

СООБЩЕНИЯ Объединенного института ядерных исследований дубна

P15-94-526

Н.А.Гундорин, Ю.Н.Копач, Дао Ан Минь, С.А.Тележников, В.И.Фурман

ОПРЕДЕЛЕНИЕ НЕЗАВИСИМОГО ВЫХОДА ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ ²³⁹Рu ТЕПЛОВЫМИ НЕЙТРОНАМИ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СПЕКТРОСКОПИИ МГНОВЕННОГО ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ



1.Введение

.

При делении ядер образующиеся осколки находятся в возбужденном состоянии и разряжаются посредством излучения нейтронов и гаммаквантов. Существование общирной спектроскопической информации о схемах возбуждения и заселенности уровней ядер позволяет применять метод гамма - спектроскопии высокого разрешения для идентификации осколка по энергии гамма-кванта и определения его выхода по интенсивности гамма-излучения. Наряду с принципиальной простотой преимущество этого метода заключается в возможности проведения анализа распределения продуктов деления не только по массе A, но и по заряду Z с абсолютным разрешением.

Как во всяком косвенном методе, при определении выхода осколков методом гамма - спектроскопии сопутствующего излучения существует опасность возникновения систематической ошибки результатов. Энергетический спектр гамма-квантов, сопутствующих делению ядер, отличается обилием и высокой плотностью фотопиков. Недостаточно высокая разрешающая способность спектрометра приводит к тому, что в аппаратурном спектре значительное число пиков сливается, образуя сплошную подложку и отдельные "бампы". Существенный вклад в подложку вносят гамма-кванты фонового излучения, регистрируемые вследствие случайных совпадений с актами деления, а также гамма-кванты, инициируемые нейтронами деления. Если учесть также, что наряду с наличием в спектре фоновых гамма-линий велика вероятность наложения пиков от гамма-квантов близких энергий, становится очевидной сложность и неоднозначность процедуры извлечения из такого спектра информации о независимом выходе осколков.

BELLECHILLE ENTERYT INNA ACCREAGEANNE **BHS**JHOTEKA

Кроме того, в экспериментах, проводимых на импульсном источнике с использованием методики спектроскопии нейтронов по времени пролета, для выделения эффектов, связанных с резонансами, вероятность систематической ошибки возрастает в связи с возможностью существования временной зависимости уровня фона и наличием высокой импульсной загрузки гамма - спектрометра в отдельных резонансах. Поэтому представляется необходимым проведение эксперимента, результаты которого можно сравнить с экспериментальными данными, полученными другими методами, и таким образом проверить работоспособность метода и всего комплекса аппаратуры. С этой целью в работе были проведены измерения гамма - спектра осколков при делении тепловыми нейтронами.

2. Формирование пучка тепловых нейтронов

Тепловые нейтроны для проведения ядерно - физических экспериментов могут быть получены путем замедления быстрых нейтронов, рождающихся в активной зоне реактора, или при спонтанном делении радиоактивных изотопов. В качестве замедлителя используется водородосодержащее вещество, при рассеянии на ядрах которого быстрые нейтроны "сбрасывают" энергию и термализуются.

В работе использовалось несколько способов формирования пучка тепловых нейтронов. Схема одного из них показана на рис.1. Нейтроны деления от изотопного источника 252 Cf (1) с активностью $2,3 \times 10^7$ н/с термализуются в блоке замедлителя (2) из парафина с размерами $40 \times 40 \times 20$ см. В нем имеется ниша для камеры деления (3). Расстояние между источником нейтронов и центром камеры составляет 8 см. Так как спектр нейтронов деления достаточно "жесткий", а доля термализованных нейтронов в таком замедлителе не превышает 20%, плотность потока быстрых нейтронов вблизи камеры высока и составляет около 2×10^4 н/с. Быстрые нейтроны, попадая на детектор (4), вызывают в кристалле германия радиационные повреждения, ведущие к снижению его эффективности и разрешающей способности. Граничная величина флюенса, приводящего к радиационным повреждениям, составляет $10^9 - 10^{10}$ н/см² [1, 2]. Для того чтобы обеспечить возможность длительных измерений одним детектором и избежать при этом

> > No.

. A.



Рис. 1. Схема эксперимента с использованием радиоизотопного источника нейтронов

радиационных повреждений, требуется предусмотреть охранные меры. С этой целью Ge(Li)-детектор удален от камеры и от источника нейтронов на расстояние 28-30 см и защищен экраном из борированного полиэтилена толщиной 10 см (5). Свинцовый коллиматор (6) предназначен для защиты от гамма-фона, в том числе от γ-квантов с энергией 477 кэВ и 2,2 МэВ, связанных с взаимодействием нейтронов с ядрами бора и водорода в материалах защиты и замедлителя.

