

Распределение осколков по массам при делении U^{235} , U^{238} и Pu^{239} нейтронами с энергией 14,6 Мэв

А. Н. Протопопов, Г. М. Толмачев, В. Н. Ушатский, Р. В. Венедиктова,
И. Т. Крисюк, Л. П. Родионова, Г. В. Яковлева

Исследование распределения осколков деления по массам помогает глубже понять процесс деления тяжелых ядер. Вместе с тем знание относительных выходов осколков необходимо для различных практических применений радиоактивных изотопов.

В работе изложены метод и результаты измерений относительных выходов некоторых осколков, образующихся при делении U^{235} , U^{238} и Pu^{239} нейтронами с энергией 14,6 Мэв. Через экспериментальные и «отраженные» точки проведены кривые распределений осколков по массам. Обсуждаются некоторые особенности этих распределений.

Введение

Исследованию степени асимметрии деления при средних энергиях возбуждения ядра посвящен ряд работ, появившихся за последние годы. Деление урана протонами с энергиями от 12 до 20 Мэв изучалось ранее [1] — [4]. В работе [5] исследовалось деление тория протонами, энергия которых изменялась в пределах 6,7—21 Мэв. В работах [2], [4] и [6] имеются ссылки на неопубликованные данные Спенса, выполнившего исследование деления U^{235} нейтронами с энергией 14 Мэв. Во всех случаях было установлено, что с увеличением энергии возбуждения вероятность симметричного деления возрастает.

В данной работе была поставлена задача получения более полных сведений о делении U^{238} и U^{235} , а также Pu^{239} нейтронами с энергией 14,6 Мэв. С этой целью определялись выходы различных осколков по отношению к выходу Mo^{99} . По относительным выходам строились кривые распределений осколков по массам.

Метод определения выходов

Облучение делящихся веществ производилось в потоке нейтронов с энергией 14,6 Мэв, получаемых по реакции $H^3(d, n)He^4$ на уско-

рительной трубке с напряжением 170 кВ. Во время облучения поток нейтронов на образец поддерживался равным $5 \cdot 10^8$ нейтр/сек с точностью до 10—15%. Делящиеся вещества в виде определенных химических соединений запрессовывались в цилиндрические алюминиевые герметизированные коробки. Вид соединений и вес образцов (от 1 до 30 г) варьировались в зависимости от того, какая группа осколочных элементов изучалась в данном опыте. Уран облучался либо в виде U_3O_8 — при определении выходов Sr^{89} , Sr^{91} , Zr^{95} , Zr^{97} , Ru^{105} , Ag^{111} , Ag^{113} , Cd^{115} , Ba^{140} , либо в виде UO_3 — в случае измерения выходов Mo^{101} и Mo^{102} , либо в виде $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ — при выделении $J^{131} + Te^{131*}$). Плутоний облучался во всех опытах в виде окиси PuO_2 в количестве около 1 г. Всего было проведено 36 опытов по облучению изотопов урана и плутония. Облучаемые вещества защищались от рассеянных медленных нейтронов слоем карбида бора. Число делений, вызванных медленными нейтронами, не превышало 1% для U^{235} и Pu^{239} и 0,1% для

*) Вид соединения урана выбирался в соответствии с химическими свойствами изучаемых изотопов; так, например, при исследовании J^{131} для исключения потерь йода была взята соль $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, которая без нагревания хорошо растворяется в воде.

U^{238} от числа делений, вызванных нейтронами с энергией 14,6 Мэв. Длительность облучения (от нескольких минут до 8 часов), время химического отделения и момент измерения β -активности выбирались в соответствии с генетическими особенностями того или иного изотопа.

Выделение осколков из облученных делющихся веществ производилось методом иотопного разбавления. Для этого облученные вещества переводились в раствор, из которого отбирались определенные доли для выделения изучаемого изотопа. В эти доли раствора вводились носители*), вместе с которыми в дальнейшем и выделялись изучаемые изотопы. Выделение производилось большей частью методом соосаждения. После выделения изучаемого изотопа с носителем производилась радиохимическая очистка от посторонних радиоактивных примесей**). Образцы для измерений β -активности изготавливались из безводных и негигроскопических химических соединений, имеющих хорошо известную и определенную формулу. Такими соединениями являлись либо окиси (например, ZrO_2 и CdO), либо такие соли, как сульфаты ($SrSO_4$), хроматы ($BaCrO_4$) и др.

