

ВИМІРЮВАННЯ ПЕРЕРІЗІВ ЯДЕРНИХ РЕАКЦІЙ (n, p) НА ІЗОТОПАХ ЦИРКОНІЮ

С. В. Бегун, Н. Р. Дзисюк, І. М. Каденко, В. К. Майданюк, Г. І. Применко

Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Київ, Україна

Представлено результати експериментального визначення перерізів ядерних реакцій $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ та $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ у діапазоні енергій нейтронів $13,56 \div 14,53$ MeV. Вимірювання проведено нейтронно-активаційним методом. Зразки-фольги з природного цирконію опромінювалися DT-нейтронами. Апаратурні гамма-спектри ядер продуктів активації вимірювались на спектрометрі з HPGe детектором. Ураховано нестационарність нейтронного потоку в часі, реальну геометрію проведення експерименту, ефекти каскадного додавання гамма-квантів при вимірюваннях спектрів ядер продуктів активації, ефекти поглинання гамма-квантів у зразку. Середня по зразку енергія нейтронів установлювалась експериментально Zr/Nb методом.

1. Вступ

Цирконій як конструкційний матеріал є важливою складовою як тепловиділяючих елементів, так і інших внутрішньокорпусних пристроїв як сучасних, так і майбутніх реакторних установок. Саме тому вичерпні знання величин перерізів ядерних реакцій на ізотопах цирконію, у тому числі в діапазоні енергій нейтронів $13,5 \div 14,6$ MeV [1], мають велике значення для безпечної експлуатації ядерних енергетичних установок. Незважаючи на велику кількість робіт, присвячених дослідженням взаємодії швидких нейтронів з ізотопами цирконію [2], ще й досі існують суттєві розбіжності між результатами різних груп експериментаторів. Для ядерних реакцій $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ та $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ такі розбіжності становлять $20 \div 60$ % в досліджуваному діапазоні енергій нейтронів (рис. 1 і 2 [2]). З цих рисунків видно, що результати різних груп експериментаторів не перекриваються в межах похибок, особливо в діапазоні енергій нейтронів $13,3 \div 14,3$ MeV. Подібні неоднозначності погіршують

можливості інтерполяції експериментальних даних і, як наслідок, впливають на якість оцінених даних. Тому саме ці ядерні реакції є предметом дослідження даної роботи.

2. Методика експерименту

Вимірювання проводилися з використанням нейтронно-активаційного методу [3]. Зразки, що досліджувались, були у вигляді фольг із природного цирконію, що опромінювалися DT-нейтронами. Гамма-спектри ядер продуктів активації вимірювались на спектрометрі з HPGe детектором. Для отримання швидких нейтронів був використаний нейтронний генератор НГ-300/15, побудований на кафедрі ядерної фізики [4]. Він являє собою електростатичний низьковольтний прискорювач заряджених частинок (ізоотопів водню). Максимальний струм пучка іонів становить 10 mA. Нейтрони з енергією ~ 14 MeV генеруються в реакції $T(d, n)^4\text{He}$. Використано молекулярний компонент пучка дейтронів D_2^+ , компонент іонного пучка з енергією ~ 220 keV.

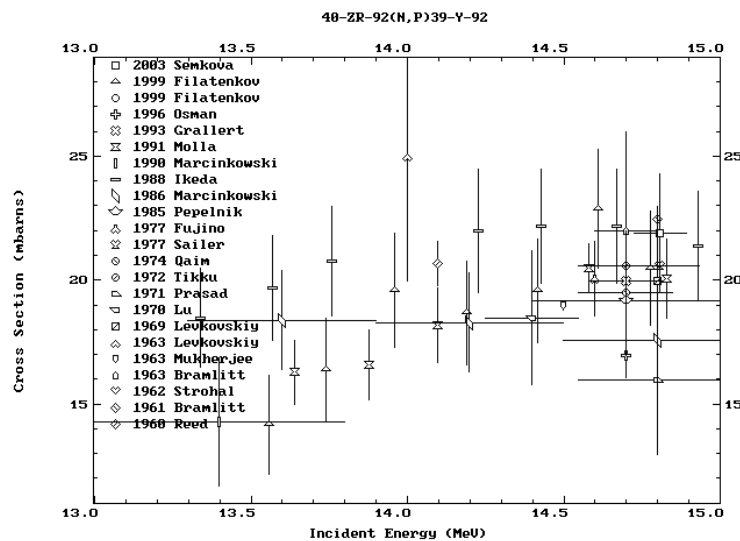
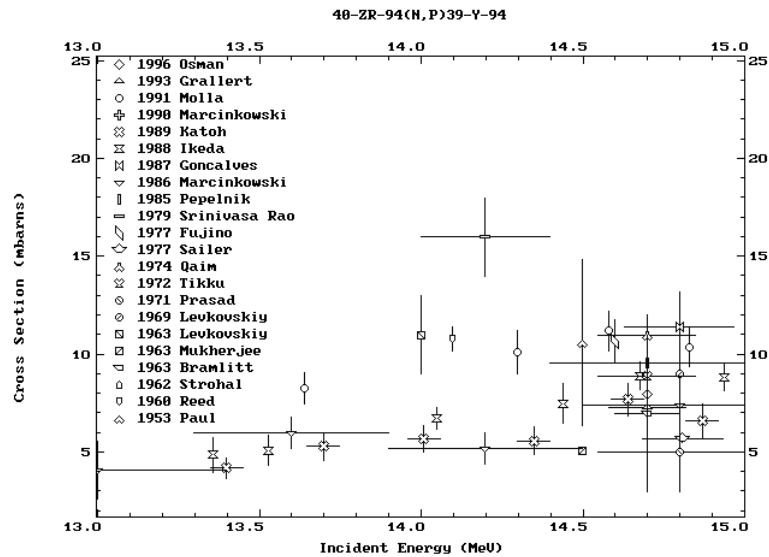


