

P1-2012-147

Коллаборация «Энергия и трансмутация
радиоактивных отходов»

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОСТРАНСТВЕННЫХ
РАСПРЕДЕЛЕНИЙ РЕАКЦИЙ ДЕЛЕНИЯ
И РАДИАЦИОННОГО ЗАХВАТА НЕЙТРОНОВ
В МАССИВНОЙ УРАНОВОЙ МИШЕНИ,
ОБЛУЧАЕМОЙ ДЕЙТРОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ 1–8 ГэВ
(УСТАНОВКА «КВИНТА»)

Направлено в журнал «European Physical Journal A»

Коллаборация «Энергия и трансмутация радиоактивных отходов»

Адам И., Балдин А. А., Берлев А. И., Вишневский А. В., Владимирова Н. М.,
Кадыков М. Г., Гундорин Н. А., Гуськов Б. Н., Заворка Л., Копач Ю. Н.,
Костюхов Е. В., Кудашкин И. В., Маканькин А. М., Марьин И. И.,
Параипан М., Полянски А., Пронских В. С., Рогов А. Д., Солнышкин А. А.,
Тютюнников С. И., Фурман В. И., Хушватов Ж., Цупко-Ситников В. М.,
Щеголев В. Ю.

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия

Артюшенко М. Ю., Воронко В. А., Сотников В. В., Петрусенко Ю. Т.
Харьковский физико-технический институт, Харьков, Украина

Чилап В. В., Солодченкова С. А., Чиненов А. В., Галанин М. В.,
Дубинкин Б. Н., Колесников В. А., Фонарев Б. И.
Центр физико-технических проектов «Атомэнергомаш», Москва

Гусак К. В., Жук И. В., Корнеев С. В., Потапенко А. С., Сафронова А. А.
*Объединенный институт энергетических и ядерных исследований, пос. Сосны,
Минск*

Хильманович А. М., Марцынкевич Б. А.
Институт физики им. Б. И. Степанова, Минск

Костов Л., Живков П., Стоянов Ч.
Институт ядерных исследований и ядерной энергетики, София

Вагнер В., Врзалова И., Свобода О., Сухопар М.
Институт ядерной физики, Ржеж, Чехия

Белевич М., Войцеховский А., Килим С., Стругальска-Гола Е., Шута М.
Национальный центр ядерных исследований, Сверк, Польша

Жданов С. В., Квочкина Т. Кислицин С. Б.
Институт ядерной физики, Алма-Ата, Казахстан

Манолопулу М.
Университет Аристотеля, Салоники, Греция

Хашеми Нежад Р.
Школа физики Университета Сиднея, Сидней

Вестмайер В.
Институт ядерной спектроскопии, Эбсдорфергрунд-Мёльн, Германия

Адам И. и др. P1-2012-147
Исследование пространственных распределений реакций деления и радиационного захвата нейтронов в массивной урановой мишени, облучаемой дейтронами с энергией 1–8 ГэВ (установка «Квинта»)

Представлены результаты исследования пространственных распределений плотностей чисел реакций деления ^{nat}U и радиационного захвата нейтронов в объеме мишенной сборки «Квинта» с массой естественного металлического урана 512 кг при облучении ее дейтронами в интервале энергий от 1 до 8 ГэВ на ускорителе нуклотрон с полным числом дейтронов на мишени $\sim 10^{13}$ при каждой энергии. Из этих данных были получены полные числа делений во всем объеме урановой мишени, а также соответствующие полные числа наработанных ядер ^{239}Pu . Показано, что полные числа делений N_f и наработанных ядер ^{239}Pu N_{Pu} в расчете на один дейтрон и на 1 ГэВ его энергии до ее значения 8 ГэВ остаются постоянными в пределах экспериментальных погрешностей. При этом значения N_f не меняются от добавления свинцового бланкета к урановой мишенной сборке, тогда значения N_{Pu} возрастают примерно на 55%. Анализ пространственных распределений отношений скоростей радиационного захвата и деления (спектральных индексов), точность измерения которых существенно выше остальных изученных величин ввиду отсутствия систематических погрешностей мониторинга числа упавших на мишень дейтронов, свидетельствует о «смягчении» нейтронного спектра при смещении от оси к периферии урановой мишени, причем степень смягчения увеличивается при добавлении свинцового бланкета.

Работа выполнена в Лаборатории физики высоких энергий им. В.И. Векслера и А.М. Балдина ОИЯИ.
Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2012

Adam I. et al. P1-2012-147
The Study of Spatial Distributions of Neutron Capture and Fission Reactions in Massive Uranium Target Irradiated by Deuterons with Energies of 1–8 GeV («Quinta» Setup)

This paper presents results of a study of spatial distributions of neutron radiative capture and ^{nat}U fission in the target assembly «Quinta» with a mass of 512 kg of natural metallic uranium irradiated by deuteron beams from the accelerator Nuclotron in the energy range from 1 to 8 GeV with the total number of deuterons on the target $\sim 10^{13}$ at each energy. From these data the total numbers of fission reactions in the entire volume of the uranium target, and the corresponding total numbers of produced ^{239}Pu nuclei were obtained. It was found that the total numbers of fission N_f and numbers N_{Pu} of accumulated ^{239}Pu nuclei normalized to one incident deuteron and 1 GeV of its energy remain constant within experimental error in the studied incident energy range. The values N_f do not change from adding a lead blanket to the target assembly «Quinta», and the values N_{Pu} increase by about 55%. Analysis of the spatial distributions of neutron radiative capture to fission ratios (spectral indices), the accuracy of which is substantially higher than the rest of the studied observables (due to the absence of systematic errors of monitoring of deuteron numbers on the target), indicates softening of the neutron spectrum at offset from the axis to the periphery of the uranium target. The degree of this softening increases when adding a lead blanket to the target assembly.

The investigation has been performed at the Veksler and Baldin Laboratory of High Energy Physics, JINR.
Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2012

ВВЕДЕНИЕ

Большинство из обсуждаемых или проектируемых в настоящее время электроядерных систем (Accelerator Driven Systems) представляют собой гибриды подкритического быстрого реактора и внешнего источника нейтронов на основе ускорителя с энергией ≤ 1 ГэВ. Поскольку в таких системах реализуется нейтронный спектр, близкий к замедленному спектру нейтронов деления, им присущи основные недостатки современных тепловых и быстрых реакторов: ограниченные запасы сырья и необходимость утилизации нарабатываемых долгоживущих радиоактивных отходов. Генерация в подкритической системе более жесткого, чем делительный, спектра нейтронов может решить эти проблемы. Такой спектр позволит не только «сжигать» для производства энергии обедненный (отвальный) уран или торий, но и утилизировать отработанное ядерное топливо атомных электростанций. Авторами работы [1] было показано, что более жесткий нейтронный спектр внутри активной зоны (АЗ) может быть достигнут в результате повышения энергии первичного пучка до $\sim 5\text{--}10$ ГэВ вместо ~ 1 ГэВ в традиционных электроядерных схемах и минимизации замедляющих spallation-нейтроны элементов АЗ (подробнее см. [2, 3]).

В июне 2009 г. на ускорителе нуклотрон ОИЯИ была проведена серия экспериментов на массивной урановой мишени установки «Квинта» [2, 3]. Урановая мишень (масса ~ 315 кг) облучалась дейтронами с энергиями 1 и 4 ГэВ. По измерениям выхода запаздывающих нейтронов было показано, что с увеличением энергии первичного дейтронного пучка средняя энергия нейтронов, вызывающих деление урана, так же, как их полный выход, существенно возрастает.

Продолжением этих работ стали эксперименты на модифицированной установке «Квинта» [4], которые являются частью научной программы ОИЯИ «Разработка и создание прототипа комплекса для радиотерапии и прикладных исследований на пучках тяжелых ионов нуклотрона-М», — проект «Исследование глубокоподкритических электроядерных систем и возможностей их применения для производства энергии и трансмутации РАО» [5].

В данной работе представлены результаты активационных экспериментов по:

- получению пространственных распределений плотностей реакций радиационного захвата нейтронов (число наработанных ядер ^{239}Pu) и плотности делений $^{\text{nat}}\text{U}$ в объеме урановой мишени установки «Квинта»;
- получению пространственного распределения спектральных индексов;
- определению полного числа делений $^{\text{nat}}\text{U}$ и полного количества ^{239}Pu , наработанного в объеме урановой мишени установки «Квинта»;
- исследованию зависимости от энергии пучка дейтронов указанных выше величин.

