

ГЕНЕРАЦИЯ НЕЙТРОНОВ В УРАН-СВИНЦОВОЙ СБОРКЕ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ДЕЙТРОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ 1,6 ГэВ

*В.А. Воронко¹, В.В. Сотников¹, В.В. Сидоренко¹, В.В. Жук¹,
И.В. Жук², А.С. Потапенко², М.И. Кривоустов³, П.С. Кизим⁴*

¹*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина*

²*Объединенный институт энергетических и ядерных исследований,
Минск, Беларусь*

³*Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия*

⁴*Харьковский национальный университет им. Каразина, Харьков, Украина
E-mail: voronko@kipt.kharkov.ua*

Представлены результаты исследования процессов генерации нейтронов в уран-свинцовой сборке с четырьмя секциями уранового бланкета, облучаемой релятивистскими дейтронами с энергиями 1.6 ГэВ.

1. ВВЕДЕНИЕ

С начала 50-х годов, когда Е. Лоуренс в США и Н.Н. Семенов в СССР предложили использовать ускорители для генерации нейтронов, в мире не ослабевает интерес к исследованию процессов, происходящих в различных средах под действием высокоэнергетических частиц. Нейтронный поток генерируется в результате реакций расщепления, и такой способ получения нейтронов получил название – электроядерный. Тогда же, в 50-х, в Канаде и США был предложен способ переработки природного тория и урана в легкоделящиеся ядра урана-233 и плутония-239 с помощью ускорителя протонов с энергией 1 ГэВ и током сотни миллиампер (электроядерный бридинг). В дальнейшем использование электроядерных нейтронов было предложено для управления подкритическим безопасным реактором, а также для трансмутации отходов атомной энергетики.

По инициативе профессоров К.Д. Толстова (ОИЯИ) и Н.А. Хижняка (ХФТИ) в начале 80-х на базе Синхрофазотрона ЛВЭ ОИЯИ (Дубна) были начаты экспериментальные исследования нейтронных потоков, генерируемых релятивистскими ядрами в протяженных мишенях из тяжелых элементов. Для исследования взаимодействия различных пучков релятивистских ядер с протяженной мишенью использовался свинцовый блок 50×50×80 см, весом более 2,2 т. Были получены следующие основные результаты (см., напр., [1-2]):

- измерены пространственные распределения реакций радиационного захвата $^{238}\text{U}(n,\gamma)$;
- измерены пространственные распределения реакций деления $^{238}\text{U}(n,f)$;
- получены относительные кумулятивные выходы осколков деления ^{238}U для указанных пучков;
- измерены энергетические спектры нейтронов внутри свинцовой мишени;
- определена энергетическая стоимость нейтронов для различных пучков.

В середине 90-х, основываясь, в том числе, и на результатах, полученных на Свинцовом блоке, была разработана и создана установка «Энергия + трансмутация» (ОИЯИ, Дубна, Россия). На установке ведутся систематические исследования генерации нейтронов и энерговыделения в свинцовой мишени и урановом бланкете на пучках релятивистских ядер, а также исследуется трансмутация радиоактивных отходов атомной энергетики (I-129, Np-237, Pu-239 и Am-241) [3-6].

Целью настоящей работы является исследование пространственно-энергетического распределения нейтронов в системе «свинцовая мишень + бланкет из естественного урана» при облучении ее дейтронами с энергией 1,6 ГэВ. Работа включает в себя:

- определение параметров дейтронного пучка;
- измерение пространственного распределения в U/Pb-сборке числа реакций деления ^{238}U , числа реакций радиационного захвата нейтронов ^{238}U ;
- измерение сечений деления и сечений ядерных реакций на ^{nat}U , ^{nat}Pb и ^{209}Bi под действием дейтронов на прямом пучке с энергией 1,6 ГэВ.