Выделенный после всех химических операций порошок, содержащий радиоактивный изотоп, прессовался на свинцовой подложке в диск диаметром 8 мм и весом $40,0 \pm 0,3$ мг. Такой диск, наклеенный на специальную тарелочку, служил стандартным образцом для определения абсолютной β -активности любого изотопа. При измерениях активности образцы располагались на определенном расстоянии от окна торцового счетчика. Предварительно были экспериментально определены эффективности счетных устройств по отношению к каждому из изучаемых изотопов. Для этого измерялась абсолютная β -активность тонкого образца ($< 0,3$ мг/см²) в 4 π -счетчиках или в установке, геометрия которой была рассчитана с хорошей точностью [7]. Затем этот образец путем разбавления превращался в стандартный и измерялся на установке, эффективность которой подлежала определению. Отношение счета на такой установке к абсолютной ак-

тивности образца с учетом химической аликвоты определяло эффективность установки. При определении эффективности учитывались также следующие факторы, влияющие на ее величину: присутствие в β -спектре изучаемого изотопа электронов конверсии, возможная примесь других изотопов данного элемента и существование короткоживущих дочерних продуктов.

В каждом опыте, наряду с определением абсолютной β -активности исследуемого изотопа, измерялась абсолютная β -активность Mo^{99} , по отношению к которому определялись все выходы. Специально был измерен с хорошей точностью период полураспада Mo^{99} . Полученное значение $\tau = 67,2 \pm 0,2$ часа использовалось во всех вычислениях. Кроме того, регулярно проверялась степень химической очистки образцов путем измерения кривой распада, а также стабильность работы всех установок путем измерения активности урановых эталонов и счетных характеристик.

Выход каждого изотопа вычислялся как отношение абсолютных β -активностей данного образца и образца Mo^{99} , приведенных к насыщению по известной формуле, учитывающей накопление и распад данного изотопа в процессе облучения.

Такая методика определения относительных выходов применялась ко всем изотопам, кроме Mo^{101} и Mo^{102} . Для этих изотопов была принята и усовершенствована методика Уайлса [8]. В отличие от последней применялись очень тонкие образцы, расположенные на тонкой коллодиевой пленке так, что поглощением и рассеянием в образце и подложке можно было пренебречь; это очень важно, так как β -спектры этих изотопов и дочерних изотопов технеция плохо изучены. Измерения велись на установках с повышенной эффективностью ($\sim 30\%$)*). Все это позволило определить относительные выходы Mo^{101} и Mo^{102} с хорошей точностью.

Результаты и их обсуждение

Полученные в данной работе значения относительных выходов представляют собой кумулятивные выходы изученных изотопов, т. е. выходы, включающие в себя как непосредственное образование данного изотопа

*) В качестве носителей применялись природные смеси изотопов данного элемента.

**) Методы радиохимической очистки будут описаны в отдельных статьях, которые подготавливаются к печати.

*) Эффективности установок при измерениях β -активностей других изотопов составляли 0,3—10%.

в процессе деления, так и образование его в результате β -распада предшественников по цепочке. Чтобы получить полные выходы цепочек, необходимо в каждом случае ввести поправку, учитывающую вклад последующих членов цепочки. С этой целью можно воспользоваться гипотезой зарядового распределения, предложенной Гленденином [9] и модифицированной Паппасом [10].

Оценка независимых выходов последующих членов цепочек производилась методом, подробно описанным в работе [10]. Для каждой цепочки с массовым числом A определялся наиболее вероятный заряд $Z_p = Z_{A'} - 0,5(Z_{A'} + Z_{(A_0-A')} - Z_0)$, где $Z_{A'}$ и $Z_{(A_0-A')}$ —

Гленденином и Паппасом для случаев деления U^{233} , U^{235} и Pu^{239} медленными нейтронами, сохраняет свой характер и для случаев деления U^{235} , U^{238} и Pu^{239} нейтронами с энергией 14,6 Мэв. Данные, полученные в работе Уола [12], подтверждают справедливость этого допущения для случая деления U^{235} нейтронами с энергией 14 Мэв.

Очевидно, что для такого рода оценок необходимо знать среднее число нейтронов ν_1 , испускаемых осколком с массовым числом A' при переходе его в данную цепочку с массовым числом A . Экспериментальные данные такого характера имеются лишь для случая деления U^{233} тепловыми нейтронами [13].

