



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P15-94-53

Н.А.Гундорин

ПРИМЕНЕНИЕ ГАММА-СПЕКТРОСКОПИИ
ОСКОЛКОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ДЕЛЕНИЯ ^{239}Pu
РЕЗОНАНСНЫМИ НЕЙТРОНАМИ

1994

Гундорин Н.А.
 Применение гамма-спектроскопии осколков
 для изучения ^{239}Pu резонансными нейтронами

Рассматриваются методические вопросы применения гамма-спектроскопии осколков для изучения особенностей деления ядер резонансными нейтронами на пучке ИБР-30. Для преодоления возникающих при этом трудностей наряду с необходимой оптимизацией геометрии спектрометра в соответствии с конкретными фоновыми условиями и предъявлением высоких требований к параметрам Ge-детектора, определяющего качество спектрометра, предлагается использование «активной» защиты для подавления комптоновской подложки в измеряемом спектре. Включение в многомерный анализ экспериментальных данных дополнительного параметра, характеризующего время жизни возбужденных состояний идентифицируемых осколков, позволяет увеличить информативность эксперимента и расширяет методические возможности анализа получаемых данных.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1994

Gundorin N.A.

P15-94-53

Gamma Spectroscopy of Fragments to Investigate ^{239}Pu Fission Induced
 by Resonance Neutrons

Some methodological aspects of using the gamma-spectroscopy of fission fragments for investigating the peculiarities of the resonance neutron induced fission at IBR-30 are discussed. To overcome technical complications in addition to optimizing the geometrical parameters of the setup in accordance with actual background conditions and high requirements for the parameters of Ge detector, which determine the quality of the spectrometer, we propose that an «active» shielding would be used to suppress the Compton-underly in the measured spectrum. By including in the multi-dimensional analysis the experimental data on an additional parameter, characterizing the life-time of excited states of the fragments to be identified, one would increase the volume of experimental information and extend the possibilities of the analysis.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

1. Введение

Среди параметров, характеризующих процесс деления ядра и отражающих особенности ядерного взаимодействия при делении, такие как массовое и зарядовое распределение осколков, энергия и множественность сопутствующих делению гамма-квантов заслуживают пристального внимания.

Интегральные характеристики гамма-излучения важны для оптимализации параметров ядерных установок и радиационной защиты. Наряду с этим, они играют существенную роль при изучении механизма диссипации и энергетического баланса в процессе деления ядра.

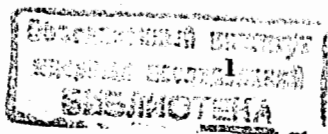
Изучение спектра гамма-квантов, предшествующих делению и связанных с существованием $(n, \gamma f)$ -процесса [1, 9] может дать информацию о высоте и структуре барьера деления и о спектре переходных состояний над барьером.

Возможность наблюдения особенностей этих характеристик при делении через резонансные компаунд - состояния представляет очевидный интерес.

При исследовании массового распределения выхода осколков в работах, посвященных изучению соотношения асимметричного деления к симметричному (P/V) для ядер ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu [2, 3, 4, 5] и определению выхода осколков деления ядер ^{235}U [6, 7] под действием резонансных нейтронов, наблюдались значительные флуктуации измеряемых параметров в отдельных резонансах. Результаты этих работ свидетельствуют о существовании особенностей деления, идущего через резонансные компаунд - состояния, и являются убедительным мотивом для продолжения поиска и изучения этих особенностей.

Для изучения особенностей деления ядер резонансными нейтронами в ЛНФ ОИЯИ на импульсном источнике нейтронов ИБР-30 применяется метод гамма-спектроскопии осколков. Методические основы проведения эксперимента и обработки результатов были заложены в работах по измерению спектра гамма-квантов деления ^{235}U [8]. Дальнейшее развитие эта методика получила в связи с поисками особенностей деления ядра ^{239}Pu .

Вопросы методического и инструментального обеспечения эксперимента обсуждаются в этой работе.



2. Принципиальная основа метода

Метод гамма - спектроскопии основывается на измерении и анализе спектра гамма - квантов с использованием техники (γ - f) - совпадений.

Для регистрации гамма-лучей чаще других применяются детекторы на основе жидких или пластических сцинтилляторов, кристаллов NaI(Tl) или ВГО в сочетании с фотоумножителем. В частности, в работах группы ЛИЯФ, исследовавшей (n, γ) процесс при делении ядра ^{239}Pu резонансными нейтронами [9], использовались NaI(Tl) - детекторы. Отличаясь высокой эффективностью, эти детекторы имеют низкое энергетическое разрешение, составляющее десятки кэВ, и не позволяют наблюдать тонкую структуру спектра гамма - квантов, сопутствующих делению.

При использовании Ge(Li)-детекторов, обладающих существенно меньшей эффективностью, это становится возможным в связи с улучшением энергетического разрешения до нескольких кэВ. При этом может быть получена дополнительная информация о процессе деления.

Такая возможность получения данных о независимом выходе осколков с определенными значениями Z и A демонстрировалась в работах [10, 11]. Она связана с испусканием гамма - квантов при разрядке возбужденных состояний осколков. В том случае, когда известна схема уровней возбужденных состояний и их заселенность, можно говорить о соответствии между интенсивностью гамма-квантов выделенной энергии и числом образовавшихся осколков [11]. Это относится в полной мере к четно-четным ядрам, таким как ^{100}Zr и ^{104}Mo . На рисунке 1 показаны схемы уровней и интенсивности переходов для этих ядер. Характерные параметры для ряда осколков, имеющих наибольший выход при делении ^{239}Pu нейтронами, приведены в таблице 1.

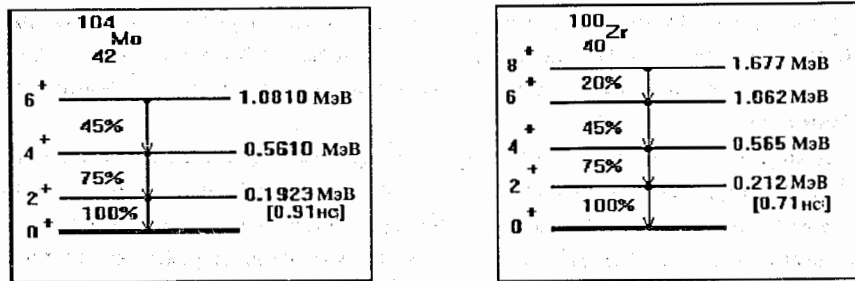


Рис.1. Схема распада четно-четных ядер молибдена и циркония

Таблица 1. Характерные параметры разрядки возбужденных состояний четно-четных осколков деления

