

- Institute for Theoretical and Experimental Physics, Moscow, 2001. 44 p.
15. **Баско М.М., Медин С.А., Орлов Ю.Н., Суслин В.М.** Сквозной расчет термоядерного горения и разлета плазмы в реакторе ИТС на тяжелых ионах: Препринт ИПМ им. М.В. Келдыша РАН, 2010, № 18. 36 с.
16. **MCNP** — a General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport. LA-7396-m, April 1981.
17. **Физические величины.** Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1991.

Поступила в Редакцию 10.09.10

УДК 539.125.5

ИЗМЕРЕНИЕ НЕЙТРОННЫХ СЕЧЕНИЙ ЗАХВАТА И ДЕЛЕНИЯ ^{236}U

Мурадян Г.В., Восканян М.А., Ястребова Л.П. (ИОЯФ НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Сечение радиационного захвата нейтронов ^{236}U представляет значительный интерес для расчета ядерных реакторов, поскольку, накапливаясь в топливе, он поглощает значительную часть нейтронов с очень малым последующим делением. Кроме того, знание этого сечения необходимо при создании технологии переработки радиоактивных отходов.

Большинство экспериментальных данных о сечении радиационного захвата получено для области энергии нейтронов более нескольких килоэлектронвольт. Менее $E_n \sim 2$ кэВ сечение захвата непосредственно измерено в двух экспериментах [1, 2], результаты которых явно расходятся. В работе [2] сечение определено лишь в области выше 300 эВ. В области перекрытия энергетических диапазонов данные [1] по сравнению с [2] примерно на 20% выше. Между тем требуемая погрешность этой величины в указанной энергетической области составляет 5%.

Рассматриваемая в настоящей статье методика позволяет наряду с сечением захвата получить информацию о сечении деления, которая может служить основой для создания нового независимого метода измерения малого сечения деления.

Методика измерений. Сечение захвата, как и в работе [1], получено с помощью универсальной методики, основанной на измерении распределения количества испускаемых возбужденным ядром частиц при одновременном определении энергии каждой частицы [3]. Суть методики состоит в идентификации событий различных типов взаимодействия нейтронов с ядрами путем измерения распределения количества γ -квантов, испускаемых в результате взаимодействия. Распределение представляет собой зависимость числа событий от числа ис-

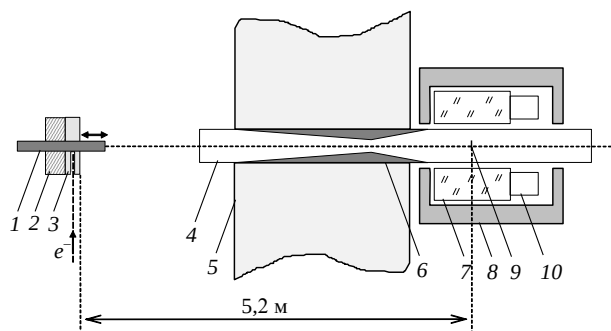
пускаемых γ -квантов. События радиационного захвата, деления и рассеяния сосредоточены в разных областях этого распределения, что и позволяет их разделять. Указанное распределение измеряется с помощью многосекционного сцинтилляционного 4π -детектора с почти 100%-ной эффективностью посредством регистрации многократных совпадений импульсов от его секций. Исследуемый образец размещается в центре сквозного канала детектора, через который проходит пучок нейтронов. Для защиты сцинтиллятора от рассеянных образцом нейтронов канал окружается слоем ^{10}B , который служит одновременно (n, γ)-конвертером, позволяющим также регистрировать рассеянные нейтроны и нейтроны деления. Это дает возможность, в частности, выделить долю событий рассеяния.

