

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИЗУЧЕНИЕ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ РАСЩЕПЛЕНИЯ ТЯЖЕЛЫХ МЕТАЛЛОВ ДЕЙТРОНАМИ С ЭНЕРГИЯМИ 2, 2,94, 3,5 ГэВ/НУКЛОН

*М. Ю. Артюшенко^а, А. А. Балдин^{б, в}, А. И. Берлев^{б, в}, О. В. Бухал^з,
В. А. Воронко^а, К. В. Гусак^з, И. В. Жук^з, И. В. Кудашкин^{б, в, 1}, М. Параипан^{б, д},
А. С. Потапенко^з, А. А. Сафронова^з, В. В. Сотников^а, С. И. Тютюнников^б*

^а ННЦ «Харьковский физико-технический институт», Харьков, Украина

^б Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

^в Институт перспективных исследований «Омега», Дубна, Россия

^з Объединенный институт энергетических и ядерных исследований — Сосны, Минск

^д Институт космических исследований, Бухарест-Магуреле

Представлены новые экспериментальные данные по сечениям реакций расщепления ядер тяжелых металлов ^{181}Ta , ^{197}Au , ^{207}Pb , ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{238}U под действием релятивистских дейтронов с энергиями 2, 2,94, 3,5 ГэВ/нуклон. Эксперименты проведены на пучках дейтронов нуклотрона Лаборатории физики высоких энергий ОИЯИ (Дубна). Для определения сечений реакций расщепления использована комплексная методика твердотельных трековых детекторов ядер и активационной гамма-спектрометрии. Новые полученные результаты дополняют базу экспериментальных ядерных данных, что позволит протестировать компьютерные коды, применяемые при расчетах параметров ADS.

New experimental data on spallation cross sections for heavy metals ^{181}Ta , ^{197}Au , ^{207}Pb , ^{209}Bi , ^{232}Th , and ^{238}U exposed to relativistic deuterons with energies of 2, 2.94, and 3.5 GeV/nucleon. The experiments were performed with deuteron beams of Nuclotron at the Laboratory of High Energy Physics of the Joint Institute for Nuclear Research (Dubna). A complex method of solid-state nuclear track detectors and activation gamma spectrometry was applied. The experimental results, complementing the existing database, will allow verification of code used for ADS simulation.

PACS: 25.45.-z

ВВЕДЕНИЕ

В 2010 г. в Объединенном институте ядерных исследований (Дубна) был принят проект «Энергия и трансмутация РАО». В рамках проекта проводятся эксперименты по облучению подкритической урановой сборки «Квинта» релятивистскими частицами [1, 2].

Подобного типа системы называются Accelerator Driven Systems (ADS) [3] и в настоящее время рассматриваются не только как самостоятельные энергетические установки, но и в качестве перспективных дополнений к существующим конструкциям ядерных

¹E-mail: kudashkin@jinr.ru

реакторов. ADS-системы привлекательны прежде всего своими возможностями трансмутации младших актинидов. Младшие актиниды — в первую очередь, изотопы нептуния, америция и кюрия — вызывают наибольшие проблемы из-за большого периода полураспада. Исследования, проведенные в ядерных центрах России и других стран, указывают на принципиальную возможность уничтожения долгоживущих радиоактивных отходов в интенсивных потоках нейтронов и перспективность электроядерного способа производства энергии с одновременной трансмутацией долгоживущих радиоактивных отходов.

ADS включает в себя подкритический реактор с внешним источником нейтронов в виде нейтронопроизводящей мишени из тяжелых металлов и ускорителя ионов. В качестве первичных частиц наиболее перспективны протоны или дейтроны [4].

Важным этапом в расчетах и оптимизации центральной области мишени, облучаемой пучком релятивистских ионов, является выбор материала самой мишени. Для ADS-систем обычно рассматриваются нейтронопроизводящие мишени, состоящие из элементов: Ta, Au, Bi, Hg, W, Pb, Th, U [3, 5].

