

УДК 539.173.84

ЗАПАЗДЫВАЮЩИЕ НЕЙТРОНЫ ОТ ФОТОДЕЛЕНИЯ ^{238}U ПРИ $E_{\gamma \text{ max}} \approx 10$ МэВ В ИНТЕРВАЛАХ МЕЖДУ ИМПУЛЬСАМИ ОБЛУЧЕНИЯ

© 2020 г. Л. З. Джилавян^{1, *}, А. М. Лапик¹, В. Г. Недорезов¹, В. Н. Пономарев¹,
А. В. Русаков¹, Г. В. Солодухов¹

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук, Москва, Россия

*E-mail: dzhil@inr.ru

Поступила в редакцию 30.10.2019 г.

После доработки 25.11.2019 г.

Принята к публикации 27.12.2019 г.

Описаны эксперименты по измерению энергетических спектров и временных распределений запаздывающих нейтронов, образуемых от фотоделения ^{238}U под действием тормозных фотонов на импульсном ускорителе электронов ЛУЭ-8-5 ИЯИ РАН при кинетических энергиях падающих электронов ≈ 10 МэВ. Измерения проводились в интервалах между импульсами пучка. Быстрые нейтроны регистрировались сцинтилляционным спектрометром с дискриминацией фоновых γ -квантов по форме сцинтилляционного импульса.

DOI: 10.31857/S0367676520040079

ВВЕДЕНИЕ

При делении ядер-актинидов в ядерных реакциях под действием нейтронов или γ -квантов образуются нейтронно-избыточные ядра-осколки. В части β^- -распадов этих ядер-осколков могут заселяться сравнительно высоковозбужденные состояния дочерних ядер, девозбуждение которых возможно в ряде случаев путем испускания быстрых нейтронов (см., например, [1]), запаздывающих относительно актов деления под действием нейтронов (см., например, [2–6]) или γ -квантов (см., например, [7–9]). Временные распределения запаздывающих нейтронов определяются периодами полураспада $T_{1/2}$ (или, иначе, постоянными распада $\lambda = (\ln 2)/T_{1/2}$) β^- -активных ядер-предшественников. Согласно [3, 4] для рассматриваемых нейтронов значения этих $T_{1/2}$ располагаются от $T_{1/2} \approx 1$ мин до $T_{1/2}$ не менее, чем 0.2 с. Из-за ограниченной точности и полноты известных к настоящему времени данных в зависимости от этих $T_{1/2}$ для удобства описания и использования сведений о запаздывающих нейтронах принято распределять запаздывающие нейтроны по нескольким группам (например, 6 групп в работе [3] или 8 в работе [4]) со своими значениями $(T_{1/2})_i$ и a_i – усредненных для каждой из групп периодов полураспада и количеств запаздывающих нейтронов в расчете на один акт деления соответственно. Из-за мето-

дических особенностей большинства экспериментов мало исследована область $T_{1/2} < 0.2$ с, кроме того, весьма ограничены данные по энергетическим распределениям запаздывающих нейтронов вообще.

Эмиссия запаздывающих нейтронов связана с важной характеристикой процесса деления ядра – распределениями ядер-осколков по их массовым A и зарядовым Z числам. При низких энергиях возбуждения делящихся ядер происходит асимметричное деление, когда эти распределения имеют два максимума, соответствующие легким и тяжелым осколкам. В предположении, что отношения A/Z у ядер-осколков примерно такие же, как у начальных испытывающих деление ядер, можно ожидать, что среди получаемых легких ядер-осколков есть нейтронно-избыточные изотопы, обладающие особенно низкими значениями указанных $T_{1/2}$. Отсюда в предположении, что получение запаздывающих нейтронов при низких энергиях возбуждения делящихся ядер может служить источником уникальных данных о нейтронно-избыточных изотопах, следует, что такие эксперименты весьма интересны для ядерной спектроскопии [1]. В качестве подтверждения актуальности этих исследований укажем, что они связаны с одной из объявленных тем конференции “ЯДРО-2019” – “Ядра на границах стабильности по нуклонной активности” [10].

