температура нейтронного спектра $24,7 \pm 8,1 \text{ }^\circ\text{C}$.

Для нейтронов максвелловского спектра с температурой $24,7 \text{ }^\circ\text{C}$ было принято отношение сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U , равное $1,3848$, которое было получено из значения этого отношения для $20 \text{ }^\circ\text{C}$ [3] с учетом энергетической зависимости g_f -факторов для ^{239}Pu [6] и ^{235}U [7]. Погрешность определения отношения количеств делящихся ядер в слоях методом тепловой калибровки составила $1,41\%$, в которую основной вклад ($1,08\%$) внесла неопределенность температуры нейтронного спектра ($8,1 \text{ }^\circ\text{C}$).

Калибровка сравнением α -активностей слоев ^{239}Pu и ^{235}U проведена с помощью полупроводникового детектора в «хорошей» геометрии. Поскольку слой ^{235}U содержал $1,1\%$ ^{234}U , его α -активность примерно в 850 раз отличалась от α -активности слоя ^{239}Pu . В этих условиях

удалось провести калибровку с точностью $0,98\%$. Использовались значения периодов полураспада для ^{239}Pu и ^{234}U из работы [3], для ^{235}U принималось значение $(7,0381 \pm 0,0048) \times 10^8 \text{ лет}$ [8].

Два значения отношения количеств делящихся ядер в слоях ^{239}Pu и ^{235}U , полученные разными методами, различались на $0,9\%$, причем калибровка по α -активности дает основание предполагать, что температура нейтронного спектра, возможно, была несколько выше, чем было получено в эксперименте. Результирующая погрешность отношения количеств ядер в слоях, усредненного по двум опытам, составила $0,81\%$. В эту неопределенность помимо экспериментальных погрешностей включены неопределенности стандартов — отношения тепловых сечений, периодов полураспада и т. п.

Измерения методикой стекол на ускорителях в сочетании с определением отношения количеств делящихся ядер в слоях позволили получить 13 абсолютных значений отношения сечения деления ^{239}Pu и ^{235}U , на которые затем нормировалась детальная кривая энергетической зависимости, изученная ионизационной методикой.

Различные компоненты нейтронного фона исследовались так же, как описано в [2, 4]. Фон нейтронов, рассеянных стенами экспериментального зала, измерялся по отклонению скорости счета от зависимости $1/R^2$ при удалении камеры от мишени ускорителя. Поправка на эту составляющую фона не превосходила $0,2\%$ для измерений под углом 0° и достигала $2,5\%$ для измерений под углом 120° ($E_n = 24 \text{ кэВ}$).

Поправка на фон нейтронов, рассеянных на конструкции мишени, измерялась увеличением эффективной толщины конструкции мишени в два раза с последующей экстраполяцией к нулевой толщине. Для $E_n = 24 \text{ кэВ}$ эта поправка была максимальной и достигала $4,1\%$. Для измерений под углом она изменялась в пределах $0,1\text{—}1,8\%$.

Фон сопутствующих (p, n)- и (d, n)-реакций на молибдене и титане, входящих в состав мишени, измерялся на шаблоне из молибдена с нанесенным на него титаном такой же толщины, что и в рабочей мишени, но не содержащим трития или дейтерия.

Для (p, n)-реакции максимальная поправка составила $0,3\%$ ($E_n = 3,4 \text{ МэВ}$). Для (d, n)-реакции поправка отношения сечений деления достигала $3,45\%$ ($E_n = 7,4 \text{ МэВ}$), при этом число делений ядер ^{239}Pu , обусловленных ней-

Отношение сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U

Таблица 1

E_n , МэВ	ΔE_n , кэВ	σ_f^0/σ_f^1	$\Delta\sigma_f^0/\sigma_f^1$, %	E_n , МэВ	ΔE_n , кэВ	σ_f^0/σ_f^1	$\Delta\sigma_f^0/\sigma_f^1$, %
0,127	20	0,995	1,53	2,25	72	1,559	1,12
0,320	40	1,200	1,30	3,00	84	1,554	1,14
0,500	34	1,347	1,56	4,00	146	1,580	1,30
0,750	32	1,469	1,31	5,00	120	1,611	1,36
1,00	31	1,432	1,26	6,00	142	1,642	1,16
1,35	50	1,537	1,30	7,00	173	1,423	1,32
1,70	60	1,547	1,22				

тронами фона, достигало 24—28% полного числа делений.