Ввиду того что реакция деления является одним из основных каналов распада ядра, для создания полномасштабной реакторной установки ADS необходимы экспериментальные данные по сечениям ядерных реакций в области энергий до нескольких ГэВ/нуклон.

Один из наиболее полных обзоров о делении тяжелых ядер при взаимодействии с протонами дан в работе [5]. Аналогичные данные для дейтронов, за исключением нескольких работ [6], практически отсутствуют. Известно, что с повышением энергии протонов до 10 ГэВ происходит рост сечений образования ядерных фрагментов в реакциях расщепления ядер по сравнению с доминирующим каналом деления при энергиях ниже 1–2 ГэВ. Как показано в [6] при энергии протонов 10 ГэВ, сечение деления актинидов снижается до относительного уровня 40 % от полного сечения всех неупругих реакций расщепления (поэтому в названии настоящей статьи использован термин «расщепление»).

Ввиду немногочисленных экспериментальных данных по реакциям деления и расщепления ядер тяжелых металлов релятивистскими ядрами, изучение сечений деления и развала ядер под действием релятивистских частиц промежуточных энергий остается актуальной задачей.

В данной статье описаны эксперименты, проведенные с целью определения сечений реакций расщепления ядер ^{181}Ta , ^{197}Au , ^{207}Pb , ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{238}U под действием пучков дейтронов с энергиями 2, 2,94, 3,5 ГэВ/нуклон.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО МЕТОДА

Основным экспериментальным методом определения сечений реакций расщепления ядер тяжелых металлов дейтронами высоких энергий в настоящем исследовании был метод твердотельных трековых детекторов ядер (ТТДя). Данный метод позволяет определять вторичные тяжелые ионы в диапазоне массовых чисел от 40 до 140 единиц. Легкие ионы с зарядом меньше 10 единиц не могут быть зарегистрированы трековым детектором из-за малой линейной передачи энергии [7].

В основе метода ТТДя, используемого в экспериментах, лежит соотношение между плотностью треков, образующихся на поверхности трекового детектора, экспонируемого в тесном контакте с радиатором (мишенью из исследуемого тяжелого металла), являющимся источником осколков деления, и плотностью потока релятивистских ионов пучка,

в котором проводится экспозиция радиатора и трекового детектора. Схематически сенсор ТТДя показан на рис. 1 (см. ниже), где белый слой соответствует слюде. Используемый в экспериментах метод подробно описан в работе [8].

Согласно [8, 9] сечение деления i -го нуклида σ^i определяется по формуле

$$\sigma^i = \frac{N_q^i}{k_q^{\text{sens}}} P. \quad (1)$$

Здесь N_q^i — плотность треков, образующихся на поверхности ТТДя, находящегося в контакте с q -м радиатором, который содержит i -й нуклид; k_q^{sens} — коэффициент чувствительности для пары «радиатор + ТТДя»; P — количество первичных частиц, прошедших через мишень.

В общем случае коэффициент чувствительности сенсора определяется следующим образом:

$$k_q^{\text{sens}} = A^i \mu^i \varepsilon_q d_q \rho_q, \quad (2)$$

где A^i — число заряженных частиц, возникающих в реакции деления i -го нуклида; μ^i — доля заряженных частиц, достигающих детектора в реакции деления i -го нуклида; ε_q — эффективность регистрации заряженной частицы трековым детектором; d_q — толщина слоя i -го нуклида в радиаторе (в см); ρ_q — плотность ядер i -го нуклида в радиаторе (ядер/см³). В расчетах использовались калибровочные коэффициенты чувствительности, полученные ранее в работах [10, 11].

Для реакции деления доля осколков, достигающих детектора, определяется, согласно работе [9], следующим образом:

$$\mu^i = \begin{cases} \frac{1}{2} \left(1 - \frac{d_q}{2\bar{R}_0} \right) & \text{для } d_q < \bar{R}_0, \\ \frac{1}{4} & \text{для } d_q = \bar{R}_0, \\ \frac{1}{4} \frac{\bar{R}_0}{d_q} & \text{для } d_q > \bar{R}_0, \end{cases} \quad (3)$$

где \bar{R}_0 — средний пробег осколков деления в веществе радиатора.