1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Облучение модернизированной мишенной сборки «Квинта» проводилось в Лаборатории физики высоких энергий им. В. И. Векслера и А. М. Балдина пучком дейтронов с энергией от 1 до 8 ГэВ на ускорителе нуклотрон. Было проведено 3 сеанса облучения дейтронами: в марте 2011 г. с энергиями 2, 4 и 6 ГэВ; в декабре 2011 г. — 1 и 4 ГэВ; в марте 2012 г. — 1, 4 и 8 ГэВ.

1.1. Экспериментальная установка «Квинта». Урановая мишень установки «Квинта» представлена на рис. 1. Мишень состоит из 5 секций шестигранных алюминиевых контейнеров с вписанным диаметром 284 мм. В четырех стандартных секциях размещено по 61 цилиндрическому урановому стержню. Стержни диаметром 36 мм и длиной 104 мм изготовлены из металлического урана естественного изотопного состава и заключены в герметичные алюминиевые корпуса. Масса стержня равна 1,72 кг, а полная масса урана в одной секции составляет 104,92 кг. Передняя секция содержит окно пучка диаметром 80 мм. Полная масса урановой мишени составила ~ 512 кг. Во время облучения (с целью исключения пролета ускоренных дейтронов между стержнями) мишень поворачивалась относительно направления пучка на угол $\alpha = 2^\circ$ в горизонтальной плоскости.

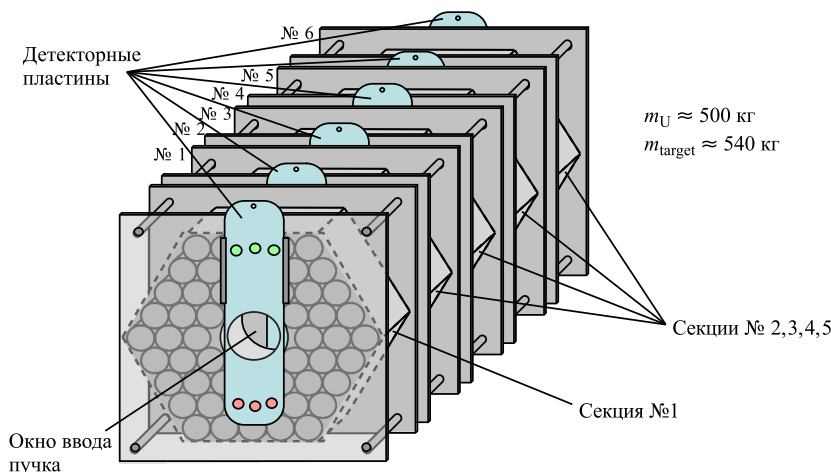


Рис. 1. Урановая мишень установки «Квинта»

В сеансах, проведенных в декабре 2011 г. и марте 2012 г., урановая мишень была окружена свинцовым бланкетом толщиной 10 см с окном для ввода пучка размерами 15×15 см.

В зазорах между секциями шириной 17 мм, а также на переднем и заднем торцах мишени располагались детекторные пластины. На этих пластинах

крепилась различные типы активационных детекторов и твердотельные трековые детекторы ядер (ТТДЯ). Для получения пространственных распределений реакций деления и радиационного захвата в объеме урановой мишени нами использовались активационные детекторы (фольги из естественного урана диаметром 8 мм и толщиной 1 мм). Отметим, что урановые активационные детекторы одновременно служили радиаторами для ТТДЯ.

Урановые детекторы были пронумерованы следующим образом: U_{ZR} , где Z меняется от 0 до 5, а R — от 1 до 5. Причем $Z = 0$ — это детекторная пластина, расположенная на переднем торце мишени; $Z = 1$ — это детекторная пластина, расположенная между первой и второй секциями на расстоянии 123 мм от переднего торца, и т. д. Детекторы с $R = 1$ находились на оси первичного пучка, $R = 2$ — на 40 мм ниже и т. д. Места расположения всех 29 урановых детекторов показаны в табл. 1.

Таблица 1. Расположение урановых детекторов (фольг)

R/Z , мм	0	123	254	385	516	647
-80	U_{05}	U_{15}	U_{25}	U_{35}	U_{45}	U_{55}
0	—	U_{11}	U_{21}	U_{31}	U_{41}	U_{51}
40	U_{02}	U_{12}	U_{22}	U_{32}	U_{42}	U_{52}
80	U_{03}	U_{13}	U_{23}	U_{33}	U_{43}	U_{53}
120	U_{04}	U_{14}	U_{24}	U_{34}	U_{44}	U_{54}

1.2. Мониторинг интенсивности пучка. Полное число упавших на мишень дейтронов определялось с помощью стандартной методики активации алюминиевой фольги в реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$.

На пути пучка устанавливались три фольги толщиной ~ 30 мкм ($8,34$ мг/см²). Выход ^{24}Na определялся для средней фольги. Оцененный с помощью дополнительной фольги (устанавливалась вне пучка рядом с мониторинговой фольгой) вклад реакции $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ оказался меньше 1%. После окончания облучения фольги складывались 6 раз. В результате получали прямоугольную пластину размерами $\approx 20 \times 20 \times 3$ мм³ (суммарная толщина 64 слоев собственно алюминия $\approx 1,92$).

Активность ^{24}Na , полученного в реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$, измерялась с помощью трех гамма-спектрометров, оснащенных детекторами из особо чистого германия (HPGe-детекторами). Калибровка эффективности детекторов проводилась с использованием стандартных гамма-калибровочных точечных источников («OSGI»-набор — ^{133}Ba , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{54}Mn , ^{241}Am , ^{57}Co , ^{113}Sn , ^{228}Th , ^{88}Y). Паспортные данные относительной активности всех изотопов даны с ошибкой около 2%. Во время измерений спектров мертвое время детектора составляло менее 10%.

Измеренные интенсивности гамма-переходов, сопровождающих распад ^{24}Na (1368 и 2754 кэВ), корректировались с учетом стандартных спек-

троскопических поправок: корректировка на распад во время облучения, корректировка на самопоглощение регистрируемого излучения в образце, корректировка на геометрические размеры образца, корректировка на учет совпадения при регистрации гамма-линий и корректировка на перерывы в процессе облучения и изменение интенсивности импульсов падающих дейтронов (по он-лайн измерениям быстрыми ионизационными камерами). Техника стандартной гамма-спектроскопии и корректировочные факторы описаны детально в [6, 7].

Для того чтобы определить абсолютное число упавших на мишень дейтронов по наведенной активности ^{24}Na в алюминии, необходимо знание сечения реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$ для всех использованных энергий дейтронов. Однако в диапазоне энергий дейтронов больше 300 МэВ сечение данной реакции известно только для энергий: 2,33 ГэВ — $15,25 \pm 1,5$ мб [8], 6 ГэВ — $14,1 \pm 1,3$ мб [7, 8] и 7,3 ГэВ — $14,7 \pm 1,2$ мб [9, 10]. По этим значениям сечений можно сделать интерполяцию в диапазоне от ~ 2 до ~ 8 ГэВ:

$$\sigma_{d,E} \text{ (мб)} = 15,25 - 0,163E \text{ (ГэВ)}. \quad (1)$$

К сожалению, данный метод не позволяет непосредственно получить значения сечений при энергиях ниже 2 ГэВ.

Другой способ определения сечений на дейтронах был предложен в работе [11]. Значение сечения для дейтронов $\sigma_{d,E}$ с кинетической энергией E было выведено из хорошо известного [12–17] протонно-индуцированного сечения следующим выражением:

$$\sigma_{d,E} = \sigma_{d,2,33}(\sigma_{p,E}/\sigma_{p,2,33}), \quad (2)$$

где $\sigma_{d,2,33}$ и $\sigma_{p,2,33}$ — сечения для дейтронов и протонов соответственно при энергии 2,33 ГэВ.

Оцененные по формулам (1) и (2) сечения реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$ для различных кинетических энергий дейтронов приведены в табл. 2. При оценке сечений по формуле (2) мы использовали интерполяцию экспериментальных сечений для реакции на протонах $^{27}\text{Al}(p, x)^{24}\text{Na}$ из работы [14], в которой измерения были проведены в диапазоне 0,4–22,4 ГэВ с очень высокой точностью (относительная ошибка менее 2 %).