Ряд поправок вносился расчетным путем. Поправка, учитывающая деление неосновных изотопов, была значительной только для методики стекол, в которой слой ^{235}U содержал заметное количество ^{234}U и ^{238}U . Она достигала 6,6% для $E_n = 7$ МэВ. Использовались отношения сечений деления $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ и $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$ [9]; отношение $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ взято из работы [4].

Эффективность регистрации осколков деления стеклянными цилиндрическими детекторами зависит от угловых распределений осколков.

Поправки и погрешности измерений отношения сечения делений ^{239}Pu и ^{235}U для $E_n = 3$ МэВ

Таблица 2

№ пп.	Источники поправок и погрешностей	Поправка, %	Погрешность, %
1	Отношение чисел делящихся ядер в слоях ^{239}Pu и ^{235}U	—	0,81
2	Просмотр стеклянных детекторов	—	0,40
3	Различие потоков нейтронов в слоях ^{239}Pu и ^{235}U	1,22	0,18
4	Угловая анизотропия деления	0,72	0,35
5	Статистика измерений на быстрых нейтронах	—	0,47
6	Деление неосновных изотопов	4,96	0,17
7	Фон нейтронов, рассеянных на конструкции мишени	0,30	0,16
8	Фон нейтронов экспериментального зала	0,12	0,10
9	Фон нейтронов сопутствующих (p, n)-реакций	0,22	0,10
10	Неупругое рассеяние	—	0,20
Полная погрешность		—	1,14

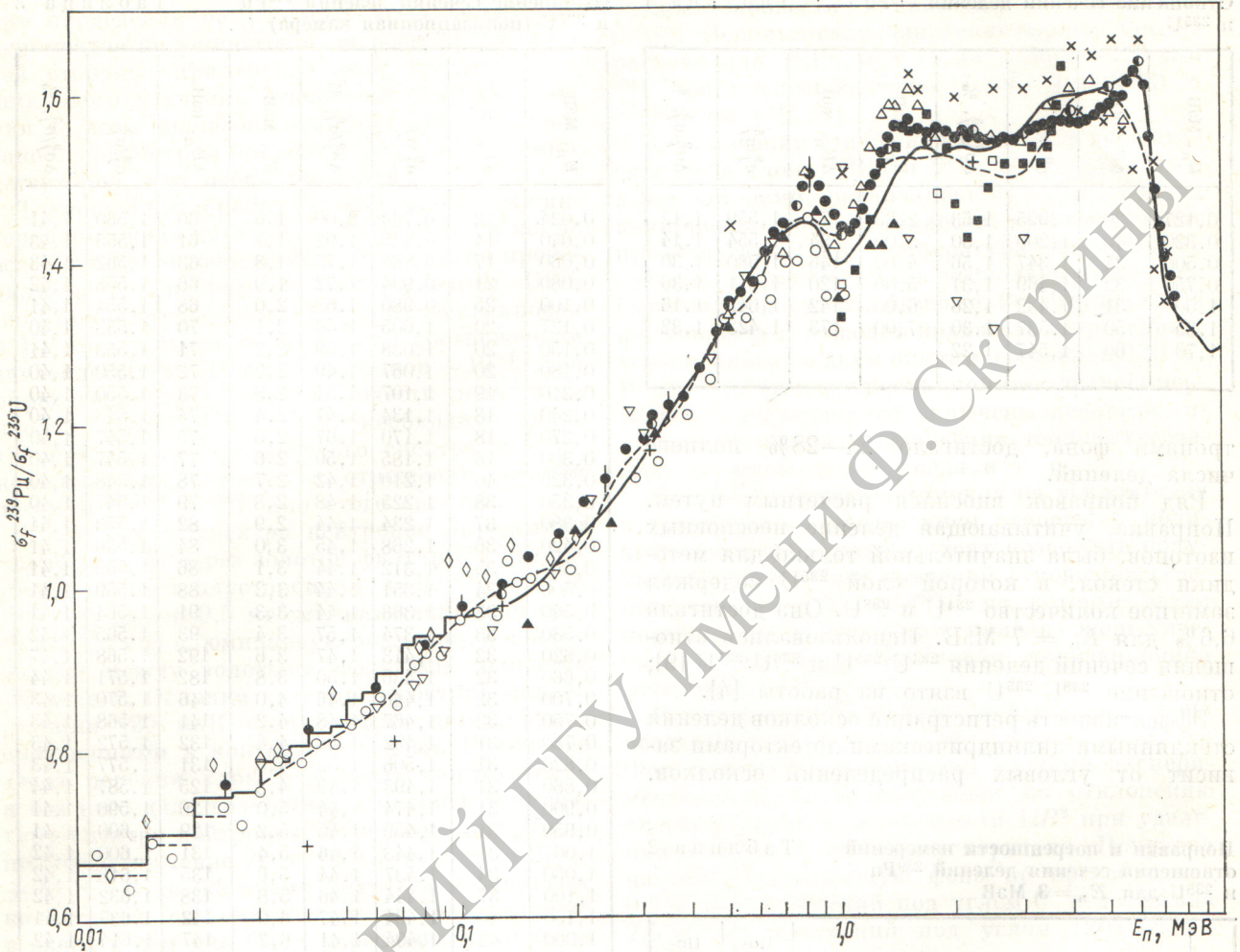
Отношение сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U (ионизационная камера)

