

методом калибровки индикаторов в потоке тепловых нейтронов. В этом случае необходимо знать величину отношения Y_i^6/Y_i^7 . Анализ условий опытов на критических сборках и ядерных данных об осколках показывает, что наиболее точные оценки значения функционалов могут быть проведены в том случае, если в качестве осколка-монитора реакции деления будет выбран или ^{99}Mo , или ^{140}La , или ^{143}Ce .

Рассмотрим подробнее имеющуюся информацию о выходе этих осколков в системах с высокоэнергетическим спектром нейтронов.

Опубликованные данные о выходе ^{99}Mo довольно противоречивы. Наблюдается как уменьшение его выхода при увеличении средней энергии нейтронов, вызывающих деление, так и его увеличение. В подобной ситуации рекомендовать ^{99}Mo как индикатор скорости реакции деления ^{235}U или ^{239}Pu не представляется возможным. Следует отметить, что измерение интенсивности γ -излучения ^{99}Mo без его химического выделения представляет трудную задачу из-за присутствия в спектре ряда фоновых линий с близкой энергией. Точное выделение эффекта в этом случае требует использовать аппаратуру с предельно высоким разрешением, что и было обеспечено в настоящей работе.

Выход ^{140}La при делении ^{235}U и ^{239}U , полученный в настоящей работе, хорошо согласуется с данными работ других авторов. Слабая зависимость выхода ^{140}La от энергии нейтронов при делении ^{235}U делает удобным использование его как инди-

катора скорости реакции деления. При этом изменение его выхода при переходе от теплового спектра к спектру нейтронов деления не превышает 2%.

При делении ^{239}Pu выход ^{140}La возрастает с увеличением энергии нейтронов. В предельном случае (спектр нейтронов деления) увеличение выхода составляет 4,5% по сравнению с тепловым. Поэтому при использовании ^{140}La как индикатора скорости реакции деления ^{239}Pu возможно использовать соответствующее отношение $Y_{\text{La}}^6/Y_{\text{La}}^7$.

Выход ^{143}Ce при делении ^{235}U уменьшается с увеличением энергии нейтронов. Отношение выхода ^{143}Ce для спектра нейтронов деления к выходу для теплового спектра составляет $0,943 \pm 0,013$. Как и в предыдущем случае, использовать ^{143}Ce как индикатор скорости реакции деления ^{235}U можно только при соответствующем выборе $Y_{\text{Ce}}^6/Y_{\text{Ce}}^7$. При делении ^{239}Pu выход ^{143}Ce остается практически постоянным при изменении спектра нейтронов от теплового до спектра деления, т. е. в пределах погрешности измерений можно считать, что $Y_{\text{Ce}}^6/Y_{\text{Ce}}^7 = 1$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Walker W. In: Proc. Second Intern. Conf. on Nuclear Data for Reactor. Helsinki, 15—19 June 1970, IAEA-CN-26/3.
2. Walker W. In: Proc. Panel on Fission Product Nuclear Date. Bologna, 26—30 Nov. 1973, Rew. paper N 11a

Поступила в Редакцию 26.06.78
В окончательной редакции 11.12.78

УДК 550.35 : 537.591

О выходе нейтронов (α, n)-реакции на кислороде

БУЛАНЕНКО В. И.

Особый интерес к (α, n)-реакции на кислороде связан с тем, что основным ядерным топливом современных АЭС с отечественными реакторами ВВЭР, РБМК и БН и аналогичных зарубежных является двуокись урана. Для отработавшего топлива этих энергетических реакторов характерно довольно интенсивное нейтронное излучение ($\sim 10^5 - 10^6$ нейтр./с·кг) UO_2 [1—2], которое обусловлено (α, n)-реакцией на кислороде и спонтанным делением тяжелых ядер. Если для реакторов типа ВВЭР вклад нейтронов (α, n)-реакции в полный выход относительно невысок ($\sim 10-20\%$), то для реакторов БН этот компонент дает преобладающий вклад до 85—95%. Поэтому естествен интерес к этой реакции при разработке аналитических средств контроля делящихся веществ и обеспечении радиационной защиты окисного топлива.