Второй способ получения тепловых нейтронов предусматривает использование в качестве источника быстрых нейтронов реактора ИБР-30. На пролетной базе реактора 57 м устанавливается композиция, показанная на рис.2. Сформированный коллиматорами пучок нейтронов диаметром 8 см попадает в блок замедлителя (1) из парафина. Замедленные нейтроны, "вытекающие" из замедлителя, попадают в камеру деления, ось которой перпендикулярна оси пучка. Расстояние между центром камеры и осью пучка составляет 30 см. Гамма - детектор Ge(Li) отстоит от камеры деления на 9 см. Он защищается от ней-



Рис. 2. Схема эксперимента с использованием ИБР-30 в качестве источника быстрых нейтронов

тронов деления, рождающихся в камере, парафиновой пластиной (CH) толщиной 3 см и экраном из металлического ⁶Li. Для защиты детектора от гамма - квантов, рождающихся при захвате тепловых нейтронов в замедлителе, используется свинцовый коллиматор (2) толщиной 10 см. Следует отметить, что в такой схеме целесообразно применение так называемого "гребенчатого" замедлителя [3], используемого на импульсных реакторах в Дубне для увеличения потока тепловых и холодных нейтронов. Так как наряду с тепловыми нейтронами замедлитель является источником и более высокоэнергичных нейтронов, необходимо проводить два измерения, в одном из которых применять кадмиевый фильтр для нейтронов, облучающих камеру деления. Кадмиевое отношение для камеры деления в первых двух измерениях составило 7,8.

Принцип "кадмиевой разницы" применялся и в третьем варианте, использующем тепловые нейтроны, родившиеся в замедлителе импуль-



Рис. 3. Конфигурация спектрометра с "активной" защитой

сного реактора. Необходимость этого связана с тем обстоятельством, что цля пролетной базы 57-60 м, на которой располагался гамма - спектрометр, при частоте импульсов реактора 100 с⁻¹ энергия рецикличных нейтронов составляет 0,17 эВ и вследствие этого невозможно выделить тепловые нейтроны по времени пролета. В схеме спектрометра для третьего варианта измерений, показаной на рисунке 3, применялась "активная" защита, используемая в антикомптоновских спектрометрах для улучшения качества спектра. В таких спектрометрах комптоновская подложка может быть подавлена в 10 - 15 раз практически без потерь для фотопиков полного поглощения [4, 5]. В спектрометре, схема которого показана на рис.3, в качестве "активной" защиты Ge-детектора использовались три блока пластического сцинтиплятора с размерами 20 × 20 × 40 см и гамма - детектор на основе NaI(Tl) - сцинтиллятора с размерами ø15-10 см. Телесный угол охвата Gе-детектора составлял (0,65-0,7) от 4π . В качестве пассивной защиты использовался борированный полиэтилен толщиной 5 см. Эффективность такой комбинированной защиты проверялась экспериментально при измерениях в реальных условиях для различных конфигураций спектрометра [6]. Коэффициент подавления подложки для интервала энергий гамма - квантов от 170 до 370 кэВ составил 2,6-0,2.

2. Проведение эксперимента

В ходе эксперимента было проведено три серии измерений спектра гамма-иэлучения осколков деления тепловыми нейтронами с использованием всех описанных вариантов. Полное время измерений составило 24 сут, число зарегистрированных делений - 2,2-109. Измерительный модуль обеспечивал регистрацию трех характеристических параметров: Е₂ - энергию гамма-кванта, Т₂ - временной интервал между регистрацией акта деления камерой и гамма - кванта Ge(Li)-детектором, а также T_n - интервал времени между стартовым импульсом реактора (при использовании изотопного источника нейтронов он имитировался с помощью генератора) и сигналом от камеры деления . Информация записывалась на магнитный носитель и одновременно сортировалась: строились интегральные спектры для энергии Е_γ и времени Т_у. Проводился ежесуточный анализ интегральных спектров. Кроме того, периодически контролировались интегральные счетные характеристики: интенсивность счета камерой деления осколков I, и фона, связанного с регистрацией "наложенных" импульсов от α-частиц Іα; интенсивность полного счета *γ*-квантов Ge(Li)-детектором I_γ, счета с режекцией наложенных импульсов І^{rej} и счета при подавлении комптоновской подложки Ired; интенсивность счета совпадений импульсов с камеры и гамма - детектора I_c. Контроль интегральных счетных характеристик измерительной системы проводился в интерактивном режиме. На рис.4 приведены фрагменты аппаратурных гамма - спектров для трех различных вариантов спектрометра. Фоновые условия и качество спектров для них существенно различаются. Для измерения с использованием кадмиевой разницы на пучке ИБР-30 без дополнительного замедлителя больше интенсивность делений, меньше загрузка спектрометра и лучше отношение пик/подложка в спектре совпадений.