Фрагмент Z-X-A	Энергия гамма-перехода E_γ (кэВ) [10]	Характеристика перехода ΔJ^π	Интенсивность перехода [11] %	Время жизни $T_{1/2}$ [12] нс
36-Kr-88	775	$2^+ - 0^+$	100	
36-Kr-90	707	$2^+ - 0^+$	100	
38-Sr-92	815	$2^+ - 0^+$	100	
38-Sr-94	837	$2^+ - 0^+$	100	
38-Sr-96	815	$2^+ - 0^+$	100	
40-Zr-98	1223	$2^+ - 0^+$	100	
40-Zr-100	212	$2^+ - 0^+$	100	0.71
	353	$4^+ - 2^+$	75	
	497	$6^+ - 4^+$	45	
40-Zr-102	152	$2^+ - 0^+$	100	2.2
	327	$4^+ - 2^+$	75	
	486	$6^+ - 4^+$	45	
42-Mo-102	296	$2^+ - 0^+$	100	0.11
	447	$4^+ - 2^+$	75	0.012
42-Mo-104	192	$2^+ - 0^+$	100	0.91
	369	$4^+ - 2^+$	75	
	520	$6^+ - 4^+$	45	
42-Mo-106	172	$2^+ - 0^+$	100	1.2
	351	$4^+ - 2^+$	75	
44-Ru-108	242	$2^+ - 0^+$	100	0.34
	423	$4^+ - 2^+$	75	
44-Ru-110	241	$2^+ - 0^+$	100	0.34
	664	$4^+ - 2^+$	75	
52-Te-132	974	$2^+ - 0^+$	100	
	697	$4^+ - 2^+$	75	
	103	$6^+ - 4^+$	45	140
52-Te-134	1280	$2^+ - 0^+$	100	
	297	$4^+ - 2^+$	75	
	115	$6^+ - 4^+$	45	160
54-Xe-136	1313	$2^+ - 0^+$	100	
	381	$4^+ - 2^+$	75	
	197	$6^+, 5^- - 4^+$		2800
54-Xe-138	589	$2^+ - 0^+$	100	
	484	$4^+ - 2^+$	75	
54-Xe-140	377	$2^+ - 0^+$	100	
	458	$4^+ - 2^+$	75	
56-Ba-142	360	$2^+ - 0^+$	100	0.07
	475	$4^+ - 2^+$	75	
	632	$6^+ - 4^+$	45	
56-Ba-144	199	$2^+ - 0^+$	100	0.70
	331	$4^+ - 2^+$	75	
	432	$6^+ - 4^+$	45	
	511	$8^+ - 6^+$	20	
58-Ce-146	259	$2^+ - 0^+$	100	
58-Ce-148	159	$2^+ - 0^+$	100	

В подавляющем большинстве случаев при делении образуются осколки в возбужденном состоянии. Источником этого возбуждения служит разность энергии связи нуклонов в делящемся ядре и в осколках. После разрыва компаунд - ядра энергия возбуждения осколков определяется деформацией, связанной с их жесткостью. Поскольку жесткость зависит от структуры ядра, т.е. близости заполненных оболочек нейтронов и протонов, то энергия возбуждения значительно отличается для разных осколков.

При снятии возбуждения каскады гамма-квантов излучаются осколками вслед за эмиссией нейтронов, когда энергия возбуждения ядра оказывается меньше их энергии связи. Гамма - кванты уносят оставшуюся энергию возбуждения. Основная их доля излучается осколками в течение $10^{-12} - 10^{-10}$ с после их образования, что соответствует радиационным переходам низкой мультипольности - E1, M1, E2 - с уровней возбуждения до нескольких МэВ. Значительно меньшая часть гамма-квантов излучается за время порядка 10^{-8} с и более с самых нижних уровней или из изомерных состояний.

Прецизионное измерение спектра при известной эффективности регистрации гамма - квантов позволяет наблюдать разрядку возбужденных уровней осколков и определять абсолютную интенсивность переходов.

Число зарегистрированных гамма - квантов при разрядке уровня с временем жизни τ может быть представлено выражением:

$$N_{\gamma}^{\tau} = N_f * \int Y_Z^A e^{-t/\tau} dt * k_{\gamma} * \epsilon_{\gamma} \quad (1)$$

Здесь: N_f - число произошедших делений, Y_Z^A - выход искомого осколка, τ - время жизни возбужденного уровня, k_{γ} - заселенность уровня, ϵ_{γ} - эффективность регистрации.

Представляя таким образом абсолютную интенсивность гамма - переходов на основании известных спектроскопических данных, можно определять выходы отдельных осколков, измеряя интенсивность излучения выделенных гамма-линий.

Основа метода, использующего гамма-спектроскопию осколков для определения их независимого выхода, отличается принципиальной простотой. В то же время, как всякий косвенный метод, он содержит в себе ряд неопределенностей и трудностей, связанных, в большей степени, с его техническим обеспечением при проведении эксперимента на пучке нейтронов.

3. Факторы, затрудняющие применение метода

3.1. Высокая насыщенность спектра гамма-квантов

Представленный на рисунке 2 спектр гамма-квантов из мишени, содержащей 1.6г ^{239}Pu , облучаемой нейтронами, характеризуется высокой насыщенностью пиками. Наряду с гамма-квантами, излучаемыми осколками после распада короткоживущих возбужденных состояний, в этом спектре присутствуют гамма - линии, связанные с разрядкой возбужденных состояний продуктов деления после их β -распада, (n, γ) и $(n, n' \gamma)$ реакциями. Так как число гамма - линий очень велико, многие из них в наблюдаемом спектре не разрешаются, а проявляются в виде сплошной подложки и отдельных "бампов". Существенный вклад в подложку вносят гамма - кванты, испытавшие комптоновское рассеяние, потерявшие часть своей энергии и зарегистрированные вследствие этого в более мягкой области спектра.