В дальнейших оценках полного числа дейтронов, упавших на мишень, использовались следующие значения сечений: 16,8 мб (1 ГэВ), 15,4 мб (2 ГэВ), 14,6 мб (4 ГэВ), 14,2 мб (6 ГэВ), 14,0 мб (8 ГэВ). Соответствующие полные числа дейтронов для всех трех сеансов облучения при вышеуказанных энергиях дейтронов приведены в табл. 3.

Минимальная полная ошибка измерения интегральной интенсивности дейтронов с помощью активационных фольг составляет ~ 11 %, и она, в основном, определяется погрешностью сечения реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$,

Таблица 2. Оценка сечений реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$

E , ГэВ	$^{27}\text{Al}(p, x)^{24}\text{Na}$		$^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$				
	Поперечное сечение, мб		Поперечное сечение, мб				
	Эксперимент [12]	Погрешность	Оценка	Расчет из реакции на протонах	Линейная аппроксимация	Эксперимент	Погрешность
0,81	10,7	0,13	—	16,9	—	—	—
1	—	—	10,645	16,8	15,4	—	—
1,6	10,18	0,11	—	16,1	15,3	—	—
2	9,75	0,11	—	15,4	15,2	—	—
2,33	—	—	9,67	15,25	15,1	15,25 [6]	1,5
2,52	—	—	9,56	15,1	15,1	—	—
3	—	—	9,49	15,0	15,0	—	—
4	—	—	9,27	14,6	14,9	—	—
5	—	—	9,1	14,4	14,7	—	—
6	—	—	9,01	14,2	14,5	14,1 [7]	1,3
7	8,94	0,14	—	14,1	14,4	—	—
7,33	—	—	8,93	14,1	14,3	14,7 [7]	1,2
8	—	—	8,9	14,0	14,2	—	—
10	—	—	8,85	14,0	13,9	—	—
15	—	—	8,81	13,9	13,1	—	—
22,4	8,78	0,14	—	13,8	11,9	—	—

Таблица 3. Сводка данных по мониторингованию интенсивности пучка дейтронов

Сеанс	Энергия дейтронов, ГэВ	Сечение реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$, мб	Полное число дейтронов на мишени
Март 2011 г. [16]	2	15,43	$1,6 \cdot 10^{13}$ *
	4	14,6	$1,41 \cdot 10^{13}$ *
	6	14,2	$1,93 \cdot 10^{13}$ *
Декабрь 2011 г.	1	16,8	$1,47 \cdot 10^{13}$
	4	14,6	$1,96 \cdot 10^{13}$
Март 2012 г.	1	16,8	$1,85 \cdot 10^{13}$
	4	14,6	$2,7 \cdot 10^{13}$
	8	14,0	$3,7 \cdot 10^{12}$

* Данные предоставлены группой В. Вагнера [18].

а также ошибками при измерении интенсивности гамма-линий ^{24}Na . Ошибки в полных числах дейтронов, упавших на мишень, без учета систематической погрешности нормирующего сечения реакции $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$ составляют 3–4 %.

1.3. Положение пучка. Для определения профиля и положения пучка на мишени использовались ТТДЯ (искусственная слюда mica) размерами 40×40 мм с $^{\text{nat}}\text{Pb}$ -фольгами. Такой «сэндвич» размещался в центре окна для ввода пучка в мишень. После облучения mica детекторы протравливались, как описано в работе [19], и измерялась плотность треков с помощью оптического микроскопа. Ошибки в измерениях плотности треков составили 4–5 %, в зависимости от плотности треков в образце.

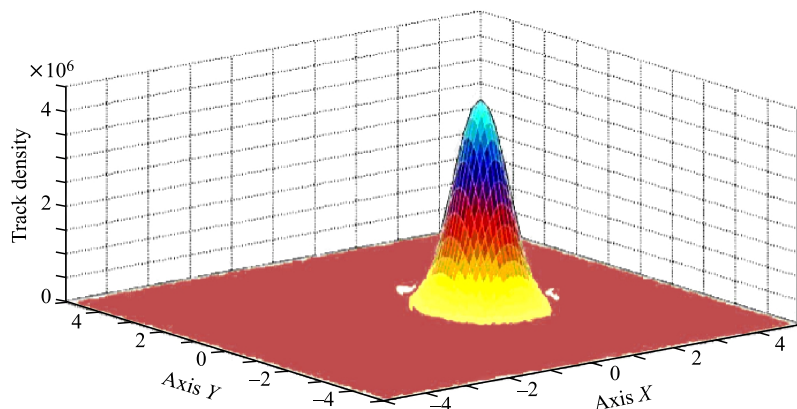


Рис. 2. Пространственное распределение пучка дейтронов с энергией 8 ГэВ на переднем торце урановой мишени (интегральная интенсивность пучка дейтронов $I_{\text{tot}} = 3,7 \cdot 10^{12}$)

Таблица 4. Параметры пучка дейтронов

Сеанс	Энергия дейтронов, ГэВ	Координаты центра пучка, см		FWHM-распределения, см	
		X_c	Y_c	FWHM_X	FWHM_Y
Март 2011 г.	2	1,2	-0,5	2	2,8
	4	1,2	-0,7	2,2	2,3
	6	2,0	-0,1	3,9	3,1
Декабрь 2011 г.	1	1,3	0,2	2,6	3,5
	4	1,4	0,2	1,5	1,4
Март 2012 г.	1	0,6	0,9	2,9	3,2
	4	2,0	0,8	1,1	1,2
	8	1,2	0,10	0,9	1,2

Плотность треков, образованных осколками деления свинца, характеризующая пространственное распределение первичного пучка, хорошо аппроксимируется трехмерным распределением Гаусса (рис. 2). С учетом этой аппроксимации были получены данные о пространственном расположении падающего пучка дейтронов на переднем торце урановой мишени в рассматриваемых сеансах облучения. В табл. 4 приведены координаты центра пучка (относительно центра мишени) и ширина гауссова распределения на полувысоте (FWHM). Точность определения положения центра пучка ~ 1 мм. Для сеанса, проведенного в марте 2011 г., использованы данные о положении пучка из работы [16].

1.4. Корректировка на положение пучка на мишени. Из-за того, что пучок дейтронов обычно падает не в центр мишени и мишень была немного повернута относительно оси пучка, расстояния урановых шайб (фольг) от оси пучка в каждом облучении менялись (рис. 3).

Чтобы получить сравнимые между собой для разных облучений пространственные распределения чисел деления и количества наработанных ядер ^{239}Pu , а также интегральные значения этих величин по объему мишени сборки, необходимо для каждой облученной урановой фольги пересчитать ее координаты относительно реальной оси пучка. Это можно сделать с учетом данных о положении пучка на мишени, приведенных в табл. 4.

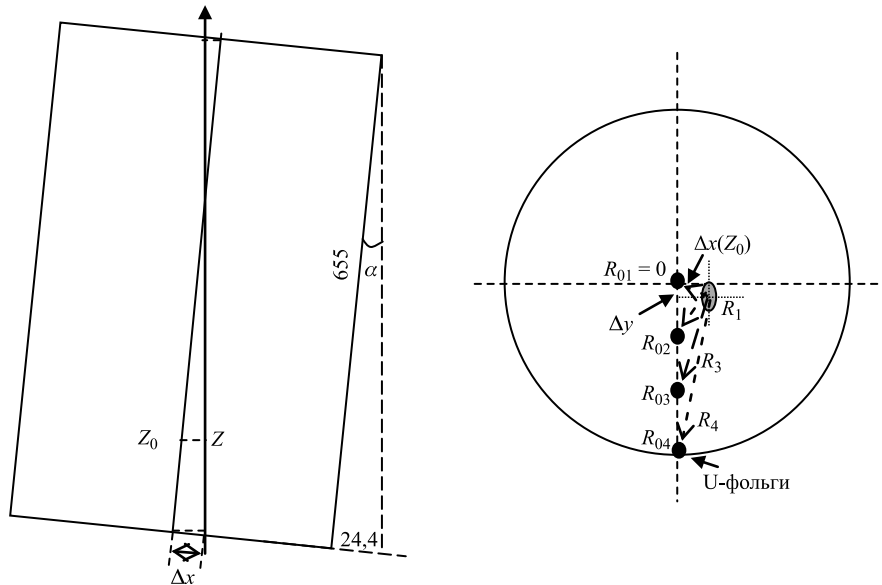


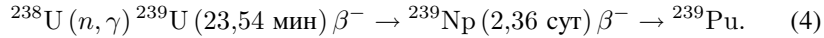
Рис. 3. Пересчет координат урановых фольг

Если R_0, Z_0 — координаты расположения шайб относительно центра сборки, то координаты R, Z относительно оси пучка будут равны:

$$\begin{aligned} R &= \sqrt{(R_0 - \Delta y)^2 + (\Delta x \cos \alpha - Z_0 \sin \alpha)^2}, \\ Z &= Z_0 \cos \alpha + \Delta x \sin \alpha \approx Z_0, \end{aligned} \quad (3)$$

где α — угол поворота сборки относительно центральной оси в горизонтальной плоскости; $\Delta x, \Delta y$ — смещения пучка на переднем торце мишени относительно ее центра.