С другой стороны, запаздывающие нейтроны представляют большой прикладной интерес для задач управления работой ядерных реакторов и обнаружения несанкционированной транспортировки делящихся материалов, когда при малых энергиях падающих на радиатор электронов практически не образуется опасная наведенная активность.

Ранее в [9] нами были рассмотрены методические особенности и возможные достоинства исследований запаздывающих нейтронов (особенно при малых значениях $T_{1/2}$) на импульсном ускорителе электронов при энергиях тормозных фотонов $E_\gamma \leq 10$ МэВ при регистрации нейтронов во временных интервалах между короткими импульсами ускорителя сцинтилляционным спектрометром. При этом использовалась дискриминация фоновых γ -квантов по форме сцинтилляционного импульса. Принципы работы такого типа спектрометров быстрых нейтронов подробно описаны, например, в [11]. Настоящая работа направлена на дальнейшее развитие этого направления исследований с получением для него первых результатов по физике ядер.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Измерения проводились на импульсном ускорителе электронов ЛУЭ-8-5 ИЯИ РАН [12] (см. рис. 1). Часть электронов из их полного пучка выделялась поворотным-анализирующим магнитным каналом с углом поворота 135° и выводилась сквозь титановую выходную фольгу толщиной 50 мкм (1) из электропровода на мишенный контейнер (2), расположенный на расстоянии ≈ 40 см от Тi-фольги. Мишенный дюралюминиевый контейнер с размещенным в нем диском диаметром 60 мм из металлического урана естественного изотопного состава (^{238}U -содержание $\approx 99.27\%$ [1]) располагался на подставке-изоляторе и использовался для мониторинга тока падающего на него пучка электронов (как цилиндр Фарадея с эффективностью регистрации, близкой к 100%).

Длительность пучковых импульсов ускорителя составляла $\tau \approx 3.5$ мкс. Частоту повторения импульсов пучка ν на ЛУЭ-8-5 можно менять в широких пределах. В описываемых в данной работе экспериментах она составляла $\nu \approx 60$ с $^{-1}$ (в анализируемом пучке электронов кинетическая энергия электронов ≈ 10 МэВ, а средний ток пучка ≈ 0.1 мкА). Также были опробованы режимы работы с частотой повторения $\nu \approx 6$ с $^{-1}$.

Для измерений спектров нейтронов использовался сцинтилляционный спектрометр (3 на рис. 1, см. его описание в [8, 9, 11, 13]) на основе собственно сцинтилляционного детектора из монокристалла стильбена (50 мм \times \varnothing 50 мм), оптически сопряженного с фотокатодом фотоэлектрон-

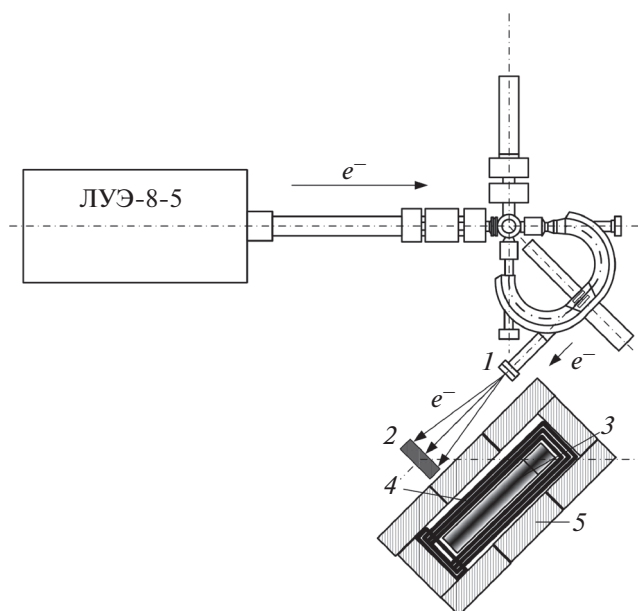


Рис. 1. Схема оборудования на ЛУЭ-8-5 ИЯИ РАН: 1 – выходная Тi-фольга (толщиной 50 мкм); 2 – образец-мишень (U или Pb с естественными изотопными составами); 3 – детектор (стильбен (50 мм \times \varnothing 50 мм) + ФЭУ); 4 – защита (Pb, три слоя, каждый толщиной 4 мм); 5 – защита (Pb толщиной 50 мм).