3. Анализ гамма - спектра и определение абсолютного выхода

Интенсивность счета камеры деления измерялась быстрым счетчиком КС-014. Интегральный счет его за время измерения может





6

0



Рис. 5. Временной спектр совпадений камера деления - гамма-детектор

быть использован для нормировки выхода на число делений. Предпочтительнее, однако, применение так называемой "внутренней" нормировки, при которой число делений определяется по одной или нескольким гамма - линиям естественной радиоактивности плутония па спектра случайных совпадений, соответствующего интервалу "а" временного параметра T_{γ} на рис.5. Площадь пика в этом спектре должна соответствовать рассчитанной по формуле (1) величине N_{γ}^{p} . Для учета возможности потери информации из-за просчетов вследствие ограниченности быстродействия гамма - канала спектрометра в нее необходимо внести коэффициент просчетов k_{γ}^{c} , аналогичный "живому времени". При известном числе отсчетов камерой деления за время измерения этот коэффициент может быть определен из модифицированной формулы для площади пика гамма - линии плутония:

$$N^{p}_{\gamma} = N_{\alpha} \cdot k^{p}_{\gamma} \cdot N_{f} \cdot \epsilon_{\gamma} \cdot \Delta \tau \cdot k^{c}_{\gamma}, \qquad (1)$$

где N_{α} – число альфа-распадов в мишени за секунду, k_{γ}^{p} – интенсивность гамма-перехода, N_{f} – число отсчетов камерой деления, ϵ_{γ} – эффективность регистрации, $\Delta \tau$ – интервал времени, в течение которого регистрируются гамма-кванты. При эффективности регистрации осколков камерой деления на уровне 60% не удается полностью подавить счет от α -частиц из - за эффекта наложений. Коэффициент наложений вычисляется из интегральных характеристик $k_{\alpha}=I_{\alpha}/I_{f}$ и позволяет определить число зарегистрированных в эксперименте делений. Произведение числа делений, зарегистрированных камерой деления, $N_{f} \cdot (1 - k_{\alpha})$ на коэффициент просчетов k_{γ}^{c} , представленное в качестве эффективного числа делений

$$N_f^{eff} = N_f \cdot k_{\gamma}^c \cdot (1 - k_{\alpha}) = \frac{N_{\gamma}^p}{N_{\alpha} \cdot k_{\gamma}^p \cdot \epsilon_{\gamma} \cdot \Delta \tau} (1 - k_{\alpha}), \qquad (2)$$

может быть использовано для нормировки получаемых результатов.

Выход выделенных гамма - линий осколков определялся из спектра, полученного после вычитания спектра случайных совпадений из спектра гамма - квантов, коррелированных с делением (интервалы "b","c", "d" на рис.5).

Для большей части экспериментальных данных вычисление площадей фотопиков проводилось по интервалам, содержащим не более 100 каналов спектра, с использованием программы FUMILI. В качестве исходных данных задавалось количество и ожидаемое положение пиков. Их форма предполагалась гауссовской, форма подложки - полином второй или третьей степени. Методом минимизации χ^2 - функционала определялась площадь пиков, их положение и полуширина.

Часть данных обрабатывалась с использованием ортополиномиальной аппроксимации подложки. Это оказывается полезным во всех случаях, когда построение разумной математической модели затруднительно из-за сложности измеренного спектра [7]. При аппроксимации подложки по 30 – 35 реперным точкам для участка спектра $E_{\gamma} \leq 400$ кэВ оптимальное значение степени полинома 16 – 19, а на участке $E_{\gamma} \geq 400$ кэВ – 5 - 6 при 15 – 20 реперных точках. Правильность проведения подложки может быть проверена по площади фоновых гамма - линий плутония, не интерферирующих с гамма - линиями осколков. Рис.6 иллюстрирует применение двух алгоритмов построения подложки при обработке спектров. На основании полученных таким образом площадей фотопиков N_{γ} , знания эффективности гамма - спектрометра ϵ_{γ} и потерь на внутреннюю конверсию k_{ic} , составляющих в ряде случаев





десятки процентов [8], определялся абсолютный выход гамма - линий Y₇:

 $Y_{\gamma} = \frac{N_{\gamma}(1+k_{ic})}{\epsilon_{\gamma} \cdot N_{f}^{eff}}.$ (3)

