

МАТЕРИАЛЫ И ТЕХНОЛОГИЯ  
ДЛЯ НОВЫХ ИСТОЧНИКОВ ЭНЕРГИИ

УДК 539.172

СЕЧЕНИЯ ОБРАЗОВАНИЯ ТРИТИЯ В КОНСТРУКЦИОННЫХ  
МАТЕРИАЛАХ ЭЛЕКТРОЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК

© 2021 г. Ю. Е. Титаренко<sup>а</sup> \*, М. В. Чаузова<sup>а</sup>, К. В. Павлов<sup>а</sup>, С. В. Малиновский<sup>а</sup>,  
А. Ю. Титаренко<sup>а</sup>, В. И. Рогов<sup>а</sup>, В. Ф. Батяев<sup>а</sup>

<sup>а</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, 123182 Россия

\*E-mail: yury.titarenko@itep.ru

Поступила в редакцию 28.12.2020 г.

После доработки 30.12.2020 г.

Принята к публикации 14.01.2021 г.

В работе представлены результаты определения сечений образования трития в тонких мишенях из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$ , облученных протонами с энергиями от 40 до 2600 МэВ. Мишени облучались на ускорителе ИТЭФ У-10 в виде одинарных и двойных “сэндвичей” металл-алюминий. Тритий был выделен из облученных мишеней с использованием системы Sample Oxidizer, а его активность измерялась с помощью низкофонового жидкосцинтилляционного спектрометра. Для расчета сечений образования трития в мишенях из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$  были оценены его потери во время облучения (геометрическая поправка, обусловленная размерами мишеней) и за время хранения от конца облучения до момента выделения (диффузионная поправка). На основании полученных данных о сечениях образования трития была оценена прогностическая способность ядерной модели SEM03.03.

*Ключевые слова:* тритий, сечения, электроядерные установки, протонный пучок, жидкосцинтилляционная спектрометрия, ядерная модель, SEM03.03

DOI: 10.56304/S2079562920060573

### 1. Введение

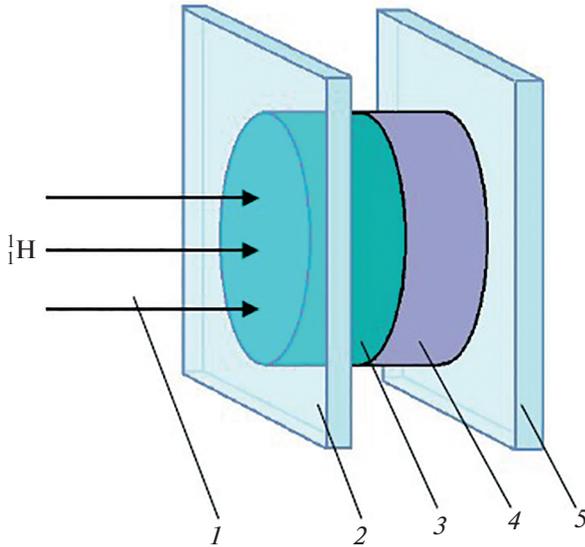
Тритий ( $^3\text{H}$ ) – один из продуктов ядерных реакций, образующийся при взаимодействии протонов с мишенными и конструкционными материалами электроядерных установок (ЭЛЯУ), наработка которого в современных высокоэнергетических транспортных программах описывается моделью коаллесценции. Помимо материаловедческих проблем, связанных с высокотемпературным охрупчиванием, а при более высоких – радиационным распуханием конструкционных материалов из-за образования  $^3\text{H}$ , его накопление также вызывает дополнительные экологические проблемы, обусловленные его биогенностью и высокой миграционной способностью. Эти обстоятельства стимулируют интерес к изучению сечений образования  $^3\text{H}$  в различных материалах, применяемых в ЭЛЯУ, что необходимо для решения проблем удержания трития и минимизации его утечки.