Настоящие измерения, как и [1], проведены на импульсном источнике нейтронов ФАКЕЛ НИЦ «Курчатовский институт», но с помощью другого вновь созданного нейтронного спектрометра [4], позволившего увеличить точность данных в области энергии нейтронов менее 2 кэВ. Новый спектрометр размещался в другой экспериментальной зоне установки ФАКЕЛ. Нейтронная мишень установлена на прямом пучке электронов, где ток частиц в 3 раза больше. Детектор располагался в защитном бункере из железобетона с толщиной стен 2 м. Пролетную базу удалось сократить в 2 раза (с 10,4 до 5,2 м). В результате плотность потока нейтронов на исследуемом образце увеличилась более чем в 10 раз. Это позволило уменьшить диаметр нейтронного канала и соответственно использовать компактный детектор с меньшим примерно в 3 раза объемом сцинтиллятора с сохранением толщины кристаллов и геометрической эффективности. Была уменьшена также толщина

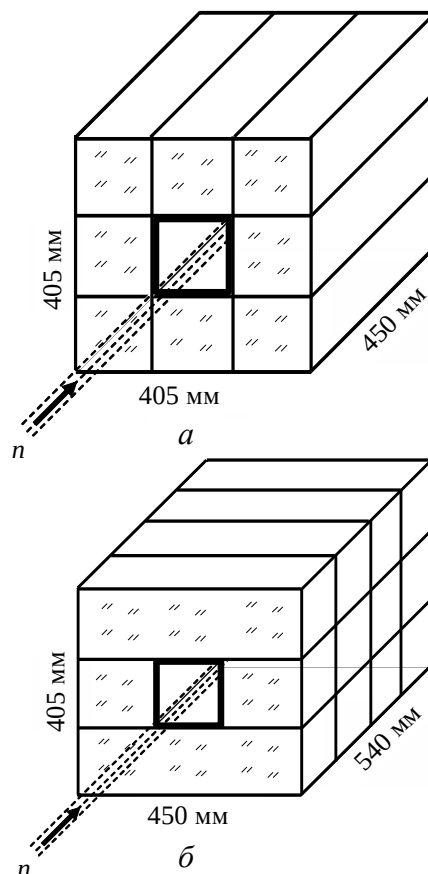
защиты из ^{10}B вокруг нейтронного канала внутри детектора, что допустимо, так как верхняя граница исследуемой области энергии нейтронов примерно в 3 раза ниже, чем в работе [1]. Все это привело к значительному снижению фона и соответственно погрешности, связанной с фоном, и увеличению эффективности детектора вследствие уменьшения толщины защиты из ^{10}B . Последнее позволило еще больше приблизить эффективность регистрации к 100% и соответственно свести к минимуму ее изменения от резонанса к резонансу.

На рис. 1 приведена общая схема нейтронного спектрометра. Нейтронной мишенью является длинный (300 мм) цилиндр из природного урана диаметром 20 мм, охлаждаемый водой. Для уменьшения локального тепловыделения урановый цилиндр совершал поступательно-возвратные движения со скоростью 2 мм/с вдоль оси нейтронного пучка, перпендикулярной пучку электронов. Урановая мишень одновременно служила теневой защитой. Благодаря такой защите γ -кванты, возникающие в начальный момент каждого импульса электронов, редко регистрировались в секциях детектора. В качестве замедлителя использовался слой воды толщиной 50 мм. За ним располагался бериллиевый отражатель толщиной 10 см для увеличения нейтронного потока. Нейтронный пучок формировался с помощью коллиматоров из свинца и борированного полиэтилена.

Сечение захвата измеряли с помощью компактного низкофоновый 8-секционный 4π -детектора, состоящего из одинаковых размером $124 \times 124 \times 450$ мм прямоугольных NaI(Tl)-кристаллов (рис. 2, а). Образец располагали в центре



Р и с. 1. Схема времяпролетного нейтронного спектрометра: 1 — нейтронная мишень; 2, 3 — отражатель и замедлитель нейтронов соответственно; 4 — образец; 5 — NaI(Tl)-кристалл; 6 — ФЭУ; 7 — вакуумируемый нейтроновод; 8 — коллиматор; 9 — защитная стена; 10 — защита детектора



Р и с. 2. Расположение NaI(Tl)-кристаллов в 8-(а) и 16-секционном детекторе (б)

внутреннего вакуумируемого канала. Канал окружали защитой из ^{10}B толщиной 16 мм ($1,7 \text{ г/см}^2$).