2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Облучение свинцовой мишени с четырьмя секциями уранового бланкета проводилось дейтронами с энергией 1,6 ГэВ, ускоренными сверхпроводящим синхротроном «Нуклотрон» Лаборатории высоких энергий ОИЯИ. Направление дейтронного пучка совпадало с горизонтальной осью симметрии мишени. Средняя интенсивность пучка составляла около 7×10^9 дейтронов в импульсе. Более подробное описание экспериментальной установки можно найти в работе [1,7]. Определение полного флюенса упавших на свинцовую мишень ускоренных дейтронов проводилось с помощью стандартной методики активации алюминиевой фольги. Сечение образования ^{24}Na известно для дейтронов с энергией 2,33 ГэВ [8]. Величина этого сечения равна $(15,25 \pm 1,50)$ мбарн. Следует отметить, что в этом диапазоне энергий се-

чение практически не меняется и поэтому для дейтронов с энергией 1,6 ГэВ можно использовать сечение равное 15,25 мбарн. Полное число дейтронов за все время облучения составило $(2,1 \pm 0,2) \times 10^{13}$, время облучения вместе с техническими остановками составило 6 часов 47 минут.

Для определения профиля дейтронного пучка использовались твердотельные трековые детекторы ядер (ТТДЯ) с радиатором из $Pb_{ест}$. В качестве ТТДЯ использовалась искусственная слюда (фторфлогопит). Данный тип трекового детектора имеет высокую эффективность регистрации осколков деления и позволяет исключить фон от ядер отдачи при экспозиции в полях нейтронов с жестким спектром. Детекторы располагались по азимутам 0...180 (ось X) и 90...270 (ось Y). Детекторы располагались на расстоянии от -13,5 до +13,5 см, считая от оси сборки, всего 37 штук. Распределение плотности треков от деления свинца по оси Y и по оси X представлено на Рис.1.

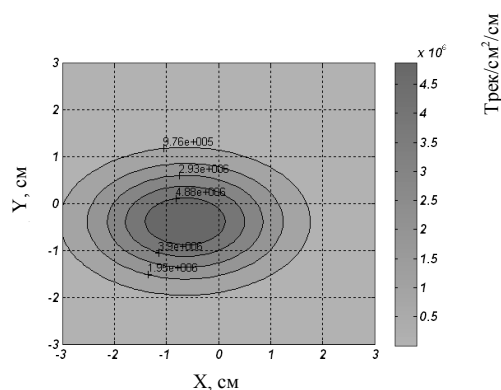


Рис.1. Распределение плотности треков от деления свинца по оси Y и по оси X

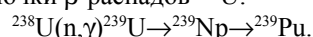
Координаты центра пучка по осям X и Y составили соответственно $(-0,6) \pm 0,1$ см и $0,4 \pm 0,1$ см. Ширина пика на полувысоте по осям X и Y составила соответственно $2,8 \pm 0,1$ см и $1,9 \pm 0,1$ см. В результате проведенных измерений получено, что 99.7% ускоренных дейтронов упало на свинцовую мишень.

ТТДЯ были также использованы для получения пространственного распределения числа реакций деления естественных урана и свинца в U/Pb-сборке. Методики работы с ТТДЯ подробно описаны в [9, 10]. Пространственное распределение числа реакций радиационного захвата нейтронов ^{238}U измерялось с помощью урановых фольг естественного состава (диаметр 8 мм, толщина 1 мм). Фольги вместе с ТТДЯ размещались в уран-свинцовой сборке на пяти пластинах и экспонировались в течение полного сеанса облучения U/Pb-сборки дейтронами. Всего было использовано 30 урановых фольг. Позиции для размещения измерительных сенсоров внутри U/Pb сборки были использованы такие же, как и в работе [11]. После окончания облучения уран-свинцовой сборки проводилось измерение γ -спектров облученных урановых фольг с помощью полупроводниково-