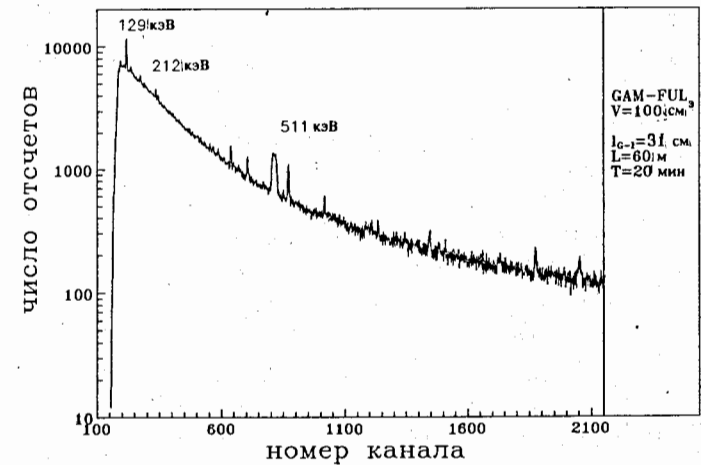


Рис.2. Аппаратурный спектр гамма-излучения от ^{239}Pu (1.6г) в пучке нейтронов

3.2. Фоновое гамма-излучение, связанное с нейтронами

При делении ядра наряду с гамма-квантами рождаются быстрые нейтроны. Их взаимодействие с ядрами элементов, входящих в состав самого детектора и конструкционных материалов экспериментальной установки, приводит к регистрации гамма-квантов, не имеющих отношения к осколкам. В таблице 2 показаны характеристики основных из этих взаимодействий, в основном, - по данным работы [13]. Если при измерениях гамма-спектра на спонтанно делящемся ядре ^{252}Cf [10, 11] вклад этих фоновых гамма-линий определяется только активностью образца, то при изучении деления, вызванного нейтронами, возникает дополнительный вклад. Он связан с реакциями захвата и неупругого рассеяния нейтронов пучка на ядрах конструкционных материалов и Ge-детектора. Величина этого вклада определяется плотностью нейтронного потока в пучке, условиями коллимации и геометрическими факторами. Несмотря на то, что гамма-излучение от нейтронов пучка не коррелировано с актом деления ядра-мишени, вероятность регистрации его достаточно велика вследствие случайных совпадений.

Таблица 2. Фон, связанный с нейтронно-ядерным взаимодействием

Энергия гамма-кванта $E_{\gamma}, \text{кэВ}$	Источник излучения
139.88±0.07	$^{75m}\text{Ge}; IT; T_{1/2} = (45.8 \pm 3.1)\text{с}$
197.91±0.07	$^{71m}\text{Ge}; IT; T_{1/2} = (21.5 \pm 0.4)\text{мс}$
472.6±0.2	$^{27}\text{Al}(n, \alpha\gamma)^{24}\text{Na}$
478.4±0.3	$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}^*; ^6\text{Li}(n, \gamma)^7\text{Li}$
511.00±0.3	аннигиляция
596.06±0.10	$^{74}\text{Ge}(n, n'); ^{73}\text{Ge}(n, \gamma)^{74}\text{Ge}$
609.0±0.2	$^{74}\text{Ge}(n, n'); ^{73}\text{Ge}(n, \gamma)^{74}\text{Ge}$
693.4±0.8	$^{72}\text{Ge}(n, n')$
834.5±0.2	$^{72}\text{Ge}(n, n')$
843.62±0.14	$^{27}\text{Al}(n, n')$
1014.4±0.2	$^{27}\text{Al}(n, n')$
1039.5±0.3	$^{70}\text{Ge}(n, n')$
1779.1±0.2	$^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$
1293.5	$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116m}\text{In}$
1097.3	$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116m}\text{In}$

3.3. Гамма-кванты естественной радиоактивности ядра-мишени

Случайные совпадения являются также причиной того, что в измеряемом спектре присутствуют пики, соответствующие гамма-квантам естественной радиоактивности ядра-мишени ^{239}Pu . Как у всех нестабильных ядер, испытывающих α -распад, он сопровождается характерным гамма-излучением. Интенсивность излучаемых гамма-квантов определяется количеством радиоактивных ядер в мишени и временем жизни. Период полураспада для ^{239}Pu относительно невелик: он составляет $2.4131 \cdot 10^4$ лет (для ^{235}U - $7.038 \cdot 10^8$ лет, для ^{233}U - $1.5911 \cdot 10^5$ лет). Короткое время жизни изотопа плутония-239 делает его "неудобным" объектом исследований по ряду причин. Одна из них, существенная для применения спектроскопических методов, - интенсивное гамма-излучение. В мишени, содержащей 1г плутония, происходит около $2.27 \cdot 10^9$ альфа-распадов в секунду. Энергия и относительный выход наиболее интенсивных гамма-линий сопутствующего излучения показаны в таблице 3. Наряду с данными таблицы изотопов [12] в ней представлены результаты одной из более поздних оригинальных работ [14].

Таблица 3. Гамма-кванты естественной α -радиоактивности ^{239}Pu

Энергия гамма-кванта $E_{\gamma}, \text{кэВ}$	Выход относительно α -активности (%)	
	[12]	[14]
51.6	0.0208	0.027(5)
98.8	0.0013	
103.0	0.000179	
115.4	0.000676	
116.2	0.000596	
129.3	0.0062	0.00641(5)
144.2	0.00029	
203.5	0.00056	0.000568(4)
204.9	0.0002	
225.4	0.0000163	
237.7	0.000015	
243.3	0.000023	
255.3	0.000080	
263.9	0.000025	
332.8	0.000505	0.000492(4)
375.0	0.00158	0.001547(12)
413.7	0.00151	0.001455(9)

3.4. Высокая импульсная нагрузка спектрометра и ограничение его быстродействия

При плотности потока нейтронов $2 \cdot 10^3 \cdot E^{-0.9}$ нейтр./см² с эВ на мишени 1.6г ²³⁹Pu для спектрометра на основе Ge(Li)-детектора с объемом 50 см³, удаленном от мишени на расстояние 9 см, импульсная нагрузка превышает $5 \cdot 10^4$ с⁻¹. Так как мертвое время детектора составляет десятки наносекунд, такая нагрузка не перегружает детектор, а ограничение быстродействия спектрометра, приводящее к потере информации, определяется характеристиками электронных блоков измерительной системы спектрометра. Суммарное мертвое время используемых в ней спектроскопического усилителя ORTEC - 572 и амплитудно - цифрового преобразователя составляет около 20 мкс для гамма - квантов с энергией 500 кэВ. При этом просчеты спектрометра могут составить более 50%.

4. Требования к техническому обеспечению эксперимента

В связи с высокой интенсивностью фона для выделения гамма - квантов из осколков необходимо использовать технику совпадений. В качестве устройства, регистрирующего акт деления и запускающего схему совпадений, используются ионизационные камеры деления, содержащие делющую мишень ([15],[16]). Число выделяемых линий в гамма-спектре совпадений определяется, главным образом, разрешающей способностью гамма-детектора и его эффективностью. На рисунке 3 показан аппаратный спектр гамма-лучей осколков деления ²³⁵U, измеренный в работе [8] во временном окне совпадений 32нс. Площадь фотопиков полного поглощения в нем для наиболее ярких гамма-линий от осколков не превышает 15% от площади подложки.