В настоящее время база ядерных данных EXFOR содержит 15 работ [1–15], в которых определялись сечения реакции  $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$ , 4 работы [1, 3, 15, 16], в которых определялись сечения реакции  $^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^3\text{H}$  и только одну работу [15], в которой определялись сечения реакции

$^{\text{nat}}\text{W}(p, x)^3\text{H}$ . Как видно, существует острая потребность в получении новых данных о сечениях образования  $^3\text{H}$ , которые необходимы не только для оценки долгосрочной радиологической опасности облученных протонами узлов ЭЛЯУ, но для верификации расчетов, выполняемых высокоэнергетическими транспортными программами.

Используемые в опубликованных работах методики определения сечений образования  $^3\text{H}$  можно разделить на две основные группы. Первая группа экспериментов [11, 12, 14] основана на использовании методики  $\Delta E-E$  телескопа с использованием тонких мишеней ( $\sim 1-10$  мг/см<sup>2</sup>), а вторая [1–10, 13, 15, 16] – на использовании активационной методики и, соответственно, облучении различных толстых мишеней ( $\sim 400-25000$  мг/см<sup>2</sup>), выделении  $^3\text{H}$  и его регистрации методами бета-радиометрии. При этом каждой экспериментальной методике присущи свои систематические погрешности.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное определение сечений образования  $^3\text{H}$  при взаимодействии протонов широкого диапазона энергий с тонкими мишенями из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$ , перспективными для использования в качестве конструкционных материалов ЭЛЯУ, и оцен-



**Рис. 1.** Схема облучения экспериментальных образцов: 1 – пучок протонов с энергией от 40 до 2600 МэВ, 2, 5 – полиэтилен, 3 – образец-мишень, 4 –  $^{27}\text{Al}$  образец-монитор.

ке предсказательной способности ядерной модели SEM03.03 путем сравнения экспериментальных и расчетных результатов.

## 2. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Облучение мишеней было выполнено в период с 2000 по 2009 гг., на ускорителе ИТЭФ У-10 пучками моноэнергетических протонов 11-ти энергий в диапазоне от 40 МэВ до 2.6 ГэВ. Мишени были собраны в “сэндвичи”, которые состояли из металлической мишени и  $^{27}\text{Al}$  образца-монитора потока протонов, помещенных в полиэтиленовые пакетики (рис. 1). Облучение образцов проводилось как в виде отдельных “сэндвичей”, так и в виде парных “сэндвичей”. Диаметр всех мишеней был 10.5 мм, толщина образцов – от 0.15 до 0.87 мм [17].

Выделение  $^3\text{H}$  из облученных мишеней проводили с использованием системы автоматизированной пробоподготовки Sample Oxidizer [18]. Для этого были специально разработаны и изготовлены кварцевые тигли для удержания образцов в запальной корзине системы Sample Oxidizer. Облученную мишень вместе с целлюлозной прокладкой помещали в кварцевый тигель, который устанавливали в запальную корзину. После запуска цикла окисления камера герметично закрывалась, в нее подавался кислород, и происходил поджиг. Под действием высокой температуры  $^3\text{H}$  десорбировался из образца и окислялся током кислорода в “три-тиевую” воду, которая затем конденсировалась и смешивалась с жидким сцинтиллятором.

Для оценки полноты выделения  $^3\text{H}$  из образцов проводили повторный цикл окисления в системе Sample Oxidizer, а также в трубчатом окислительном реакторе типа Purolyser, в котором организован более длительный и высокотемпературный (до 900°C) нагрев. Было установлено, что в данных условиях практически полный выход  $^3\text{H}$  достигается за один цикл окисления в системе Sample Oxidizer.

Активность выделенного  $^3\text{H}$  измеряли с использованием низкофонового жидкосцинтилляционного спектрометра Quantilus 1220, обработку измеренных бета-спектров выполняли в программе SpectraDec [19].

