

ПРОСТРАНСТВЕННЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ СПЕКТРАЛЬНЫХ ИНДЕКСОВ В ЭЛЕКТРОЯДЕРНОЙ СБОРКЕ С ГРАФИТОВЫМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕМ, ОБЛУЧАЕМОЙ РЕЛЯТИВИСТСКИМИ ДЕЙТРОНАМИ

*В.А. Воронко¹, В.В. Сотников¹, В.В. Сидоренко¹, Ю.Т. Петрусенко¹, И.В. Жук²,
А.С. Потапенко², А.А. Сафронова², М.И. Кривоустов³, А.Д. Коваленко³*

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

²*Объединенный институт энергетических и ядерных исследований «Сосны»,
Минск, Беларусь;*

³*Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия
E-mail: voronko@kipt.kharkov.ua*

Проведены исследования ядерно-физических характеристик электроядерной сборки ГАММА-МДМ с протяженным графитовым замедлителем, облучаемой пучком релятивистских дейтронов с энергией 2.33 ГэВ «Нуклотрона» ЛФВЭ ОИЯИ (г. Дубна). Представлены результаты измерений пространственных распределений различных спектральных индексов (отношений эффективных сечений деления и захвата) по объему сборки.

1. ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени уже рассмотрен и создан ряд установок для исследования процесса трансмутации долгоживущих радионуклидов и изучены их характеристики. Основной особенностью таких установок является использование подкритической системы на основе урана или другого делящегося вещества, работающей под управлением внешнего источника частиц (протонов, дейтронов, нейтронов, электронов). Примерами таких систем являются установки «Энергия плюс трансмутация» [1], «Яліна» [2], «Яліна-Б» [3]. Однако использование урана или других делящихся веществ ведет к образованию новых радионуклидов – осколков деления и трансурановых нуклидов, образующихся в поле нейтронов установки. Чтобы уменьшить параллельную наработку долгоживущих изотопов можно либо использовать вместо урана долгоживущие делящиеся актиниды (Np, Pu, Am, Cm) [4], которые являются экологически опасными веществами и будут одновременно трансмутировать, либо применять высокопоточные источники нейтронов, например, на основе ускорителя заряженных частиц совместно с нейтронопроизводящей мишенью (без использования бланкетов делящихся веществ).

Нейтроны, образующиеся с использованием ускорителей, имеют среднюю энергию более 1 МэВ. Для трансмутации некоторых четных актинидов, имеющих значительные пороги реакций на нейтронах, требуются быстрые нейтроны. Однако для других радионуклидов, эффективным способом трансмутации является использование медленных нейтронов (тепловых и резонансных энергий), которые имеют для ряда нуклидов большое сечение реакций (n, γ) , (n, f) .

Классическими замедлителями быстрых нейтронов являются вода, парафин и графит или их комби-

нация [5,6]. Преимуществом воды по сравнению с графитом является малая длина замедления (~5 см), а недостатком – значительное сечение поглощения тепловых нейтронов водородом (~0,33 барн). Наоборот, у графита сечение поглощения тепловых нейтронов малое ~0,0035 барн, но длина замедления ~50 см. Это означает, что размеры установки на основе графита для трансмутации нуклидов также должны быть значительными. Это не является существенным недостатком, так как требуются поля нейтронов, во-первых, различающиеся спектрами (тепловой и резонансной составляющими) и, во-вторых, имеющие малые градиенты. Последнее обстоятельство связано с необходимостью создания больших по объему зон для размещения значительного количества вещества трансмутируемых нуклидов. Отметим еще одну особенность будущих установок для трансмутации радионуклидов: выделяемая тепловая мощность будет значительной, что приведет к повышению температуры рабочей среды. Для графита температура плавления составляет 3800°C, а температура воспламенения в атмосфере кислорода – 750°C.

Перечисленным физико-техническим характеристикам вполне удовлетворяет графит. В связи с этим разработана и создана установка с протяженным графитовым замедлителем и свинцовой мишенью ГАММА-МДМ для исследований трансмутации долгоживущих продуктов деления и младших актинидов.