ного умножителя (ФЭУ). Центр монокристалла стильбена находился на расстоянии ≈ 15 см от центра урановой мишени на линии, идущей из центра образца урана под углом 135° к направлению оси падающего на образец пучка электронов. Пассивная свинцовая защита от фонового излучения размещена вокруг стильбенового детектора (рис. 1). Эта защита представляет собой трехслойный закрытый свинцовый цилиндр 4 вокруг сцинтилляционного детектора с толщиной каждого слоя 4 мм, помещенный в закрытый свинцовый “бокс” 5 с толщиной стенок со всех сторон 50 мм. Так как в данном эксперименте ФЭУ не выключался на время пучка, то с целью получения неискаженных спектрометрических данных для регистрации были выбраны временные интервалы (4.5–16.0) мс после каждого импульса ускорителя (полное время между импульсами пучка при этом составляло ≈ 16.7 мс). Типичные длительности облучения составляли несколько часов.

В стильбеновом спектрометре временная форма каждого сцинтилляционного импульса, вызванного одиночной частицей и регистрируемого ФЭУ, имеет различия, зависящие от типа частицы. Чтобы ввести количественные характеристики различий, использовались интегральные измерения с помощью зарядово-цифрового преобразователя (ЗЦП). ЗЦП измерял заряд каждого импульса, который мог быть в нескольких временных диапазонах (в нашем случае четырех, да-