## 3. РАСЧЕТ СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ $^3\text{H}$

Расчет независимой скорости реакции образования  $^3\text{H}$   $R_{^3\text{H}}^{\text{ind}}$  и сечений образования  $^3\text{H}$   $\sigma_{^3\text{H}}^{\text{ind}}$  в мишенях проводили по формулам (1) и (2):

$$R_{^3\text{H}}^{\text{ind}} = \frac{A_{^3\text{H}} k_d k_g}{N_{\text{tag}} \lambda_{^3\text{H}} t_{\text{irr}}}, \quad (1)$$

где  $A_{^3\text{H}}$  – активность  $^3\text{H}$ , приведенная к концу облучения, Бк;  $N_{\text{tag}}$  – число ядер металла в образце;  $\lambda_{^3\text{H}}$  – постоянная распада  $^3\text{H}$ ,  $\text{с}^{-1}$ ;  $k_d$  – поправка, учитывающая потери  $^3\text{H}$  за счет его выхода из образца в окружающую среду за время хранения;  $k_g$  – поправка, учитывающая потери ядер  $^3\text{H}$  за счет их вылета из объема образца во время облучения;  $t_{\text{irr}}$  – время облучения, с (так как  $t_{\text{irr}} \ll T_{1/2}^{^3\text{H}} = 12.33$  года, поправкой на распад  $^3\text{H}$  за время облучения можно пренебречь);

$$\sigma_{^3\text{H}}^{\text{ind}} = \frac{R_{^3\text{H}}^{\text{ind}}}{\hat{\Phi}}, \quad (2)$$

где  $\hat{\Phi}$  – плотность потока протонов,  $\text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$ , определенная с помощью мониторингной реакции  $^{27}\text{Al}(p, x)^{22}\text{Na}$ .

Как уже отмечалось выше,  $^3\text{H}$  обладает высокой миграционной способностью, и его диффузия из облученных мишеней в окружающую среду может существенно влиять на надежность результатов. В то же время многие металлы способны взаимодействовать с водородом и удерживать его в течение длительного времени. Расчет потерь  $^3\text{H}$  за время хранения облученных мишеней (поправкой  $k_d$  в формуле (1)) был выполнен с использованием модели, рассматривающей три состояния водорода в равновесии с металлом (газ – хемосорбированный монослой – твердый раствор) и описывающая переходы между этими состояниями аррениусовской кинетикой [20]. Проведенные расчеты показали, что для потери  $^3\text{H}$  в процессе хранения мишеней не превышают  $2.3 \cdot 10^{-4}\%$  от его общего

**Таблица 1.** Измеренные сечения ядерных реакции  $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^3\text{H}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}(p, x)^3\text{H}$ 

Энергия протонов, МэВ	Независимое сечение образования $^3\text{H}$ , $\sigma_{^3\text{H}}^{\text{ind}} \pm \Delta\sigma_{^3\text{H}}^{\text{ind}}$ , мбн		
	$^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$	$^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^3\text{H}$	$^{\text{nat}}\text{W}(p, x)^3\text{H}$
2605 ± 8	40.9 ± 11.8	91.8 ± 8.7	867 ± 98
1599 ± 4	45.6 ± 12.0	93.7 ± 9.2	467 ± 66
1199 ± 3	42.4 ± 8.8	66.2 ± 8.0	378 ± 56
799 ± 2	27.4 ± 10.6	32.3 ± 3.9	271 ± 39
600 ± 2	24.3 ± 8.4	44.1 ± 6.1	197 ± 31
400 ± 2	16.2 ± 5.2	17.7 ± 2.5	113 ± 19
249 ± 1	9.02 ± 3.02	9.66 ± 1.32	49.6 ± 6.4
149 ± 1	9.47 ± 4.76	9.74 ± 1.22	44.1 ± 4.4
99 ± 1	10.6 ± 3.1	4.84 ± 0.62	31.5 ± 4.4
68 ± 1	6.70 ± 2.14	3.59 ± 0.55	18.9 ± 2.4
46 ± 1	5.71 ± 1.77	4.11 ± 0.82	13.1 ± 1.9

количества, присутствующего в образце на момент окончания облучения, а поправка  $k_d$  равна единице с погрешностью не более погрешности измерения активности  $^3\text{H}$ .