2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Спектральные индексы или отношения средних (эффективных) сечений захвата к сечениям деления показывают соотношение числа нейтронов в различных энергетических группах нейтронного спектра, т.е. они несут информацию о спектральном составе потока нейтронов в ядерно-физической уста-

новке. Сравнение результатов измерения и расчета позволяет выявить источник погрешностей при расчете характеристик ядерно-физических установок. Средние сечения и спектральные индексы определяются с помощью следующих выражений:

$$\bar{\sigma}_k^i = \frac{\int_0^{\infty} \sigma_k^i(E) \varphi(E) dE}{\int_0^{\infty} \varphi(E) dE}, \quad (1)$$

$$\frac{\bar{\sigma}_k^i}{\bar{\sigma}_l^j} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma_k^i(E) \varphi(E) dE}{\int_0^{\infty} \sigma_l^j(E) \varphi(E) dE}, \quad (2)$$

где i, j – атомный номер ядра; k, l – тип реакции: (n, f) или (n, γ).

Экспериментальные значения спектральных индексов являются наиболее точными и удобными величинами для сравнения с результатами моделирования по программам типа MNCPX, поскольку они не содержат в себе погрешность, связанную с неопределенностью флюенса первичных частиц, бомбардирующих мишень в ADS (Accelerator Driven Systems)-устройствах. Из формул видно, что отношение средних сечений процессов равно отношению скоростей реакций этих процессов. Для определения скоростей реакций (n, f) и (n, γ) были использованы метод твердотельных трековых детекторов ядер (ТТДЯ) и активационная методика.

2.1. РАЗМЕЩЕНИЕ СЕНСОРОВ

Сенсоры (ТТДЯ + радиатор осколков деления) размещались в экспериментальном канале на расстояниях $Z = 0, 78, 138, 162, 222, 282$ и 402 мм от торца сборки. Экспериментальный канал проходил на расстоянии 122 мм от оси установки. В качестве радиаторов использовались фольги ^{nat}U диаметром 8 мм и толщиной 1 мм, а также фольги урана с обогащением 6.5% по изотопу ^{235}U . Причем в каждой экспериментальной точке находились сенсоры с обоими типами радиаторов. Фольги натурального урана одновременно использовались для определения скорости радиационного захвата нейтронов ураном-238, а также в качестве ещё одного способа определения скорости деления естественного урана.

2.2. МЕТОДИКА ТТДЯ

В качестве основного экспериментального метода для измерения скоростей реакции деления $^{nat}U(n, f)$, $^{235}U(n, f)$ и $^{nat}Pb(n, f)$ в данной работе использован метод твердотельных трековых детекторов ядер (ТТДЯ). В его основе лежит соотношение между плотностью треков, образующихся на поверхности трекового детектора, экспонируемого в тесном контакте с радиатором, являющимся источником осколков деления, и плотностью потока исследуемого поля нейтронов, в котором проводится экспозиция радиатора и трекового детектора [7].

Все радиаторы являлись «толстыми», т.е. для них выполнялось условие $d \gg \bar{R}_0$, где d – толщина ра-

диатора, а \bar{R}_0 – средний пробег осколков деления в материале радиатора. Преимуществом применения «толстых» радиаторов является то, что не требуется проводить калибровку каждого индивидуального радиатора.

Согласно [8,9] соотношение между плотностью треков N_q^i , образующихся на поверхности ТТДЯ, находящегося в контакте с q -м радиатором, который содержит i -й нуклид, и дифференциальной энергетической плотностью потока нейтронов $\varphi(E)$ определяется следующим образом:

$$N_q^i = \omega P \int_0^{\infty} \sigma_f^i(E) \varphi(E) dE, \quad (3)$$

где $\sigma_f^i(E)$ – дифференциальное микроскопическое сечение деления i -го нуклида нейтронами; P – количество первичных частиц, бомбардирующих мишень; ω – коэффициент чувствительности для пары радиатор + ТТДЯ.

После экспонирования твердотельные трековые детекторы (искусственная слюда) протравливались в $6,8\%$ растворе HF при температуре $60^\circ C$ в течение $10 \dots 45$ минут в зависимости от плотности зарегистрированных на детекторе треков. После травления производился визуальный счет треков при помощи микроскопа.

