

УДК 539.173.8

Выходы некоторых осколков при делении ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , обусловленном нейтронами спектра БР-1

ЮРОВА Л. Н., БУШУЕВ А. В., ОЗЕРКОВ В. Н., ЧАЧИН В. В., ЗВОНАРЕВ А. В.,
ЛИФОРОВ Ю. Г., КОЛЕГАНОВ Ю. В., МИЛЛЕР В. В., ГОРБАТЮК О. В.

В настоящее время константы, используемые при расчетах ядерных быстрых реакторов, изменяются в интегральных экспериментах, требования к точности которых неуклонно повышаются. Погрешность определения какого-либо параметра складывается из погрешности измеряемых величин и погрешности данных, необходимых для того, чтобы связать эти величины с определяемым параметром. К числу такого рода данных относятся выходы осколков на акт деления. Некоторые из них могут использоваться как опорные значения.

Данные о выходах осколков необходимы для определения большинства параметров реактора. Чтобы обеспечить требуемую точность определения этих параметров, нужно располагать данными о выходах осколков с погрешностью 1—1,5%. Выходы осколков могут существенно зависеть от энергии нейтронов, вызывающих деление, и эту зависимость необходимо учитывать как при использовании имеющихся данных, так и при планировании новых экспериментов.

Рассмотрение опубликованных данных [1,2] позволяет сделать следующие выводы: информация о выходах осколков в тепловых реакторах гораздо обширнее, чем в быстрых; результаты точнее и надежнее, расхождения между данными, полученными разными авторами, в ряде случаев далеко выходят за пределы указанных погрешностей. По-видимому, это можно объяснить или неучтенными систематическими погрешностями или влиянием различий спектров нейтронов в реакторах, на которых проводились измерения. Для получения новой уточненной информации о выходах осколков и была предпринята настоящая работа.

Описание методики. Абсолютные значения выходов осколков деления при делении, вызванном быстрыми нейтронами, могут быть получены путем измерения отношений Y_i^0/Y_j^T с использованием хорошо известных значений выходов осколков при делении тепловыми нейтронами.

Используется следующая формула:

$$Y_{ij}^0 = Y_{ij}^T \frac{I_{\gamma ij}^0}{I_{\gamma ij}^T} \frac{F_j^T}{F_j^0},$$

где $I_{\gamma ij}^0/I_{\gamma ij}^T$ — отношение интенсивностей γ -излучения i -го осколка, образовавшегося при делении j -го изотопа быстрыми и тепловыми нейтронами; F_j^T/F_j^0 — отношение числа делений изотопа.

В этом случае нет необходимости в определении эффективности регистрирующих систем. Выбирая соответствующим образом схему проведения эксперимента, можно свести к минимуму привлечение дополнительных опорных ядерных данных. Погрешность определения Y_j^0 в основном будет определяться погрешностью используемых тепловых выходов.

Экспериментальная часть

Условия облучений. Активная зона БР-1 объемом ~ 1 л заполнена стержнями из металлического плутония в оболочке из нержавеющей стали. Максимальная плотность потока нейтронов в центре активной зоны 10^{10} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$. Реактор оборудован графитовой тепловой колонной размером $1000 \times 1000 \times 1000$ мм.

Образцы. В экспериментах использовали фольги из плутония и урана, обогащенного до 90% по ^{235}U , изготовленные из двуокиси урана или плутония и с торцов покрытые тонкой (толщиной ~ 10 мкм) алюминиевой фольгой. Общее количество делящегося материала в фольгах составляло ~ 1 мг/ см^2 . Расчетные оценки показали, что возмущение поля нейтронов при помещении таких образцов в тепловую колонну составляет $< 0,5\%$. Образцы размещались в капсуле цилиндрической формы, изготовленной из алюминия (диаметр 3, высота 15 и толщина боковых стенок 0,5 мм).