го спектрометра с детектором Canberra GC1520 из сверхчистого германия объемом 95 см^3 с относительной эффективностью 15%. Измерения проводились в двух геометриях: на расстоянии 0 и 70 мм от крышки детектора. Эффективность регистрации детектора для этих геометрий определялась с помощью калибровочных источников. Определение количества ядерных реакций в активационных детекторах проводилось с учетом режима работы нуклотрона (с учетом временной зависимости интенсивности дейтронного пучка и технических остановок ускорителя во время облучения). Подробное описание методики измерения представлено в работе [11].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Число реакций радиационного захвата ^{238}U соответствует количеству ^{239}Pu , образующемуся в результате цепочки β -распадов ^{239}U :



После окончания процесса облучения уран-свинцовой сборки проводилось измерение γ -спектров облученных урановых фольг. На Рис.2 представлены пространственные распределения числа реакций радиационного захвата $^{238}U(n,\gamma)$ для U/Pb-сборки.

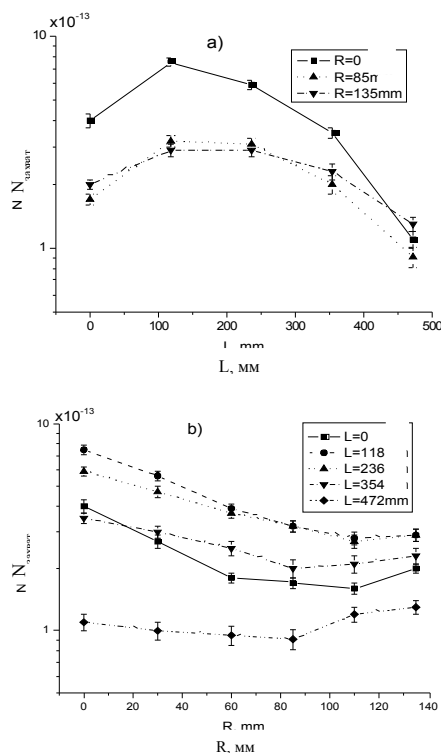


Рис.2. Пространственные распределения числа реакций радиационного захвата $^{238}U(n,\gamma)$ для U/Pb-сборки. Данные приведены на одно ядро ^{238}U .

a) - аксиальные (при R=0, 85, 135 мм);

b) - радиальные (при L=0, 118, 236, 354, 472 мм)

Из Рис.2,а видно, что максимумы кривых распределения числа захватов для R=0 и R=85 мм находятся на расстоянии порядка Z=100...130 мм, в то время как для R=135 мм максимум находится на расстоянии порядка Z=150...200 мм, т.е. по центру сборки и соответственно по центру биологической

защиты. Это связано с тем, что основной вклад в число реакций захвата для $R=135$ мм вносят нейтроны, отраженные биологической защитой. Этим же объясняется то, что результаты выхода реакций захвата для фольг, расположенных в уране и воздухе, близки, а на переднем и заднем торце сборки совпадают в пределах статистической ошибки. В радиальном направлении (Рис.2,b) скорость реакций радиационного захвата $^{238}\text{U}(n,\gamma)$ уменьшается по мере удаления от оси U/Pb-сборки, а на периферии видно, что основную роль также играют нейтроны, отраженные защитой. Число реакций захвата при $R = 135$ мм больше чем при $R = 85$ мм для всех детекторных пластин.

Наряду с γ -линиями, сопровождающими распад ^{239}Np , в спектрах было идентифицировано большое количество γ -линий, соответствующих радиоактивным осколкам деления в интервале массового числа $A=88...146$ (^{88}Kr , ^{91}Sr , ^{97}Zr , ^{105}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{133}I , ^{135}I , ^{135}Xe , ^{143}Ce , ^{146}Ce и др.). По измеренной интенсивности γ -линий были определены полные количества ядер этих нуклидов, нарабатанных за весь сеанс облучения в различных точках уран-свинцовой сборки. Из количества образовавшихся продуктов деления, у которых выходы на одно деление близки для нейтронов в широком энергетическом диапазоне, можно определить число реакций деления ^{238}U . Число делений определялось усреднением результатов для следующих осколков: ^{97}Zr (5,7%), ^{131}I (3,6%), ^{133}I (6,3%), ^{143}Ce (4,3%). В скобках средний кумулятивный выход для спектра деления и 14 МэВ нейтронов [12]. На Рис.3 представлены пространственные распределения числа реакций деления $^{238}\text{U}(n,f)$ для U/Pb-сборки.