Несмотря на довольно длительные исследования, имеющиеся в настоящее время, данные весьма неполны и остаются мало изученными два основ-

ных аспекта (α, n)-реакции на кислороде:

- 1) зависимость сечения $\sigma(E)$ -реакции в диапазоне энергий от 5,25 до 10 МэВ;
- 2) относительный вклад нейтронов реакции $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ в полный их выход и получение надежных опорных значений выхода нейтронов из толстой мишени q при разных энергиях α -частиц.

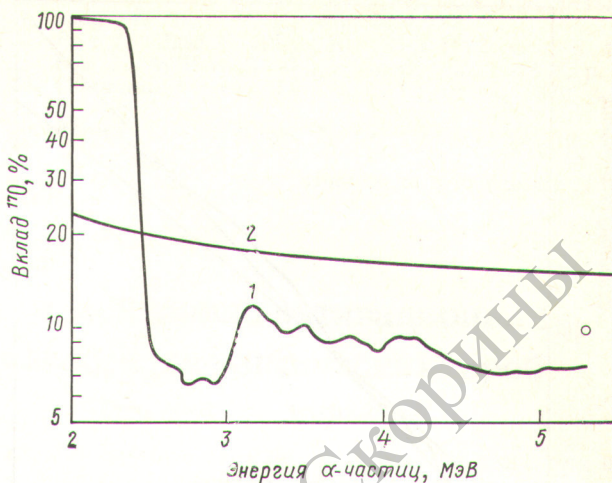
Экспериментальные опорные значения выхода нейтронов из толстой мишени природного кислорода q получены авторами работ [3—8] в основном при двух энергиях: $E_\alpha = 5,304$ МэВ (^{210}Po) и $E_\alpha = 7,687$ МэВ (^{214}Po) [9], равные соответственно $q = 0,07 \pm 0,01$ и $q = 0,56 \pm 0,03$ на 10^6 α -частиц. При этом здесь указана лишь статистическая погрешность, тогда как возможная систематическая составляет 10—15% [4]. Вышеприведенные значения получены с большой погрешностью. Тем не менее они явились основой для получения с определенными допущениями степенной зависимости q (нейтр./ 10^6 α -частиц) от энергии E_α (МэВ)

для кислорода вида [4]:

$$q(E_\alpha) = 6,36 \cdot 10^{-6} \cdot E_\alpha^{5,58}. \quad (1)$$

Полученная зависимость носит качественный характер и, как показано в работе [10], действительные значения могут отличаться на 20% и более в ту или иную сторону. Не соответствует реальной картине и полуэмпирическая формула, предложенная в работе [11]. Поэтому усилия многих экспериментаторов в течение нескольких лет были направлены на получение точного значения выхода нейтронов (α, n)-реакции для $^{238}\text{Pu O}_2$ [12–19], которое весьма широко используется для решения различных практических задач. Согласно этим работам полный выход нейтронов лежит в пределах $(1,5 - 2,2) \cdot 10^4$ нейтр./ $(\text{с} \cdot \text{г})^{238}\text{Pu}$. Наиболее точные измерения с погрешностью 1% были выполнены авторами работы [12], которые измеряли полный выход нейтронов для высокоочищенного $^{238}\text{PuO}_2$ малой массы и помимо обычных методических поправок ввели коррекцию на эффекты размножения, поглощение контейнером, различие энергетических спектров эталона и исследуемого источника. С полученным в работе [12] значением согласуются результаты работы [13] и частное сообщение Андерсона М. [14], которые определили выход нейтронов с погрешностью лучше 5%. Средневзвешенное по этим измерениям значение выхода нейтронов равно $(1,706 \pm 0,019) \times 10^4$ нейтр./ $(\text{с} \cdot \text{г})^{238}\text{Pu}$.