Рис. 1. Енергетична залежність перерізу ядерної реакції $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ [2].


 Рис. 2. Енергетична залежність перерізу ядерної реакції $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ [2].

Для зменшення розкиду енергій нейтронів, що опромінують зразок, в іонопровід на відстані 28 см від мішені було встановлено діафрагму з ексцентрично розташованим отвором діаметром 8 мм. Така проведена модифікація дала змогу зменшити діаметр пучка дейтронів на мішені до 10 мм, а також реалізувати можливість використовувати різні ділянки мішені, повертаючи її навколо своєї осі після кожної серії опромінювань. Положення осі пучка дейтронів знаходили з розподілу густини потоку нейтронів на мішені за допомогою методу активації фольг [5]. Середню по зразку енергію нейтронів визначали експериментально Zr/Nb методом [6], а ширину пучка по енергії нейтронів розраховували з використанням програми SPECTRON [7].

На рис. 3 наведено розрахований спектр нейтронів для зразка діаметром 30 мм і товщиною 0,2 мм, який опромінюється на відстані 75 мм до джерела нейтронів під кутом 150° між віссю зразка та віссю пучка дейтронів. Використано таку геометрію опромінення зразків, при якій впливом фонових нейтронів можна було знехтувати. Зразки цирконію опромінювались під кутами $0, 30, 120$ і 150° відносно напрямку пучка дейтронів на відстані 75 мм до Ti-T шару мішені. При цьому діаметр зразків був 30 мм, а товщина становила 30 або 300 мкм.

При опромінюванні зразків під кутом 0° градусів на відстані 5 мм до Ti-T шару мішені діаметр зразків становив 12 мм, товщина 120 мкм. Середня по зразку густина потоку нейтронів у першому випадку становила $\sim 1,3 \cdot 10^7 \left(\frac{\text{нейтр.}}{\text{см}^2 \cdot \text{с}} \right)$, а в другому випадку $\sim 1,5 \cdot 10^9 \left(\frac{\text{нейтр.}}{\text{см}^2 \cdot \text{с}} \right)$. Величина густини потоку нейтронів підтримувалась постійною з похибкою

$\leq 5\%$. Час опромінювання зразків обирався в межах $10 \div 60$ хв.

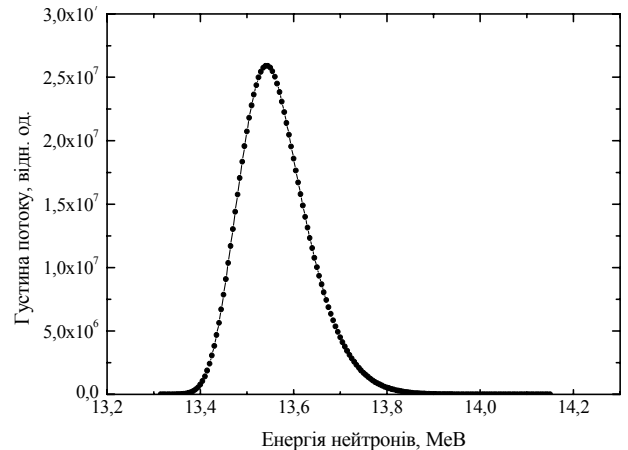


Рис. 3. Розрахований спектр нейтронів.