Для оценки возможных потерь  $^3\text{H}$  за счет его вылета из мишеней во время облучения в программе MCNP6 с моделью SEM03.03 [21] были вычислены дважды дифференциальные сечения образования ядер  $^3\text{H}$  по углам и энергиям, а также построены спектры ядер  $^3\text{H}$  во всех образцах и  $^{\text{nat}}\text{C}$ , который присутствует в полиэтилене, для каждой из 11-ти энергий протонов в диапазоне от 40 до 2600 МэВ и углов от 0 до 180°. На основании полученных спектров и зависимостей пробега ионов  $^3\text{H}^+$  в металле от их энергии была выполнена оценка возможных потерь  $^3\text{H}$  в образцах во время облучения, которые оказались весьма существенны и достигают 77%. В то же время для реальной геометрии облучаемых мишеней – “сэндвичей” помимо потерь  $^3\text{H}$  из мишени, происходило его дополнительное поступление в нее из предыдущих слоев, которое также должно быть учтено при расчете скорости образования  $^3\text{H}$ .

Для расчета геометрических поправок  $k_g$  в формуле (1) была создана программа, которая позволяет методом Монте-Карло рассчитать количество ядер  $^3\text{H}$ , образовавшихся в образце и остановившихся в нем, основываясь на результатах предварительных расчетов дважды дифференциальных сечений ядер  $^3\text{H}$  и данных о пробеге ионов  $^3\text{H}^+$  в материале.

Результаты определения сечений образования  $^3\text{H}$  в тонких мишенях из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$  представлены в табл. 1.

#### 4. ОЦЕНКА ПРОГНОСТИЧЕСКОЙ СПОСОБНОСТИ ЯДЕРНОЙ МОДЕЛИ SEM03.03

На основании полученных экспериментальных данных о сечениях образования  $^3\text{H}$  была оценена прогностическая способность ядерной модели SEM03.03 [21]. Для количественной оценки ее прогностической способности использовался фактор среднеквадратичного отклонения  $\langle F \rangle$ :

$$\langle F \rangle = 10 \left( \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \lg^2 \left( \frac{\sigma_i^{\text{calc}}}{\sigma_i^{\text{exp}}} \right) \right)^{1/2} = 10 \left( \lg^2 \bar{F} + \lg^2 \sigma(\bar{F}) \right)^{1/2}, \quad (3)$$

где  $\sigma_i^{\text{calc}}$  и  $\sigma_i^{\text{exp}}$  – расчетные и экспериментальные значения сечений образования  $^3\text{H}$ ;  $N$  – число сечений, используемых при сравнении;  $\bar{F}$  – среднее значение логнормального распределения  $\sigma_i^{\text{calc}}/\sigma_i^{\text{exp}}$ , которое характеризуют систематический сдвиг между двумя наборами данных;  $\Delta\bar{F}$  – дисперсия логнормального распределения  $\sigma_i^{\text{calc}}/\sigma_i^{\text{exp}}$ , которая характеризует общий разброс данных.

Фактор среднеквадратичного отклонения  $\langle F \rangle$  сводит двухпараметрическое описание распределения к однопараметрическому, которое более удобно для сравнения данных. Значение фактора  $\langle F \rangle$  близкое к единице указывает на хорошее согласие двух наборов данных.

На рис. 2 и 3 показаны экспериментальные значения сечений образования  $^3\text{H}$  в мишенях из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$ , полученные в настоящей работе и в ранее опубликованных работах, а также результаты моделирования сечений образования  $^3\text{H}$  с помощью ядерной модели SEM03.03. Для каж-

