

Объединенный институт ядерных исследований дубна

10

P3-93-440

А.А.Говердовский<sup>1</sup>, Е.Дерменджиев, И.Русков, Ю.С.Замятнин

СЕЧЕНИЕ ДЕЛЕНИЯ <sup>237</sup>Np НЕЙТРОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ *E*<sub>µ</sub>≤ 500 эВ

Направлено в журнал "Ядерная физика"

<sup>1</sup>Физико-энергетический институт 249020 Обнинск Калужской обл., Россия



Деление <sup>237</sup>Np резонансными нейтронами [1-5] представляет определенный интерес для физики деления, так как составное делящееся ядро <sup>238</sup>Np в отличие от гораздо более детально изученных делящихся изотопов урана и плутония - является нечетно - нечетным. Нечетность по N и Z определяет глубоко подбарьерный характер деления этого ядра, поскольку высота барьера деления <sup>238</sup>Np превышает энергию связи нейтрона примерно на 0,5 МэВ [6]. Кроме того, авторами работы [1] была обнаружена периодическая модуляция сечения деления  $\sigma$ , <sup>237</sup>Np и группирование более сильных делительных резонансов в т.н. кластеры, которые отстоят друг от друга примерно на 40 эВ. Установлено также, что отношение делительных ширин Г, сильных резонансов в центрах кластеров к Г, резонансов, расположенных между кластерами, составляет величину порядка 10<sup>3</sup>. При этом наиболее сильные делительные резонансы имеют  $\Gamma_I \sim 10^{-3}$  эВ, а для резонансов между кластерами характерны чрезвычайно малые эначения Г, ~ 10<sup>-6</sup> эВ, которые являются следствием подбарьерного деления <sup>237</sup>Np [1,2]. Дальнейшее уточнение значений о, между кластерами, поиск делительных ревонансов с  $\Gamma_I \leq 10^{-7}$  эВ и изучение статистических и других свойств таких слабых резонансов представляют несомненный интерес.

В последнее время в связи с обсуждением проблемы трансмутации высокоактивных и токсичных трансурановых изотопов интерес к <sup>237</sup>Np сильно возрос. В работе [7] показано, что, "выгорая" в нейтронном поле высокой плотности, каждое разделившееся ядро в цепочке <sup>237</sup>Np —> <sup>238</sup>Np добавляет ~ 0,7 нейтрона, увеличивая тем самым плотность поля. Однако моделирование этого процесса требует знания всего набора ядерных данных для <sup>237</sup>Np и, в том числе, сечения деления <sup>237</sup>Np нейтронами.

Измерения  $\sigma_{f}$  для <sup>237</sup>Np проводились на нейтронных спектрометрах по времени пролета в Сакле [1,2] и Ок-Ридже [4], а также на нейтронах подземного ядерного вэрыва [3] и на свинцовом кубе Университета Киото [5]. Сравнение данных, полученых разными группами, показывает, что измеренные в Сакле значения  $\sigma_{f}$  в среднем примерно в 3 раза меньше соответствующих значений других авторов во всем диапазоне энергий нейтронов  $E_{\kappa} \leq 10^{4}$  эВ. Это побудило нас предпринять измерение  $\sigma_{f}$ <sup>237</sup>Np до  $E_{\kappa} \leq 500$ эВ на импульсном источнике нейтронов (ИИН) на базе бустера ИБР-30 в Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка ОИЯИ, который имеет промежуточное, по сравнению с ИИН в Сакле и Киото, энергетическое разрешение. Ниже приводятся результаты измерения  $\sigma_{f}$ <sup>237</sup>Np нейтронами в интервале  $E_{\kappa} \leq 500$  эВ, полученные в Дубне.