Отметим, что поскольку деление ^{238}U – пороговый процесс, то распределения числа делений отражают распределения нейтронов с энергией $E > 1$ МэВ. Об этом говорит и тот факт, что на периферии сборки в случае реакций деления не наблюдается вклада от тепловых нейтронов, отраженных биологической защитой. Наблюдаемый более резкий спад числа делений в R-распределениях по сравнению с L-распределениями указывает на то, что спектр нейтронов в продольном направлении жестче.

На основе полученных пространственных распределений реакций радиационного захвата нейтронов ^{238}U в бланкете уран-свинцовой сборки можно определить также и полное количество ^{239}Pu , нарабатанного за все время облучения. Экспериментальное значение массы плутония, нарабатанного в урановом бланкете за все время облучения дейтронами с энергией 1,6 ГэВ, составило $(4,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-8}$ г, или в пересчете на один ускоренный дейтрон и один гигаэлектронвольт энергии – $(1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-21}$ г/ГэВ·д. При облучении сборки дейтронами с энергией 2,52 ГэВ (декабрь 2005 г.) экспериментальное значение массы плутония составило $(1,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-8}$ г, или на один дейтрон и один гигаэлектронвольт энергии – $(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-21}$ г/ГэВ·д.

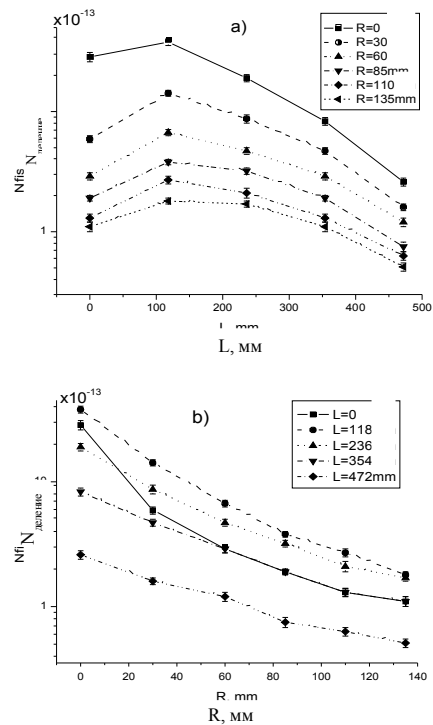
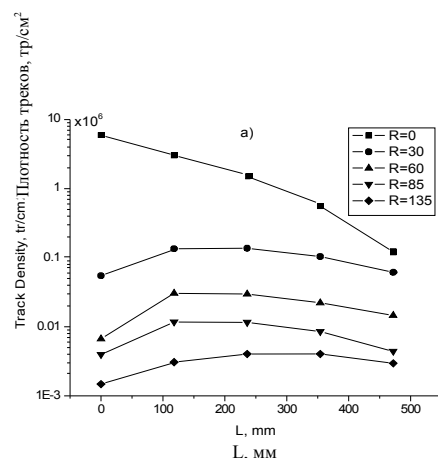


Рис.3. Пространственные распределения числа реакций деления $^{238}\text{U}(n,f)$ для U/Pb-сборки. Данные приведены на одно ядро ^{238}U . а) - аксиальные (при $R=0, 30, 60, 85, 110, 135$ мм), б) - радиальные (при $L=0, 118, 236, 354, 472$ мм)

На Рис.4,a и 4,b приведены аксиальные и радиальные распределения плотности треков в ТГДЯ при делении свинца. Поскольку плотность треков пропорциональна количеству делений, то на этих рисунках представлены пространственные распределения деления свинца. А так как это пороговый процесс, то эти распределения отражают распределение нейтронов с энергией $E > 50$ МэВ.