Основываясь на этом значении, получим еще одно опорное q . Составным компонентом выхода нейтронов является спонтанное деление ^{238}Pu , расчетное значение которого равно $(2,62 \pm 0,10) \times 10^3$ нейтр./ $(\text{с} \cdot \text{г})^{238}\text{Pu}$. Оно согласуется с экспериментальными значениями работ [16–19]. Средневзвешенный период полураспада спонтанного деления рассчитывается по данным работ [20–22] и равен $T_{1/2}^{SF} = (4,68 \pm 0,10) \cdot 10^{10}$ лет. Использовано также значение среднего числа нейтронов на акт деления $\bar{\nu}_{SF} = 2,21 \pm 0,07$ [23]. Таким образом, выход нейтронов (α, n)-реакции для $^{238}\text{PuO}_2$ принят равным $(1,444 \pm 0,022) \cdot 10^4$ нейтр./ $(\text{с} \cdot \text{г})^{238}\text{Pu}$. Если ввести поправку на массовый и химический состав [5] с учетом ионизационных потерь α -частиц в кислороде [24] и PuO_2 [25] и сделать перерасчет по активности, согласно периоду полураспада [26], то получим $q = 0,078 \pm 0,002$. Здесь учтены все составляющие погрешности, причем наибольший вклад вносит неопределенность ионизационных потерь. Полученное значение q соответствует энергетическому спектру α -частиц ^{238}Pu , который состоит из двух линий: 5,499 МэВ (72,13%) и 5,456 МэВ (27,87%) [9,26]. Поскольку эти энергии отличаются на 43 кэВ, можно использовать среднее значение энергии, равное 5,487 МэВ. Подобная замена дает дополнительную погрешность, не превышающую в худшем случае 0,5%.



Р и с. 1. Зависимость относительного вклада реакции (α, n) на ^{17}O $0,0307q_{17}$ ($0,0307q_{17} + 0,2039q_{18}$) в полный выход нейтронов от энергии α -частиц:

1 — расчеты данной работы; 2 — расчеты по данным [11]; \circ — экспериментальное значение взято из работы [6]

Вышеприведенное значение q наиболее точно из полученных ранее, и поэтому оно может служить более надежной основой при нормировке расчетных выходов нейтронов.

Учитывая вклад реакции $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ в полный выход нейтронов, заметим, что природный кислород состоит из смеси трех изотопов. Результаты многих измерений, выполненных с кислородом как обедненным, так и обогащенным ^{17}O и ^{18}O [6, 13, 18], свидетельствуют о том, что (α, n)-реакция идет в основном на ^{18}O (порог реакции 0,8536 МэВ), хотя (α, n)-реакция на ^{17}O экзоэнергетическая. Вклад реакции $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ в полный выход оценен экспериментально ($\sim 10\%$) при $E_\alpha = 5,304$ МэВ [6]. Однако при других энергиях он не определялся.

Экспериментально получены кривые зависимости сечения (α, n)-реакции для ^{17}O [27] и ^{18}O [27–30]. Для обоих изотопов зависимость $\sigma(E)$ обнаруживает сложную резонансную структуру, которая исследована лишь при низких энергиях $1,0 \leq E_\alpha < 5,25$ МэВ. Эти сечения используются для расчета выхода нейтронов из толстой мишени как функции энергии α -частиц по следующему выражению:

$$q(E_\alpha) = N \int_{B_{II}}^{E_\alpha} \frac{\sigma(E)}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)} dE, \quad (2)$$

где $-\frac{dE}{dx}$ — ионизационные потери α -частиц в кислороде, МэВ/см; N — число атомов в единице объема мишени, атом/см³; B_{II} — порог (α, n)-реакции, МэВ. Для расчета $q(E_\alpha)$ были взяты наиболее точные значения $-\frac{dE}{dx}$ [24]. Результаты расчета относительного вклада нейтронов реакции $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ в полный их выход приведены на