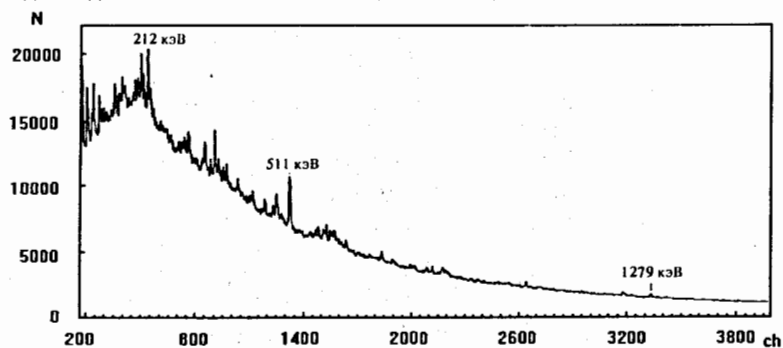


Рис.3. Спектр гамма-лучей, сопутствующих делению ²³⁵U

4.1. Оптимизация параметров гамма-спектрометра

Очевидным требованием, предъявляемым к параметрам спектрометра, в первую очередь является его максимальная разрешающая способность и эффективность. Эти характеристики определяются качеством используемого гамма-детектора. В настоящее время широко применяются Ge-детекторы с энергетическим разрешением: $\Delta E = (1.8-1.9)$ КэВ по линии 1332 кэВ ⁶⁰Со и с относительной эффективностью $K_{eff}^{rel} = (30-40)\%$ и более, производимые рядом фирм из сверхчистого германия n-типа. Эти детекторы не требуют постоянного охлаждения и отличаются повышенной радиационной стойкостью к воздействию быстрых нейтронов. Последнее обстоятельство особенно важно при измерениях на пучке нейтронов реактора. В таблице 4 показаны параметры применяемого в спектрометре Ge(Li) - детектора, поставляемого объединением ИЗОТОП : DGDK-110. Там же, для сравнения, приведены параметры Ge - детектора из сверхчистого германия, производимого фирмой ORTEC: GR3019.

Таблица 4. Характеристика германиевых детекторов

Параметр	DGDK-110	GR3019
Относительная эффективность, %	12	30
Энергетическое разрешение 122 кэВ (кэВ FWHM)	1.4	0.9
1332 кэВ (кэВ FWHM)	2.3	1.9
Пик/Комптон	24	48
Рад.стойкость Флюэнс (нейтр./см ²)	10^9 [17]	$\geq 10^{10}$ [18]
Стоимость (на 1989г.)	30 т.руб.	48.5 т.дол.США

Существенно большая эффективность и лучшее энергетическое разрешение детектора GR3019 могут значительно расширить информативность эксперимента, позволяя выделять большее число гамма-линий и увеличивая статистическую значимость получаемых данных. Более чем десятикратное увеличение радиационной стойкости избавит от неприятностей, связанных с повреждениями детектора при проведении измерений.

4.2. Подавление комптоновской подложки в гамма-спектре совпадений

Высокая подложка в гамма-спектре совпадений (рис.3), затрудняющая его анализ, в значительной мере связана с регистрацией гамма-квантов, испытавших комптоновское рассеяние с потерей энергии. Один из возможных способов подавления этого эффекта применялся в работе [8]. Он базируется на аппаратном отборе импульсов, поступающих с детектора, по форме или времени нарастания [19] и позволяет уменьшить комптоновскую подложку на 25-50% при незначительной потере интенсивности в фотопике (5-20%) [20].

Другой способ, широко применяемый в гамма-спектрометрах, предлагает использование так называемой "активной" защиты. Он сводится к окружению Ge другим детектором, эффективно регистрирующим гамма-кванты, испытавшие комптоновское рассеяние. Включенный в схему анти-совпадений, такой детектор позволяет исключить из спектра импульсы, соответствующие неполному поглощению энергии гамма-кванта в Ge-детекторе. Таким образом комптоновская подложка может быть подавлена в 10-15 раз без потерь для фотопиков полного поглощения [21, 22].

Последний способ, являясь более эффективным, связан с усложнением спектрометра и увеличением количества конструктивных материалов в нем. При этом возрастает интенсивность нейтронно-ядерных взаимодействий, что ведет к увеличению вклада фоновых гамма-линий, приведенных в таблице 2, и подложки во времяпролетном спектре. Если нейтроны, испытавшие неупругое рассеяние в Ge-детекторе, регистрируются "защитным" детектором, то интенсивность этих линий может быть подавлена аналогично подавлению комптоновской подложки в спектре.

При использовании "активной" защиты спектрометра на нейтронном пучке необходимо учитывать, что при значительном уровне гамма-фона, связанного с нейтронно-ядерными взаимодействиями, высокая эффективность "защитного" детектора ведет к большой интенсивности счета в канале антисовпадений. Вследствие случайных совпадений импульсов от этого детектора и Ge-детектора в окне антисовпадений может быть потеряна часть информации.

В связи с этими обстоятельствами использование "активной" защиты для улучшения характеристик спектрометра требует дополнительной оптимизации его конструкции и экспериментальной проверки эффективности применения этого метода для конкретных фоновых условий.

4.3. Оптимизация геометрии спектрометра и экспериментальной установки на пучке нейтронов

Для снижения интенсивности фона, связанного с нейтронно-ядерными взаимодействиями, необходимо, прежде всего, минимизировать количество конструктивных материалов экспериментальной установки, облучаемых нейтронами. Это требование, относящееся к толщине входного и выходного окон, толщине подложки с конвертером из делящегося материала, наличию дистанционирующих колец и других конструктивных особенностей, учитывалось при изготовлении делительной камеры с ^{239}Pu [16].

При коллимировании нейтронного пучка необходимо соблюсти два условия. Во-первых, диаметр пучка должен быть таким, чтобы полностью "освещалась" камерная мишень, а остальные конструктивные элементы камеры находились в "тени". Во-вторых, ближайший коллиматор должен быть удален от спектрометра настолько, чтобы рассеянные в нем нейтроны не влияли на уровень фона.

Для уменьшения фона от перерассеянных нейтронов желательно обеспечить максимальное удаление спектрометра от строительных конструкций экспериментального павильона (пол, потолок, стены) и проводку коллимированного пучка с использованием вакуумированного нейтронотода.

При соблюдении этих условий уровень подложки во времяпролетном спектре и степень выделения отдельных резонансов будет определяться исключительно "качеством" нейтронного источника.

Для увеличения эффективности спектрометра и обеспечения тем самым лучшей статистической обеспеченности эксперимента стремятся максимально приблизить гамма-детектор к камере деления. При этом возрастает импульсная нагрузка спектрометра и радиационная нагрузка на детектор. Наличие мертвого времени в измерительной системе делает нецелесообразным чрезмерное уменьшение расстояния между камерой и детектором, приводящее к существенной потере информации из-за просчетов при одновременном увеличении вероятности радиационных повреждений Ge-детектора. В связи с этим необходимо оптимизировать геометрию спектрометра с учетом эффективности и радиационной стойкости гамма-детектора.