2.3. АКТИВАЦИОННАЯ МЕТОДИКА

Для измерения скоростей реакции деления $^{238}U(n, \gamma)$, $^{nat}U(n, f)$ в данной работе была использована активационная методика. После окончания облучения графит-свинцовой сборки проводилось измерение γ -спектров облученных урановых фольг с помощью детектора из особо чистого германия объемом 55 см^3 с относительной эффективностью $9,2\%$.

Для измерения скорости реакции захвата и деления ^{238}U использовались те же фольги, которые служили в качестве радиаторов осколков деления ^{238}U при применении трековой методики. Скорость реакции захвата определялась по γ -линии ^{239}Np с энергией $277,6 \text{ кэВ}$ (из реакции $^{238}U(n, \gamma)^{239}U \rightarrow ^{239}Np \rightarrow ^{239}Pu$). Таким образом, с одних и тех же образцов трековым и γ -спектрометрическими методами снималась информация по скоростям реакций двух процессов: деления и захвата, соответственно

Наряду с гамма-линиями, сопровождающими распад ^{239}Np , в спектре было идентифицировано большое количество линий радиоактивных осколков деления в интервале массового числа $A=91 \dots 143$ ($^{91}Sr, ^{105}Ru, ^{131}I, ^{132}Te, ^{133}I, ^{135}I, ^{135}Xe, ^{143}Ce$). По интенсивности гамма-линий были определены полные количества ядер этих нуклидов, нарабатанных за весь сеанс облучения в различных точках сборки. Из количества образовавшихся продуктов деления, у которых выходы на одно деление близки для нейтронов в широком энергетическом диапазоне [10], можно определить распределение плотности деления ^{238}U .

Подробнее активационная методика описана в работах [11,12].

3. ПАРАМЕТРЫ ПУЧКА ДЕЙТРОНОВ

Для определения параметров дейтронного пучка использовались трековые детекторы с радиаторами из естественного свинца. Сенсоры размещались на торце установки перед свинцовой мишенью. Измерительные точки располагались в двух направлениях (20 точек на каждом) под углами $0...180^\circ$ (горизонтально) и $90...270^\circ$ (вертикально) на расстояниях 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 8.5, 11, 13.5 см, считая от оси установки.

Плотность треков осколков деления свинца, характеризующая пространственное распределение дейтронного пучка, достаточно хорошо аппроксимируется двумерным распределением Гаусса (Рис.1).

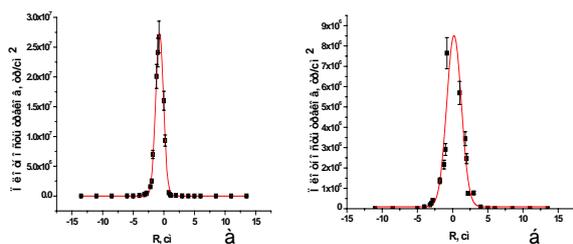


Рис.1. Распределения плотности треков деления естественного свинца: азимут $0...180^\circ$ (ось X) (а); азимут $90...270^\circ$ (ось Y) (б)

Исходя из данного предположения, были получены следующие данные о пространственном расположении протонного пучка: координаты центра пучка (см) – $X = 0.7 \pm 0.1$, $Y = 0.2 \pm 0.1$; ширина гауссового пика на полувысоте (см) – $FWHM_X = 1.5 \pm 0.1$, $FWHM_Y = 2.4 \pm 0.1$.

Необходимо отметить, что предположение о гауссовой форме распределения справедливо только вблизи центральной части пучка, реальное же распределение плотности потока имеет «хвосты».

Определение полного флюенса упавших на свинцовую мишень ускоренных дейтронов проводилось с помощью стандартной методики активации алюминиевой фольги. Полное число ядер ^{24}Na ($T_{1/2} = 15.02$ ч) образующегося в результате реакции $^{27}\text{Al}(d,3p2n)^{24}\text{Na}$, определяется по выходу γ -квантов с энергией 1368,5 кэВ (выход на распад 100%) и 2754 кэВ (99,9%), сопровождающих β -распад ядер ^{24}Na . Сечение образования ^{24}Na для дейтронов с энергией 2,33 ГэВ равно $(15,25 \pm 1,50)$ мбарн [13]. Полное число дейтронов за все время облучения составило $(5,9 \pm 0,6) \times 10^{12}$, время облучения вместе с техническими остановками составило 8 часов 15 минут.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В таблице представлены экспериментально измеренные скорости реакции деления урана естественного изотопного состава. Значения, измеренные двумя независимыми методами, хорошо согласуются (в пределах экспериментальных погрешностей).