Все используемые в данной работе радиаторы являлись «толстыми» (см. (3)) источниками осколков деления, т. е. для них выполнялось условие $d_q \gg \bar{R}_0$. Толстые радиаторы характеризуются постоянным выходом осколков деления, поэтому при измерении распределений скоростей деления и спектральных индексов с использованием радиаторов такого типа не требуется индивидуальной калибровки каждого радиатора.

Однако сенсоры с толстыми радиаторами имеют и ряд недостатков:

— поскольку радиатор «толстый», то детекторами регистрируется лишь один осколок деления, следовательно, невозможно однозначно идентифицировать (по двум коррелированным осколкам), оставлен трек осколком деления либо ионом от процесса сильноасимметричного деления или фрагментации ядра;

— поскольку регистрируется один некоррелированный осколок деления (в передней или задней полусферах), для корректного расчета скорости реакции необходимо учитывать кинематику процесса деления.

Первый из указанных эффектов существенен при энергиях налетающей частицы более 500–600 МэВ (условный порог фрагментации тяжелых ядер — 2–3 МэВ/нуклон) [12].

При этом вероятность образования легких фрагментов и осколков промежуточной массы, выходящих из радиатора в материал трекового детектора и имеющих ионизационную способность, достаточную для того чтобы образовать латентный трек, повышается. Величина поправки, учитывающей процесс образования «фоновых» треков, не ассоциированных с осколками деления, рассчитывалась с помощью модели внутриядерных взаимодействий, реализованной в программе FLUKA [13], согласно процедуре, описанной в [11], и составила от 6 до 10 % в зависимости от типа ядер и энергии налетающей частицы.

Учет влияния кинематики процессов деления ядер на счетность треков (плотность треков на поверхности ТТДя) необходим во всем диапазоне энергий налетающих частиц. Основным процессом, требующим необходимого учета, является перенос импульса делящемуся ядру, и для корректного расчета скорости реакции необходимо регистрировать осколки в 4 π -геометрии (в передней и задней полусферах — в данной работе принято обозначение BACK и FACE) [11]. Поправка с учетом эффекта анизотропии вылета осколков деления была рассчитана в коде FLUKA и составила 0,5–2 %.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Сборки облучались пучками дейтронов с энергиями 2, 2,94, 3,5 ГэВ/нуклон на выведенных пучках ускорительного комплекса нуклотрон ЛФВЭ ОИЯИ.

Таблица 1. Характеристики используемых материалов (диаметр образцов 6,5 мм)

Материал	Толщина, мм
Al	1,0
¹⁸¹ Ta	0,040
¹⁹⁷ Au	0,030
²⁰⁷ Pb	0,500
²⁰⁹ Bi	0,025
²³² Th	0,070
²³⁸ U	0,030
Слюда искусственная	0,030

В настоящем эксперименте в качестве ТТДя использована искусственная слюда. Выбор искусственной слюды в качестве детектора обусловлен нечувствительностью к ядрам отдачи материала ТТДя.

Используемые в эксперименте трековые детекторы и мишени из тяжелых металлов и их размеры приведены в табл. 1.

Исследуемые мишени располагались в ложементе из плексигласа высотой 1 см и диаметром 6,5 мм. Перед облучением ложемент заполняется фольгами из тяжелых металлов, которые прокладываются трековыми детекторами с обеих сторон. В верхней и нижней частях сборки помещались алюминиевые цилиндрические образцы (высота 1 мм и диаметр 6,5 мм), которые применяются в качестве активационных детекторов для определения количества дейтронов, прошедших через задан-

ную площадь диаметром 6,5 мм. Набор облучаемых фольг и фотография мишени сборки представлены на рис. 1.