Выходы осколков деления

Изотоп	Принятый период полураспада	U^{235}			U^{238}			Pu^{239}		
		Относительный выход	Частный выход последующего члена цепочки, %		Относительный выход	Частный выход последующего члена цепочки, %		Относительный выход	Частный выход последующего члена цепочки, %	
			$\nu_{л=2}$	$\nu_{л=3}$		$\nu_{л=2}$	$\nu_{л=3}$		$\nu_{л=2}$	$\nu_{л=3}$
Sr^{89}	54 дн.	$0,86 \pm 0,04$	0	0	$0,55 \pm 0,03$	0	0	$0,44 \pm 0,02$	0	0
Sr^{91}	9,7 час	$0,96 \pm 0,07$	0	1,5	$0,65 \pm 0,05$	0	0	$0,49 \pm 0,03$	0	5
Zr^{95}	65 дн.	$0,97 \pm 0,04$	0	(4,6) (0)	$0,93 \pm 0,04$	0	0	—	—	—
Zr^{97}	17 час.	$1,16 \pm 0,05$	(11) (0)	(20) (5)	$1,02 \pm 0,05$	(2) (0)	(6,7) (0)	$0,96 \pm 0,04$	4	(30) (10)
Mo^{99}	67,2 часа	1	0	0	1	0	0	1	0	2
Mo^{101}	14,6 мин.	—	—	—	$0,99 \pm 0,04$	0	0	—	—	—
Mo^{102}	11 мин.	—	—	—	$0,71 \pm 0,08$	0	5	—	—	—
Ru^{105}	4,5 часа	$0,28 \pm 0,02$	0	0	$0,39 \pm 0,03$	0	0	—	—	—
Ag^{111}	7,6 дня	$0,22 \pm 0,01$	0	0	$0,18 \pm 0,01$	0	0	$0,34 \pm 0,02$	0	0
Ag^{113}	5,3 часа	$0,22 \pm 0,02$	0	0	$0,16 \pm 0,01$	0	0	—	—	—
Cd^{115}	2,3 дня	$0,21 \pm 0,01$	0	0	$0,16 \pm 0,01$	0	0	$0,28 \pm 0,02$	0	1
J^{131}	8,14 дня	$0,83 \pm 0,05$	0	0	$0,91 \pm 0,05$	0	0	—	—	—
Ba^{140}	12,8 дня	$0,86 \pm 0,04$	9	3	$0,80 \pm 0,04$	0	0	$0,64 \pm 0,03$	12	5

заряды наиболее устойчивых изобаров цепочек с массовыми числами A' и $(A_0 - A')$; $A' = A + \nu_1$ и $(A_0 - A')$ — массовые числа легкого и тяжелого осколков до испускания ими нейтронов; A_0 и Z_0 — массовое число и заряд составного делящегося ядра. Значения $Z_{A'}$ и $Z_{(A_0-A')}$ определялись по данным работы [11].

По величине $Z - Z_p$ можно было найти атом относительный независимый выход любого изобара данной цепочки с зарядом Z . С этой целью использовалась зависимость относительной вероятности образования того или иного осколка с зарядом Z от его положения $Z - Z_p$ в данной цепочке [10]. При этом предполагалось, что зависимость, найденная

В связи с этим при оценке частных выходов (независимых выходов, отнесенных к полным выходам цепочек) для каждой цепочки рассматривались два случая: 1) среднее число нейтронов, испускаемых легким осколком, $\nu_{л=2}$ и 2) $\nu_{л=3}$.

Экспериментальные данные об относительных кумулятивных выходах различных изотопов, полученные в этой работе, а также оценки частных выходов последующих членов цепочек представлены в таблице. Приведенные в таблице средние квадратичные ошибки вычислены с учетом всех возможных ошибок отдельных измерений. В колонках «частные выходы» даны значения частных выходов членов цепочки, следующих непосред-

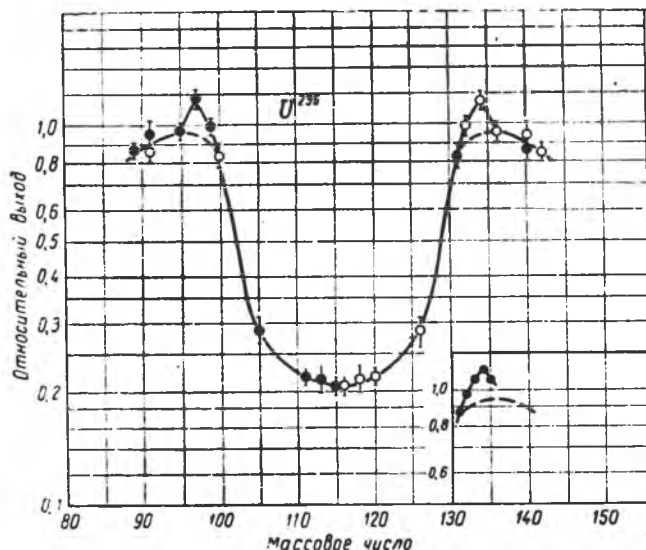


Рис. 1. Кривая выходов осколков при делении U^{235} нейтронами с энергией 14,6 Мэв.