До складу гамма-спектрометра входили HPGe-детектор, чутливий об'єм якого був $\sim 110 \text{ см}^3$, та одноплатний аналізатор SBS-30 [9], конструктивно розміщений у персональному комп'ютері. Детектор розміщувався в свинцевому захисті товщиною 50 мм. Роздільна здатність спектрометра 2,1 кеВ по $\gamma 1332 \text{ кеВ } ^{60}\text{Co}$ і 1,2 кеВ по $\gamma 122 \text{ кеВ } ^{152}\text{Eu}$. При калібруванні враховувався ефект каскадного додавання гамма-квантів за раніше розробленою методикою [10].

Величини перерізів ядерних реакцій визначались відносним методом [3, 10], при цьому опорною ядерною реакцією обрано $^{90}\text{Zr}(n, 2n)^{89}_{(g+0.9377m)}\text{Zr}$, що стало можливим на підставі експериментального визначення середньої по зразку енергії нейтронів Zr/Nb методом [6] із малою похибкою. Використання такої опорної ядерної реакції дає суттєву перевагу за рахунок реалізації методики із внутрішнім монітором, що

призводить до суттєвого зменшення похибок, пов'язаних із неповним знанням геометрії опромінювання зразків та вимірювання гамма-спектрів зразків, а також прийнятим наближенням щодо рівномірного розподілу активності по об'єму зразків. Для коректного врахування ефектів самопоглинання гамма-квантів у зразках [11] та ефекту каскадного додавання гамма-квантів [10] важливим було те, щоб ближня до детектора основа зразка відповідала ближній до джерела нейтронів основі при опромінюванні. Ідентифікація ядер продуктів активації проводилась шляхом варіації умов опромінювання зразків та умов вимірювання гамма-спектрів. Інформація про розпад ядер була взята із банків даних [12, 13].

Активність, пов'язану із розпадом ^{92}Y , ідентифікували по гамма-піках $\gamma_{448,5}$, $\gamma_{561,1}$, $\gamma_{934,47}$ і $\gamma_{1405,4}$ кеВ [12, 13], але при опромінюванні зразків у дальній геометрії в гамма-спектрах удавалось ідентифікувати тільки пік $\gamma_{934,47}$ кеВ. При попередній перевірці рентгенофлюоресцентним методом на хімічну чистоту в зразках цирконію було ідентифіковано домішку ніобію на рівні $\sim 1\%$, що було підтверджено активаційним методом. Так, у результаті аналізу гамма-спектрів у досліджуваних зразках цирконію знайдено ніобій $1,21(18)\%$ та домішку заліза $0,022(3)\%$. Наявність у зразках цирконію домішки ніобію призводило до утворення $^{92\text{m}}\text{Nb}$ в результаті ядерної реакції $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$, значення величини перерізу якої ≈ 460 мб у даному діапазоні енергій нейтронів [2]. Тому необхідно було враховувати внесок від $\gamma_{934,44}$ кеВ ($^{92\text{m}}\text{Nb}$) [12, 13] у площину піка $\gamma_{934,47}$ кеВ (^{92}Y). Для врахування цього було використано суттєву різницю періодів напіврозпаду $^{92\text{m}}\text{Nb}$ та ^{92}Y , які рівні 10,2 доби та 3,53 год відповідно [12, 13]. На основі цього спочатку вимірювався спектр, на якому був присутній гамма-пік $\gamma_{934,5}$ кеВ, що відповідав сумарній активності $^{92\text{m}}\text{Nb} + ^{92}\text{Y}$, а потім через три доби вимірювався повторно, де активність, пов'язана з ітрієм, була відсутня. Таким чином, було визначено вплив домішка ніобію на визначення величини перерізу досліджуваної ядерної реакції.

Ідентифікація ^{94}Y проводилась по гамма-піках $\gamma_{550,9}$, $\gamma_{918,74}$ і $\gamma_{1138,9}$ кеВ [12, 13]. При опромінюванні зразків у дальній геометрії в спектрах можна було ідентифікувати тільки $\gamma_{918,74}$ кеВ.