На рисунках 4 и 5 схематически показаны две конфигурации гамма-спектрометра на 5-м канале реактора ИБР-30 и спектр (γ - f) совпадений по времени пролета нейтронов в интервале энергий от 11эВ до 96эВ.

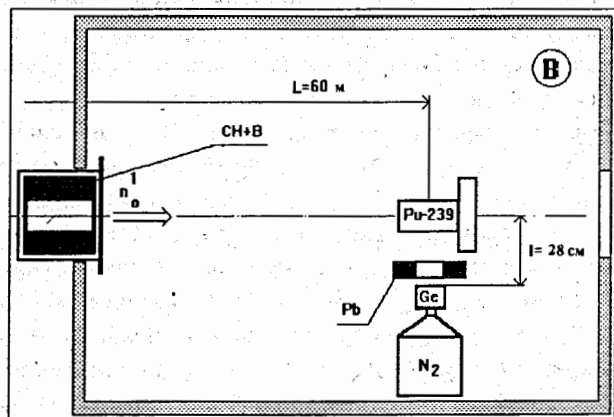
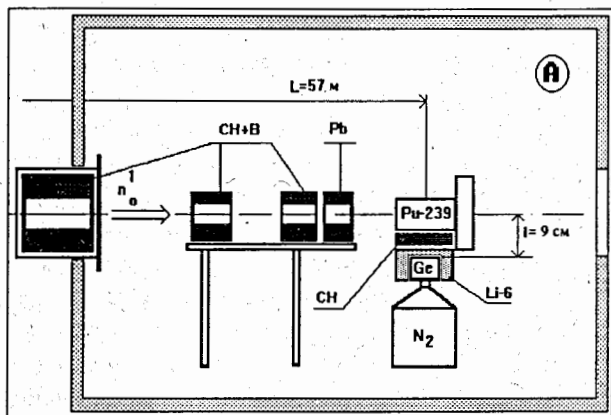


Рис.4. Возможные конфигурации спектрометра на пролетной базе $L=(57 - 60)$ м реактора ИБР-30

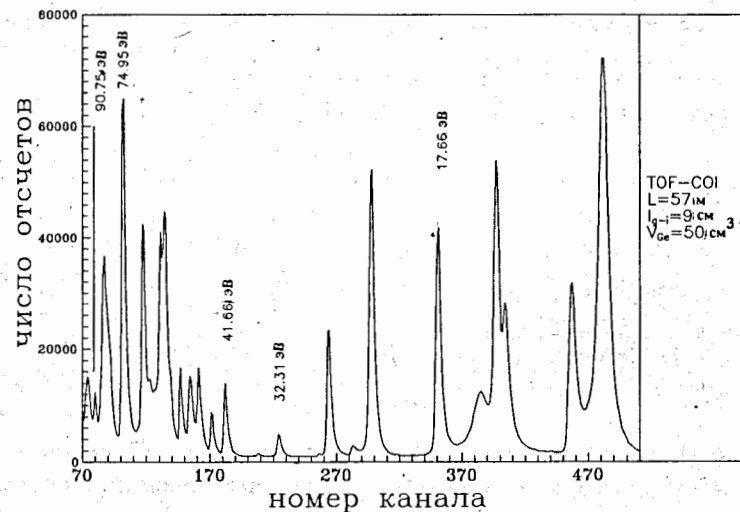


Рис.5. Спектр $(\gamma - f)$ совпадений по времени пролета в интервале от 11эВ до 96эВ

Из сравнения приведенных в таблицах 5 и 6 отношений числа отсчетов в максимуме и минимуме I_p^0 (пик/провал) для резонансов времяпролетных спектров $(\gamma - f)$ совпадений и камеры деления следует, что, оптимизируя конфигурацию спектрометра на пучке нейтронов, можно понизить уровень фона от перерассеянных нейтронов. При этом для конфигурации "В" удастся снизить подложку в спектре камеры деления на 10%, а в спектре совпадений - на 20% и таким образом улучшить условия для анализа спектра гамма-квантов в отдельных резонансах.

Таблица 5. Отношение пик/провал для времяпролетного спектра совпадений

Конфигурация спектрометра		Энергия нейтронного резонанса, эВ					
		90.75	74.95	41.66	32.31	17.66	7.82
$I_p^0(A)$	$l=9$ см	1.7	14	8.3	5	37	43
	$V_{Ge} = 50$ см ³ $\Delta T_\gamma = 240$ нс						
$I_p^0(B)$	$l=28$ см	2	18	11	6	41	49
	$V_{Ge} = 50$ см ³ $\Delta T_\gamma = 1000$ нс						
$I_p^0(B)/I_p^0(A)$		1.17	1.3	1.33	1.2	1.1	1.15
Среднее $I_p^0(B)/I_p^0(A)$		1.2 ± 0.03					

Таблица 6. Отношение пик/провал для времяпролетного спектра камеры деления

Конфигурация спектрометра		Энергия нейтронного резонанса, эВ					
		90.75	74.95	41.66	32.31	17.66	7.82
$I_v^p(A)$	$l = 9\text{см}$ $V_{Ge} = 50\text{см}^3$ $\Delta T_n = 8192\text{нс}$	1.7	16	8.6	5.5	35	38
$I_v^p(B)$	$l = 28\text{см}$ $V_{Ge} = 50\text{см}^3$ $\Delta T_n = 8192\text{нс}$	2.0	18	9.5	5.8	41	39
$I_v^p(B)/I_v^p(A)$		1.17	1.14	1.1	1.05	1.18	1.3
Среднее $I_v^p(B)/I_v^p(A)$		1.1 ± 0.02					

В последнем варианте спектрометра расстояние камера деления – Ge-детектор увеличено с 9см до 28см. Такая геометрия позволяет отделить фоновые гамма-кванты, рожденные при взаимодействии быстрых нейтронов деления с детектором, по времени пролета. На рисунке 6 показан временной спектр совпадений камера деления - сцинтилляционный детектор на основе жидкости NE-213, для расстояния камера-детектор 31см в геометрии, показанной на вставке. Кроме основного пика, соответствующего гамма-квантам из осколков, в спектре присутствует пик от нейтронов деления, сдвинутый на 12-13 нс, требующихся для преодоления ими расстояния камера - детектор.