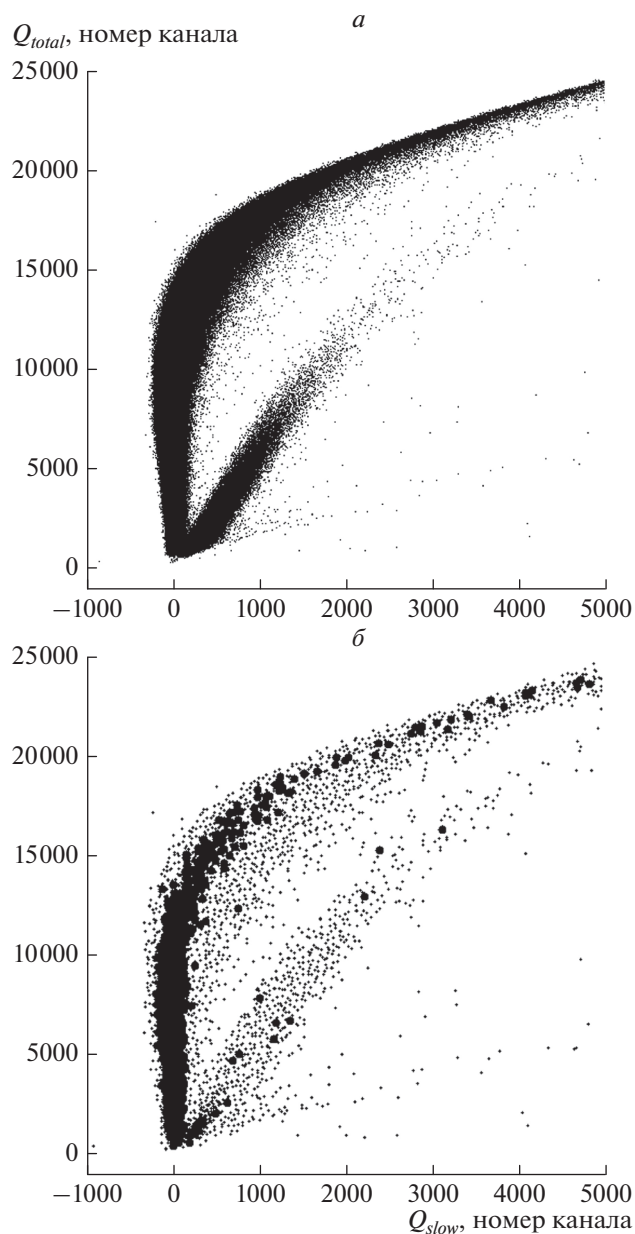


Рис. 2. $(Q_{total}; Q_{slow})$ -диаграммы зарегистрированных событий, соответствующих γ -квантам и нейтронам. *a* – Показана возможность дискриминации по форме сцинтилляционного импульса на ФЭУ для нейтронов и γ -квантов из облученного образца-мишени ^{238}U . *б* – Закрытые кружки – события при использовании Pb-мишени; крестики – события при использовании U-мишени.

вая, в частности, значения для Q_{total} – полного заряда для указанного импульса целиком, а также для Q_{slow} – заряда для поздней (более медленной) части этого импульса). Так, тяжелые заряженные частицы (например, протоны отдачи), вызванные, в частности, быстрыми нейтронами, в сопоставлении с комптоновскими электронами (от рассеяния γ -квантов) вызывают большие Q_{slow} при

одинаковых Q_{total} . Так что на плоскости $(Q_{total}; Q_{slow})$ зарегистрированные события, вызванные γ -квантами и нейтронами, располагаются в различных полосках (в общем случае “фигурных”), причем при одинаковых Q_{total} события, вызванные γ -квантами, располагаются левее (см. рис. 2*a*). На рис. 2*a* демонстрируется возможность отделять γ -кванты от нейтронов после облучения урановой мишени по форме вызываемых ими сцинтилляционных импульсов в указанных в этом разделе условиях.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Основные измерения в настоящей работе проводились с урановой мишенью при частоте повторения импульсов пучка $\nu = 60 \text{ с}^{-1}$. Энергетические спектры запаздывающих быстрых нейтронов и скорости счета их регистрации измерялись в вышеуказанных временных интервалах от 4.5 мс до 16.0 мс после каждого импульса пучка.

Перед основными измерениями было необходимо экспериментально убедиться, что в получаемых результатах для запаздывающих нейтронов нет значительного фонового вклада от продолжающих “гулять” по залу ускорителя практически мгновенных нейтронов, образованных в течение импульса пучка. Для этого был проведен контрольный эксперимент при тех же условиях, что и для рис. 2*a*, не с урановой мишенью, а с близкой к ней по форме и по количеству образуемых в ней мгновенных нейтронов свинцовой мишенью. Рисунок 2*б* является повторением $(Q_{total}; Q_{slow})$ -диаграммы (рис. 2*a*) зарегистрированных событий, вызванных γ -квантами и нейтронами, но на нем черными кружками представлены события для свинцовой мишени, а малыми крестиками – для урановой мишени в аналогичных условиях. Видно, что во временном интервале измерений для свинцовой мишени практически отсутствуют события, вызванные быстрыми нейтронами.

Пример результата наших измерений распределения для запаздывающих нейтронов по их кинетической энергии E_n для ^{238}U для временных интервалов от 10.25 до 16.00 мс после каждого импульса пучка представлены на рис. 3 с поправками на зависимость эффективности используемого сцинтилляционного спектрометра от E_n . На рис. 4 для сравнения показаны взятые из [2, 14] аналогичные распределения по E_n для запаздывающих нейтронов, образуемых при делении ^{238}U и ^{235}U под действием быстрых нейтронов ядерного реактора. На рис. 3 энергетическое разрешение не уступает достигнутому разрешению для данных, представленных на рис. 4 (а, скорее, лучше его). Общие характеры спектров запаздывающих нейтронов на рис. 3 и 4 близки друг к другу, в их “тонкой” структуре есть корреляции, что может