3. Результати вимірювань

Визначені величини перерізів ядерних реакцій $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ та $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ наведено в таблиці, а результати порівняння з останніми результатами інших груп експериментаторів наведено на рис. 4

Основні результати

Реакція	Середня енергія нейтронів, МеВ	Переріз реакції, мб
$^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$	13,56	14,3(23)
	14,53	19,8(22)
$^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$	13,56	8,3(18)
	13,69	8,7(15)
	14,53	8,8(6)

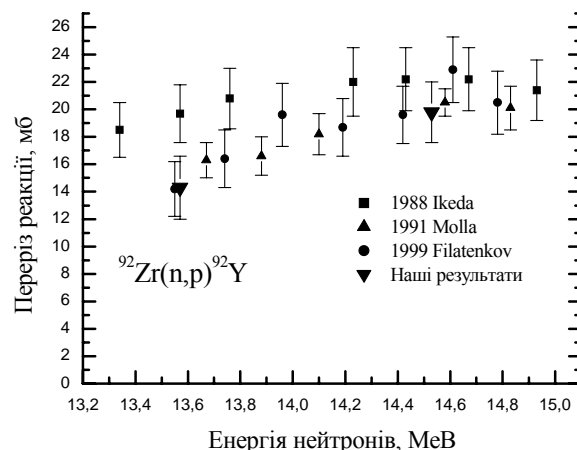


Рис. 4. Результати визначення перерізів ядерної реакції $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$.

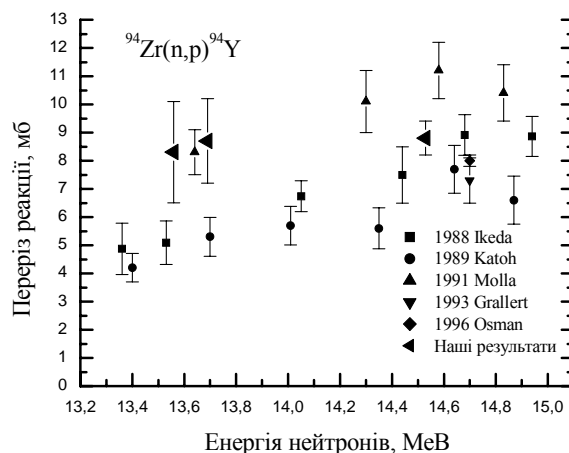


Рис. 5. Результати визначення перерізів ядерної реакції $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$.

та 5 відповідно. Завищення у випадку $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ результатів японською групою (Ikeda, 1988 [2]) можливо пояснити тільки тим, що вони могли не помітити домішку ніобію в зразках цирконію. Заниження результатів у випадку $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ японськими групами (Ikeda, 1988; Katoh, 1989 [2]) пояснюється тим, що в даному випадку вимірювання проводилися на межі чутливості апаратури, коли дуже велике значення має енергетична роздільна здатність гамма-спектрометра. Унаслідок того, що поряд з $\gamma_{918,74}$ кеВ (^{94}Y), навіть у збагачених на ^{94}Zr зра-

зках, завжди присутній гамма-пік $\gamma_{909,14}$ кеВ (^{89}Zr) [12, 13], зумовлений випромінюванням ядра-продукту ядерної реакції $^{90}\text{Zr}(n, 2n)^{89(g+0.9377m)}\text{Zr}$. Значення величини перерізу останньої реакції в даному діапазоні енергій нейтронів становить $\sim 440 \div 730$ мб. Необхідно відзначити, що навіть для оптимізованих умов опромінювання та вимірювання при виникненні невеликого погіршення роздільної здатності гамма-спектрометра призведе до того, що визначення площі гамма-піка $\gamma_{918,74}$ кеВ (^{94}Y) буде суттєво ускладнено за рахунок перекриття з $\gamma_{909,14}$ кеВ (^{89}Zr).