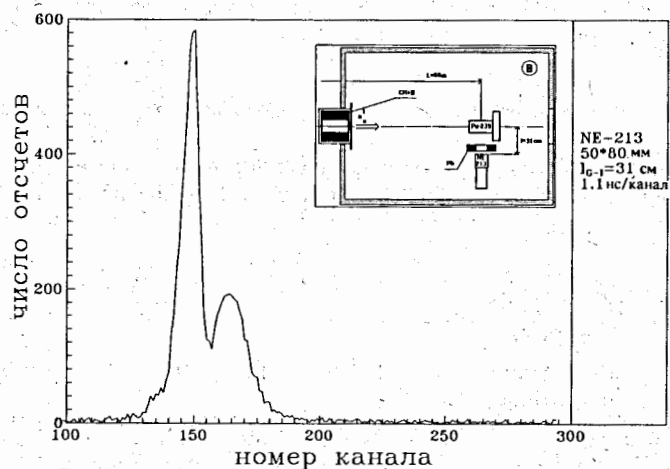


Рис.6. Спектр совпадений камера деления - NE-детектор. Цена канала 1.1нс

4.4. Применение многомерного анализа при проведении эксперимента

В работах по измерению спектра гамма-квантов из осколков деления ^{235}U резонансными нейтронами на ИБР-30 [8] проводился двумерный анализ с регистрацией времени пролета T_n , и энергии гамма-кванта E_γ для фиксированного окна совпадений длительностью $\Delta T_\gamma = 32\text{нс}$. Расширение числа параметров до трех с целью регистрации дополнительной характеристики T_γ – интервала времени между моментами регистрации осколка камерой деления и гамма-кванта Ge-детектором – при некотором усложнении спектрометра, расширяет методические возможности эксперимента.

На рисунке 7 показан временной спектр совпадений камера деления - гамма-детектор, соответствующий этому параметру, интегрированный по энергии нейтронов и гамма-квантов. В левую часть спектра (а) попадают события, связанные со случайными совпадениями импульсов с детектора и камеры деления. Пик в центральной части (b), в основном, соответствует разрядке короткоживущих возбужденных состояний осколков, его ширина характеризует временное разрешение спектрометра. На участке спектра (с), наряду с распадом возбужденных уровней с временем жизни более 10нс, значителен вклад коррелированных с делением ($n, n'\gamma$) взаимодействий. В правой части (d) наряду со случайными совпадениями представлены события, соответствующие разрядке уровней с временами жизни до 100нс и более. На рисунке 8 приведены спектры гамма-квантов для каждого из этих временных интервалов.