Данные, известные к началу измерений настоящей работы, свидетельствовали о том, что сечение деления ^{236}U примерно в 100 раз меньше сечения захвата. Поэтому для более чистого выделения актов деления из примеси актов захвата в измерениях сечения деления использовали 16-секционный детектор (см. рис. 2, б). В этом детекторе слева и справа от защиты из ^{10}B вдоль нейтронного пучка расположено по четыре NaI(Tl)-кристалла размером $124 \times 124 \times 150$ мм, снизу и сверху — по четыре кристалла размером $124 \times 124 \times 450$ мм. Объем сцинтиллятора составлял 74 л, что примерно на 30% больше объема 8-секционного детектора. Однако это не ухудшило отношение эффекта (деления) к фону, поскольку увеличение числа секций улучшило разделение событий эффекта и фона — события фона сосредоточены при малой кратности совпадений ($k \leq 3$), тогда как значительная часть событий деления при большой ($k > 5$).

Образец ^{236}U представлял собой две одинаковые металлические фольги диаметром 10 мм общей толщиной $9,443 \cdot 10^{-4}$ ат./б и обогащением 99,845%. Фон в высокоэнергетической области контролировали с помощью установленного на нейтронном пучке натриевого фильтра, поглощающего более 99% нейтронов на резонансе ^{23}Na при 2,9 кэВ. Фон тепловых нейтронов подавляли с помощью фильтра из ^{10}B , который одновременно уменьшал скорость счета на резонансе ^{236}U при $E_n = 5,45$ эВ, используемом для калибровки сечений. Это необходимо во избежание введения поправок на случайные наложения двух событий захвата.

Для определения сечений захвата и деления из экспериментальных данных, полученных с ^{236}U , дополнительно измеряли:

фон, не связанный с образцом ^{236}U , — при отсутствии образца в детекторе;

фон, обусловленный рассеянием на образце ^{236}U нейтронов и γ -квантов, — с образцами углерода и свинца соответственно;

спектр нейтронов — с образцом ^{10}B по $(n, \alpha\gamma)$ -реакции;

пропускание образца ^{10}B — для нахождения зависимости вероятности $(n, \alpha\gamma)$ -реакции от энергии нейтронов;

функции отклика детектора на радиационный захват и деление для выбора оптимального интервала кратности совпадений при вычислении соответствующих сечений, а также учета примеси ядер ^{235}U в образце ^{236}U — с образцами ^{238}U и ^{235}U .

При измерении спектра нейтронов, пропускания образца ^{10}B и соответствующего фона (n, γ) -конвертер удаляли из детектора, а внешняя защита детектора состояла только из свинца.

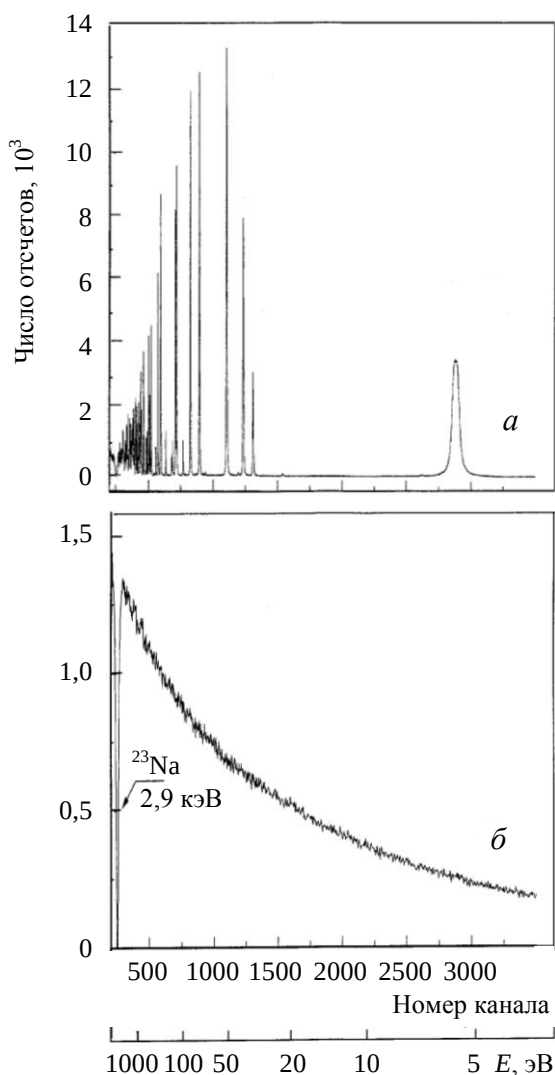
В экспериментах настоящей работы длительность импульса электронов ускорителя ФАКЕЛ составляла 60 нс, частота повторения 400 Гц. Аппаратура детектора позволяла для каждого зарегистрированного события записывать время пролета нейтрона, момент времени регистрации в каждой секции детектора, энергию, выделяемую в каждой секции, и накапливать эти данные. Во избежание просчетов, которые могут быть вызваны регистрацией первоначальных γ -квантов из нейтронной мишени, электронные тракты секций детектора в начальный момент блокировали. В каждом эксперименте накапливалось до 10 млн событий.