1.5. Определение наработки ^{239}Pu и числа делений $^{\text{nat}}\text{U}$. Число реакций радиационного захвата ядрами ^{238}U в единице объема соответствует количеству ядер ^{239}Pu , образуемому в результате цепочки β -распадов изотопов ^{239}U и ^{239}Np :



После окончания процесса облучения мишенной сборки «Квинта» проводилось измерение гамма-спектров облученных урановых фольг. Перед измерением фольги выдерживались более 4 ч (больше 10 периодов полураспада ^{239}U) для достижения 99,9 % распадов ^{239}U . Число реакций захвата нейтронов ядрами ^{238}U определялось путем измерения активности нуклида ^{239}Np .

Наряду с гамма-линиями, сопровождающими распад ядер ^{239}Np , в спектрах было идентифицировано большое количество гамма-линий, соответствующих радиоактивным осколкам деления урана, в основном нейтронами в интервале массовых чисел $A = 88 \dots 146$ ($^{88}\text{Kr}, ^{91}\text{Sr}, ^{97}\text{Zr}, ^{105}\text{Ru}, ^{131}\text{I}, ^{132}\text{Te}, ^{133}\text{I}, ^{135}\text{I}, ^{135}\text{Xe}, ^{143}\text{Ce}, ^{146}\text{Ce}$ и т. д.). По измеренной интенсивности гамма-линий были определены полные количества ядер этих нуклидов, наработанных за весь сеанс облучения в различных точках урановой сборки. Из количества образовавшихся осколков, у которых выходы на один акт деления близки для нейтронов в широком диапазоне их энергий (до 22 МэВ, см. [20, 21] и ссылки в них), можно определить число реакций деления $^{238}\text{U}(n, f)$.

Искомые числа делений рассчитывались с учетом выходов следующих осколков: ^{97}Zr (5,7 %), ^{131}I (3,6 %), ^{133}I (6,3 %), ^{143}Ce (4,3 %). В скобках указаны значения выходов, усредненных по их величинам в интервале энергий нейтронов от тепловых до 14 МэВ.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

2.1. Пространственные распределения (n, f) - и (n, γ) -реакций по объему мишенной сборки «Квинта». Всего в трех сеансах работы ускорителя было проведено 8 облучений урановой мишенной сборки «Квинта» в широком диапазоне энергий дейтронов. В каждом облучении активировалось по

29 урановых фольг, располагавшихся внутри и с торцов урановой мишени каждый раз одинаково (табл. 1). После каждого облучения измерялись гамма-спектры активированных фольг. Типичное время измерения гамма-спектра от одной фольги составляло 20–60 мин. Для каждой фольги определялось полное число (n, f) - и (n, γ) -реакций в данной фольге за все время облучения мишени. Эти значения нормировались на массу урановой фольги, на полную интенсивность и энергию дейтронного пучка (т.е. на единицу мощности первичного пучка дейтронов). Полученные таким образом пространственные распределения плотности чисел N (Fission, R, Z) и N (^{239}Pu , R, Z) для (n, f) - и (n, γ) -реакций соответственно внутри мишенной сборки «Квинта» со свинцовым blanketом показаны на рис. 4 для сеанса, проведенного в марте 2012 г.

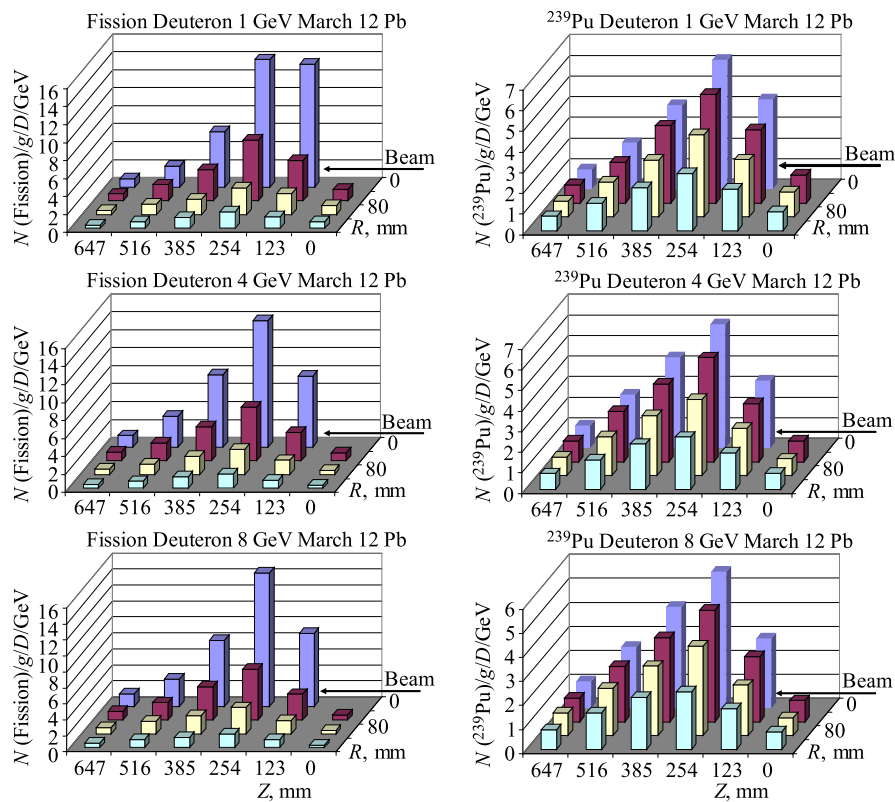


Рис. 4. Пространственные распределения плотности чисел (n, f) -, (n, γ) -реакций при энергиях дейтронов 1, 4 и 8 ГэВ. Значения приведены из расчета на $1 \text{ г } ^{\text{nat}}\text{U}$ 1 дейтрон и 1 ГэВ его энергии

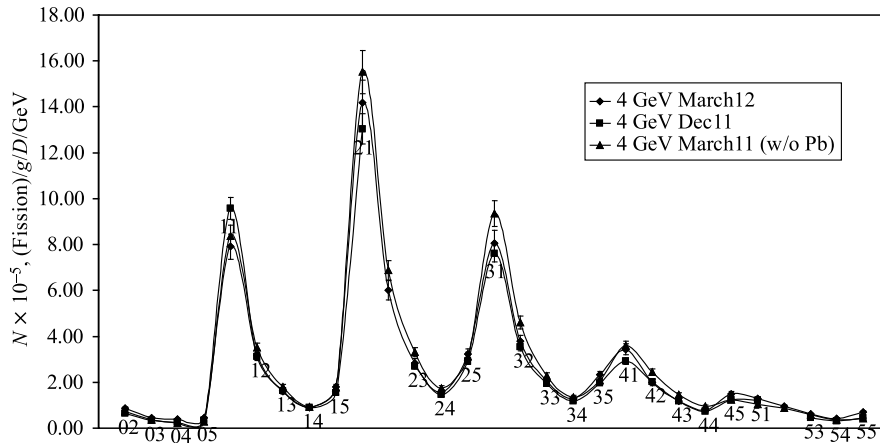


Рис. 5. Сравнение распределения плотности чисел делений для мишенной сборки «Квинта» без свинцового бланкета (треугольники) и с ним (квадраты и ромбы) при энергии дейтронов 4 ГэВ