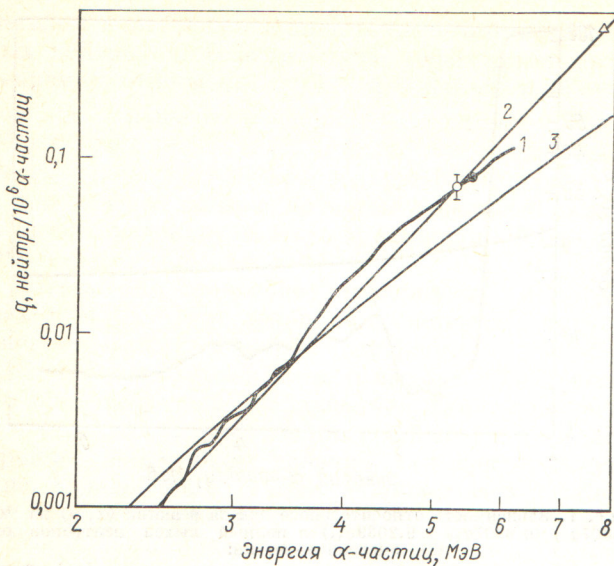


Рис. 2. Зависимость выхода нейтронов для толстой мишени кислорода от энергии α -частиц $q = (0,2039q_{18} + 0,0307q_{17})$: 1 — расчеты данной работы; 2 — расчет по формуле (1); 3 — расчеты по формуле работы [11]. Экспериментальные значения: \bullet — данная работа; \circ , Δ — данные работы [3] и [4] соответственно

рис. 1. Эти расчеты показывают, что ^{17}O дает маломеняющийся с энергией относительный вклад, за исключением лишь области меньше 2,5 МэВ, где вклад ^{17}O преобладает, что объясняется пороговым характером реакции $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$. Расчетный вклад при $E_\alpha = 5,304$ МэВ равен $7,6 \pm 2,7\%$, что в пределах погрешности согласуется с данными работы [6]. Следует сказать, что расчет по данным работы [11] не передает детального хода вклада с энергией, обусловленной резонансами сечения $\sigma(E)$. Кроме того, формула работы [11] дает явно завышенное соотношение выходов на обоих изотопах кислорода $q_{17} = (1,2 - 1,5) q_{18}$, что противоречит значениям сечения (α, n) -реакции [27 — 30] и нашим расчетам, которые дают $q_{17} = (0,4 - 0,5) q_{18}$.

На рис. 2 приведена рассчитанная зависимость $q(E_\alpha)$ для природной смеси изотопов кислорода. Поскольку сечение $\sigma(E)$ для обоих изотопов измерено с погрешностью не лучше 25%, рассчитанные значения q нормировались на полученное экспериментально с более низкой погрешностью. В отличие от работы [40] в данной работе нормировались выходы нейтронов на значение $q = 0,078$ при $F_\alpha = 5,487$ МэВ. При этом был учтен ход зависимости $q(E_\alpha)$ в интервале энергий 4,5 — 5,3 МэВ. Разумеется, любая экстраполяция в достаточной степени условна, однако в данном случае она оправдана. Из рис. 2 следует, что нормировка на $q = 0,070$ [3] и на рассчитанное $q = 0,078$ дает практически одинаковый результат, несмотря на то что обе нормировки отвечают разной энергии α -частиц. Как видно из рис. 2, расчеты по формуле (1) и данным работы [11] не передают истинного хода зависимости $q(E_\alpha)$.

Анализ полученной $q(E_\alpha)$ показывает, что представлять выход нейтронов q от энергии в виде степенной функции можно лишь в узких определенных интервалах:

$$q(E_\alpha) = \begin{cases} 1,26 \cdot 10^{-4} \cdot E_\alpha^{3,77} & \text{при } 4,4 \leq E_\alpha < 6,1; \\ 8,46 \cdot 10^{-6} E_\alpha^{5,58} & \text{при } 3,6 \leq E_\alpha < 4,4; \\ 3,71 \cdot 10^{-6} E_\alpha^{6,16} & \text{при } 2,0 \leq E_\alpha < 3,6. \end{cases} \quad (3)$$

Формула (3) позволяет определять выход нейтронов с погрешностью $\sim 3\%$ при $E_\alpha \geq 3,6$ МэВ и менее 10% при $E_\alpha < 3,6$ МэВ.