## Метод измерений

Использовался метод измерения  $\sigma_1^{237}$ Np по отношению к  $\sigma_1^{235}$ U. Для этой цели в качестве детектора актов деления в мишенях из нептуния и урана применялась многослойная ионизационная камера деления (КД). КД содержала 12 мишеней из <sup>237</sup>Np и одну мишень из <sup>235</sup>U, которые имели одинаковый диаметр и толщину слоя делящегося вещества порядка 1 мг/см<sup>2</sup>. Для изготовления урановой мишени использовался уран с обогащением ~ 90 % по изотопу <sup>235</sup>U. Нептуний подвергался многократной очистке для сведения содержания <sup>235</sup>U и <sup>239</sup>Pu до минимальной возможной концентрации. Уровень ее определялся тем фактом, что в области  $E_{u} \leq 1$  кэВ величина  $\sigma$ , для  $^{235}$ U и  $^{239}$ Pu в отдельных резонансах превышает  $\sigma$ , для  $^{237}$ Np более чем на три порядка. Содержание <sup>239</sup>Ри определялось *α* - спектрометрическим методом и не превышало 10<sup>-6</sup> г/г. Определение содержания <sup>235</sup>U проводилось по счету делений в интервале E<sub>\*</sub> = 8,55:8,85 эВ во времяпролетном спектре деления <sup>237</sup>Np, т.е. по проявлению наиболее сильного резонанса <sup>235</sup>U при  $E_{v} = 8,8$  эВ. Установлено, что концентрация <sup>235</sup>U в материале нептуниевых мишеней была на уровне  $\sim 10^{-6}$  г/г. Полное количество  $^{237}{\rm Np}$  и  $^{235}{\rm U}$ в соответствующих мишенях составило (33,8±3,4)·10<sup>19</sup> и (2,17±0,22)·10<sup>19</sup> ядер. Для выделения нейтронов разных энергий, падающих на мишени, изпользовался метод времени пролета. Определение потока нейтронов  $\Phi(E)$ с энергией  $E_i$  проводилось по трем ревонансам <sup>235</sup>U при  $E_i = 7,1$ ; 12,4 и 19.3 эВ с рекомендованными вначениями площадей делительных резонансов  $\sigma_{e}\Gamma_{i}$ . Зависимость  $\Phi(E_{i})$  от  $E_{i}$  аппроксимировалась функцией  $\Phi(E_i) \sim E_i^{-0.9}$  [8]. Значение  $\sigma_i(E_i)^{(7)}$  для <sup>237</sup>Np при энергии  $E_i$  определялось по следующей формуле :

 $\sigma_{f}(E_{j})^{(7)} = \frac{\pi}{2} \cdot N_{f}^{(7)} \cdot \left(\frac{\sigma_{o} \Gamma_{f}^{(5)}}{\Sigma N_{f}^{(5)}}\right)_{i} \cdot \frac{n^{(5)} \cdot \epsilon_{f}^{(5)}}{n^{(7)} \cdot \epsilon_{f}^{(7)}} \cdot \left(\frac{E_{j}}{E_{i}}\right)^{0,9}.$  (1)

•1

Эдесь  $N_f^{(7)}$  - число делений ядер <sup>237</sup>Np, а  $\sigma_s \Gamma_{f_i}^{(5)}$  и  $\Sigma N_{f_i}^{(5)}$  являются площадью резонанса <sup>235</sup>U при энергии  $E_i$  и числом делений в пределах этого резонанса соответственно. Эффективности регистрации осколков деления нептуния  $\epsilon_f^{(7)}$  и урана  $\epsilon_f^{(5)}$ , а также число ядер нептуния  $n^{(7)}$  и урана  $n^{(5)}$ определялись в специальных измерениях, которые описаны в работе [8]. В результате, значение среднего сечения деления  $< \sigma_f(E_1, E_2)^{(7)} >$  в интервале энергий  $(E_1, E_2)$  рассчитывалось по формуле:

e tildend

$$<\sigma_{f}(E_{1},E_{2})^{(7)}>=rac{1,66.10^{-6}}{E_{2}-E_{1}}\cdot\sum_{E_{1}}^{E_{2}}N_{f}^{(7)}\cdot\left(rac{E_{j}}{E_{i}}
ight)^{0,9},$$
(2)

CONTRACTOR CONTRACTOR

где  $E_j$  - энергия нейтронов, соответствующая середине энергетического интервала  $(E_1, E_2)$ , а  $E_i$  - энергия одного из трех опорных резонансов <sup>235</sup>U при  $E_{\kappa} = 7.1$ ; 12,4 и 19,3 эВ. Каждое значение  $< \sigma_f (E_1, E_2)^{(7)} >$  является средним по трем значениям  $E_i$ .

## Измерения, результаты, обсуждение

Измерения проводились на ИИН на базе бустера ИБР-30 ЛНФ ОИЯИ с частотой нейтронных вспышек 100 с<sup>-1</sup> и полушириной около 4 мкс.

Пролетная база для нейтронов ИИН равнялась 58,5 м. Время измерений равнялось 1042 часам.

КД работала на смеси Ar(90%) и CH<sub>4</sub>(10%) при давлении в 650 мм рт. ст. Расстояние между электродами равнялось 0,5 см, рабочее напряжение - 400 В.

Усиление, формировка и выделение импульсов деления на фоне импульсов от альфа-частиц осуществлялись электронными блоками фирмы POLON в стандарте КАМАК. Импульсы деления ядер <sup>237</sup>Np и <sup>235</sup>U, независимо друг от друга, поступали на вход измерительного модуля на базе ПЭВМ. Ревультаты измерений представлялись в виде двух времяпролетных спектров деления <sup>237</sup>Np и <sup>235</sup>U соответственно. Процедура определения и вычитания фона из обоих спектров аналогична описанной в работе [8].