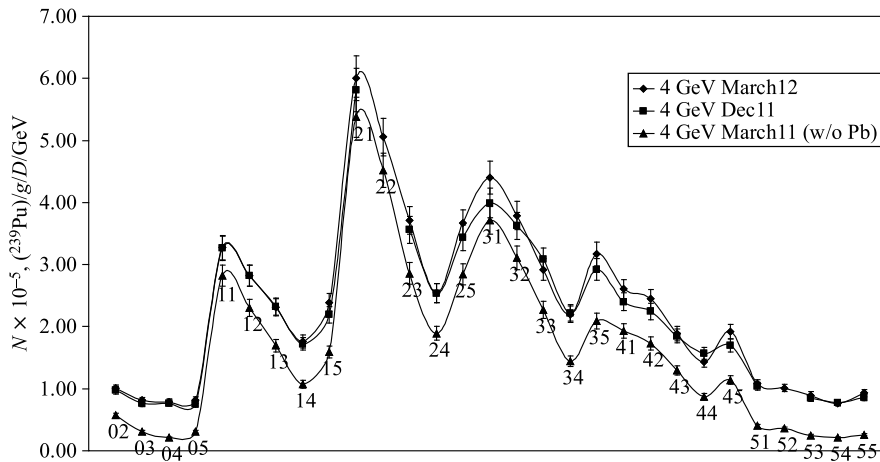


Рис. 6. Сравнение распределения плотности наработки плутония для мишенной сборки «Квинта» без свинцового бланкета и с ним при энергии дейтронов 4 ГэВ. Обозначения те же, что на рис. 5

На рис. 5 и 6 хорошо видно влияние включения свинцового бланкета в мишенную сборку «Квинта» на измеренные величины N (Fission, R , Z) и N (^{239}Pu , R , Z), нормированные на один грамм урана, один падающий дейтрон и 1 ГэВ его энергии и промаркированные в соответствии с обозначениями табл. 1. Заметим, что на данном и всех последующих рисунках ошибки приведены без учета систематической ошибки мониторинга.

Поскольку деление ядер ^{238}U — пороговый процесс, распределение числа делений отражает в основном распределение в мишенной сборке нейтронов с энергией $E_n < 1$ МэВ. В то же время распределение числа реакций радиационного захвата характеризует распределение по сборке мягкой части ($E_n < 1$ МэВ) нейтронного спектра и, соответственно, наработку ^{239}Pu в объеме урановой части мишенной сборки. Из рис. 5 и 6 следует вывод об увеличении доли мягкой части нейтронного спектра при введении в сборку «Квинта» свинцового бланкета во всем ее объеме.

Чтобы сравнить более детально полученные пространственные распределения величин $N(\text{Fission}, R, Z)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R, Z)$ при различных энергиях дейтронов, необходимо учесть, что аксиальная симметрия скоростей реакций в объеме урановой мишени реализуется относительно оси падающего пучка дейтронов. Однако в каждом облучении положение пучка относительно оси урановой мишени было различным. Поэтому при построении радиальных и аксиальных распределений плотностей $N(\text{Fission}, R, Z)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R, Z)$ и при расчете соответствующих интегральных величин вводились поправки для координат каждой урановой фольги в каждом конкретном облучении (подробнее см. п. 1.4).

Скорректированные радиальные распределения плотностей чисел $N(\text{Fission}, R, Z)$ (n, f)-реакции приведены на рис. 7 для сеансов, проведенных в марте 2011 и 2012 гг.

Хотя поведение величин $N(\text{Fission}, R, Z)$ и их значения на единицу мощности падающего пучка дейтронов примерно одинаковы при всех энергиях дейтронов, за исключением входного торца мишенной сборки ($Z = 0$), при более детальном рассмотрении выявляются некоторые отличия. Видно, что для сборки «Квинта» со свинцовым бланкетом (левая часть рис. 7) в первой секции, расположенной позади входа пучка в мишень, величины $N(\text{Fission}, R, Z = 0)$ регулярно имеют большие значения при энергии дейтронов 1 ГэВ, чем при остальных энергиях. Для второй секции указанное различие сохраняется только для близкой к оси пучка области. С ростом Z зависимость от радиуса и энергии дейтронов в пределах погрешностей исчезает и появляется вновь только в последней секции. Причем она становится обратной: значения $N(\text{Fission}, R, Z)$ несколько растут с увеличением энергии дейтронов. В случае отсутствия свинцовой оболочки (правая часть рис. 7) отмеченные выше краевые эффекты становятся количественно менее выраженными. Аналогичное поведение характерно и для распределений чисел (n, γ)-реакции.

На рис. 8–11 приведены значения чисел делений урана и наработки ^{239}Pu , проинтегрированные до данного радиуса R для каждой из 5 секций и в целом по мишенной сборке «Квинта», рассчитанные по данным измерений, сделанных в марте 2011–2012 гг. Предварительно было проведено усреднение величин $N(\text{Fission}, R, Z)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R, Z)$, полученных для урановых фольг, расположенных перед и после каждой секции мишени, с учетом со-

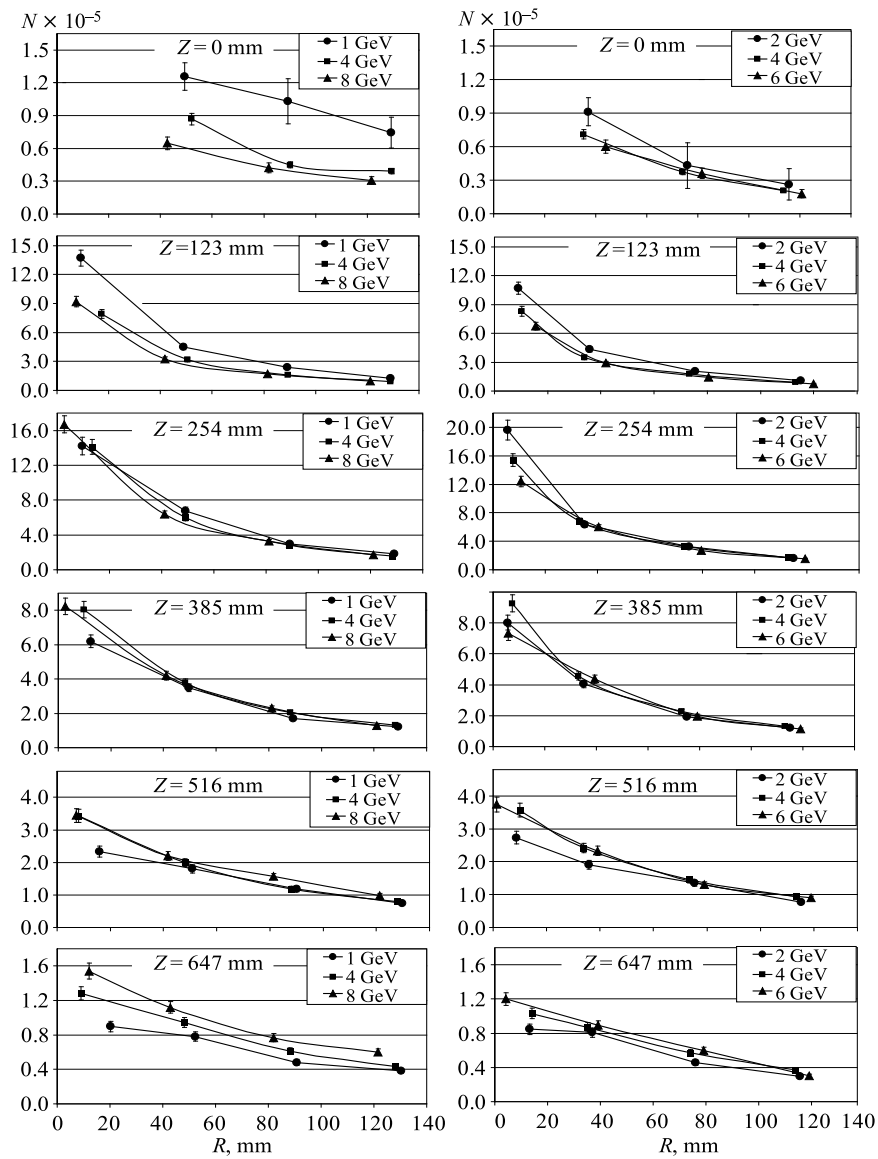


Рис. 7. Радиальные распределения по объему мишенной сборки «Квинта» плотностей чисел (n, f) -реакции для различных значений Z (на $1 \text{ г } ^{\text{nat}}\text{U}$ 1 нейтрон и 1 ГэВ его энергии). Правая часть рисунка (облучение в марте 2011 г.) отвечает конфигурации мишени без свинцового blankets, левая (март 2012 г.) — его наличие