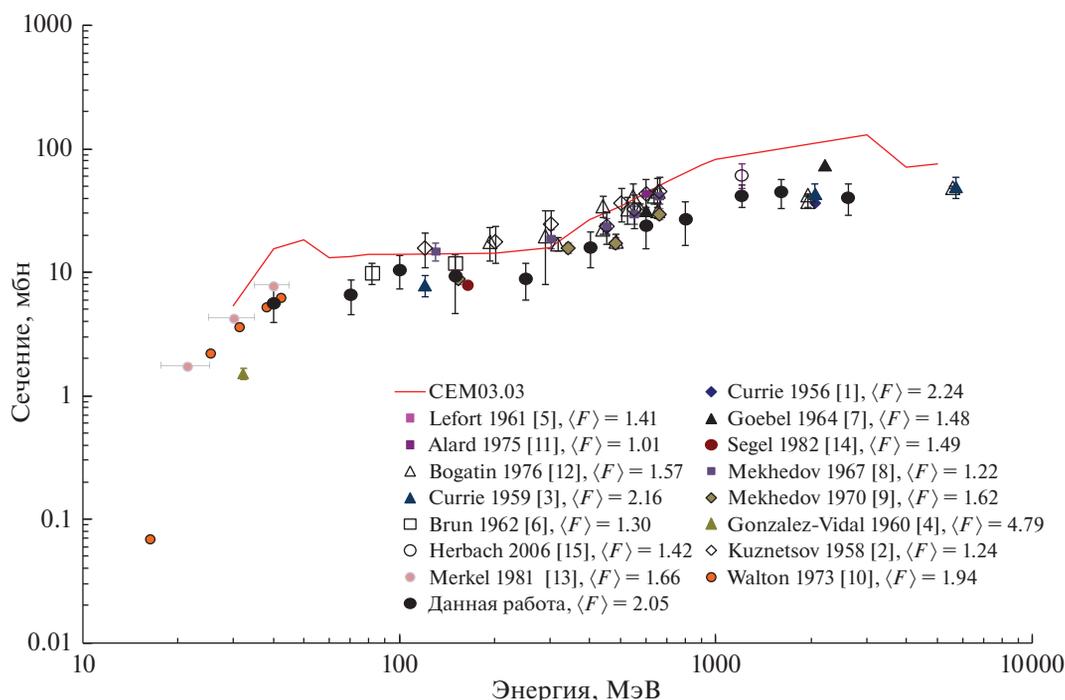


Рис. 2. Рассчитанные сечения и экспериментальные функции возбуждения для реакции  $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$ .

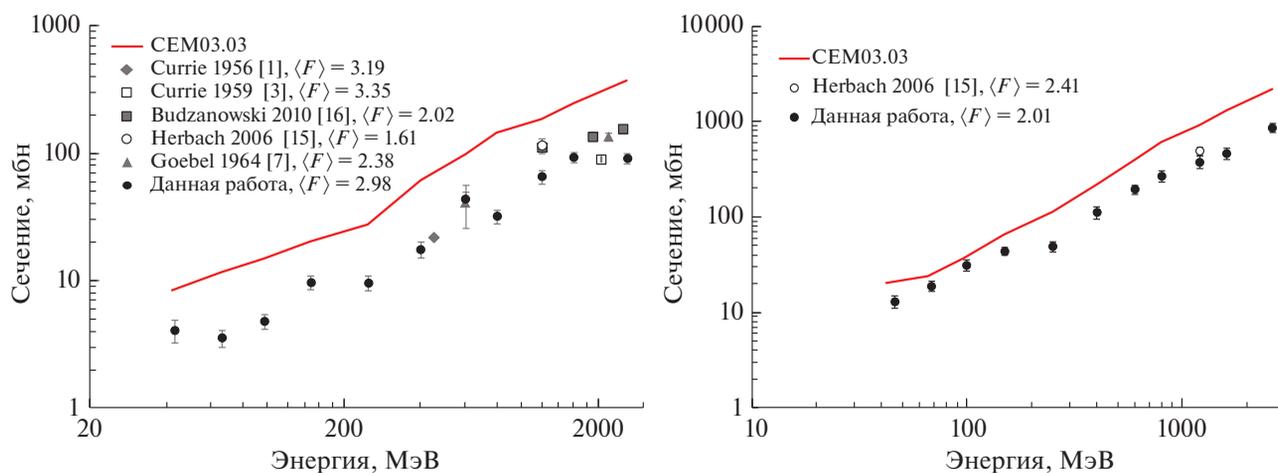


Рис. 3. Рассчитанные сечения и экспериментальные функции возбуждения для реакций  $^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^3\text{H}$  (слева) и  $^{\text{nat}}\text{W}(p, x)^3\text{H}$  (справа).

дой группы экспериментальных данных показаны рассчитанные значения фактора  $\langle F \rangle$ ; для экспериментальных данных, полученных в настоящей работе фактор  $\langle F \rangle$  составил от 2.01 до 2.98.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе получены сечения образования  $^3\text{H}$  в мишенях из  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  и  $^{\text{nat}}\text{W}$  при облучении их

протонами 11-ти энергий в широком диапазоне от 40 до 2600 МэВ. С использованием полученных данных оценена прогностическая способность ядерной модели SEM03.03.