После экспонирования сборка разбиралась. Трековые детекторы протравливались в 6,8 %-м растворе HF при температуре 60 °С в течение 10–45 мин в зависимости от плотности зарегистрированных на детекторе треков. После травления проводился визуальный подсчет треков при помощи микроскопа.

Для определения полного флюенса упавших на мишень ускоренных дейтронов использовалась активационная методика на основе хорошо изученной реакции $^{27}\text{Al}(d, 3p) \rightarrow ^{24}\text{Na}$. Методика измерений интенсивности пучка на основе гамма-спектрометрии, а также других методик, использованных в коллаборации «Энергия и трансмутация», подробно описаны в [14].

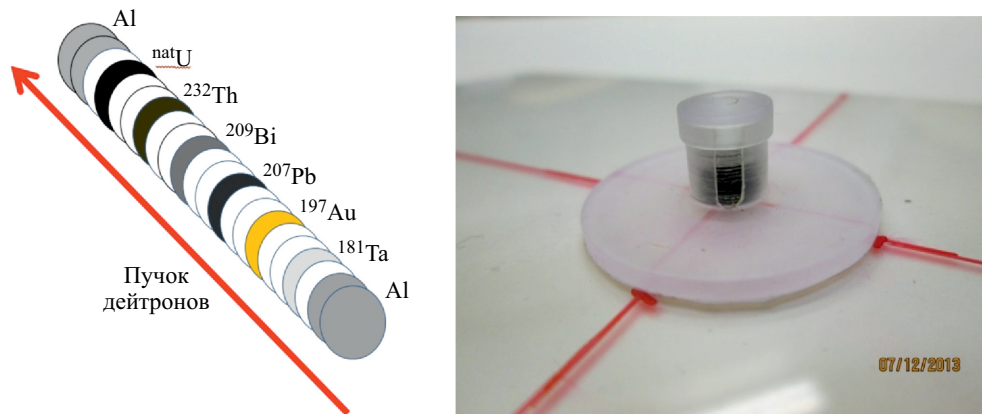


Рис. 1. Схема и фотография облучаемой сборки

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 2–4 представлены экспериментальные данные, на основе которых определены сечения реакций расщепления ядер тяжелых металлов дейтронами с энергиями 2, 2,94, 3,5 ГэВ/нуклон.

Важной и наиболее точно экспериментально измеренной величиной является отношение плотности треков с детектора, находящегося первым по ходу частицы — FACE (перед радиатором), к плотности треков с детектора, находящегося за радиатором —

Таблица 2. Значения экспериментально определяемых величин. Пучок — дейтроны с энергией 2 ГэВ/нуклон. Поток дейтронов $4,91E + 10 \text{ см}^{-2}$

Нуклид	BACK/FACE	Средняя плотность треков, трек/см ²	Сечения реакций деления, мб
¹⁸¹ Ta	1,83 ± 0,08	9,68E + 04	250 ± 70
¹⁹⁷ Au	1,61 ± 0,07	1,21E + 05	240 ± 70
²⁰⁷ Pb	1,63 ± 0,07	1,41E + 05	270 ± 80
²⁰⁹ Bi	1,59 ± 0,07	1,84E + 05	360 ± 120
²³² Th	1,24 ± 0,05	5,39E + 05	1130 ± 300
²³⁸ U	1,23 ± 0,05	6,96E + 05	1500 ± 400

Таблица 3. Значения экспериментально определяемых величин. Пучок — дейтроны с энергией 2,94 ГэВ/нуклон. Поток дейтронов $5,0E + 10 \text{ см}^{-2}$

Нуклид	BACK/FACE	Средняя плотность треков, трек/см ²	Сечения реакций деления, мб
¹⁸¹ Ta	1,90 ± 0,08	9,01E + 04	230 ± 60
¹⁹⁷ Au	1,78 ± 0,08	1,16E + 05	230 ± 60
²⁰⁷ Pb	1,68 ± 0,07	1,41E + 05	270 ± 80
²⁰⁹ Bi	1,54 ± 0,07	1,82E + 05	350 ± 100
²³² Th	1,29 ± 0,06	4,78E + 05	980 ± 300
²³⁸ U	1,22 ± 0,05	6,07E + 05	1280 ± 400