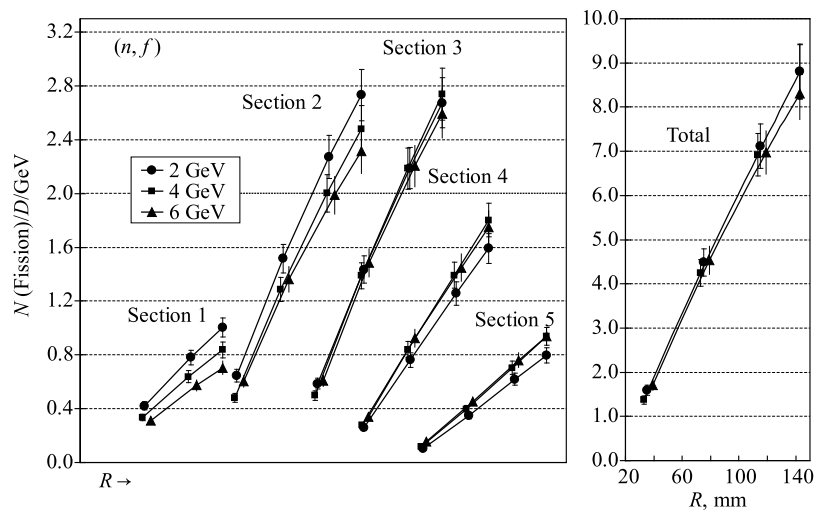


Рис. 8. Значения чисел (n, f) -реакций, проинтегрированных до данного радиуса R , для каждой из секций мишенной сборки (слева) и в целом по «Квинте» без свинцового blankets (справа) (март 2011 г.)

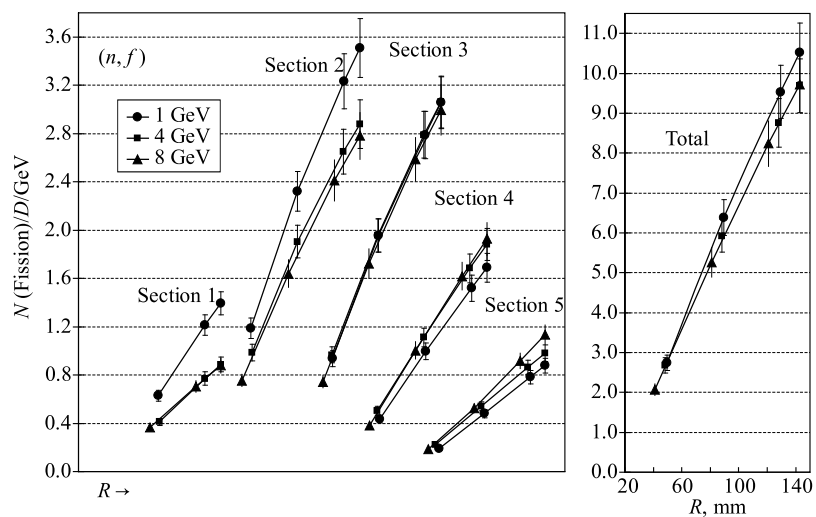


Рис. 9. Значения чисел (n, f) -реакций, проинтегрированных до данного радиуса R , для каждой из секций мишенной сборки (слева) и в целом по «Квинте» со свинцовым blankets (справа) (март 2012 г.)

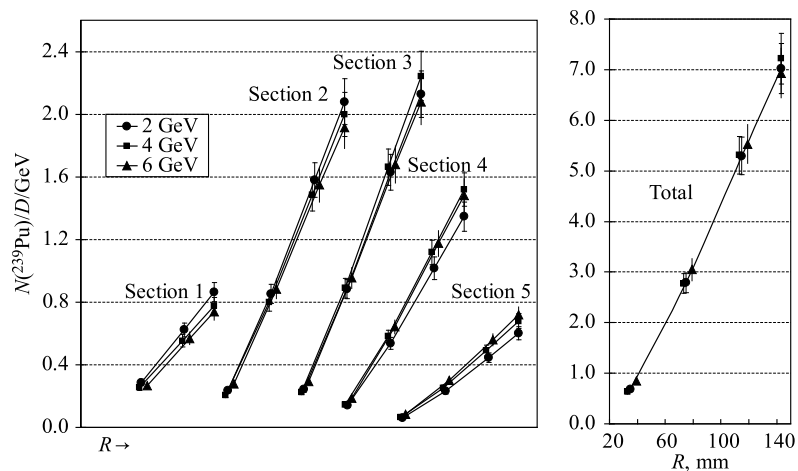


Рис. 10. Значения чисел (n, γ) -реакций, проинтегрированных до данного радиуса R , для каждой из секций мишени сборки (слева) и в целом по «Квинте» без свинцового blankets (март 2011 г.)

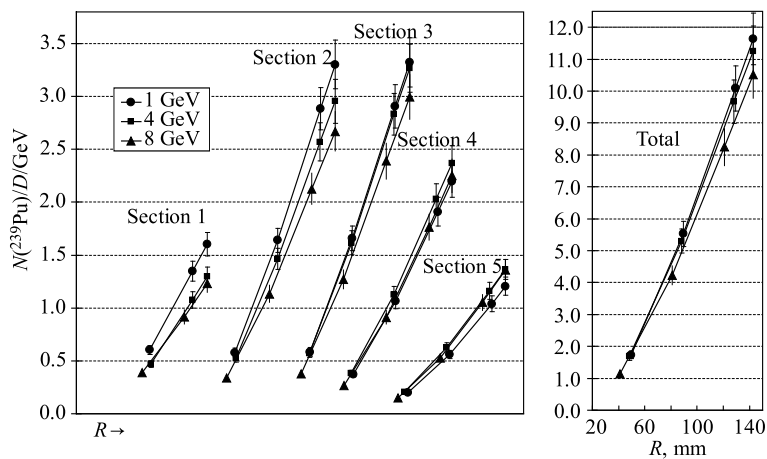


Рис. 11. Значения чисел (n, γ) -реакций, проинтегрированных до данного радиуса R , для каждой из секций мишени сборки (слева) и в целом по «Квинте» со свинцовым blankets (март 2012 г.)

ответствующего данной фольге эффективного объема (в зависимости от расстояния до оси пучка) и массы урана в нем. Таким образом, точки в левых частях рис. 8–11 отражают полные числа делений или числа (n, γ) -реакций в цилиндрических объемах соответствующего радиуса R данной секции, рас-

считанные в предположении аксиальной симметрии относительно оси пучка дейтронов.

Как видно из левых частей рис. 8 и 9, в области ввода пучка дейтронов в мишень (1-я и 2-я секции сборки) с ростом энергии дейтронов значения $N(\text{Fission}, R)$ уменьшаются, причем эффект более заметен при добавлении свинцового blankets. Но уже в третьей секции сборки указанный эффект исчезает, а в 4-й и 5-й секциях он меняется на противоположный, хотя и слабее выраженный, с учетом экспериментальных погрешностей. Зависимость величин $N(^{239}\text{Pu}, R)$ (рис. 10 и 11) от энергии дейтронов качественно похожа на описанную выше, однако величина эффекта заметно меньше и остается в коридоре погрешностей для «Квинты» без свинцового blankets. Для величин $N(\text{Fission}, R)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R)$, измеренных без свинцового blankets и проинтегрированных по Z , зависимость от энергии дейтронов в пределах ошибок отсутствует.

Добавление blankets незначительно меняет абсолютные значения $N(\text{Fission}, R)$ для максимального радиуса R_{max} урановой части сборки «Квинта», тогда как значение $N(^{239}\text{Pu}, R_{\text{max}})$ увеличивается примерно на 55 %.

Из рис. 8–11 также следует, что практически линейная радиальная зависимость величин $N(\text{Fission}, R)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R)$ при введении в «Квинту» свинцового blankets, частично имитирующего увеличение радиальных размеров урановой мишени, сохраняет свой наклон при энергиях дейтронов вплоть до 6 ГэВ, проявляя слабую тенденцию к уменьшению наклона только при энергии 8 ГэВ.

Рассмотренные выше зависимости величин $N(\text{Fission}, R, Z)$ и $N(^{239}\text{Pu}, R, Z)$ от энергии падающих дейтронов могут быть связаны со следующими причинами:

- 1) с изменением углового распределения spallation-нейтронов;
- 2) с уменьшением относительных ионизационных потерь при росте энергии дейтронов;
- 3) с увеличением средней энергии spallation-нейтронов и ростом их полной множественности пропорционально бомбардирующей энергии.