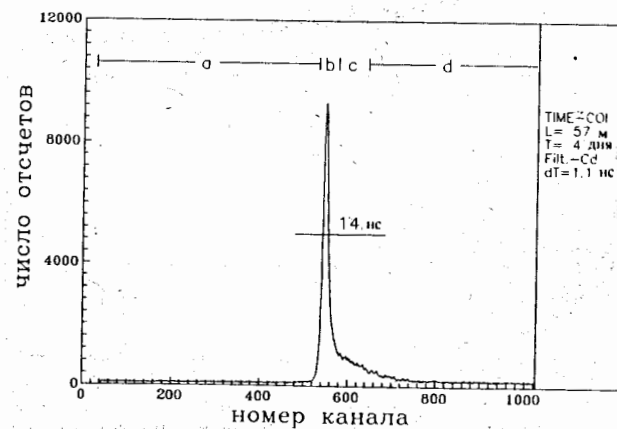


Рис.7. Временной спектр совпадений камера деления - гамма-детектор

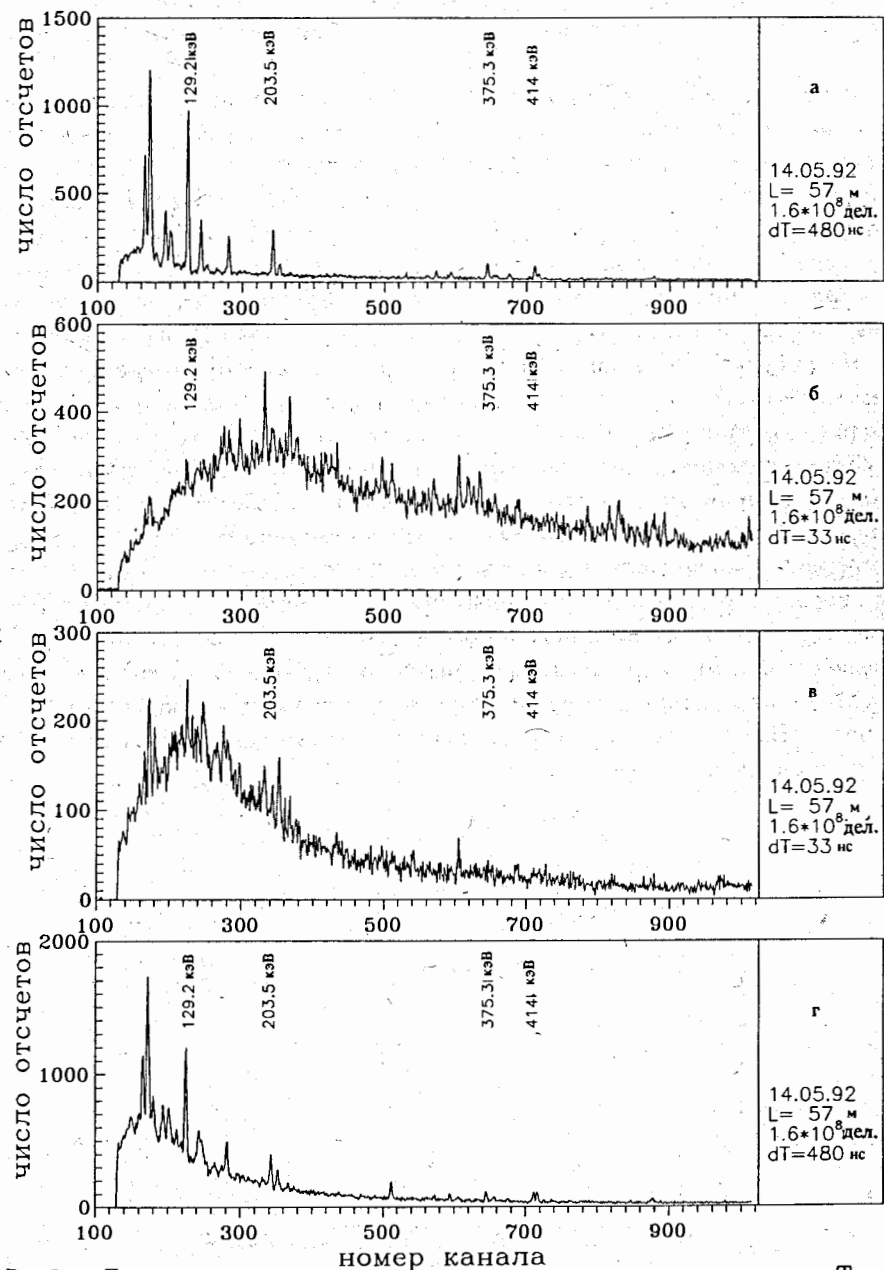


Рис.8. Гамма-спектры для различных интервалов по временному параметру T_γ

Проводимый в режиме off-line раздельный анализ этих спектров позволяет выделить события, связанные с разрядкой короткоживущих возбужденных состояний (б), установить источник и определять интенсивность гамма-линий фона случайных совпадений (а), фона от (n, p, γ) реакций, коррелированного с актом деления (с), наблюдать распад относительно долгоживущих возбужденных состояний осколков (с, д). Время жизни этих состояний определяется из временных спектров, подобных представленному на рисунке 7, для выделенных линий спектра д рисунка 8. Результаты такого анализа, сопоставляемые с известными спектроскопическими данными, используются для повышения надежности идентификации осколков. В ряде случаев это существенно, так как гамма-спектр сложен и не все линии в нем полностью разделяются. Наряду с этим обстоятельством, получение новых данных о времени жизни возбужденных состояний осколков деления представляет самостоятельный интерес. Возможность получения таких данных иллюстрируется рисунком 9. На нем показаны временные спектры (по T_γ -параметру) для гамма-линий с энергией $E_\gamma = 296$ кэВ, соответствующей разрядке состояния 2^+ ядра ^{102}Mo с временем жизни $\tau = 0.11$ нс [12] (а), и другой линии с энергией $E_\gamma = 204$ кэВ, отвечающей распаду состояния $7/2^+$ в ядре ^{95}Sr (б) с временем жизни $\tau = 21.8$ нс [12].

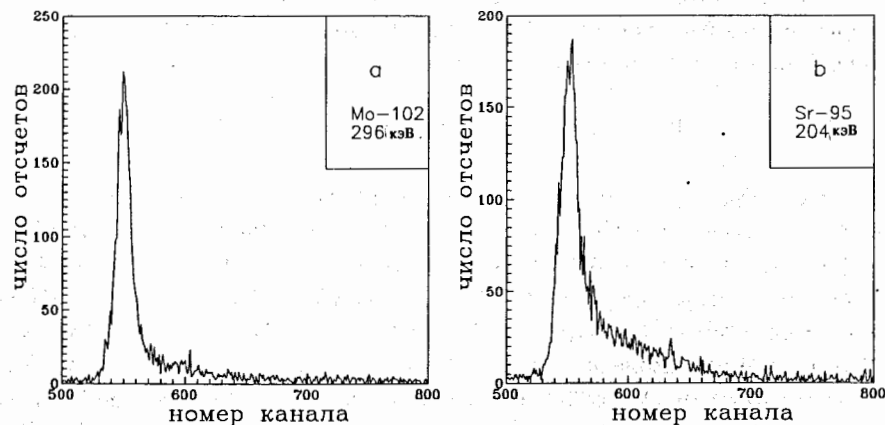


Рис.9. Временные спектры для выделенных гамма-линий двух осколков деления. Цена канала 1.1нс.

4.5. Использование гамма-линий естественной радиоактивности ^{239}Pu для контроля за параметрами спектрометра при проведении измерений и коррекции результатов

Естественная радиоактивность ^{239}Pu , связанная с его α -распадом, создает значительные трудности при выделении сигналов с камеры деления от осколков на фоне наложенных импульсов от альфа-частиц [16]. Гамма-кванты, сопутствующие альфа-распаду, являясь фоновыми при анализе гамма-излучения из осколков, оказываются полезными для калибровки и определения эффективности спектрометра, для контроля за работой измерительной системы в режиме "on-line". Пики в гамма-спектре (а) на рисунке 8 соответствуют наиболее интенсивным гамма-переходам, сопутствующим α -распаду плутония. Проводя измерение подобного спектра вне пучка нейтронов и основываясь на данных таблицы 3, можно получить данные о реальной эффективности спектрометра с точностью, определяемой знанием количества изотопа плутония в слоях камеры деления. Сравнение этих данных с результатами применения стандартной методики, основанной на использовании калибровочных гамма-источников с расчетом коэффициентов поглощения излучения в слоях мишени и конструкционных материалах методом Монте-Карло [23], позволяет оценить правильность последних.

При проведении измерений на пучке нейтронов число сопутствующих α -распаду гамма-квантов N_γ^p , регистрируемых вследствие случайных совпадений, может быть рассчитано по формуле:

$$N_\gamma^p = N_\alpha * k_\gamma^p * N_f * \epsilon_\gamma * \Delta t \quad (3)$$

Здесь: N_α - число альфа-распадов в мишени за секунду, k_γ^p - интенсивность гамма - перехода, N_f - число зарегистрированных делений, ϵ_γ - эффективность регистрации, Δt - длительность окна схемы совпадений. Если количество плутония в мишени составляет M (г), то число распадов за секунду составит: $N_\alpha(\text{с}^{-1}) = 2.27 * 10^9(\text{с}^{-1}\text{г}^{-1}) * M(\text{г})$. Таким образом, по формуле (3) определяется ожидаемая интенсивность фоновых гамма-линий естественной радиоактивности в измеряемом спектре при известной эффективности спектрометра. Сравнение ожидаемой интенсивности с измеренной в ходе эксперимента дает возможность оценить потери информации из-за просчетов или других возможных причин и внести поправки в конечный результат. Использование такой "внутренней нормировки" позволяет снизить вероятность систематических ошибок.

5. Апробация методики и техники эксперимента

В связи с тем, что метод определения выхода осколков деления с использованием их гамма - спектроскопии является косвенным, содержит ряд неопределенностей и возможных источников систематических ошибок, представляется необходимым проведение его апробации. Это может быть сделано в дополнительном эксперименте по определению выхода осколков деления ^{239}Pu тепловыми нейтронами. Существует достаточное количество таких данных, полученных другими методами. Сравнение с ними результатов эксперимента для четно - четных осколков (таблица 1) позволяет убедиться в корректности применения метода и отсутствии систематических ошибок. Результаты такого эксперимента для осколков с нечетным Z и A , сопоставленные с рекомендованными значениями выхода, дают возможность получить новые сведения о заселенности возбужденных уровней ряда осколков и использовать их в дальнейшем для определения выхода осколков деления резонансными нейтронами.

6. Заключение

Из рассмотренных в работе вопросов методики следует, что спектроскопия гамма - излучения, сопутствующего делению ^{239}Pu , представляя собой принципиально простой и эффективный метод определения независимого выхода осколков, при практическом ее применении в экспериментах на импульсном пучке нейтронов осложняется рядом трудностей, основными из которых являются :

1. Высокая насыщенность спектра гамма-квантов из осколков.
2. Фоновое гамма-излучение, связанное с неупругим рассеянием нейтронов.
3. Интенсивное гамма-излучение естественной радиоактивности мишени ^{239}Pu .
4. Высокая импульсная нагрузка спектрометрического канала.
5. Радиационные повреждения Ge-детектора под воздействием быстрых нейтронов.