Первичная обработка данных. В результате измерений был получен набор распределений числа зарегистрированных событий в зависимости от времени пролета (энергии) нейтронов для различной кратности совпадений и энерговыделения в детекторе. При обработке данных указанные распределения корректировали для компенсации просчетов. Затем из них вычитали постоянные составляющие фона, которые для каждого распределения определяли по участку времени пролета, предшествующему электронному импульсу ускорителя. Постоянный фон в измерениях с разными образцами (уран, свинец и др.) разный, так как различна наведенная нейтронным пучком активность. В измерениях с ^{236}U имеется еще и дополнительный постоянный фон, обусловленный собственной активностью. Далее вычитали фон, измеренный при отсутствии образца в детекторе. Наконец, вычитали фон рассеянных нейтронов, используя полученное с образцом ^{236}U распределение для кратности совпадений $k = 1$ при энерговыделении в детекторе $E_\gamma > 6,5$ МэВ и функцию отклика детектора из измерений с углеродом. Суммарный фон небольшой. В области разрешенных резонансов отношение эффекта к фону равно примерно 1000. Фон в районе резонанса натрия ($E_n \sim 2,9$ кэВ) составляет примерно 10% и с уменьшением энергии нейтронов резко снижается. В результирующем (после вычета фона) распределении числа событий захвата ^{236}U число отсчетов в области резонансного провала натрия и между разрешенными резонансами ^{236}U уменьшается почти до нуля (рис. 3, а). Это гарантирует корректный учет фона. Аналогичная картина в районе резонанса натрия наблюдается и в результирующем энергетическом спектре нейтронов (рис. 3, б).

Как отмечалось, энергетический спектр нейтронов измеряли с помощью образца ^{10}B . Число отсчетов в i -м времяпролетном канале этого спектра можно представить в виде

$$N(E_i) = AP(E_i)\varepsilon(E_i)\Delta E_i, \quad (1)$$

где E_i — энергия, соответствующая i -му каналу; A — постоянный коэффициент; ΔE_i — энергетическая ширина канала; $P(E_i)$ — энергетический спектр падающих на образец нейтронов; $\varepsilon(E_i)$ — зависимость вероятности $(n, \alpha\gamma)$ -реакции в образце ^{10}B от энергии нейтронов



Р и с. 3. Результирующее распределение числа событий захвата ^{236}U в зависимости от времени пролета (энергии) нейтрона для кратности совпадений $k = 2$ —5 и суммарного энерговыделения в детекторе $E_\gamma = 2$ —6 МэВ (а) и результирующий энергетический спектр нейтронов для образца ^{10}B (б)

$$\varepsilon(E_i) = 1 - \exp -0,18/\sqrt{E_i}.$$

В слагаемом с экспонентой, характеризующем пропускание нейтронов, энергия E_i выражена в эВ, коэффициент вычислен из результатов измерений пропускания образца ^{10}B . Толщина образца $\sim 3 \cdot 10^{-4}$ б $^{-1}$ небольшая, так что многократным взаимодействием нейтронов можно пренебречь. Точность измерения коэффициента 0,18 лучше 5%, что позволяет найти энергетическую зависимость $\varepsilon(E_i)$ в рассматриваемой области энергии нейтронов 1—2000 эВ с погрешностью меньше 1%. Абсолютная величина $\varepsilon(E_i)$ здесь не важна, поскольку учитывается коэффициентом A в формуле (1), определяемым калибровкой.