Измерения отношений числа делений трековыми детекторами. Использованный в эксперименте трековый детектор представлял собой стеклянный диск диаметром 7 и толщиной 1 мм, изготовленный из полированного стекла. Трековый детектор и слой-излучатель помещались в экспериментальную капсулу. Режим облучения (мощность реактора и время облучения) выбирался таким образом, чтобы число треков на стекле не превышало $2 \cdot 10^3$. Меньшее число треков ухудшало статистическую точность, большее — увеличивало систематическую погрешность. Для избежания последней подсчет треков производили несколько раз разными операторами. Для исключения погрешностей, связанных с определением числа ядер в активных слоях, проводили следующую процедуру: одну капсулу помещали в тепловую колонну, другую — в центр активной зоны. В следующем облучении их меняли местами. Это позволяло избежать погрешностей, связанных с неточностью определения ядер, мощностью, временем облучения и т. п.

Гамма-спектрометрия. Для измерения γ -спектров облученных образцов использовали систему,

состоящую из Ge(Li)-детектора с охлаждаемым первым каскадом предусилителя, основного усилителя и 4096-канального амплитудного анализатора. Энергетическое разрешение измерительной системы равнялось 1,69 кэВ при $E_\gamma = 1333$ эВ. Измерение γ -спектров облученных образцов начиналось через 8 ч после окончания облучения и проводили их в течение 4—6 сут.!

Оценка погрешностей

Погрешность определения Y_i^6 складывается из следующих составляющих: погрешности, возникающей в процессе облучения; погрешности, возникающей при измерениях интенсивности γ -излучения и подсчете числа треков; погрешностей, связанных с внесением различных поправок.

Погрешности, возникающие в процессе облучения обусловлены неодинаковым расположением индикаторов и трековых детекторов (максимальная разница в положении могла достигать 2 мм; специальные опыты показали, что поправка не превышает $1,000 \pm 0,005$) и локальным возмущением спектра нейтронов в экспериментальном канале при облучении индикаторов и трековых детекторов (экспериментально установлено, что поправка не превышает 1%).

Погрешности при измерениях интенсивности γ -излучения и подсчете числа треков. Спектр γ -излучения каждого образца измеряли 10—12 раз. Статистическая точность определения отношения была лучше 1%. Режим измерений выбирали таким образом, чтобы интегральная загрузка не превышала 5 000 имп./с. При разрешающем времени измерительного тракта 25 мкс это гарантировало от просчетов. При подсчете числа делений с каждой парой индикаторов проводили 18—20 измерений. Точность полученных данных по всем сериям составляет 1,3%.

Таблица 1

Экспериментальные отношения выходов осколков при делении ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U быстрыми и тепловыми нейтронами

Осколок деления	$Y_{235\text{U}}^6/Y_{235\text{U}}^T$	$Y_{239\text{Pu}}^6/Y_{239\text{Pu}}^T$	$Y_{238\text{U}}^6/Y_{235\text{U}}^T$
^{91}mY	$1,005 \pm 0,015$	$1,081 \pm 0,022$	$0,693 \pm 0,028$
^{97}Zr	$1,054 \pm 0,019$	$1,047 \pm 0,019$	$0,945 \pm 0,027$
^{97}Nb	$1,074 \pm 0,016$	$1,047 \pm 0,019$	$0,990 \pm 0,026$
^{99}Mo	$1,044 \pm 0,016$	$1,031 \pm 0,014$	$1,168 \pm 0,026$
^{131}I	$1,216 \pm 0,028$	$1,112 \pm 0,023$	$1,008 \pm 0,031$
^{132}Te	$1,172 \pm 0,017$	$1,015 \pm 0,017$	$1,203 \pm 0,023$
^{133}I	$1,053 \pm 0,018$	$0,984 \pm 0,016$	$1,071 \pm 0,023$
^{135}Xe	$1,059 \pm 0,015$	$0,968 \pm 0,020$	$1,156 \pm 0,030$
^{140}La	$0,980 \pm 0,017$	$1,045 \pm 0,024$	$0,964 \pm 0,019$
^{143}Ce	$0,943 \pm 0,013$	$0,988 \pm 0,017$	$0,808 \pm 0,017$
^{103}Ru	$1,03 \pm 0,03$	$0,97 \pm 0,03$	—
^{147}Nd	$0,96 \pm 0,04$	$0,96 \pm 0,04$	—
^{95}Zr	$0,96 \pm 0,05$	$0,98 \pm 0,03$	—
^{95}Nb	$0,97 \pm 0,04$	$0,95 \pm 0,03$	—

Погрешности, связанные с внесением поправок. Поправки на вклад деления ^{238}U и ^{240}Pu в активность урановых и плутониевых образцов определяли расчетным путем. Поправки не превышали 1,016 и 1,015 соответственно.