Отмеченные выше аспекты нуждаются еще в дополнительных и тщательных экспериментальных исследованиях. В частности, необходимо измерить выход нейтронов при более высоких энергиях α -частиц, например от $^{242}\text{CmO}_2$. Безусловно, решающую роль будут играть дальнейшие измерения сечения (α, n) -реакции при $E_\alpha > 5,25$ МэВ для обоих изотопов кислорода.

В заключение автор считает своим долгом выразить признательность Центру Э. М., обсуждения с которым стимулировали появление данной работы, и Фролову В. В. за плодотворное обсуждение полученных результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Valley H. e.a. «Nucl. Technol.», 1973, v. 17, p. 193.
2. Бакуменко О. Д. и др. «Атомная энергия», 1978, т. 44, вып. 2, с. 140.
3. Горшков Г. В. и др. «Атомная энергия», 1962, т. 13, вып. 1, с. 65.
4. Горшков Г. В., Зябкин В. А., Цветков О. С. «Атомная энергия», 1962, т. 13, вып. 5, с. 475.
5. Горшков Г. В. и др. Естественный нейтронный фон атмосферы и земной коры. М., Атомиздат, 1966.
6. Сердюкова И. А., Хабахпашев А. Г., Центр Э. М. «Изв. АН СССР, Сер. физ.», 1957, т. 21, с. 1017.
7. Хабахпашев А. Г. «Атомная энергия», 1959, т. 7, вып. 1, с. 71.
8. Ben-David G. «Neutron Dosimetry», IAEA, Vienna, 1963, v. 2, p. 407.
9. Rytz A. «Atomic Data and Nucl. Data Tabl.» N. Y. Academ. Press. 1973, v. 12, p. 479.
10. Центр Э. М., Силин А. Б. «Атомная энергия», 1965, т. 19, вып. 1, с. 48.
11. Коржнов Л. Н. В кн.: Вопросы дозиметрии и защиты от излучения. М., Атомиздат, 1969, вып. 9, с. 44.
12. Bair J., Butler H. «Nucl. Technol.», 1973, v. 19, p. 202.
13. Архипов В. А. и др. «Атомная энергия», 1972, т. 32, вып. 4, с. 310.
14. Anderson M., Neff R. «Nucl. Appl.», 1969, v. 7, p. 62.
15. Herold T. R. Ibid., 1968, v. 4, p. 19.
16. Rutherford W., Huffman C., Coffey D. Ibid., 1967, v. 3, p. 366.
17. Millins L., Leary J. Ibid., 1969, v. 6, p. 287.
18. Porter L., Thomson M. «Inorg. Nucl. Chem. Lett.», 1969, v. 5, p. 129.
19. Burnback J., Matlack G., Metz G. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1968, v. 11, p. 457.
20. Горбачев В. М., Замятин Ю. С., Лбов А. А. Основные характеристики тяжелых элементов. Справочник, М., Атомиздат, 1975.
21. Hastings J., Strohm W. «J. Inorg. Nucl. Chem.», 1972, v. 34, p. 25.

22. Gay R., Sher R. In: Proc. Conf. Nucl. Cross Sect. and Technology, Washington, 1975, v. 11, p. 587.
23. Горбачев В. М., Замятин Ю. С., Лбов А. А. Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. М., Атомиздат, 1976.
24. Northcliffe L., Schilling R., «Nucl. Data Tabl.», N. Y. Academ. Press., 1970, v. 7, N 3—4, p. 223.
25. Nitzki V., Matzke H., «Phys. Rev.», В, 1973, v. 8, p. 1894.
26. Баранов С. А., Зеленков А. Г., Кулаков В. М. «Атомная энергия», 1976, т. 41, вып. 5, с. 342.
27. Bair J., Haas F. «Phys. Rev. С.», 1973, v. 7, p. 1356.
28. Bair J., Willard H. «Phys. Rev.», 1962, v. 128, p. 299.
29. Chouraque G. e.a. «Le Journ. Physique», 1970, v. 31, p. 249.
30. Bonner T. e.a. «Phys. Rev.», 1956, v. 102, p. 1348.