Для уменьшения статистического разброса энергетический спектр $P(E_i)$ аппроксимировали функцией вида $E^{-a} \exp(-b/\sqrt{E})$ путем подбора параметров a и b методом наименьших квадратов, а именно

$$P(E) = E^{-0,92} \exp(-3,02/\sqrt{E}), \quad (2)$$

где E — энергия нейтрона, эВ. Такая аппроксимация учитывает наличие борного фильтра на пучке нейтронов и энергетический спектр нейтронов, вылетающих из замедлителя. Точность этой аппроксимации лучше $\sim 2\%$.

Коэффициент A в формуле (1) определяли посредством нормировки на частичную площадь резонанса при $E_n = 5,45$ эВ в области насыщенного максимума. Соответствующие расчетные площади вычисляли по параметрам резонансов [5] с учетом всех поправок.

Определение сечений. Алгоритм определения сечения захвата учитывал самоэкранировку и многократное взаимодействие нейтронов в образце, а также конечное разрешение нейтронного спектрометра. Сначала математическим моделированием вычисляли число отсчетов захвата $N_\gamma^o(E_i)$ в каждом i -м энергетическом канале. Для этого по параметрам (ширине) резонансов ^{236}U [5] вычисляли ожидаемую зависимость сечений захвата σ_γ^o , рассеяния σ_s^o и полного сечения σ_t^o от энергии нейтронов во всей области исследования 1—2000 эВ. По этим сечениям вычисляли вероятность радиационного захвата в образце

$$W_\gamma^o = [1 - \exp(-n\sigma_t^o)]\sigma_\gamma^o/\sigma_t^o + W_{sy},$$

где n — число ядер ^{236}U , ат./б; W_{sy} — вероятность рассеяния падающего на образец нейтрона с последующим радиационным захватом в образце. Множитель в скобках определяет вероятность хотя бы одного (первого) взаимодействия нейтрона в образце. Произведение в целом есть вероятность события, при котором первое взаимодействие является радиационным захватом, и на этом прекращается процесс взаимодействия нейтрона с образцом. При вычислении вероятности рассеяния с последующим радиационным захватом учитывали уменьшение энергии нейтрона в зависимости от угла рассеяния. Само рассеяние полагалось изотропным. С ростом энергии вероятность рассеяния с последующим за-

хватом быстро уменьшается и при $E > 500$ эВ ею можно пренебречь. Далее вычисляли ожидаемое число отсчетов в энергетических каналах, принимая в качестве энергетического спектра нейтронов измеренный спектр (см. формулу (2))

$$N_{\gamma}^{\circ}(E_i) = \int P(E)_{\gamma} W_{\gamma}^{\circ}(E) R(E_i, E) dE,$$

где $R(E_i, E)$ — функция разрешения нейтронного спектрометра. Деление этого спектра на спектр $P(E_i)$ в пределе «тонкого образца» дает величину $n\sigma_{\gamma}^{\circ}(E_i)$, усредненную по энергетическому спектру нейтронов i -го времяпролетного канала.

Введем отношение

$$\beta^{\circ} E_i \equiv \frac{N_{\gamma}^{\circ}(E_i)}{P(E_i)} / n\sigma_{\gamma}^{\circ}(E_i).$$