Таблица 3

E_n , МэВ	ΔE_n , кэВ	σ_f^0/σ_f^1	$\Delta\sigma_f^0/\sigma_f^1$, %	E_n , МэВ	ΔE_n , кэВ	σ_f^0/σ_f^1	$\Delta\sigma_f^0/\sigma_f^1$, %
0,024	12	0,764	2,00	1,6	60	1,560	1,44
0,040	14	0,829	1,92	1,7	61	1,555	1,43
0,060	17	0,881	1,75	1,8	63	1,562	1,43
0,080	21	0,934	1,72	1,9	66	1,558	1,42
0,100	25	0,980	1,63	2,0	68	1,554	1,41
0,127	20	1,005	1,46	2,1	70	1,558	1,40
0,150	20	1,038	1,59	2,2	71	1,553	1,41
0,180	20	1,067	1,49	2,25	72	1,550	1,40
0,210	19	1,107	1,54	2,3	73	1,550	1,40
0,240	18	1,134	1,47	2,4	74	1,548	1,40
0,270	18	1,170	1,67	2,5	75	1,547	1,40
0,300	18	1,185	1,50	2,6	77	1,547	1,40
0,320	40	1,210	1,42	2,7	78	1,548	1,40
0,350	38	1,225	1,48	2,8	79	1,547	1,40
0,380	37	1,234	1,44	2,9	82	1,553	1,41
0,420	36	1,268	1,45	3,0	84	1,556	1,41
0,460	35	1,312	1,44	3,1	86	1,559	1,41
0,500	34	1,351	1,44	3,2	88	1,559	1,41
0,540	33	1,363	1,44	3,3	91	1,564	1,41
0,580	33	1,374	1,57	3,4	93	1,565	1,42
0,620	32	1,413	1,47	3,6	92	1,568	1,47
0,660	32	1,436	1,50	3,8	182	1,571	1,44
0,700	32	1,446	1,46	4,0	146	1,570	1,43
0,750	32	1,467	1,48	4,2	141	1,568	1,43
0,780	31	1,492	1,48	4,4	132	1,572	1,43
0,820	31	1,506	1,52	4,6	131	1,577	1,43
0,860	31	1,493	1,49	4,8	125	1,587	1,44
0,900	31	1,474	1,44	5,0	126	1,590	1,41
0,950	31	1,459	1,45	5,2	129	1,600	1,41
1,00	31	1,443	1,46	5,4	131	1,600	1,42
1,050	34	1,437	1,44	5,6	135	1,618	1,42
1,100	37	1,444	1,46	5,8	138	1,632	1,42
1,150	40	1,464	1,47	6,0	142	1,637	1,41
1,200	42	1,494	1,41	6,2	147	1,614	1,42
1,250	44	1,507	1,41	6,4	152	1,615	1,43
1,300	45	1,534	1,41	6,6	160	1,486	1,42
1,350	46	1,552	1,41	6,8	167	1,442	1,44
1,400	47	1,563	1,42	7,0	173	1,402	1,44
1,450	48	1,563	1,41	7,2	178	1,380	1,45
1,500	49	1,572	1,41	7,4	183	1,355	1,48