4. Идентификация осколков и определение их независимого выхода

Идентификация осколков и вычисление их интегрального выхода на одно эффективное деление проводилось с использованием известных спектроскопических данных об энергии гамма - переходов E_{γ} и их интенсивности k_{γ} по формуле

$$Y_{fr}^{int} = Y_{\gamma}/k_{\gamma} = \frac{N_{\gamma}(1+k_{ic})}{k_{\gamma} \cdot \epsilon_{\gamma} \cdot N_{f}^{eff}}.$$
(4)

Суммарная погрешность определения интегрального выхода осколка складывается из неопределенностей входящих в выражение (4) ингредиентов. Если пренебречь погрешностями интенсивности гамма - перехода и коэффициента внутренней конверсии, то величина ошибки будет определяться точностью измеряемых в эксперименте величин по формуле

$$\frac{\Delta Y_{fr}^{int}}{Y_{fr}^{int}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N_{\gamma}}{N_{\gamma}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \epsilon_{\gamma}}{\epsilon_{\gamma}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_f^{eff}}{N_f^{eff}}\right)^2}.$$
(5)

Вследствие высокой подложки в спектре наибольший вклад в суммарную погрешность вносит ошибка площади фотопика ΔN_{γ} – от 4 до 20%. Погрешность эффективности спектрометра $\Delta \epsilon_{\gamma}$, зависящая от числа гамма - линий стандартных источников, использованных при калибровке, точности их паспортных характеристик и калибровочных измерений, составляла от 3 до 10%. Погрешность эффективного числа делений, связанная с неопределенностью количества плутония в камере деления, не превышала 2 - 2,5%.

В табл.1 наряду со значениями интегрального выхода четно - четных осколков, измеренными в трех различных конфигурациях спектрометра $Y_{th}^{exp1,2,3}$, приведены их средневзвешенные величины Y_{th}^{exp} и рекомендованные значения Y_{th}^{rec} [9].

10

Табл. 1. Выход фрагментов деления ²³⁹ Ри тепловыми нейтронами							
zFr	Α	E_{γ}	Y_{th}^{expl}	Y_{th}^{exp2}	Y_{th}^{exp3}	Y_{th}^{exp}	\mathbf{Y}_{th}^{rec} [9]
		кэВ	$\% \pm \Delta\%$				
₃₆ Kr	88	775	0.8 ± 0.21	1	1.08 ± 0.62	0.83 ± 0.20	0.79 ± 0.03
	90	707	1.10 ± 0.19		1.71 ± 0.69	1.14 ± 0.18	1.18 ± 0.05
38Sr	94	837	2.92 ± 0.32	2.92 ± 0.82	2.31 ± 0.57	2.79 ± 0.26	3.14 ± 0.16
	98	1223	2.75 ± 0.28	3.57 ± 0.89	3.15 ± 0.84	2.85 ± 0.25	2.85 ± 0.14
₄₀ Zr	100	212	4.5 ± 0.23	4.85 ± 0.39	4.99 ± 0.28	4.72 ± 0.16	4.76 ± 0.24
	102	152	1.19 ± 0.15		2.37 ± 0.28	1.45 ± 0.13	1.19 ± 0.12
42Mo	104	192	3.99 ± 0.20	4.81 ± 0.53	5.42 ± 0.28	4.50 ± 0.16	4.12 ± 0.21
	106	171	1.80 ± 0.20	2.28 ± 0.16	2.10 ± 0.27	2.09 ± 0.11	2.06 ± 0.10
52Te	132	974	2.32 ± 0.28	2.29 ± 0.59	1.31 ± 0.53	2.13 ± 0.23	2.36 ± 0.07
54Xe	136	1313	2.86 ± 0.30		0.88 ± 0.80	2.62 ± 0.28	3.02 ± 0.36
	138	589	3.89 ± 0.27	4.08 ± 0.57	4.23 ± 0.75	3.95 ± 0.23	4.08 ± 0.33
56Ba	142	359	3.09 ± 0.25	3.01 ± 0.27	2.72 ± 0.45	3.01 ± 0.17	3.27 ± 0.26
	144	199	2.39 ± 0.14	2.42 ± 0.36	2.59 ± 0.26	2.43 ± 0.12	2.05 ± 0.23
58Ce	146	259	0.79 ± 0.13		1.27 ± 0.29	0.87 ± 0.12	0.95 ± 0.01
	148	159	1.29 ± 0.12	a sa a	3.20 ± 0.37	1.47 ± 0.11	1.09 ± 0.12
Среднеквадратичное отклонение χ^2/n						1.07	

Приведенное там же значение χ^2/n , вычисляемое по формуле

 $\chi^2/n = \left[\sum_{i=1}^n (Y_{th}^{exp} - Y_{th}^{rec})^2 / (\Delta Y_{th})^2\right]/n,$ (6)

характеризует среднеквадратичное отклонение полученных в эксперименте выходов от рекомендованных эначений для всей совокупности представленных данных.