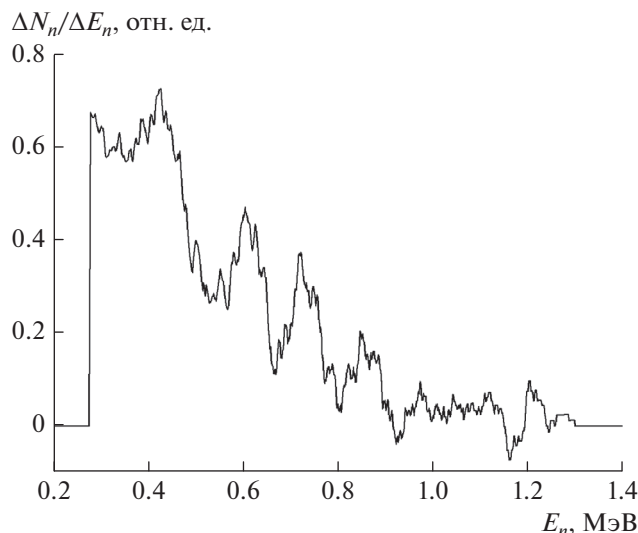


Рис. 3. Измеренные при фотоделении ^{238}U распределения $\Delta N_n/\Delta E_n$ (в относительных единицах) для запаздывающих нейтронов в зависимости от их кинетических энергий E_n .

указывать на связь с одними и теми же ядрами — осколками деления и предшественниками зарегистрированных запаздывающих нейтронов. Однако для более аккуратного анализа этих спектров нужны дальнейшие исследования.

Важно также отметить, что в обзоре [2] и в работах [14, 15] приводятся энергетические спектры запаздывающих нейтронов от деления ^{235}U под действием тепловых нейтронов для отдельных групп запаздывающих нейтронов (по величинам $T_{1/2}$). Между такими спектрами для отдельных групп обнаруживаются существенные различия, весьма интересные для идентификации конкретных радиоизотопов, ответственных за испускание запаздывающих нейтронов, и вообще для задач ядерной спектроскопии. Представляется, что дальнейшее развитие примененной в настоящей работе методики позволит исследовать энергетические спектры запаздывающих нейтронов для отдельных их групп.

На рис. 5 показаны скорости счета зарегистрированных событий от запаздывающих нейтронов из урановой мишени при указанных условиях. Приведены результаты серий (1; 2; 3; 4) измерений при несколько различающихся настройках аппаратуры. При анализе этих результатов укажем, что, развивая послойную методику расчета из [16, 17] и используя (например, из [18]) сечения фотоделения ^{238}U , можно оценить ΔN_f — число актов деления ^{238}U в облучаемой мишени в каждом импульсе пучка ускорителя, а также $(v \cdot \Delta N_f)$ — среднюю по времени скорость следования таких актов при неизменных параметрах пучка и реги-