Отметим, что аксиальные распределения деления для свинца и урана подобны. Исключением является точка на первой детекторной пластине при $R=0$. Образцы в этой точке делятся прямым дейтронным пучком, а так как в случае свинца деление регистрируется с помощью ТГДЯ, которые позволяют детектировать не только двойные деления, но и тройные и т.д.



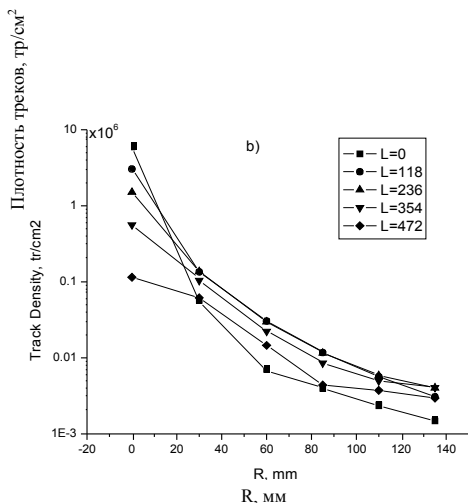


Рис. 4. а - аксиальные распределения плотности треков в ТТДЯ при делении свинца; б - радиальные распределения плотности треков в ТТДЯ при делении свинца

С помощью активационной методики мы видим только двойные деления.

Радиальные распределения также подобны за исключением того, что в случае деления свинца число реакций падает значительно быстрее, чем в случае деления урана. Это значит, что нейтроны быстро теряют энергию в бланкете сборки в результате ядерных реакций.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ДЕЛЕНИЯ И ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ НА ПРЯМОМ ПУЧКЕ ДЕЙТРОНОВ

В ходе ускорительного сеанса нами также было проведено измерение сечений деления и сечений ядерных реакций на ^{235}U , ^{238}U и ^{209}Bi под действием дейтронов на прямом пучке с энергией 1,6 ГэВ. Необходимость таких измерений связана с тем, что, в отличие от протонов, для дейтронов экспериментальные данные (для большинства ядер) по сечениям ядерных реакций с энергией бомбардирующих частиц выше 500 МэВ практически отсутствуют (библиотека EXFOR [13]), что затрудняет, в частности, проведение модельных расчетов подкритических сборок ADS (электроядерные системы, управляемые ускорителем). Отсутствуют данные по цирконию, гафнию и другим конструкционным материалам, использование которых возможно в подкритических ADS. Нет экспериментальных данных в данном диапазоне энергий и по сечениям ядерных реакций под действием дейтронов на висмуте, который используется в свинцово-висмутовой эвтектике (перспективная жидкая мишень, одновременно используемая для съема тепла в подкритических ADS). Полученные нами экспериментальные значения сечений реакций приведены в Табл.1,2.

В Табл.1 приведены полученные нами значения сечений деления на ^{235}U , ^{238}U и ^{209}Bi , а также, для

сравнения, более ранние экспериментальные значения, полученные другими авторами. В пределах ошибок данные сечения совпадают.

Таблица 1. Сечения деления дейтронами

Образец	Сечения деления, мб для $E_d = 1.6$ ГэВ (эксперимент, данная работа)	Сечения деления, мб для $E_d = 1.6$ ГэВ (эксперимент, база EXFOR [13])
U-nat	1700 ± 300	1654 ± 340
Pb-nat	200 ± 50	182 ± 40
Bi-209	220 ± 80	323 ± 60

В Табл.2 приведены экспериментальные значения сечений ядерных реакций $^{209}\text{Bi}(d,x)$ с выходом различных изотопов висмута. Сечения ядерных реакций на Bi (под действием дейтронов в диапазоне энергий $E_d > 500$ МэВ) получены впервые. Для сравнения, в Табл. 2 приведены экспериментальные значения сечений аналогичных реакций под действием протонов с примерно такой же энергией ($E_p = 1,5$ ГэВ, $E_d = 1,6$ ГэВ). Отношение экспериментальных значений сечений реакций $\sigma(^{209}\text{Bi}(d,x)^A\text{Bi})/\sigma(^{209}\text{Bi}(p,x)^A\text{Bi})$ примерно равно 1,8 для выхода большинства изотопов висмута. Исключение составляет выход изотопа ^{200}Bi , для которого значения сечений на протонах и дейтронах отличаются всего в 1,2 раза.