Включенные в таблицу экспериментальные эначения выходов, полученные при существенно различных фоновых условиях и загрузках спектрометра, качестве аппаратурных спектров и алгоритмах обработки, в большинстве своем согласуются между собой. Близкая к единице величина среднеквадратичного отклонения χ^2/n средневзвешенных экспериментальных значений от рекомендованных свидетельствует об отсутствии систематической ошибки.

5.Заключение

С целью апробации применения методики гамма - спектроскопии осколков для определения их независимого выхода при делении ²³⁹Pu проведены измерения на тепловых нейтронах. Продемонстрировано три варианта формирования пучка тепловых нейтронов, позволяющие использовать как импульсный реактор ИБР-30, так и изотопный источник спонтанного деления ²⁵²Cf. Проведено сравнение интегральных счетных характеристик спектрометра и качества получаемого спектра, отмечена предпочтительность измерений на рециклических нейтронах реактора с использованием кадмиевой разницы.

Отсутствие систематической ошибки, вытекающее из результатов проведенного сравнения полученных результатов с рекомендованными эначениями, учитывающими другие экспериментальные данные, подтверждает возможность применения метода гамма - спектроскопии для измерения независимого выхода осколков, работоспособность используемой аппаратуры и правильность выбора алгоритмов обработки экспериментальных данных.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований по гранту 94-02-05121.

Литература

- Kraner H.W., Pehl R.H., Haller E. IEEE Transactions on Nuclear Science, 1975, v. NS-22, pp.149-159.
- [2] Pehl R.H. et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 1979, v. NS-26, N.1, pp.321-323.
- [3] Гундорин Н.А., Назаров В.М. Сообщение ОИЯИ, РЗ-80-721, Дубна, 1980.
- [4] Konijn J., Goudsmit P.F.A. and Lingeman E.W.A. Nucl. Instr. Meth., 1973, v. 109, pp. 83-92.
- [5] Beetz R. et al. Nucl. Instr. Meth., 1977, v. 145, pp.353-357.
- [6] Гундорин Н.А. Сообщение ОИЯИ, Р15-94-54, Дубна, 1994.
- [7] Гаджоков В., Богданова Н. Сообщение ОИЯИ, Р11-80-122, Дубна, 1980.

- [8] Hager R.S., Salzer E.C. Internal Conversion Tables, Part 1: K-, L-, M- Shell Conversion Coefficients for Z=30 to Z=103, Nuclear Data, 1968. v. A4, N.1/2, pp.1-235.
- [9] Wahl A.C. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1988, v. 39, pp.118-121.

1.15 8 4 8 °

Рукопись поступила в издательский отдел 30 декабря 1994 года. Гундорин Н.А. и др. Определение независимого выхода осколков деления ²³⁹Ри тепловыми нейтронами с использованием спектроскопии мгновенного гамма-излучения

С целью апробации применения методики гамма-спектроскопии осколков для определения их независимого выхода при делении ²³⁹Ри проведены измерения на тепловых нейтронах. Рассматриваются три варианта формирования пучка тепловых нейтронов, позволяющие использовать как импульсный реактор ИБР-30, так и изотопный источник спонтанного деления ²⁵²Cf. Экспериментальные результаты сравниваются с рекомендованными литературными данными. Отсутствие систематической ошибки подтверждает эффективность метода гамма-спектроскопии для измерения независимого выхода осколков, работоспособность используемой аппаратуры и правильность выбора алгоритмов обработки экспериментальных данных.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им.И.М.Франка ОИЯИ при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 94-02-05121).

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1994

Перевод авторов

Gundorin N.A. et al. The Measurement of Independent Yields of ²³⁹Pu Fission Fragments Induced by Thermal Neutrons Using y-Ray Spectroscopy

The independent yields of ²³⁹Pu fission fragments induced by thermal neutrons were measured in order to verify the efficiency of gamma-spectroscopy method. Different ways of the thermal neutron beam production, both the reactor IBR-30 and the radioactive-isotope source ²⁵²Cf, were used. Comparative analysis of the experimental results with the recommended literature data was performed. The absence of the systematic discrepancies confirms the reliability of the experimental equipment, correctness of the data analysis and efficiency of the method being used.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR, supported by the Russian Foundation of Fundamental Research (Grant 94-02-05121):

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1994

P15-94-526

P15-94-526