4. Висновки

У роботі виміряно перерізи ядерних реакцій $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ і $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ у діапазоні енергій нейтронів $13,5 \div 14,6$ МеВ. Отримані результати можуть зіграти вирішальну роль при побудові оцінених даних та зняти неоднозначність стосовно до величин перерізів цих ядерних реакцій в околі енергій нейтронів $13,5$ МеВ. Необхідно також проведення додаткових вимірювань для можливості з'ясування відносного ходу функції збудження ядерної реакції $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ в діапазоні енергій $13,8 \div 14,6$ МеВ.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Begun S.V., Kadenko I.M., Maidanyuk V.K. et al.* Determination of the cross sections of (n, x) nuclear reactions on Y, La, Ta, Pb and Bi at the energy of neutrons about 14 MeV // J. Nucl. Sci. Technol. - 2002. - Vol. 1, Suppl. 2. - P. 425 – 428.
2. *Cross section information storage and retrieval system (EXFOR)* // National Nuclear Data Center (NNDC). Brookhaven National Laboratory, USA. - <http://www.nndc.bnl.gov/index.jsp> (online).
3. *Маслов И.А., Лукницкий В.А.* Справочник по нейтронному активационному анализу. - Л.: Наука, 1971. - 312 с.
4. *Применко Г.И., Майданюк В.К., Неплюев В.М. и др.* Генератор 14 МэВ нейтронов с потоком $5 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$ // Приборы и техника эксперимента. - 1989. - № 6. - С. 39 - 41.
5. *Кирьянов Г.И.* Генераторы быстрых нейтронов. - М.: Энергоатомиздат, 1990. - 224 с.
6. *Agrawal H.M., Pepelnik R.* Determination of the mean neutron energy using the Zr/Nb and the Ni method // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. - 1995. - Vol. A366. - P. 349 - 353.
7. *Филатенков А.А., Чуваев С.В., Аксенов В.Н., Яковлев В.А.* Систематическое измерение активационных сечений в области энергий нейтронов 13,4–14,9 МэВ // Вопросы атомной науки и техники. - Сер. Ядерные константы. - 1996. - Вып. 2. - С. 8 - 42.
8. *Reaction Q-values and threshold energies. Q-CALC.* - Brookhaven National Laboratory (USA). - <http://www.nndc.bnl.gov/nndc/qcalc/>, (online).
9. *Одноплатный спектрометр SBS-30.* Ч. 1. Аппаратные средства. - М.: GreenStar Co, Ltd., 1992. - 9 с.
10. *Бегун С.В.* Дослідження перерізів ядерних реакцій (n, x) на ядрах Y, La, Ta, Pb, Bi при енергії нейтронів 14 МеВ // Дис. ... канд. фіз.-мат. наук / Київський національний університет імені Тараса Шевченка. - К., 2003. - 145 с.
11. *Бегун С.В., Каденко І.М., Майданюк В.К.* Врахування ефекту поглинання гамма-квантів зразком в нейтронному активационному методі // Вісн. Київ. ун-ту. Сер. Фізико-математичні науки. - 2005. - Вип. № 4. - С. 335 - 341.
12. *Table of isotopes CD-ROM.* Eight edition. Ver. 1.0, March 1996 / R.B. Firestone, V.S. Shirley, S.Y.F. Chu, C.M. Baglin, J. Zipkin. - LBNL, Berkeley (USA), University of California (USA): Wiley-Interscience, 1996.
13. *Chu S.Y.F., Ekström L.P., Firestone R.B.* // The Lund / LBNL nuclear data search. Ver. 2.0, February 1999. - LBNL, Berkeley (USA), Lund University (Sweden). - <http://nucleardata.nuclear.lu.se/NuclearData/toi/index.asp>, 1999 (online).

ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ (n, p) НА ИЗОТОПАХ ЦИРКОНИЯ

С. В. Бегун, Н. Р. Дзисюк, И. Н. Каденко, В. К. Майданюк, Г. И. Применко

Представлены результаты экспериментального определения сечений ядерных реакций $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ и $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ в диапазоне энергий нейтронов $13,56 \div 14,53$ МэВ. Измерения были выполнены нейтронно-активационным методом. Образцы в виде фольги из природного циркония облучались DT-нейтронами. Аппаратурные гамма-спектры ядер продуктов активации измерялись на спектрометре с HPGe детектором. Учтены нестационарность нейтронного потока во времени, реальная геометрия проведения эксперимента, эффекты каскадного суммирования гамма-квантов при измерениях спектров ядер продуктов активации, эффекты поглощения гамма-квантов в образце. Средняя по образцу энергия нейтронов определялась экспериментально Zr/Nb методом.

CROSS SECTIONS OF (n, p) NUCLEAR REACTIONS ON ZIRCONIUM ISOTOPES

S. V. Begun, N. R. Dzysiuk, I. M. Kadenko, V. K. Maidanyuk, G. I. Primenko

Cross sections of nuclear reactions $^{92}\text{Zr}(n, p)^{92}\text{Y}$ and $^{94}\text{Zr}(n, p)^{94}\text{Y}$ were measured in the neutron energy range $13,56 \div 14,53$ MeV. Measurements have been carried out by neutron activation method. The samples in the form of foils of natural zirconium have been irradiated by DT- neutrons. Instrumental gamma-spectra of activation products have been measured by spectrometer with HPGe detector. The corrections on the instability of neutron flux, real geometry of the experiment, the effect of true coincidence summing of gamma-quanta during activation products spectra measurements and on effect of absorption gamma-quanta in the sample were considered. The average neutron energy has been determined experimentally by Zr/Nb method.

Надійшла до редакції 23.06.06,
після доопрацювання – 03.10.07.