Таблица 4. Значения экспериментально определяемых величин. Пучок — дейтроны с энергией 3,5 ГэВ/нуклон. Поток дейтронов $9,3\text{E} + 10 \text{ см}^{-2}$

Нуклид	BACK/FACE	Средняя плотность треков, трек/см ²	Сечения реакций деления, мб
¹⁸¹ Ta	1,93 ± 0,08	1,64E + 05	240 ± 60
¹⁹⁷ Au	1,57 ± 0,07	2,23E + 05	240 ± 70
²⁰⁷ Pb	1,60 ± 0,07	2,53E + 05	270 ± 80
²⁰⁹ Bi	1,44 ± 0,06	3,21E + 05	350 ± 100
²³² Th	1,25 ± 0,05	9,45E + 05	1040 ± 300
²³⁸ U	1,20 ± 0,05	1,10E + 06	1240 ± 350

Таблица 5. Бюджет неопределенности измерения сечений реакций деления ядер тяжелых металлов дейтронами

Величина X_i	Оценка x_i	Относительная стандартная неопределенность $u(X_i)$, %	Вклад в окончательный результат, %	Тип неопределенности	Распределение вероятностей
Средняя плотность треков осколков деления в центре фольги N , трек/см ²	$0,97 \cdot 10^5$	3,6	14,2	A	Нормальное
Средняя плотность дейтронов F , см ⁻²	$4,91 \cdot 10^{10}$	12,7	50,2	A	Нормальное
Расчетное значение коэффициента чувствительности k_{sens} , трек/(дейтрон · б)	$0,98 \cdot 10^{-5}$	2,9	11,4	B	Прямоугольное
Поправка на определение средней плотности треков осколков деления по всей фольге k_f	1,00	4,3	17	B	Прямоугольное
Поправка на самоэкранировку потока первичных дейтронов пучка k_{ss}	1,00	0,6	2,4	B	Прямоугольное
Поправка на деление ядер фольги, не связанное с дейтронами, k_n	1,00	0,6	2,4	B	Прямоугольное
Поправка на деление примесных ядер, содержащихся в материале источника осколков деления, k_{impur}	1,00	0,6	2,4	B	Прямоугольное

BACK (источником осколков деления). Измеренная зависимость уменьшения отношения «BACK/FACE» с увеличением атомного номера нуклида является самостоятельной (не зависимой от погрешностей измерения интенсивности пучка, от поправок, связан-

ных с эффективностью детектора, и прочее) количественной характеристикой для верификации различных теоретических моделей при описании реакций расщепления ядер релятивистскими частицами.

Основную погрешность в результаты измерений вносит неточность мониторингирования пучка — порядка 10–15 %, что составляет $\sim 50\%$ вклада от полной погрешности измерений.

Расширенная неопределенность измерения вычислялась по международному стандарту ИСО/МЭК 17025:1999, а также стандарту СТБ ИСО/МЭК 17025/2001 и составила 30 %. Расширенная неопределенность измерения вычислена для вероятности охвата $P = 0,95$.

Бюджет неопределенностей представлен в табл. 5. В данной таблице приведены сделанные поправки и оценен вклад каждой в окончательный результат. Относительная стандартная неопределенность вычислена для вероятности охвата $P = 0,68$.

В международной базе данных по ядерным реакциям EXFOR представлены многочисленные данные по сечениям реакций, индуцированных протонами различных энергий, в то время как данные для сечений реакций, обусловленных дейтронами для исследуемого интервала энергий, практически отсутствуют.