Таблица 2. Сечения ядерных реакций на ^{209}Bi

Продукт реакции $^{209}\text{Bi}(d,x)$ или $^{209}\text{Bi}(p,x)$	Сечение, мб дейтроны $E_d = 1,6$ ГэВ (эксперимент, данная работа)	Сечение, мб протоны $E_p = 1,5$ ГэВ (эксперимент, [14])
^{207}Bi	-	$66,8 \pm 8,6$
^{206}Bi	60 ± 5	$31,5 \pm 3,8$
^{205}Bi	-	$29,4 \pm 3,5$
^{204}Bi	51 ± 4	$30,3 \pm 3,6$
^{203}Bi	42 ± 3	$23,3 \pm 3$
^{202}Bi	$25 \pm 2,5$	$13,2 \pm 2,6$
^{201}Bi	$14 \pm 1,5$	-
^{200}Bi	$12 \pm 1,5$	$10,1 \pm 1,2$

Обсуждение полученных экспериментальных значений сечений ядерных реакций, а также методика измерений и сравнение с теоретическими расчетами будут опубликованы в отдельной статье.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено исследование пространственно-энергетического распределения нейтронов в системе “свинцовая мишень + бланкет из естественного урана” при облучении ее дейтронами с энергией 1.6 ГэВ. Определены параметры дейтронного пучка – полный поток и профиль пучка. Более 99% первичного пучка дейтронов падает на свинцовую мишень. Измеренные пространственные распределения числа реакций радиационного захвата нейтро-