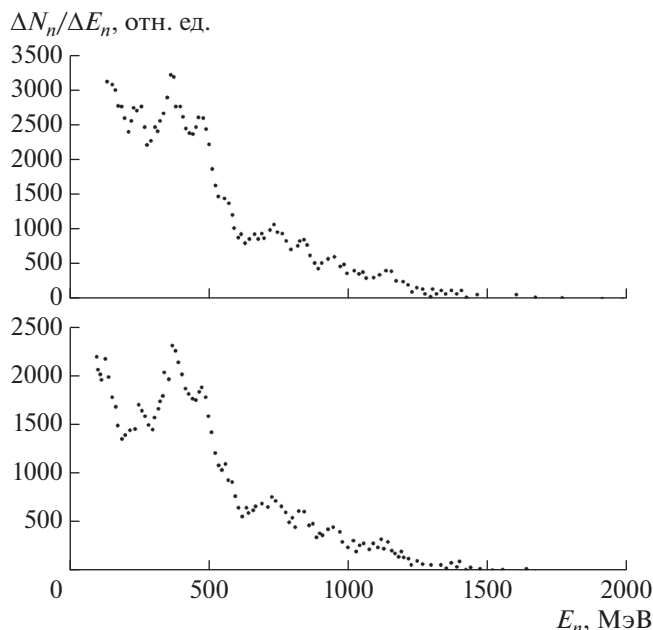


Рис. 4. Распределения $\Delta N_n/\Delta E_n$ (в относительных единицах) из [2] для запаздывающих нейтронов в зависимости от кинетических энергий E_n при делении ^{235}U (вверху) и ^{238}U (внизу) под действием реакторных быстрых нейтронов.

стрирующей аппаратуры. Тогда для одиночного импульса облучения или в условиях, когда для запаздывающих нейтронов от распадов конкретного

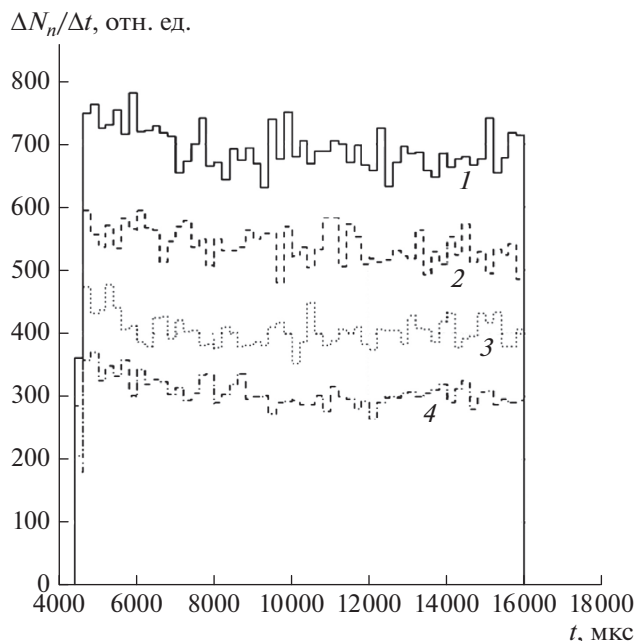


Рис. 5. Измеренные при фотоделении ^{238}U распределения скоростей счета регистрации запаздывающих нейтронов в зависимости от времени в интервале между импульсами пучка.

ядра-предшественника, имеющего $(T_{1/2})_{short} \ll v^{-1}$, то есть с коротким $(T_{1/2})_{short}$, много меньшим времени между импульсами пучка, получаем после короткого импульса пучка ($\tau \ll (T_{1/2})_{short}$) полный поток запаздывающих нейтронов в зависимости от времени t после такого импульса: $a_{short} \lambda_{short} (\Delta N_p) \exp(-\lambda_{short} t)$.

Исходя из вышеуказанных известных ([3, 4]) значений $(T_{1/2})_i$ в диапазоне от ≈ 0.2 с до ≈ 1 мин у β^- -активных ядер – предшественников испускающих запаздывающих нейтронов (что много больше вышеуказанного времени между импульсами пучка ≈ 16.7 мс) можно ожидать, что в таких условиях измеряемая скорость счета при неизменных параметрах пучка и регистрирующей аппаратуры без учета статистических флуктуаций должна находиться на примерно постоянном равновесном уровне. Этот уровень определяется рядом факторов. Используя сведения, например, из [3, 4] о групповом представлении образования запаздывающих нейтронов на один акт деления ядра урана, можно найти приближенное распределение образуемых запаздывающих нейтронов во времени. В частности, в условиях установленного насыщения при времени облучения $t_{irradiation} \gg (T_{1/2})_{i_{max}} \approx 1$ мин (например, при $t_{irradiation} \geq 7$ мин) получаем от групп запаздывающих нейтронов с $(T_{1/2})_i \gg v^{-1}$ следующий примерно постоянный уровень полного потока (в телесный угол 4π): $(v\Delta N_p) (\sum_i a_i)$, где $(\sum_i a_i)$ – суммарная характеристика образования запаздывающих нейтронов со сравнительно большими $(T_{1/2})_i$. Для нахождения связи регистрируемой скорости счета запаздывающих нейтронов с указанными в этом и в предыдущем абзацах выражениями для соответственно постоянной и короткой временных составляющих абсолютной скорости счета между импульсами пучка, необходимо найти долю полного потока запаздывающих нейтронов, стягиваемую и регистрируемую используемым сцинтилляционным детектором. При этом необходимо учитывать роль спектров запаздывающих нейтронов и при поглощении, и при рассеянии этого потока в самой урановой мишени и в свинцовой защите, а также роль этих спектров в формировании соответствующей физической эффективности сцинтилляционного спектрометра.