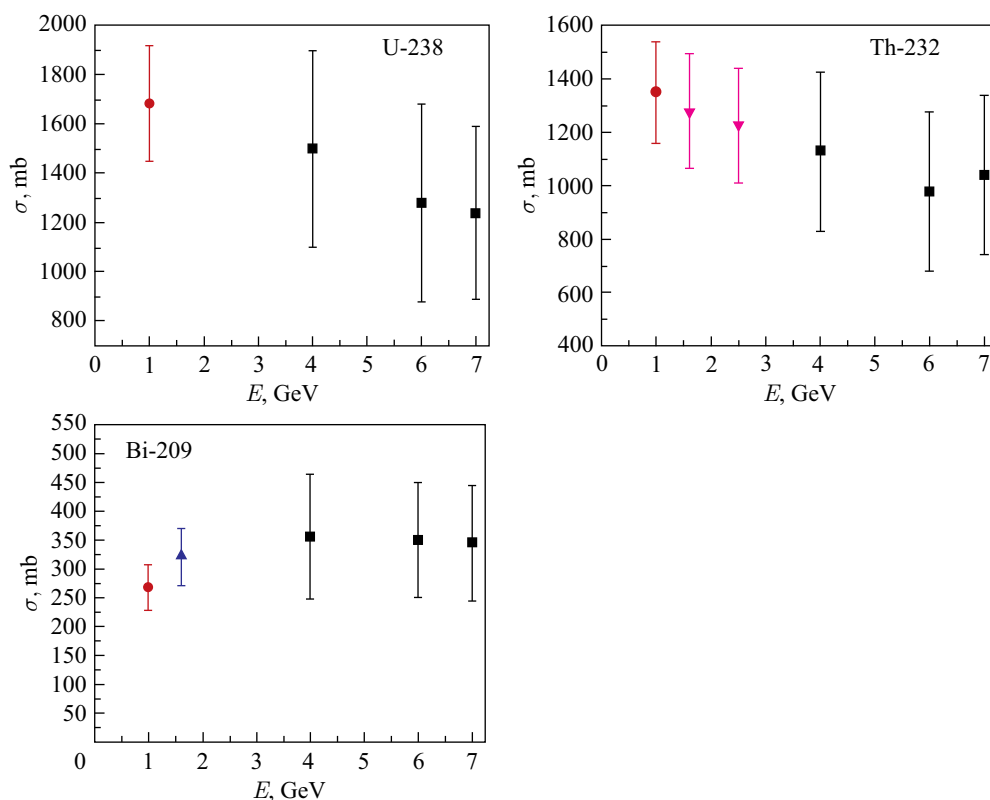


Рис. 2. Сечения деления ядер дейтронами в зависимости от энергии дейтронов. Черные квадраты — настоящая работа, другие значки — данные работ [6, 15–17]

При сравнении полученных данных с данными других авторов [6,15–17] для деления ядер тяжелых металлов дейтронами с энергией 4 ГэВ расхождения составили от 3 до 40 %.

На рис. 2 представлены полученные экспериментальные данные по сечениям расщепления ядер урана, тория и висмута в зависимости от энергии налетающих дейтронов в сравнении с данными, полученными ранее в работах [6, 15–17]. Для ядер урана и тория наблюдается монотонное уменьшение сечений деления с увеличением энергии, когда все большую роль в распаде ядра начинают играть реакции множественной фрагментации.

Для ядер висмута из-за большого разброса, малого количества экспериментальных данных и большой погрешности измерений не представляется возможным сделать однозначный вывод. В целом наблюдается согласие результатов, полученных в описываемом эксперименте, и данных, представленных в [6, 15–17].

Полученные результаты представляют интерес при изучении взаимодействия релятивистских частиц с защитными, мишенными, топливными и другими материалами, используемыми в масштабных экспериментах по изучению ADS.

Данная работа частично поддержана грантом РФФИ № 14-02-00896 А.