нов ^{238}U вblankете сборки позволили определить полное число ^{239}Pu , который был наработан за все время облучения. Число ^{239}Pu , нормированное на полный поток и гигаэлектронвольт энергии, совпадает в пределах ошибки с числом плутония, наработанного на дейтронах с энергией 2.52 ГэВ. На основе пространственных распределений реакций деления естественных урана и свинца получены распределения нейтронов с энергией $E > 1$ МэВ и $E > 50$ МэВ. Получены значения сечений деления на ^{238}U , ^{238}Pu и ^{239}Pu , которые совпадают в пределах ошибок с более ранними экспериментальными результатами. Впервые (для дейтронов с энергией > 0.5 ГэВ) определены экспериментальные значения сечений ядерных реакций $^{209}\text{Bi}(d,x)$ с выходом различных изотопов висмута.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.A. Voronko, V.M. D'yachenko, V.Ya. Kostin, et al. Interaction of Relativistic Protons and ^{12}C Nuclei with a Lead Target // *Atomic Energy*. 1989, v.66, p.252-254.
2. V.A. Voronko, V.Ya. Kostin, L.G. Levchuk, et al. Energy spectra of neutrons generated by relativistic nuclei in extended lead target // *Atomic Energy*. 1991, v.71, p.1028-1030.
3. M.I. Krivopustov, D. Chultem, J. Adam, et al. First experiments with a large uranium blanket within the installation "Energy plus Transmutation" exposed to 1.5 GeV protons // *Kerntechnik*. 2003, v.68, p.48-55.
4. M.I. Krivopustov, J. Adam, V. Bradnova, et al. First experiments on transmutation studies of ^{129}I and ^{237}Np using relativistic protons of 3.7 GeV // *Radioanal. and Nucl. Chem.* 1997, v.222, p.267-271.
5. J.-S. Wan, Th. Schmidt, E. Langrock, et al. Transmutation of ^{129}I and ^{237}Np using spallation neutrons produced by 1.5, 3.7 and 7.4 GeV protons // *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.* 2001, v.A463, p.634-639.
6. J. Adam, A. Balabekyan, V.P. Bamblevski, et al. Transmutation of ^{239}Pu and other nuclides with spallation neutrons produced by relativistic protons reacting with massive U - and Pb - targets: JINR Preprint. E1136, Dubna, 2001.
7. M.I. Krivopustov, V.A. Voronko, V.V. Sotnikov, et al. About the first experiment on investigation of ^{129}I , ^{237}Np , ^{238}Pu and ^{239}Pu transmutation at the Nuclotron 2.52 GeV deuteron beam in neutron field generated in U/Pb-assembly «Energy plus Transmutation»: JINR Preprint. E1-2007-7, Dubna, 2007.
8. J. Banaigs, J. Berger, J. Dulfo, et al. Determination del intensite d un faiscean de deutrons extrain d un synchrotron et mesure des sections efficaces des reactions $^{12}\text{C}(d,p2n)^{11}\text{C}$ et $^{27}\text{Al}(d,3p2n)^{24}\text{Na}$ a 2.33 GeV // *Nucl. Instr. and Meth.* 1971, v.95, p.307-311.
9. А.П. Малыхин, И.В. Жук, О.И. Ярошевич, Ю.И. Чуркин. Измерение отношения эффективных сечений деления $\bar{\sigma}_f^{-238}/\bar{\sigma}_f^{-235}$ и $\bar{\sigma}_f^{-235}/\bar{\sigma}_f^{-239}$ и гетерогенных эффектов в быстро-тепловых критических сборках // *Весті АН БССР. Сер. фіз.-енер. навук.* 1975, №1, с.22-24.
10. А.П. Малыхин, И.В. Жук, Ю.И. Чуркин, О.И. Ярошевич. Измерение отношения эффективных сечений деления $\bar{\sigma}_f^{-238}/\bar{\sigma}_f^{-235}$ методом твердых трековых детекторов // *Весті АН БССР. Сер. фіз.-енер. навук.* 1972, №2, с.5-10.
11. В.А. Воронко, В.В. Сотников, В.В. Сидоренко и др. Нейтронно-физические характеристики уран-свинцовой сборки, бомбардируемой релятивистскими дейтронами // *Вісник ХНУ ім. Каразіна*. 2006, №746, с.75-81.
12. В.М. Горбачев, Ю.С. Замятин, А.А. Лбов. *Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер*. М.: «Атомиздат», 1976.
13. Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR). <http://www-nds.iaea.org/exfor/>
14. Yu.E. Titarenko, O.V. Shvedov, M.M. Igumnov, et al. Experimental and computer simulation study of the radionuclides produced in thin 209-Bi targets by 130 MeV and 1.5 GeV proton-induced reactions // *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res.* 1998, v.A73, p.414.

Статья поступила в редакцию 16.11.2007 г.

NEUTRON GENERATION IN THE U-Pb ASSEMBLY UNDER IRRADIATION WITH DEUTERONS OF ENERGIES 1.6 GeV

V.A. Voronko, V.V. Sotnikov, V.V. Sidorenko, V.V. Zhuk, I.V. Zhuk, A.S. Potapenko, M.I. Krivopustov, P.S. Kizim

Results are reported from the studies on the processes of neutron generation in the uranium-lead assembly with four sections of uranium blanket exposed to relativistic deuterons having a energy of 1.6 GeV.

ГЕНЕРАЦІЯ НЕЙТРОНІВ В УРАН-СВИНЦЕВОЇ ЗБІРЦІ ПРИ ОПРОМІНЕННІ ДЕЙТРОНАМИ З ЕНЕРГІЄЮ 1.6 ГеВ

В.О. Воронко, В.В. Сотніков, В.В. Сидоренко, В.В. Жук, І.В. Жук, А.С. Потапенко, М.І. Кривопустов, П.С. Кізім

Представлено результати дослідження процесів генерації нейтронів в уран-свинцевої збірці із чотирма секціями уранового blankета, що опромінюється релятивістськими дейтронами з енергіями 1,6 ГеВ.