● — экспериментальные значения; ○ — «отраженные» точки. Внизу справа приведены данные Уола [12].

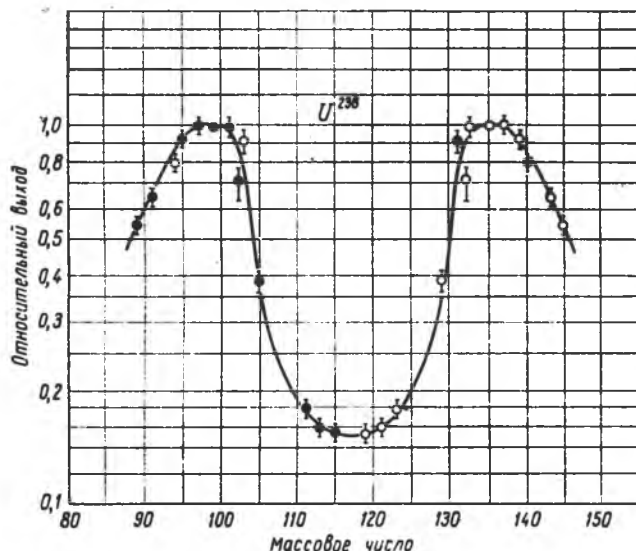


Рис. 2. Кривая выходов осколков при делении U^{238} нейтронами с энергией 14,6 Мэв. Обозначения те же, что на рис. 1.

ственно за исследуемым изотопом. Частные выходы, соответствующие двум различным значениям числа нейтронов, испускаемых легким осколком, выражены в процентах от выхода всей цепочки. В некоторых случаях указаны два значения частных выходов,

каждое из которых заключено в скобки. Это вызвано некоторой неопределенностью в значении Z_A при переходе от одной замкнутой оболочки к другой.

Произведенные оценки показали, что чаще всего поправки на независимый выход последующих членов цепочек пренебрежимо малы, а в некоторых случаях их однозначное определение было невозможно. В связи с этим распределения осколков по массам строились по полученным в работе кумулятивным выходам. При этом экспериментальные точки дополнялись так называемыми «отраженными» точками, представляющими собой положения дополнительных осколков, полученные путем учета среднего числа нейтронов $\bar{\nu}$, испускаемых в акте деления.

Из соображений удобства построения кривой распределения осколков деления U^{235} по массам для среднего числа мгновенных нейтронов, испускаемых в этом случае, было принято целое число $\bar{\nu}=5$. Это значение совпадает в пределах экспериментальной ошибки с величиной $\bar{\nu}=4,7 \pm 0,5$, найденной в работе [14]. Личман [15] показал, что в известных пределах зависимость $\bar{\nu}$ от энергии нейтронов E , вызывающих деление, имеет линейный характер. Путем экстраполяции этой зависимости до значения $E=14,6$ Мэв, что, по-видимому, не приводит к значительной ошибке [14], была сделана оценка значений $\bar{\nu}$ для случаев деления U^{238} и Pu^{239} . В результате такой оценки при построении кривых распределения осколков деления U^{238} и Pu^{239} по массам значение $\bar{\nu}$ было принято равным 5*).

Полученные таким образом кривые распределений, представленные на рис. 1—3, оказались двугорбыми кривыми

*) Недавно нам стали известны результаты работы [16], согласно которым при делении U^{235} и Pu^{239} нейтронами с энергией 15 Мэв значения $\bar{\nu}$ соответственно равны $4,5 \pm 0,2$ и $4,7 \pm 0,2$. Эти результаты подтверждают правильность выбранных нами значений.