По формулам (1) и (2) нами были рассчитаны значения  $< \sigma_I(E_1, E_2)^{(7)} >$ , которые представлены в таблице вместе с соответствующими ошибками.

Ошибки  $\Delta < \sigma_f(E_1, E_2)^{(7)} >$  включают в себя статистическую ошибку суммы делений  $\Delta \Sigma N_f^{(7)}$  в интервале энергий  $(E_1, E_2)$ , ошибки в определении величин  $\epsilon_f^{(7)}, \epsilon_f^{(5)}, n^{(7)}, n^{(5)}$  и ошибки  $\Delta(\sigma_0 \Gamma_f)^{(5)}$  опорных резонансов <sup>235</sup>U при  $E_s = 7,1$ ; 12,4 и 19,3 эВ. Наибольшей является ошибка  $\Delta \epsilon_f^{(7)}/\epsilon_f^{(7)} \sim 14\%$ , которая вместе с ошибками  $\Delta n^{(7)}/n^{(7)}$  и  $\Delta n^{(5)}/n^{(5)}$  определяет возможную систематическую ошибку ~ 18% наших данных. Однако между кластерами делительных резонансов при  $E_s = 40$ ; 119 и 200 эВ, где величина  $< \sigma_f^{(7)} >$  становится весьма малой, суммарная ошибка  $\Delta < \sigma_f^{(7)} > / < \sigma_f^{(7)} >$  возрастает за счет статистической ошибки, достигая до 50%.

На рисунке данные таблицы представлены вместе с данными работ [2,3,5], которые получены на эначительно отличающихся по своему энергетическому разрешению нейтронных спектрометрах - в районе первого кластера <sup>237</sup>Np при  $E_{\mu} = 40$  эВ оно варьирует от ~  $4.10^{-2}\%$  [2] до ~ 40% [5]. Поэтому сравнение данных рисунка между собой, которое приводится ниже, является качественным. Эначения <  $\sigma_{f}^{(7)}$  > при  $E_{\mu} \cong 5.7$ ; 40; 120 и 200 эВ, измеренные нами, примерно в три раза выше величин  $\sigma_{f}$ , полученных в Сакле [2], и в пределах ошибок согласуются с данными Университета Таблица. Усредненное сечение деления <sup>237</sup>Np резонансными нейтронами в интервале энергий нейтронов от 3 до 500 эв

Энергетический	Уср.сеч.деления	Энергетический	Уср.сеч.деления
интервал,	< \sigma_1 >	интервал,	$<\sigma_{I}>$
(эB)	(барн)	(эB)	(барн)
3 - 4	$0,022 \pm 0,006$	50 - 60	$0,006 \pm 0,002$
4 - 5	$0,009 \pm 0,003$	60 – 70	$0,005 \pm 0,002$
5 - 6	$0,055 \pm 0,010$	70 - 80	0,002 ± 0,001
6 - 8	$0,006 \pm 0,002$	80 - 90	$0,004 \pm 0,002$
8 - 10	$0,012 \pm 0,003$	90 – 100	$0,004 \pm 0,002$
10 - 15	$0,008 \pm 0,003$	100 - 110	0,016 ± 0,004
15 - 20	$0,014 \pm 0,004$	110 – 130	$0,16 \pm 0,03$
20 – 25	$0,023 \pm 0,006$	130 – 150	0,050 ± 0,009
25 - 30	$0,11 \pm 0,02$	150 – 180	0,013 ± 0,003
30 – , 35	0,35 ± 0,06	180 - 240	0,22 ± 0,04
35 – 40	1,64 ± 0,26	240 - 300	0,091 ± 0,017
40 - 50, 10, 10, 10, 10, 10, 10, 10, 10, 10, 1	$0,34 \pm 0,06$	300 - 500	0,046 ± 0,012
ale 10 - martine alle alle alle a site and alle alle alle alle alle alle alle all			
0F	and the physical		and the state of the



Сравнение значений  $\sigma_j$  для <sup>237</sup>Np, измеренных в Сакле [2], на нейтронах подземного ядерного взрыва [3], на свинцовом кубе Университета Киото [5] и в настоящей работе:

---[2]; ---- [3]; ---- [5]; ---- настоящая работа

в Киото [5], а также с данными, полученными с использованием нейтронов подземного ядерного вэрыва [3]. Междукластерные значения  $\sigma_i$ , полученные нами, практически совпадают с данными Сакле; хотя можно было ожидать, что они будут выше этих данных примерно в три раза. Это противоречие можно снять, если предположить, что во времяпролетных спектрах деления <sup>237</sup>Np, измеренных в Сакле, не совсем корректно учитывался фон.