Однако, поскольку при расчете сечений вносимые поправки на потери  $^3\text{H}$  были расчетными, требуется проведение дополнительных экспериментов по их уточнению.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Currie L.A. et al. // Phys. Rev. 1956. V. 101. P. 1557–1563.
2. Kuznetsov V.V. et al. // Sov. Phys. JETP. 1958. V. 35(8). P. 406–409.
3. Currie L.A. // Phys. Rev. 1959. V. 114. P. 878–880.
4. Gonzalez-Vidal J. et al. // Phys. Rev. 1960. V. 120. P. 1354–1359.
5. Lefort M. et al. // Nucl. Phys. 1961. V. 25. P. 216–247.
6. Brun P.C. et al. // J. de Phys. 1962. V. 23. P. 167–172.
7. Goebel K., Schultes H., Zaehring J. // CERN Eur. Org. for Nucl. Res. Rep. 64–12. Geneva. 1964. P. 78.
8. Mekhedov V.N. // Yadernaya fizika. 1967. V. 5. P. 34–36.
9. Mekhedov B.N., Mekhedov V.N. // Yadernaya fizika. 1970. V. 11. P. 708–710.
10. Walton J.R. et al. // J. Geophys. Res. 1973. V. 78. P. 6428–6442.
11. Alard J.P. et al. // Nuovo Cim. A. 1975. V. 30. P. 320–344.
12. Bogatin V.I. et al. // Nucl. Phys. A. 1976. V. 260. P. 446–460.
13. Merkel M. et al. // Radiochim. Acta. 1981. V. 29. P. 173–175.
14. Segel R.E. et al. // Phys. Rev. C. 1982. V. 26. P. 2424–2432.
15. Herbach C.-M. et al. // Nucl. Phys. A. 2006. V. 765. P. 426–463.
16. Budzanowski A. et al. // Phys. Rev. C. 2010. V. 82. P. 034605.
17. Titarenko Yu.E. et al. // Experimental and Theoretical Study of the Residual Nuclide Production in 40–2600 MeV Proton-Irradiated Thin Targets of ADS Structure Materials. <https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-ccp-0453/>.
18. Model 307/387 Sample Oxidizer. Operating Manual. <http://www.pribori.com/spectometria/jid-spekt/sample-oxidizer.html>.
19. Malinovskiy S.V. et al. // Appl. Radiat. Isotopes. 2000. V. 53. P. 303–308.
20. Pisarev A.A., Ogorodnikova O.V. // J. Nucl. Mater. 1997. V. 248. P. 52–59.
21. Mashnik S.G., Kerby L.M. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2014. V. 764. P. 59–81.

## Tritium Production Cross Sections in Accelerator-Driving System Structural Materials

Yu. E. Titarenko<sup>1</sup>, \*, M. V. Chauzova<sup>1</sup>, K.V. Pavlov<sup>1</sup>,  
S. V. Malinovskiy<sup>1</sup>, A. Yu. Titarenko<sup>1</sup>, V. I. Rogov<sup>1</sup>, and V. F. Batyaev<sup>1</sup>

<sup>1</sup>National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

\*e-mail: yury.titarenko@itep.ru

Received December 28, 2020; revised December 30, 2020; accepted January 14, 2021

The results of tritium production cross sections in <sup>27</sup>Al, <sup>nat</sup>Ni and <sup>nat</sup>W thin targets irradiated by protons with energies ranging from 40 to 2600 MeV are presented. These targets have been irradiated at the ITEP accelerator U-10 in the form of single and double metal-aluminum “sandwiches”. Tritium has been extracted from targets using a Sample Oxidizer system and its activity was measured using a ultra low level liquid scintillation spectrometer. To calculate cross sections tritium losses were estimated during irradiation of targets (geometric correction) and during storage (diffusion correction). The values of the tritium production cross sections were used to assess the predictive power of CEM03.03 nuclear model.

**Keywords:** tritium, cross section, accelerator-driving systems, proton beam, liquid scintillation spectrometry, nuclear model, CEM03.03