Величины $N(\text{Fission}, R_{\text{max}})$ и $N(^{239}\text{Pu}, R_{\text{max}})$ представляют собой полные числа делений и наработанных ядер ^{239}Pu в мишенной сборке «Квинта» в расчете на один падающий дейтрон и 1 ГэВ его энергии. Соответствующие результаты для всех сеансов измерений суммированы в табл. 5. Для каждого значения $N(\text{Fission}, R_{\text{max}})$ и $N(^{239}\text{Pu}, R_{\text{max}})$ приведены две ошибки — статистическая ($\sim 5\%$) и систематическая ($\sim 11\%$), связанная в основном с погрешностью опорного сечения мониторинговой реакции на алюминии $^{27}\text{Al}(d, x)^{24}\text{Na}$.

Как следует из табл. 5, полное число делений в объеме урановой мишени сборки «Квинта», определенное по активационной методике, остается примерно постоянным в пределах полных экспериментальных погрешностей для

Таблица 5. Интегральные числа делений ^{nat}U и наработанных ядер ^{239}Pu в объеме мишенной сборки «Квинта» (в расчете на 1 дейтрон и 1 ГэВ его энергии)

Сеанс	E , ГэВ	^{239}Pu	Деление ^{nat}U
Март 2011 г. (без свинцового бланкета)	2	$(7,0 \pm 0,3) \pm 0,8$	$(8,8 \pm 0,4) \pm 1,0$
	4	$(7,2 \pm 0,4) \pm 0,8$	$(8,8 \pm 0,4) \pm 1,0$
	6	$(6,9 \pm 0,3) \pm 0,7$	$(8,3 \pm 0,4) \pm 0,9$
Декабрь 2011 г. (со свинцовым бланкетом)	1	$(11,8 \pm 0,6) \pm 1,2$	$(10,6 \pm 0,5) \pm 1,1$
	4	$(10,8 \pm 0,5) \pm 1,1$	$(8,5 \pm 0,4) \pm 1,0$
Март 2012 г. (со свинцовым бланкетом)	1	$(11,6 \pm 0,6) \pm 1,2$	$(10,5 \pm 0,5) \pm 1,1$
	4	$(11,3 \pm 0,5) \pm 1,1$	$(9,7 \pm 0,4) \pm 1,0$
	8	$(10,5 \pm 0,5) \pm 1,1$	$(9,7 \pm 0,5) \pm 1,1$

диапазона энергий дейтронов 1–8 ГэВ (в расчете на 1 ГэВ их энергии и на 1 дейтрон) и не зависит от того, окружена ли урановая мишень свинцовым бланкетом или нет. При этом полное число наработанных ядер ^{239}Pu (в тех же единицах) также не зависит от энергии дейтронов, но возрастает примерно на 55 % при добавлении свинцового бланкета в мишенную сборку «Квинта».

2.2. Исследование спектральных индексов $S(R, Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238U} \rangle / \langle \sigma_f^{238U} \rangle$.

По определению спектральный индекс – это отношение средних (эффективных) сечений различных реакций в данном спектре нейтронов. Спектральный индекс $S(R, Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238U} \rangle / \langle \sigma_f^{238U} \rangle$, измеренный в малом объеме с координатами (R, Z) в протяженной урановой мишени, характеризует соотношение между скоростями захвата нейтронов и вызванного ими деления, а также несет информацию о спектральном составе потока нейтронов в объеме измерения. Экспериментальные значения спектральных индексов являются наиболее точными и удобными величинами для сравнения с результатами моделирования электроядерных систем по программам типа FLUKA, MCNPX, так как они не содержат в себе погрешность, связанную с неопределенностью флюенса частиц, бомбардирующих мишень.

На рис. 12 приведены примеры радиальных распределений спектральных индексов $SI(R, Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238U} \rangle / \langle \sigma_f^{238U} \rangle$ при значениях $Z = 123$ и 385 мм, измеренных в марте 2011 и 2012 гг. Видно, что спектральные индексы возрастают от оси пучка дейтронов к периферии урановой мишени примерно от 0,3 до 1,5 при отсутствии свинцового бланкета и от 0,6 до 2 при его наличии. Это подтверждает сделанный раньше вывод о «смягчении» нейтронного спектра при смещении от оси к периферии урановой мишени, причем степень смягчения увеличивается при добавлении свинцового бланкета. Абсолютные значения

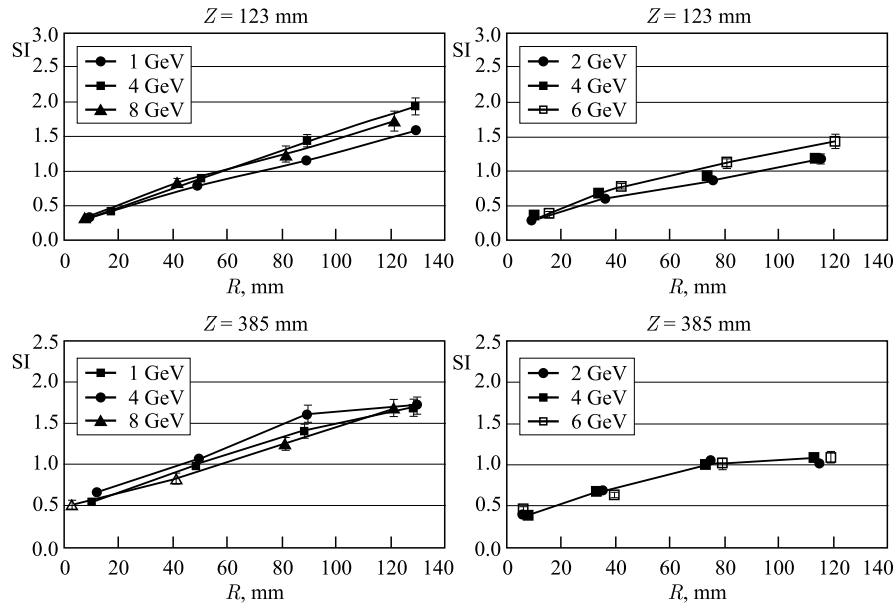


Рис. 12. Радиальные распределения спектральных индексов $SI(R, Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238\text{U}} \rangle / \langle \sigma_f^{238\text{U}} \rangle$, измеренные при энергиях дейтронов $E_d = 1, 4$ и 8 ГэВ со свинцовым blanketом в мишенной сборке «Квинта» (слева) и при $E_d = 2, 4$ и 6 ГэВ без blanketа (справа)

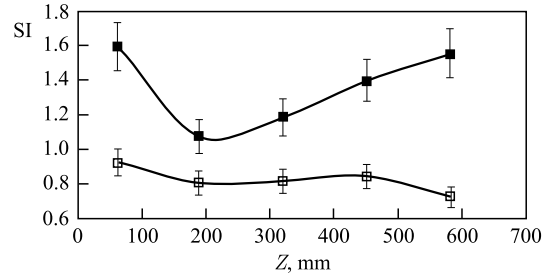


Рис. 13. Сравнение усредненных по сечениям мишенной сборки «Квинта» аксиальных распределений спектральных индексов $SI(Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238\text{U}} \rangle / \langle \sigma_f^{238\text{U}} \rangle$, полученных в измерениях со свинцовым blanketом (темные квадраты) и без него (светлые квадраты) при энергии дейтронов 4 ГэВ

спектральных индексов слабо зависят от энергии дейтронов. Это указывает на примерное постоянство соотношения мягкой ($E_n < 1$ МэВ) и жесткой ($E_n > 2$ МэВ) частей нейтронного спектра в объеме урановой мишени в исследованном интервале энергий дейтронов.

Влияние свинцового blankets на усредненные по секциям аксиальные распределения спектральных индексов, полученные по результатам измерений с мишенной сборкой «Квинта» в марте и декабре 2011 г. при энергии дейтронов 4 ГэВ, показано на рис. 13. При отсутствии свинцового blankets усредненные спектральные индексы постоянны для внутренних секций сборки и слабо возрастают (падают) в первой (последней) секции. Среднее по всему объему урановой мишени $\approx 0,8$. Наличие свинцового blankets существенно изменяет аксиальное распределение усредненного спектрального индекса. Это происходит из-за краевых эффектов, связанных с преимущественным отражением более мягких ($E_n < 1$ МэВ) нейтронов свинцом blankets.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы пространственные распределения плотностей чисел реакции радиационного захвата нейтронов и деления ^{nat}U в объеме мишенной сборки «Квинта» при облучении ее дейтронами в интервале энергий от 1 до 8 ГэВ на ускорителе нуклотрон с полным числом дейтронов, упавших на мишень, $\sim 10^{13}$ при данной энергии. Из этих измерений были получены полные числа делений (на один падающий дейтрон) во всем объеме урановой мишени, а также соответствующие полные числа наработанных ядер ^{239}Pu .