При измерениях с помощью активационной методики 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 для 14 МэВ-нейтронов [10].

Скорости реакций деления, измеренные двумя независимыми методами

Z, мм	Скорость реакции, 1/ядро, $\times 10^{12}$		(ТТДЯ-Акт.) / ТТДЯ
	Актив. метод	ТТДЯ	
0	$0,5 \pm 0,04$	$0,4 \pm 0,04$	-18%
78	$1,3 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,1$	-1%
138	$1,6 \pm 0,1$	$1,6 \pm 0,1$	2%
162	$1,9 \pm 0,1$	$2,0 \pm 0,1$	3%
222	$2,0 \pm 0,2$	$2,0 \pm 0,2$	-2%
282	$2,0 \pm 0,2$	$2,0 \pm 0,2$	-2%
402	$1,6 \pm 0,1$	$1,4 \pm 0,1$	-15%

При измерениях с помощью методики ТТДЯ: скорость реакции деления урана естественного изотопного состава выражается следующей формулой:

$$R_f^{U^{nat}} = \chi_{nat}^8 \cdot \int_{1.0}^{\infty} \sigma_f^{U^{238}}(E) \varphi(E) dE + \chi_{nat}^5 \cdot \int_0^{\infty} \sigma_f^{U^{235}}(E) \varphi(E) dE, \quad (4)$$

где $\sigma_f^{U^{238}}(E)$ и $\sigma_f^{U^{235}}(E)$ – дифференциальные сечения реакции деления (n, f) для изотопов U^{238} и U^{235} ; $\varphi(E)$ – дифференциальная плотность потока, нейтр./ $(\text{см}^2 \times \text{дейтр.} \times \text{МэВ})$; χ_{nat}^8 , χ_{nat}^5 – процентное содержание изотопов U^{238} и U^{235} в естественном уране.

Комбинируя формулы (3) и (4), можно рассчитать скорости реакций деления U^{238} и U^{235} в радиаторах из U^{nat} и урана с обогащением 6.5% по изотопу U^{235} . На Рис.2,а представлено аксиальное распределение скорости реакции деления U^{235} , полученное из экспериментальных данных. Видно, что количество делений U^{235} на два порядка превышает количество делений U^{238} .

На Рис.2,б представлено аксиальное распределение скорости реакции радиационного захвата ^{238}U (n, γ). Число реакций радиационного захвата ^{238}U соответствует количеству ^{239}Pu , образующемуся в результате цепочки β -распадов ^{239}U . Распределения скоростей реакции деления ^{235}U и захвата ^{238}U (n, γ) имеют похожую форму, что характеризует установившийся спектр вдоль оси установки (см. ниже).

Спектральные индексы или отношения средних (эффе́ктивных) сечений деления дают информацию о соотношении числа нейтронов в различных энергетических группах нейтронного спектра, т.е. несут информацию о спектральном составе потока нейтронов в ядерно-физической установке. Ниже приведены экспериментально измеренные спектральные индексы для установки ГАММА-МДМ в сравнении с эталонными полями нейтронов установок Ф-1 и BIG-TEN.

В качестве стандартного теплового поля нейтронов использовалась графитовая тепловая колонна реактора Ф-1 ГРНЦ «Курчатовский институт» (г. Москва, Россия), являющаяся «Вторичным эталоном плотности потока тепловых нейтронов РФ» [14]. Центральная часть установки BIG-TEN пред-