Ему соответствует аналогичное отношение, содержащее измеренное число отсчетов $N_{\gamma}(E_i)$ и энергетический спектр падающих на образец нейтронов $P(E_i)$, известную толщину образца n и искомое сечение $\sigma_{\gamma}(E_i)$:

$$\beta(E_i) = \frac{N_{\gamma}(E_i)}{P(E_i)} / n\sigma_{\gamma}(E_i).$$

Приравнявая $\beta^{\circ}(E_i)$ и $\beta(E_i)$, находим сечение захвата с учетом конечной толщины образца и разрешения нейтронного спектрометра:

$$\sigma_{\gamma}(E_i) = \frac{N_{\gamma}(E_i)}{P(E_i)\beta^{\circ}(E_i)}.$$

Для усредненного в любом произвольном интервале (E_1, E_2) сечения получим

$$\overline{\sigma_{\gamma}} \equiv \int_{E_1}^{E_2} \sigma_{\gamma}(E) dE = \frac{\sum_{i(E_1)}^{i(E_2)} [N_{\gamma}(E_i)/P(E_i)]}{n\beta^{\circ}(E_1, E_2)},$$

$$\text{где } \beta^{\circ}(E_1, E_2) = \frac{\sum_{i(E_1)}^{i(E_2)} [N_{\gamma}^{\circ}(E_i)/P(E_i)]}{\int_{E_1}^{E_2} n\sigma_{\gamma}^{\circ}(E) dE}.$$

Можно вычислить и сечение в интервале (E_1, E_2) , взвешенное по широко распространенному в расчетах и оценках спектру нейтронов $1/E$, который немного отличается от спектра нейтронов в настоящих измерениях:

$$\langle \sigma_{\gamma} \rangle \equiv \frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma_{\gamma}(E)/E dE}{\int_{E_1}^{E_2} dE/E}.$$

Аналогичным образом определяли сечение деления. При этом в области выше 500 эВ полагали $\beta^{\circ} = 1$ ввиду малости погрешности, приносимой при таком предположении, по сравнению с другими погрешностями.

Результаты измерений (табл. 1, 2). Статистическая ошибка измерений сечения захвата оказалась меньше 5% для каждого энергетического интервала, за исключением интервала 10—21,5 эВ, где сечение слишком мало. Систематическая ошибка не превышает 4%. Из табл. 1 видно, что данные настоящей работы и [1] почти совпадают. Поскольку в этих работах и нейтронный спектрометр, и спектрометр множественности были совершенно разными, такое совпадение усиливает доверие к результатам настоящей работы. Последние в пределах оши-

Т а б л и ц а 1. Среднее сечение захвата ^{236}U , б

Энергетический интервал, эВ	Настоящая работа	[1]	[2]
100—200	14,8	14,8	—
200—300	7,89	7,89	—
300—400	6,97	7,12	5,360
400—500	6,74	6,45	5,196
500—600	5,55	5,80	5,021
600—700	6,74	6,76	4,794
700—800	5,11	5,25	4,238
800—900	3,46	3,56	3,686
900—1000	4,21	4,35	3,423
1000—2000	2,47	2,52	2,475

Т а б л и ц а 2. Взвешенное сечение захвата ^{236}U , б

Номер группы	Энергетический интервал, эВ		Настоящая работа	Оцененные данные	
	E_1	E_2		BNAB-LIB [6]	РОСФОНД [7]
21	4,65	10	356,1	353,6	364,8
20	10	21,5	0,101	0,104	0,099
19	21,5	46,5	38,28	37,00	27,88
18	46,5	100	21,46	19,30	18,46
17	100	215	16,14	14,35	12,94
16	215	465	6,14	6,24	4,86
15	465	1000	5,28	4,73	4,35
14	1000	2150	2,56	2,12	2,16

бок согласуются с оценкой BNAB-LIB [6], но немного выше оценки РОСФОНД [7]. По сравнению с данными работы [2] сечения настоящих измерений больше. Однако это расхождение может существенно уменьшиться, если результаты работы [2] пересчитать с учетом поправок на толщину образца.

Описанная методика измерений позволила получить сечение деления ^{236}U . Для этого в качестве числа отсчетов деления использовали распределение числа событий, соответствующее кратности совпадений $k > 7$. Полученные сечения деления, калиброванные по резонансу 5,45 эВ с $\Gamma_f = 0,29$ мэВ [4] и взвешенные по спектру $1/E$, приведены в табл. 3. Погрешность данных составляет ~6%. Сюда не входит ошибка, связанная с калибровкой сечения. Видно, что данные настоящей работы удовлетворительно согласуются с оцененными.