Оказалось, что полное число делений растет пропорционально увеличению энергии дейтронов, т. е. в расчете на 1 ГэВ их энергии до значения 8 ГэВ оно остается постоянным в пределах экспериментальных погрешностей. Причем значения полных чисел деления не зависят от наличия свинцового blankets. Полное число наработанных ядер ^{239}Pu в объеме урановой мишени (в расчете на 1 дейтрон и на 1 ГэВ его энергии) также в пределах погрешностей эксперимента не зависит от энергии дейтронов, но его значение увеличивается примерно на 55 % при добавлении к мишенной сборке свинцового blankets. Это свидетельствует о существенном смягчении нейтронного спектра внутри урановой мишени из-за отражения свинцом blankets.

Анализ пространственных распределений плотностей чисел делений урана и чисел наработанных ядер ^{239}Pu указывает на существенное влияние краевых эффектов для первой и пятой секций мишенной сборки, которое усиливается при добавлении свинцового blankets. С ростом энергии падающих дейтронов наблюдается уменьшение плотности числа делений урана и числа наработанных ядер ^{239}Pu в ближней зоне к входу пучка дейтронов в мишень и одновременно их увеличение на задней части мишенной сборки.

Были получены распределения спектральных индексов $S(R, Z) = \langle \sigma_{\text{capt}}^{238\text{U}} \rangle / \langle \sigma_f^{238\text{U}} \rangle$, точность измерения которых существенно выше остальных измеренных величин ввиду отсутствия систематических погрешностей мониторинга интенсивности падающего пучка дейтронов. Анализ спектраль-

ных индексов $SI(R, Z)$ свидетельствует о смягчении нейтронного спектра при смещении от оси ($R = 0$) к периферии урановой мишени ($R_{\max} = 15$ см), причем степень смягчения увеличивается при добавлении свинцового blankets. Абсолютные значения спектральных индексов $SI(R, Z)$ слабо зависят от энергии дейтронов. Это указывает на примерное постоянство соотношения мягкой и жесткой частей нейтронного спектра в объеме урановой мишени в исследованном интервале энергий дейтронов. Наличие свинцового blankets в мишенной сборке существенно изменяет аксиальное распределение усредненного по радиусу спектрального индекса. Это происходит из-за краевых эффектов, связанных с преимущественным отражением более мягких нейтронов свинцом blankets.

Был обнаружен практически линейный рост проинтегрированных по цилиндрическому объему мишени радиуса R чисел деления $N(\text{Fission}, R)$ при исследованных энергиях дейтронов. Очевидно, что с увеличением радиуса мишени R_{\max} значения чисел $N(\text{Fission}, R_{\max})$ должны возрасти, но, начиная с некоторого радиуса, соответствующего размеру так называемой квазibesконечной мишени, они должны выходить на насыщение. Однако при измерениях с мишенной сборкой «Квинта», имеющей радиус урановой мишени $R_{\max} \approx 15$ см, не удастся количественно оценить радиальный размер квазibesконечной мишени и, соответственно, экспериментально установить полное число делений, достижимое для такой мишени. Для этого необходимы измерения с урановыми мишенями большей массы, что и планируется осуществить с имеющейся в ОИЯИ мишенной сборкой из обедненного металлического урана массой около 20 т.

Авторы благодарят коллектив ускорителя нуклотрон ЛФВЭ (ОИЯИ) за проведенные облучения и обеспечение хороших параметров пучка дейтронов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Юревич В. И. и др. Исследование эмиссии нейтронов при взаимодействии релятивистских протонов и дейтронов со свинцовыми мишенями // Письма в ЭЧАЯ. 2006. Т. 3, № 3(132). С. 49–72.
2. Чилан В. В. и др. Ядерная релятивистская энергетика— физико-технические основы и результаты первых экспериментов // Вестник НЯЦ РК. 2011. Вып. 4. С. 68.
3. Балдин А. А. и др. 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, вып. 6. С. 1007–1023.
4. Adam J. et al. (E&T–RAW Collab.). Study of Deep Subcritical Electronuclear Systems and Feasibility of Their Application for Energy Production and Radioactive Waste Transmutation. JINR Preprint E1-2010-61. Dubna, 2010.

5. *Kadykov M. et al.* About the Possibilities of the ADS, Based on the Use of Natural Uranium or Thorium for Energy Production and Processing of Nuclear Waste // Proc. of the 13th Intern. Sci. Conf. «Electric Power Engineering 2012», Brno, Czech Republic, 2012. V. 1. P. 69–75.
6. *Krasa A. et al.* Neutron Production in a Pb/U-Setup Irradiated with 0.7–2.5 GeV Protons and Deuterons // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A. 2010. V. 615. P. 70–77.
7. *Krasa A. et al.* JINR Preprint E1-2005-46. Dubna, 2005.
8. *Banaigs J. et al.* Determination de l'Intensite d'un Faisceau de Deutons Extrait 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. Meth. 1971. V. 95. P. 307–311.
9. *Kozma P., Yanovski V. V.* Application of BaF₂ Scintillator to Off-Line Gamma Ray Spectroscopy // Czech Journal of Physics. 1990. V. 40. P. 393–397.
10. *Kozma P. J., Kliman J.* Spallation of Nickel by 9 GeV/c Protons and Deuterons // Phys. G: Nucl. Part. Phys. 1990. V. 16. P. 45–53.
11. *Safronova A. et al.* Monitoring of GeV Deuteron Beam Parameters in ADS Experiments at the Nuclotron (JINR, Dubna) // Proc. of DIPAC2011, Hamburg, Germany. 2011. P. 530. <http://adweb.desy.de/mpy/DIPAC2011/>
12. *Goebel K. et al.* The $^{12}\text{C}(p, pn)^{11}\text{C}$ and $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{24}\text{Na}$ Cross Sections at 591 MeV // Nucl. Phys. 1961. V. 24. P. 28.
13. *Cumming J. B. et al.* Spallation of Aluminum by 28-GeV Protons // Phys. Rev. 1962. V. 127. P. 950.
14. *Morgan G. L. et al.* Total Cross Sections for the Production of ^{22}Na and ^{24}Na in Proton-Induced Reactions on ^{27}Al from 0.40 to 22.4 GeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 2003. V. 211. P. 297.
15. *Hirabayashi H.* Measurement of a Cross Section for the $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{24}\text{Na}$ Reaction at 12 GeV // J. Phys. Society of Japan. 1982. V. 51, Iss. 10. P. 3098.
16. *Michel R. et al.* Proton-Induced Spallation at 600 MeV // Analyst (London). 1989. V. 114. P. 287.
17. *Michel R. et al.* Nuclide Production by Proton-Induced Reactions on Elements ($6 \leq Z \leq 29$) in the Energy Range from 800 to 2600 MeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 1995. V. 103. P. 183.
18. *Suchopár M., Svoboda O., Wagner V.* The Intensity and the Shape of the Deuteron Beams on Kvinta Targets (Experiment December 2011) — Preliminary Results from the Řež Group. Internal Publication for «E and T RAW» Collaboration.
19. *Hashemi-Nezhad S. R. et al.* Calibration of Track Detectors for Fission Rate Determination: An Experimental and Theoretical Study // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A. 2006. V. 568. P. 816.
20. *Liu Yonghui et al.* Mass Distributions of 22.0 MeV Neutron-Induced Fission of ^{238}U // Communication of Nuclear Data Progress. 2001. No. 26.
21. *Laurec J. et al.* Fission Product Yields of ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu in Fields of Thermal Neutrons, Fission Neutrons and 14.7-MeV Neutrons // Nuclear Data Sheets. 2010. V. 111. P. 2965–2980.

Получено 28 декабря 2012 г.

Редактор *И. И. Петровская*

Подписано в печать 14.05.2013.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,44. Уч.-изд. л. 1,7. Тираж 335 экз. Заказ № 57989.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/