Однако на основании экспериментальных сведений, например, из [11], складывается впечатление, что в условиях имеющихся широких пучков нейтронов (так сказать, в условиях “плохой геометрии”) искажения спектров и потоков быстрых нейтронов и, в частности, регистрируемых быстрых запаздывающих нейтронов в мишени и в свинцовой защите, не очень велики, хотя, конечно, желательно аккуратное рассмотрение

этих вопросов с помощью, например, таких программ, как MCNP [19] и/или GEANT [20].

Важно указать, что положение сильно облегчается тем, что особенности проводимых экспериментальных исследований позволяют получать важные относительные данные. А именно: измеренная скорость счета нейтронов для второй половины интервала измерений между импульсами пучка позволяет найти постоянную “подложку” для первой половины. После вычитания этой постоянной “подложки” можно выделить короткоживущую составляющую в первой половине интервала по t и определить для нее величину λ_{short} . После этого можно определить величину $a_{short} \lambda_{short}$ по отношению к величине $v(\sum_i a_i)$ (с поправками на эффективность спектрометра из-за различия спектров нейтронов в каждом случае) и, наконец, найти значение величины a_{short} .

Несмотря на трудности анализа измеренной скорости счета запаздывающих нейтронов непосредственно в зале ускорителя во временных интервалах между импульсами пучка, представляется, что есть указание на регулярный спадающий с характерным временем $\approx 1-2$ мс “добавок” в начале диапазона измерений. Этот результат – предварительный и нуждается в тщательной проверке (в частности, в режиме измерений с управляемым делителем ФЭУ [21]). Желателен также переход на жидкие сцинтилляторы для увеличения эффективности регистрации и улучшения функции отклика спектрометра быстрых нейтронов. Надо отметить, что для продолжения таких исследований важно также, что в работе [22] о регистрации запаздывающих нейтронов, испускаемых при делении ^{235}U и ^{239}Pu под действием тепловых нейтронов, выполненной на импульсном реакторе ИБР-2 в ОИЯИ (Дубна), видимо, тоже есть указания на подобный короткоживущий “добавок” в начальных временных каналах зарегистрированных скоростей счета запаздывающих нейтронов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные результаты подтверждают существенные возможности исследований запаздывающих нейтронов на импульсных ускорителях электронов при низких энергиях γ -квантов. Представляется, что при дальнейшем развитии методики измерений можно получать актуальные данные как для фундаментальных задач (физика деления, ядерная спектроскопия), так и для прикладных (ядерные реакторы и контроль перемещения делящихся материалов).