Авторы работы [4] предполагают, что заниженные значения  $\sigma_{f}^{(7)}$  Сакле могут быть следствием ошибочного определения количества ядер <sup>237</sup>Np в мишенях  $n^{(7)}$  и концентрации примесей <sup>235</sup>U и <sup>239</sup>Pu в нептуниевых мишенях. Другая возможная причина обсуждается в нашей работе [8]. Предполагается, что авторы работы [2] могли завысить эффективность регистрации  $\epsilon_{f}^{(7)}$  осколков деления <sup>237</sup>Np газовым сцинтилляционным детектором. Обе причины, вместе взятые, могли привести к систематическому занижению значений  $\sigma_{f}$  в этой работе.

## Заключение

Значения  $\sigma_{I}$ , полученные в настоящей работе, наряду с данными других авторов [3,5], могут оказаться полезными для уточнения файлов оцененных данных ENDF/B-VI и более точного моделирования процессов трансмутации <sup>237</sup>Np в нейтронном поле.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить Л.Б.Пикельнера и В.И. Фурмана за полезные обсуждения и интерес к работе.

## Литература

[1] A. Fubini, J. Blons, A. Michaudon, D. Paya, Phys.Rev.Lett., 20, 1373 (1968).

[2] S. Plattard, J. Blons, D. Paya, Nucl.Sci.Eng., 61, 477 (1976).

[3] R.J. Jiacoletti, W.K. Brown, H.G. Olson, Nucl.Sci.Eng., <u>48</u>, 412 (1972);
 M. Hoffman, Bull.American Phys.Soc.,<u>21</u>, 655 (1976).

[4] G.F. Auchampaugh, M.S. Moore, J.D. Moses, R.O. Nelson, R.C. Extermann, C.E. Olsen, Phys.Rev., <u>C29</u>, 174 (1984).

[5] I. Kimura, A. Yamanaka, S. Kanazawa, K. Kobayashi, S. Yamamoto, Y. Nakagome, Y. Fujita, T. Tamai, Report, Int.Seminar on Neutron Physics, Dubna, April 1992.

[6] H. Weigmann, J.P. Theobald, Nucl. Phys. A, <u>187</u>, 305 (1972).

4

[7] P.W. Losowski, C.D. Bowman, E.D. Arthur, P.G. Young, Proc.Int.Conference Nuclear data for Science and Technology, Juelich, FRG, 13-17 May 1991, p.92, server the second control and a state

医乳化 建磷酸盐酸盐 法行政主义 法法法法 医

a start and a start and

a Webert - Start

# Springer-Verlag,1992.

anna 20 Mana

and the first and the second second

[8] А.А. Говердовский, Е. Дерменджиев, И. Русков, Ю.С. Замятнин, Сообщение ОИЯИ РЗ-93-283, Дубна, 1993; ЯФ (в печати).

an ann freithean a an the street of the set of the second street

AMERICAN AND A MARCH MARCH AND A MARCH AND A AND A STREET

assured to be apprended which some attacks to be

t stan oper un en entre en entre en entre presenten in tradición en entre entre entre entre entre entre entre e

#### Рукопись поступила в издательский отдел 9 декабря 1993 года.

1997 1842

Говердовский А.А. и др.

Сечение деления <sup>237</sup>Np нейтронами с энергией E<sub>н</sub>≤ 500 эВ

На импульсном источнике нейтронов на базе бустера ИБР-30 ОИЯИ методом времени пролета проведены измерения сечения деления  $(\sigma_f)^{237}$ Np нейтронами в диапазоне энергий ниже 500 эВ. Значения  $\sigma_f$  в резонансных кластерах, полученные в настоящей работе, согласуются с данными из Университета г.Киото (Япония) и в 3 раза выше значений, полученных в Сакле (Франция). В то же время междукластерные значения  $\sigma_f$  практически совпадают со значениями  $\sigma_f$ , измеренными в Сакле.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1993

#### Перевод авторов

Goverdovsky A.A. et al.

P3-93-440

P3-93-440

<sup>237</sup>Np Fission Cross Section for the Neutron Energy up to  $E_n \le 500 \text{ eV}$ 

Measurements of the fission cross section of <sup>237</sup>Np up to the neutron energy of 500 eV were performed by using a time-of-flight method. The JINR IBR-30 booster was used as a pulse neutron source. The  $\sigma_f$  values for the resonance clusters obtained in this work are consistent with the Kyoto University (Japan) data and are 3 times larger than the Saclay (France) data. On the other hand our  $\sigma_f$  values for intercluster regions are the same as those measured in Saclay.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1993