2. С.Е. Чигринов и др. Особенности формирования нейтронных полей в системах «нейтронопроизводящая мишень–замедлитель», облучаемых частицами высоких энергий («Яліна» тепловая) // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерно-физические исследования»*. 2005, №3, с.101-105.
3. С.Е. Чигринов, И.Г. Серафимович, В.В. Бурнос и др. *Бустерная подкритическая сборка, управляемая генератором нейтронов*: Препринт ОИЭ-ЯИ-Сосны №14, Минск, 2004, с.31.
4. Н.І. Kiyavitskaya, et al. The Transmutation of minor actinides in a system “proton accelerators lead neutron-producing target graphite neutron moderator” // *Nonlin. Phenom. in Complex Systems*. 2006, v.9, №1, p.87-91.
5. В.И. Гутько, А.М. Хильманович. Использование предварительного замедлителя для создания поля тепловых нейтронов с большой плотностью потока // *Известия Академии наук Белоруссии. Серия «Физико-технические науки»*. 1994, №1, с.83-86.
6. J.-S Wan, Th. Schmidt, E.-J. Langrok, R. Brandt, et al. Transmutation of ^{129}I and ^{237}Np using spallation neutrons produced by 1.5, 3.7, and 7.4 GeV protons // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Research*. 2001, v.A463, p.364-652.
7. С. Дюррани, Р. Балл. *Твердотельные ядерные детекторы*. М.: «Атомиздат», 1990.
8. 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 // *Весці АН БССР. Сер. фіз.-энер. навук*. 1975, №1, с.22-24.
9. 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 // *Весці АН БССР. Сер. фіз.-энер. навук*. 1972, №2, с.5-10.
10. В.М. Горбачев, Ю.С. Замятин, А.А. Лбов. *Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер*. М.: «Атомиздат», 1976.
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.А. Воронко, В.В. Сотников, В.В. Сидоренко и др. Генерация нейтронов в уран-свинцовой сборке при облучении дейтронами с энергией 1,6 ГэВ // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерно-физические исследования»*. 2008, №5, с.174-178.
13. 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.
14. Э.Ф. Гаррапов, А.Г. Инихов, Е.П. Кучерявенко и др. Создание рабочего эталона плотности потока тепловых нейтронов на базе реактора Ф-1 // *Атомная энергия*. 1977, т.42, в.4, с.286-289.
15. E.J. Dowdy, E.J. Lozito, and E.A. Plassman. The central neutron spectrum of the fast critical assembly Big-Ten // *Nucl. Tech*. 1975, v.25, №2, p.381.
16. J. Grundl and C. Eisenhauer. Benchmark neutron field for reactor dosimetry. Contribution to neutron cross section for reactor dosimetry. *Proc. IAEA Consultants Meeting*. Vienna, November 15-19, 1976; *Report IAEA*. 1978, v.I, p.53.

Статья поступила в редакцию 20.11.2009 г.

SPECTRAL INDEXES'S SPATIAL DISTRIBUTIONS IN ELECTRONUCLEAR ASSEMBLY WITH GRAPHITE MODERATOR IRRADIATED BY RELATIVISTIC DEUTERONS

V.A. Voronko, V.V. Sotnikov, V.V. Sidorenko, Yu.T. Petrusenko, I.V. Zhuk, A.S. Potapenko, A.A. Safronova, M.I. Krivopustov, A.D. Kovalenko

The nuclear-physical characteristics of the unit «Graphite-MDM» with a long graphite moderator are shown. Relativistic deuteron beam («Nuclotron» LHEP JINR, Dubna) with the energy of 2.33 GeV was used as irradiation source. The results of the spatial distributions measurements for different spectral indexes (effective cross-section fission-to-capture ratio) in the installation are presented.

ПРОСТОРОВІ РОЗПОДІЛИ СПЕКТРАЛЬНИХ ІНДЕКСІВ В ЕЛЕКТРОЯДЕРНІЙ ЗБІРКІ З ГРАФІТОВИМ СПОВІЛЬНОВАЧЕМ, ЩО ОПРОМІНЮЄТЬСЯ РЕЛЯТИВІСТСЬКИМИ ДЕЙТРОНАМИ

V.A. Voronko, V.V. Sotnikov, V.V. Sidorenko, Yu.T. Petrusenko, I.V. Zhuk, A.S. Potapenko, A.A. Safronova, M.I. Krivopustov, A.D. Kovalenko

Проведено дослідження ядерно-фізичних характеристик електроядерної збірки ГАММА-МДМ із протяжним графітовим сповільнювачем, що опромінюється пучком релятивістських дейтронів з енергією 2,33 ГэВ «Нуклотрона» ЛФВЕ ОІЯД (м. Дубна). Представлено результати вимірів просторових розподілів різних спектральних індексів (відносин ефективних перетинів розподілу і захоплення) по об'єму збірки.