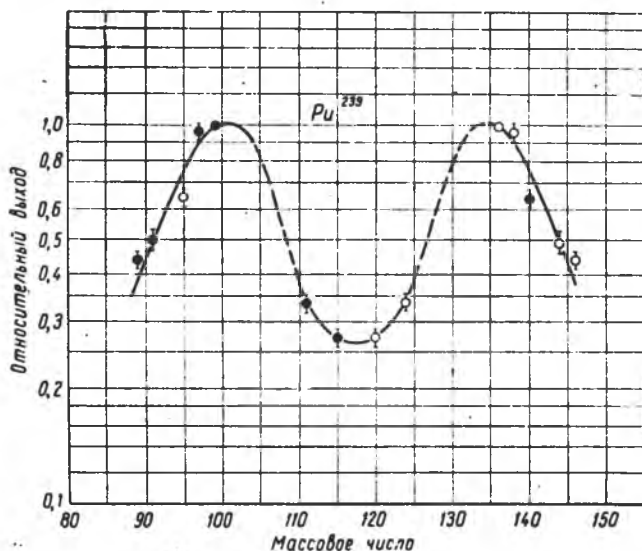


Рис. 3. Кривая выходов осколков при делении Pu^{239} нейтронами с энергией 14,6 Мэв. Обозначения те же, что на рис. 1.

обычного типа. Эти распределения имеют следующие особенности:

1. Отношения пика к впадине для U^{238} , U^{235} и Pu^{239} равны соответственно 6,4; 4,8 и 3,6.

2. Кривая распределения осколков по массам для случая деления U^{235} имеет дополнительный пик, соответствующий массовому числу $A=97$ и возвышающийся над гладкой кривой на 16%. Увеличенный выход массы 97 сохраняется при любом варианте поправок на частный выход Nb^{95} и Nb^{97} .

Полученные данные свидетельствуют о значительно большей вероятности симметричного деления нейтронами с энергией 14,6 Мэв по сравнению с делением нейтронами малых энергий. По-видимому, имеется тенденция к уменьшению относительной вероятности асимметричного деления при увеличении параметра Z^2/A .

Появление дополнительного пика, соответствующего массе 97, вероятно, можно объяснить несколько повышенной вероятностью образования в процессе деления тяжелых осколков с замкнутой оболочкой из 82 нейтронов, для которых осколки с массой 97 являются дополнительными (с учетом среднего числа вылетающих нейтронов). В правой нижней части рис. 1 приведены данные Уола [12] для деления U^{235} нейтронами с энергией 14 Мэв. Из этого рисунка следует, что для осколков с массовыми числами 133—135 действительно наблюдается заметное увеличение выходов по сравнению с гладкой кривой.

В выполнении ряда отдельных операций принимали участие Л. И. Абрамова, И. А. Баранов, Ю. И. Белянин, Н. П. Блинова, Э. А. Москалькова, В. В. Осипова, И. Б. Платунова и Л. П. Чернышева.

Поступила в редакцию 12 IX 1958 г.

ЛИТЕРАТУРА

- W. H. Jones, J. L. Fowler, J. H. Paehler. Phys. Rev. 87, 174 (1952).
- J. L. Fowler, W. H. Jones, J. H. Paehler. Phys. Rev. 88, 71 (1952).
- W. H. Jones, J. H. Paehler, T. H. Handley, A. Timnick. Phys. Rev. 91, 486 (1953).
- W. H. Jones, A. Timnick, J. H. Paehler, T. H. Handley. Phys. Rev. 99, 184 (1955).
- H. A. Tewes, R. A. James. Phys. Rev. 88, 860 (1952).
- D. L. Hill, J. A. Wheeler. Phys. Rev. 89, 1102 (1953); см. также УФН 52, 83 (1954).
- А. В. Сорокина. Труды Радиового института им. Хлопина. VII, вып. 1, 130 (1956).
- D. R. Wiles, C. D. Coryell. Phys. Rev. 96, 696 (1954).
- L. E. Glendenin, C. D. Coryell, R. R. Edwards. Radiochemical Studies Fission Products. Nat. Nucl. Energy Ser., Div IV. 9 (Paper 52), McGraw-Hill, N. Y., 1951.
- A. C. Pappas. International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 7, 19. UN, N.-Y., 1956.
- C. D. Coryell. Ann. Rev. Nucl. Sci. 2, 305 (1953).
- A. C. Wahl. Phys. Rev. 99, 730 (1955).
- J. S. Fraser, J. C. D. Milton. Phys. Rev. 93, 818 (1954).
- А. Н. Протопопов, М. В. Блинов. Атомная энергия 4, № 4, 374 (1958).
- R. B. Leachman. Phys. Rev. 101, 1005 (1956).
- Г. Н. Смиренкин, И. И. Бондаренко, Л. С. Куцаева, Х. Д. Мищенко, Л. П. Прохорова, Б. П. Шеметенко. Атомная энергия 4, № 2, 188 (1958).