Т а б л и ц а 3. Взвешенное сечение деления ^{236}U , б

Но- мер груп- пы	Энергетический интервал, эВ		Настоя- щая работа	Оцененные данные	
	E_1	E_2		BNAB-LIB [6]	РОСФОНД [7]
21	4,65	10	4,21	4,19	4,32
20	10	21,5	<0,001	0,0013	0,0012
19	21,5	46,5	0,56	0,532	0,716
18	46,5	100	0,37	0,262	0,297
17	100	215	0,28	0,202	0,168
16	215	465	0,094	0,097	0,102
15	465	1000	0,085	0,074	0,077

После настоящих измерений были выполнены эксперименты [8—10] с использованием методики, позволяющей определять гораздо меньшие сечения деления. Они выявили сильное расхождение: делительная ширина резонанса 5,45 эВ и соответственно сечение деления ^{236}U оказались примерно в 100 раз меньше ранее оцененного [4] и соответственно результатов описываемых измерений, калибровка которых проведена по данным работы [4]. Казалось бы, настоящие данные можно перекалибровать с учетом результатов работ [8—10]. Однако 16-секционный детектор не рассчитан на измерение столь малых сечений деления. Он позволял подавлять примесь событий захвата в делении примерно в 300 раз, а как показывают эксперименты [8—10], для получения приемлемых

результатов необходимо подавление приблизительно в 10 тыс. раз. Для столь сильного подавления необходимо использовать детектор с большим числом секций и большей эффективностью. Кроме того, необходимо значительно увеличить длительность измерений для достижения приемлемой статистической точности. Усилить разделение актов деления и захвата можно путем введения дополнительных характеристик деления, например, времени задержки регистрации части γ -квантов, обусловленной захватом нейтронов деления в детекторе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамчук Ю.В., Восканян М.А., Мурадян Г.В., Степанов В.А. Сечение радиационного захвата ^{236}U и ^{238}U в области энергии нейтронов 10 эВ — 50 кэВ. — Атомная энергия, 1988, т. 65, вып. 5, с. 356—360.
2. Бергман А.А., Медведев А.Н., Самсонов А.Е. и др. Измерение сечения радиационного захвата для ^{236}U . — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерные константы, 1982, вып. 1(43), с. 3—7.
3. Muradian G.V., Shchepkin Yu.G., Adamchuk Yu.V., Voskanyan M.A. Multiplicity spectrometer for measuring neutron cross sections. — Nucl. Sci. Engng, 1985, v. 90, № 1, p. 60—74.
4. Muradian G.V., Petrenko V.V., Shatrov O.Ya. e.a. High-efficiency neutron spectrometer. — Nucl. Instrum. Meth. A, 1998, v. 411, p. 396—400.
5. Mughabghab S. Atlas of Neutron Resonances. Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. 5th Ed. the Netherlands, Amsterdam: Elsevier, 2006.
6. Абагян Л.П., Глушков А.Е., Гомин Е.А. и др. Программа MCU-3 для расчета методом Монте-Карло нейтронно-физических характеристик ядерных реакторов. Константное обеспечение: Препринт ИАЭ-5777/5, 1994, т. 2.
7. Забродская С.В., Игнатюк А.В., Кошечев В.Н., Николаев М.Н. и др. РОСФОНД — российская национальная библиотека нейтронных данных. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерные константы, 2007, вып. 1—2, с. 3—48.
8. Алексеев А.А., Бергман А.А., Берлев А.И. и др. Сечение подбарьерного деления ^{236}U . — Ядерная физика, 2008, т. 71, № 8, с. 1379—1388.
9. Wagemans C., De Smet L., Vermote S. e.a. Measurement of the ^{236}U (n, f) cross section in the neutron energy range from 0.5 up to 25 keV. — Nucl. Sci. Engng, 2008, v. 160, p. 200—206.
10. Sarmento R., Calviani M., Colonna N. e.a. Measurement of the ^{236}U (n, f) cross section at n TOF. — In: Proc. Intern. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, 2010, Rep. № n_TOF-CONF-2010-006.

Поступила в Редакцию 18.06.10