Измерения отношения сечений деления методикой стекол позволили одновременно определить угловую анизотропию деления ^{239}Pu и ^{235}U , значения которой использовали затем для введения поправки.

Ввиду того что ионизационная методика использовалась только для определения энергетической зависимости отношения сечений деления, не было необходимости определять абсолютную эффективность камер деления. Поправка на энергетическую зависимость эффективности, обусловленную движением центра масс



Отношение сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U :

— [10]; - - - [11]; ○ — [12]; ▽ — [13]; + — [14]; ▲ — [15]; ◇ — [16]; △ — [17]; × — [18]; ■ — [19]; □ — [20].
● — камера; ○ — стекла, результаты настоящей работы

и угловой анизотропией деления, изменялась от $\sim 0,1$ до $2,5\%$.

Для абсолютных значений отношений сечений деления вводилась небольшая поправка, учитывающая незначительное различие потоков нейтронов в слоях ^{239}Pu и ^{235}U , разделенных подложками слоев. Для результатов, полученных ионизационной методикой, это различие учитывалось нормировкой.

Усреднение результатов, полученных двумя сведенными ионизационными камерами, устраняет необходимость учета упругого рассеяния нейтронов на материале подложек и электрода между делящимися слоями, поскольку в двух камерах слои ^{239}Pu и ^{235}U располагались в раз-

ной последовательности. При измерениях методикой стекол для устранения этой поправки облучение пары слоев проводилось с обеих сторон для каждой энергии нейтронов. Оценка неупругого рассеяния стенками детектора, материалом электрода и подложками слоев позволила считать его пренебрежимо малым ($\leq 0,2\%$).

Результаты, полученные методикой стекол, представлены в табл. 1. Указана полная погрешность отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U , являющаяся среднеквадратической суммой всех выявленных неопределенностей. В табл. 2 показана структура характерных погрешностей измерения для $E_n = 3$ МэВ, полученного методикой стекол.

В табл. 3 представлены данные измерений ионизационной методикой. Приведена полная погрешность результатов, которая квадратично складывалась из: погрешности энергетической зависимости отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U (0,5—1,5); средней погрешности абсолютных значений, полученных методикой стеккол (1,3%); ошибки нормировки кривой энергетической зависимости на опорные значения (0,22%).

Неопределенность измерений энергетической зависимости отношения сечений деления ионизационной методикой включает в себя компоненты 5—10 из табл. 2 и ошибку в определении энергетической зависимости эффективности камер деления, принятую во всем диапазоне и равную 0,3%.

В ионизационной методике использовались образцы ^{239}Pu и ^{235}U очень высокой изотопной чистоты, поэтому поправка на деление неосновных изотопов не превосходила 0,15%, а соответствующая ошибка составила 0,1%.

Погрешности, связанные с учетом фона нейтронов, рассеянных на конструкции мишени, и фона экспериментального зала в измерениях под углом 120° (диапазон 24—100 кэВ) составили соответственно 1,05—0,35 и 0,80—0,32%. Максимальная ошибка, связанная с поправкой 3,45% на фон сопутствующих (d, n)-реакций ($E_n = 7,4$ МэВ), оценена в 0,54%.