Поступила в Редакцию 17.07.78

УДК 543.53

К вопросу об инструментальном нейтронно-активационном анализе субмиллиграммовых навесок геохимических проб

ДРЫНКИН В. И., КАРУС Е. В., НАРТИКОВЕ В. Д., БЕЛЕНЬКИЙ Б. В., КЕРЗИН А. Л.

При геохимических исследованиях все более остро встает вопрос многоэлементного анализа малых веществ (1—5 мг). Это связано с необходимостью анализа мономинеральных фракций вплоть до единичных зерен, включений в кристаллы и т. д. Кроме того, часто анализируются уникальные пробы, большее количество которых получить из исследуемого материала невозможно (образцы лунного грунта, керна сверхглубоких скважин и т. д.) и желательны их сохранить для других исследований.

При проведении анализа субмиллиграммовых навесок возникают проблемы, обычно не рассматриваемые при инструментальном нейтронно-активационном анализе (ИНАА).

1. Выбор способа упаковки, обеспечивающего отсутствие привноса элементов из материала упаковки в пробу, и сохранность проб даже при длительных облучениях в ядерном реакторе (100—200 ч).

2. Выбор системы эталонирования, гарантирующей получение достоверных результатов с минимально возможной погрешностью.

Многие способы упаковки проб для облучения в ядерном реакторе (полиэтиленовая пленка, кварцевые ампулы; фенолформальдегидная смола) при анализе субмиллиграммовых навесок мало пригодны [1]. Дело в том, что для малой навески требуется последующая переупаковка в неактивный материал, поскольку активность примесей в упаковочном материале становится сравнимой с активностью пробы. Кроме того, при облучении >60 ч полиэтиленовая пленка разрушается (из-за совместного воздействия температурного и радиационного разогрева) и образует с материалом пробы единую массу, разделение которой невозможно. Упаковка проб в кварцевые ампулы также делает переупаковку практически невозможной, поскольку, в силу чрезвычайно малого размера отдельных зерен минералов, упаковку и переупаковку проб необходимо вести под бинокулярном.

Упаковочным материалом, удовлетворяющим практически всем требованиям, является алюми-

ниевая фольга. Она не разрушается даже при длительных облучениях. Упаковка и извлечение из нее проб просты и не требуют специальных приемов.

Однако возникает вопрос о возможном загрязнении вещества пробы во время облучения привносом некоторых элементов из упаковочного материала. В связи с этим был проведен специальный эксперимент, материал для которого должен удовлетворять следующим требованиям:

- иметь слабо активирующуюся матрицу;
- обладать как можно более низким уровнем содержания элементов — примесей (10^{-7} — 10^{-9} мас. %), чтобы на фоне их активности можно было заметить и количественно оценить активность от внедренных при облучении элементов из материала упаковки и остатков реактивов;
- иметь большую абсорбционную поверхность (1 — 2 см²) для накопления стороннего материала в количестве, достаточном для оценки;
- иметь поверхность, легко поддающуюся обработке при удалении загрязнений.

Предварительные исследования различных материалов показали, что материалом, наиболее удовлетворяющим вышеперечисленным требованиям, является синтетический кварц, в котором количество различных примесей находится на уровне 10^{-7} — 10^{-9} мас. % (Na — $n \times 10^{-4}$ и Сг — $n \times 10^{-5}$ %).

Десять пластинок синтетического кварца массой 0,5—1,2 г и поверхностью ~1—2 см² перед облучением были протравлены в течение часа в растворе HNO₃ (1:1) с последующей промывкой в бидистиллированной воде и абсолютизированном спирте, после чего упакованы в алюминиевую фольгу, также предварительно обработанную спиртом и бидистиллированной водой, и облучены в течение 100 ч в потоке $1,2 \times 10^{13}$ нейтр./см²·с в реакторе ТВР.

В качестве эталона были применены небольшие таблетки из фенолформальдегидной смолы (ФФС) массой 1—2 мг с различным содержанием микроэлементов [2]. Абсолютное содержание элементов