Авторы благодарны В.И. Фурману за полезные обсуждения результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
2. *Evans A.E.* Delayed neutrons from fission. University of California. Los Alamos Scientific Laboratory report. Los Alamos, 1965.
3. *Rudstam G.* // Nucl. Sci. Engin. 1982. V. 80. P. 238.
4. *Пиксайкин В.М., Казаков Л.Е., Исаев С.Г. и др.* // Вопр. атом. науки и техн. Сер. Ядерн. конст. 2001. № 1. С. 67.
5. *Пиксайкин В.М., Казаков Л.Е., Исаев С.Г. и др.* // Вопр. атом. науки и техн. Сер. Ядерн. конст. 2001. № 1. С. 73.
6. *Гундорин Н.А., Зейналов Ш.С., Копач Ю.Н., и др.* // ЭЧАЯ. 2016. Т. 47. № 4. С. 1249; *Gundorin N.A., Zeinalov Sh.S., Kopach Yu.N. et al.* // Phys. Part. Nucl. 2016. V. 47. № 4. P. 681.
7. *Лазарева Л.Е., Ратнер Б.С., Штраних И.В.* // ЖЭТФ. 1955. Т. 29. № 2. С. 274; *Lazareva L.E., Ratner B.S., Shtranikh I.V.* // Sov. Phys. JETP. 1956. V. 2. № 2. P. 301.
8. *Вербицкий С.С., Емохонов В.Н., Лапик А.М. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2011. Т. 75. № 11. С. 1640; *Verbitskii S.S., Emokhonov V.N., Lapik A.M. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2011. V. 75. № 11. P. 1544.
9. *Джилавыян Л.З., Лапик А.М., Недорезов В.Г. и др.* // ЭЧАЯ. 2019. Т. 50. № 5. С. 745; *Dzhilavyan L.Z., Lapik A.M., Nedorezov V.G. et al.* // Phys. Part. Nucl. 2019. V. 50. № 5. P. 626.
10. <https://indico.jinr.ru/event/706/material/12/0>
11. *Кухтевич В.И., Трыков Л.А., Трыков О.А.* Однокристалльный сцинтилляционный спектрометр (с органическим фосфором). М.: Атомиздат, 1971. 136 с.
12. *Недорезов В.Г., Пономарев В.Н., Солодухов Г.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 9. С. 1275; *Nedorezov V.G., Ponomarev V.N., Solodukhov G.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. № 9. P. 1158.
13. *Вербицкий С.С., Емохонов В.Н., Лапик А.М. и др.* // ПТЭ. 2012. № 2. С. 30; *Verbitsky S.S., Emokhonov V.N., Lapik A.M. et al.* // Instr. Exp. Tech. 2012. V. 55. № 2. P. 174.
14. *Shalev S.* Measurements on delayed neutrons from fast fission. Report № IAEA-R-611-F. Israel Inst. of Techn. Department of Nucl. Sci. Israel. Haifa: Intern. Atomic Energy Agency, 1971.
15. *Piksaikin V.M., Egorov A.S., Gremyachkin D.E., Mitrofanov K.V.* Proc. XXIII Int. Seminar on Interact. of Neutrons with Nuclei. (Dubna, 2015). P. 88.
16. *Джилавыян Л.З., Покотилловский Ю.Н.* // Письма в ЭЧАЯ. 2017. Т. 14. № 5(210). С. 1; *Dzhilavyan L.Z., Pokotilovski Yu.N.* // Phys. Part. Nucl. Lett. 2017. V. 14. № 5. P. 726.
17. *Бельшев С.С., Джилавыян Л.З., Лапик А.М. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 4. С. 500; *Belyshev S.S., Dzhilavyan L.Z., Lapik A.M. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. № 4. P. 449.
18. *Джилавыян Л.З., Недорезов В.Г.* // ЯФ. 2013. Т. 76. С. 1529; *Dzhilavyan L.Z., Nedorezov V.G.* // Phys. Atom. Nucl. 2013. V. 76. P. 1444.
19. <http://mcnp.lanl.gov/>.
20. <http://geant4.web.cern.ch/>.
21. *Джилавыян Л.З., Лапик А.М., Русаков А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. С. 525; *Dzhilavyan L.Z., Lapik A.M., Rusakov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. P. 474.
22. *Борзаков С.Б., Андреев А.Н., Дермендиев Е. и др.* // ЯФ. 2000. Т. 63. С. 589; *Borzakov S.B., Andreev A.N., Dermendjiev E. et al.* // Phys. Atom. Nucl. 2000. V. 63. P. 530.