Авторы выражают свою искреннюю благодарность дирекции ЛФВЭ и сотрудникам службы эксплуатации нуклотрона за помощь в работе и полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адам И. и др. (колл. «Энергия и трансмутация»). Исследование пространственных распределений реакций деления и радиационного захвата нейтронов в массивной урановой мишени, облучаемой дейтронами с энергией 1–8 ГэВ (установка «Квинта»). Препринт ОИЯИ Р1-2012-147. Дубна, 2012.
2. Балдин А. А. и др. (колл. «Энергия и трансмутация»). Ядерные релятивистские технологии (ЯРТ) для производства энергии и утилизации отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Результаты первых экспериментов по физическому обоснованию ЯРТ // Письма в ЭЧАЯ. 2011. Т. 8. №6(169). С. 1007–1023.
3. Герасимов А. С., Киселев Г. В. Научно-технические проблемы создания электроядерных установок для трансмутации долгоживущих радиоактивных отходов и одновременного производства энергии // ЭЧАЯ. 2001. Т. 32, вып. 1. С. 143–188.
4. Кошкарев Д. Г. Оптимальные ионы для ядерного реактора с нейтронной подсветкой // ЖТФ. 2004. Т. 74, вып. 7. С. 137–139.
5. Обухов А. И. Деление ядер при взаимодействии с протонами и нейтронами промежуточных энергий // ЭЧАЯ. 2001. Т. 32, вып. 2. С. 319–376.
6. Юревич В. И. и др. Сечения деления ядер ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U и ^{237}Np протонами и дейтронами промежуточных энергий // ЯФ. 2002. Т. 65. С. 1417;
Yurevich V. I. et al. Fission Cross Section of ^{181}Ta for Protons in the Energy Range 200–1000 MeV // Part. Nucl., Lett. 2005. V. 2, No. 1(124). P. 49–52.
7. Studer F. et al. Beam Interactions with Materials and Atoms // Nucl. Instr. Meth. B. 1997. V. 122. P. 449–457.
8. Малыхин А. П. и др. Измерение отношения эффективных сечений деления методом твердых трековых детекторов // Весті АН БССР. Сер. фіз.-энер. навук. 1972. № 2. С. 5–10.
9. Малыхин А. П. и др. Измерение трековыми детекторами распределений плотности деления на критических сборках // Весті АН БССР. Сер. фіз.-энер. навук. 1970. № 2. С. 16–23.
10. Hashemi-Nezhad S. R. et al. Calibration Factors for Determination of Relativistic Particle Induced Fission Rates in ^{nat}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{nat}Pb and ^{197}Au Foils // Nucl. Instr. Meth. A. 2012. V. 664. P. 154–160.

11. *Потапенко А. С.* Нейтронно-физические характеристики подкритической сборки с blanketом из естественного урана, управляемой ускорителем. Дис. . . . канд. техн. наук: 05.14.03. Минск, 2011. 145 с.
12. *Bondorf J. P. et al.* Statistical Multifragmentation of Nuclei // *Phys. Rep.* 1995. V. 257. P. 133–221.
13. *Battistoni G. et al.* The FLUKA Code: Description and Benchmarking // *Proc. of the Hadronic Shower Simulation Workshop*, Fermilab, USA, Sept. 6–8, 2006. P. 31–49.
14. *Балдин А. А. и др.* Мониторинг выведенных пучков ускорительного комплекса нуклотрон для экспериментов «Энергия + трансмутация» // *Письма в ЭЧАЯ*. 2016. Т. 13, № 2(200). С. 334–344.
15. *Wagner V. et al.* (“Energy + Transmutation” Collab.). Studies of Deuteron and Neutron Cross-Sections Important for ADS Research // *PoS (Baldin ISHEPP XXI)*. Dubna, 2015.
16. *Sotnikov V. V. et al.* Experimental Determination of the $^{nat}\text{Pb}(d, f)$, $^{209}\text{Bi}(d, f)$, $^{209}\text{Bi}(d, xnnp)$ Nuclear Reactions Cross Section at 1.6 GeV and 4 GeV Deuteron Beams // *Proc. of Intern. Conf. NPAE-2010*, Kyiv, 2010. P. 250–253.
17. *Stoulos S. et al.* Nuclear Fission Cross Sections Induced by Deuterons of 4 GeV // *Phys. Rev. C*. 2012. V. 85, No. 2. 024612.

Получено 31 июля 2015 г.