Полная погрешность основной совокупности результатов, полученных ионизационной методикой, составила 1,4—1,5% и возростала до 2% при $E_n = 24$ кэВ, что обусловлено погрешностями определения фона нейтронов в измерениях под углом 120° и увеличением статистической ошибки, полученной из разброса результатов.

На рисунке данные настоящей работы сравниваются с оценками [10, 11] и результатами других работ, в которых проведены прямые измерения отношения сечений деления ^{239}Pu и ^{235}U . Согласие с оценками ниже 700 кэВ очень хорошее, при более высокой энергии результаты этой работы на 2—4% выше, для $E_n > 2,5$ МэВ различие в форме энергетической зависимости составляет $\sim 5\%$.

В диапазоне ниже 200 кэВ данные авторов хорошо согласуются с результатами [12], они выше данных [13—15], но несколько ниже

результатов [16], а при более высокой энергии нейтронов они выше результатов [12—15]. В области 0,5—1,5 МэВ наилучшее согласие получено с более поздней работой [17]. Для энергии нейтронов выше 1,5 МэВ данные этой работы согласуются по форме с высокими результатами [18]. Расхождение с данными [19] и абсолютными значениями [20] велики по величине и по форме энергетической зависимости.

Авторы выражают глубокую благодарность М. К. Голубевой за участие в работе.

Поступила в Редакцию 25/1 1977 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бобков Ю. Г., Пятницкая Л. Т., Усачев Л. Н. Препринт ФЭИ-527, Обнинск, 1974.
2. Фурсов Б. И., Куприянов В. М., Смирнин Г. Н. В кн.: Труды конф. «Нейтронная физика». Т. 6. М., Изд. ЦНИИатоминформ, 1976, с. 3.
3. Lemmel H. In: Proc. 4th Conf. on Nucl. Cross Sections and Technology. Washington, 3—7 March 1975, v. 1, p. 286.
4. Фурсов Б. И. и др. В кн.: Труды конф. «Нейтронная физика». Т. 4. Обнинск, Изд. ОНТИ ФЭИ, с. 3.
5. Бекурт К., Виртц К. Нейтронная физика. М., Атомиздат, 1968, с. 335.
6. Wagemans C., Deruytter A. «Ann. of Nucl. Energy», 1975, v. 2, p. 25.
7. Westcott C. AECL-1101, 1960.
8. Jaffey A. e.a. «Phys. Rev.», 1971, v. C4, p. 1889.
9. Hart W. ANSB(S), R 169, 1969.
10. Soverby M., Patrick B., Mather D. «J. Nucl. Sci. and Engng», 1974, v. 1, p. 409.
11. Конышин В. А. В сб.: Вопросы атомной науки и техники. Сер. «Ядерные константы». Вып. 16. М., изд. ЦНИИатоминформ, 1974, с. 329.
12. Pfletchinger E., Kappeler F. «Nucl. Sci. and Engng», 1970, v. 40, p. 375.
13. Allen W., Fergusson A. In: Proc. Symp. «Physical Society», London, 1957, v. 70A, p. 573.
14. White P., Hodgkinson J., Wall G. In: Proc. Symp. «Physics and Chemistry of Fission». Salzburg, 22—26 May 1965, v. 1, p. 219; White P., Warner G. «J. Nucl. Energy», 1967, v. 24, N 8, p. 671.
15. Poenitz W. «Nucl. Sci. and Engng», 1970, v. 40, p. 383.
16. Szabo I. e.a. In: Proc. 3rd Conf. on Neutron Cross Sections and Technology. Knoxville (USA), 1971, Rep. 71/06.
17. Poenitz W. «Nucl. Sci. and Engng», 1972, v. 47, p. 228.
18. Smith R., Henkel R., Nobles R. «Bull. Amer. Phys. Soc.», 1957, v. 2, p. 196.
19. Netter F. Rep. CEA-1913, 1961.
20. Нестеров В. Г., Смирнин Г. Н. «Атомная энергия», 1968, т. 24, вып. 1, с. 224.