Значительный уровень комптоновской подложки в измеряемом гамма - спектре, недостаточное энергетическое разрешение детектора и быстрое действие спектрометра, используемого в исследованиях на ИБР - 30, существенно ограничивают число идентифицируемых осколков и точность определения их выхода.

С целью совершенствования методики при измерении спектра гамма - излучения, сопутствующего делению ^{239}Pu , вводится дополнительный временной параметр, определяющий время регистрации гамма - кванта относительно акта деления. Использование этого параметра не только расширяет возможности анализа спектра при идентификации осколков, но позволяет, также, определять время жизни некоторых долгоживущих возбужденных состояний. Кроме того, при обработке экспериментальных данных используются гамма-линии естественной радиоактивности ^{239}Pu для контроля за параметрами спектрометра при проведении измерений и коррекции результатов. Таким образом удается снизить вероятность систематической ошибки в определении выхода осколков.

Кроме этих методических приемов, для повышения эффективности методики, улучшения характеристик спектрометра, увеличения точности и надежности получаемых данных, наряду с очевидными требованиями применения высококачественного гамма - детектора из сверхчистого германия с повышенной радиационной стойкостью и комплектации спектрометрического канала блоками быстрой (наносекундной) электроники высокой надежности, можно рекомендовать выполнение следующих условий при проведении эксперимента:

1. Проведение оптимизации геометрии спектрометра с учетом конкретных условий на пучке нейтронов.

2. Применение оптимальных методов для подавления комптоновской подложки в гамма - спектре.

3. Апробация методики, аппаратуры и алгоритмов обработки экспериментальных данных путем проведения дополнительного эксперимента по определению выхода осколков деления тепловыми нейтронами и сравнения получаемых таким образом результатов с рекомендованными данными, полученными другими методами.

Автор глубоко признателен Л.Б.Пикельнеру, А.Б.Попову, А.А.Богдзелю, Я.Климану и Й.Криштиаку за плодотворные обсуждения рассмотренных в работе вопросов и полезные замечания.

Литература

- [1] Dlouhý Z., Duka - Zolyomi A., Kristiak J., Panteleev Ts., Czech. J. Phys., 1980, B 30, p.1101.
- [2] Nasuhoglu R., Raboy S., Ringo G.R., Glendenin L.E. and Steinberg E.P., Phys.Rev., 1957, v.108, p.1522.
- [3] Rigier R.B., Burgus W.H., Tromp R.L. et al., Phys.Rev., 1959, v.113, p.1589.
- [4] Rigier R.B., Burgus W.H., Tromp R.L. and Sorensen B.H., Phys. Rev., 1960, v. 119, no.6, pp.2017-2020.
- [5] Cowan G.A., Buyhurst B.P., Prestwood R.J., Gilmore J.S. and Knobeloch G.W., Phys.Rev., 1966, v.144, no.3, pp.979-983.
- [6] Гундорин Н.А., Дука-Зойоми А., Климан Я., Фурман В.И. Вариации выхода гамма-квантов при делении ^{235}U резонансными нейтронами, Дубна, 1987, Сообщение ОИЯИ P3-87-718.
- [7] Hambsch F.-J., Knitter H. - H., Budtz - Jørgensen C. and Theobald J.P., Nucl.Phys., 1989, v. A491, p.56.
- [8] Антонов С.А., Богдзель А.А., Гундорин Н.А., Дука - Зойоми А., Климан Я., Кржистек Д., Островной А.И., Островная Т.М., Попов А.Б., Пресперин В., Тишин В.Г., Ширикова Н.Ю. Методика многомерных измерений и анализа выхода продуктов деления ядер резонансными нейтронами, Дубна, 1985, Сообщение ОИЯИ 13-85-701.
- [9] Scherbakov O.A., Phys. Elem. Part and Atom. Nucl., 1990, 21, p.419.
- [10] John W., Guy F.W. and Wesolowski J.J., Phys. Rev. C2, 1970, p.1451.
- [11] Cheifetz E., Wilhelmy J.B., Jard R.C. and Thompson S.G., Phys. Rev. C4, 1971, p.1913.
- [12] Lederer C.M., Shirley V.S., Table of Isotopes-Seventh Edition., New York: Wiley-Intersci.Pub., 1978, p.1523.
- [13] Bunting R.I., Kraushaar J.J., Nucl. Instr. Meth., 1974, v. 118, pp.565-572.
- [14] Helmer R.G., Reich C.W., Gehrke R.J. and Baker J.D., Int. J. Appl. Isot., 1982, vol. 33, no. 1, pp. 23-33.

- [15] Bogdzel A.A., Duka - Zolyomi A., Kliman J., Presperin V., Avdeev S.P., Kuznetsov V.D. and Dlouhy, Fast Ionization Chamber for Fission Fragment Detection with a Large Amount of U-235. - Nucl. Instr. Meth., 1982, v. 200, no. 2, pp.407-410.
- [16] Богдзель А.А., Григорьев Ю.В., Гундорин Н.А., Дука - Зойоми А., Зо Сен Хен, Климан Я., Солошенко П.С., Быстродействующая многосекционная камера деления с плутонием-239, Дубна, 1990, Препринт ОИЯИ Р3-90-395.
- [17] Kraner H.W., Pehl R.H., Haller E., IEEE Transactions on Nuclear Science, 1975, v. NS-22, pp.149-159.
- [18] Pehl R.H., Madden N.W., Elliott J.H. et al., IEEE Transactions on Nuclear Science, 1979, v. NS-26, no. 1, pp.321-323.
- [19] Богдзель А.А., Дука - Зойоми А., Климан Я., Пресперин В. Использование дискриминации по времени нарастания импульса для улучшения параметров Ge(Li) - спектрометров, Дубна, 1982, Препринт ОИЯИ Р13-82-737.
- [20] Климан Я. Исследование выхода гамма-квантов из одиночных осколков деления при делении U-235 резонансными нейтронами, 1988, УДК 539.173.4, Дубна.
- [21] Konijn J., Goudsmit P.F.A. and Lingeman E.W.A., Nucl. Instr. Meth., 1973, v. 109, pp. 83-92.
- [22] Beetz R., Posthumus W.L., De Boer F.W.N., Maarleveld J.L., Van Der Schaaf A., and Konijn J., Nucl. Instr. Meth., 1977, v. 145, pp.353-357.
- [23] Гундорин Н.А., Дука - Зойоми А., Зо Сен Хен, Климан Я., Полгорски В. Определение абсолютной эффективности Ge(Li)-спектрометра для измерения мгновенного γ -излучения из плутониевой камеры деления, Дубна, 1989, Сообщение ОИЯИ Р13-89-229.
- [24] Гангрский Ю.П., Марков Б.Н., Перельгин В.П. Регистрация и спектроскопия осколков деления, Москва, Энергоатомиздат, 1992.

Рукопись поступила в издательский отдел
22 февраля 1994 года.