Анализ результатов

В табл. 1 представлены экспериментально определенные отношения Y_i^6/Y_i^T . Абсолютные значения выходов были получены на основании данных табл. 1 и рекомендованных данных по тепловым выходам, взятых из работы [2] (табл. 2). Ценную информацию дают измерения функционалов σ_c^{238} , $\sigma_f^{238}/\sigma_f^{235}$, $\sigma_f^{239}/\sigma_f^{235}$, характеризующие отношения скоростей важнейших процессов и спектр нейтронов. Такие измерения наиболее часто проводят

Таблица 2

Абсолютные выходы осколков при делении ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U , обусловленном нейтронами спектра БР-1, %

Осколок деления	^{235}U		^{239}Pu		^{238}U
	Настоящая работа	Y_{235}^T [2]	Настоящая работа	Y_{239}^T [2]	Настоящая работа
^{91}mY	$5,96 \pm 0,14$	$5,93 \pm 0,11$	$2,75 \pm 0,08$	$2,54 \pm 0,05$	$4,11 \pm 0,12$
^{97}Zr	$6,36 \pm 0,16$	$6,03 \pm 0,10$	$5,85 \pm 0,15$	$5,59 \pm 0,10$	$5,70 \pm 0,23$
^{97}Nb	$6,48 \pm 0,15$	$6,13 \pm 0,10$	$5,85 \pm 0,15$	$5,59 \pm 0,10$	$5,97 \pm 0,20$
^{99}Mo	$6,40 \pm 0,12$	$6,13 \pm 0,06$	$6,52 \pm 0,21$	$6,32 \pm 0,20$	$7,17 \pm 0,17$
^{131}I	$3,43 \pm 0,10$	$2,82 \pm 0,07$	$4,16 \pm 0,13$	$3,74 \pm 0,09$	$2,84 \pm 0,11$
^{132}Te	$4,92 \pm 0,13$	$4,20 \pm 0,09$	$5,31 \pm 0,15$	$5,23 \pm 0,12$	$5,05 \pm 0,16$
^{133}I	$7,11 \pm 0,20$	$6,75 \pm 0,16$	$6,81 \pm 0,22$	$6,92 \pm 0,19$	$7,23 \pm 0,23$
^{135}Xe	$6,99 \pm 0,20$	$6,60 \pm 0,10$	$7,44 \pm 0,29$	$7,69 \pm 0,26$	$7,62 \pm 0,28$
^{140}La	$6,23 \pm 0,13$	$6,36 \pm 0,06$	$5,84 \pm 0,16$	$5,59 \pm 0,09$	$6,13 \pm 0,13$
^{143}Ce	$5,61 \pm 0,11$	$5,95 \pm 0,08$	$4,46 \pm 0,10$	$4,51 \pm 0,06$	$4,81 \pm 0,12$
^{103}Ru	$3,22 \pm 0,10$	$3,12 \pm 0,04$	$6,65 \pm 0,32$	$6,95 \pm 0,29$	—
^{147}Nd	$2,16 \pm 0,10$	$2,25 \pm 0,04$	$2,05 \pm 0,10$	$2,13 \pm 0,07$	—
^{95}Zr	$6,24 \pm 0,33$	$6,50 \pm 0,09$	$4,91 \pm 0,17$	$5,01 \pm 0,08$	—
^{95}Nb	$6,30 \pm 0,30$	$6,50 \pm 0,03$	$4,75 \pm 0,17$	$5,01 \pm 0,08$	—

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 Data. 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)