

**ВЫХОДЫ НЕЙТРОНОВ
ИЗ КОНСТРУКЦИОННЫХ МЕТАЛЛОВ
ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ 2,5 МэВ/нуклон**

Б. Н. Гикал, В. И. Миронов, Ю. Г. Тетерев, В. Ю. Щеголев

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

На циклотронах ЦИТРЕК и ДЦ-110 измерены выходы нейтронов при облучении ионами аргона, криптона и ксенона с энергией 2,4 и 2,5 МэВ/нуклон конструкционных металлов и полимерной пленки. Измерены угловые распределения нейтронов из мишени. Для экстраполяции полученных данных на другие ионы, их энергию и на другие мишени использована программа LISE⁺⁺. Программа была протестирована на экспериментальных данных, найденных в литературе. В результате сравнения установлено, что результаты расчета совпадают с экспериментальными данными в пределах коэффициента 2.

On the cyclotrons CYTRACK and DC-110 neutron yield is measured at an irradiation of constructional metals and a polymeric film by Ar, Kr and Xe ions with energy of 2.4 and 2.5 MeV/nucleon. The angular distributions of neutrons from the target are measured. Program code of LISE⁺⁺ is used for analysis and extrapolation of the obtained experimental data. The program code has been tested on the experimental data found in the literature. As a result of the comparison it is established that results of calculation coincide with experimental data within difference factor of 2.

PACS: 25.70.Jj

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время ускорители тяжелых ионов служат не только для решения научных задач. Большая доля рабочего времени ускорителей отводится для прикладных целей. Более того, создаются ускорители тяжелых ионов, нацеленные только на коммерческое применение. Ускорительный комплекс уже является орудием производства и должен быть оптимизирован по своим параметрам на решение конкретной задачи. Очень важным параметром такого комплекса является его стоимость. Становится актуальной задача создания оптимальной биологической защиты ускорителя, так как она составляет значительную долю стоимости.

Отличительной особенностью создания коммерческих ускорителей является отказ от универсальности. Например, ускорители для производства трековых мембран строятся для ускорения конкретного набора ионов от аргона и тяжелее. Энергия ионов является фиксированной, без возможности ее изменения, как правило, выбирается в диапазоне

от 1 до 5 МэВ/нуклон. В указанном диапазоне радиационные повреждения при прохождении ионов через вещество максимальные.

Биологическая защита ускорителя и установок должна соответствовать диапазону энергий и набору ионов. К сожалению, в указанном диапазоне имеется мало исследований, связанных с радиационным излучением, сопутствующим процессу ускорения ионов и их использования. Можно указать только работы [1–4], в которых изучался выход, угловое распределение, энергетический спектр или мощность дозы от нейтронов, образующихся в реакциях ионов не тяжелее неона с мишениями из конструкционных металлов в диапазоне энергий выше 2–3 МэВ/нуклон. Но для расчета оптимальной защиты этих данных явно недостаточно, и нет данных для более тяжелых ионов.

Необходимость получения данных для расчета биологической защиты циклотрона ДЦ-110 [5], предназначенного для промышленного применения в области нанотехнологий, послужила основанием для проведения представленной работы. На этом циклотроне получены интенсивные пучки (10–15 мкА) ускоренных ионов Ar^{+6} , Kr^{+13} и Xe^{+20} с фиксированной энергией 2,5 МэВ/нуклон. Предварительные данные для расчета биологической защиты были получены в результате исследований, проведенных на облучательном комплексе «Альфа» [6], построенным в Дубне. В состав комплекса входит циклотрон ЦИТРЕК, ускоряющий ионы Ar^{+8} с энергией 2,4 МэВ/нуклон и интенсивностью до 0,2 мкА. После запуска циклотрона ДЦ-110 получены новые данные, а прежние уточнены благодаря существенно лучшей статистической достоверности.

В состав облучательного комплекса входит изохронный циклотрон, система транспортировки выведенного пучка и установка для облучения полимерной пленки.

При проектировании биологической защиты и организации безопасного обслуживания установки наиболее важно знать такие параметры, как:

- 1) выходы нейтронов при взаимодействии ионов с различными материалами;
- 2) угловые распределения нейтронов относительно оси пучка.

ПРИБОРЫ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ

После сдачи в эксплуатацию комплекса «Альфа» было известно, что поток нейтронов в помещении установки невелик, поэтому для измерений выходов нейтронов выбирался детектор с наибольшей чувствительностью. В качестве такого использовался детектор нейтронов СНМ-18 в полиэтиленовом замедлителе. Зависимость функции чувствительности детектора от энергии нейтронов при использовании замедлителей разных размеров изучалась в [7, 8]. Исходя из приведенных в [1, 2] данных по энергетическим спектрам нейтронов при взаимодействии исследуемых ионов с веществом для измерений на обоих ускорителях ЦИТРЕК и ДЦ-110 был выбран детектор с замедлителем диаметром 8 дюймов. Такой детектор имеет максимальную чувствительность как раз в интересующей нас области энергий нейтронов.

Измерения мощности амбиентной дозы нейтронов проводились менее чувствительным, но поверенным дозиметром ДКС-96н. Замедлитель дозиметра имеет диаметр 10 дюймов.

Нейтронные детекторы располагались в медианной плоскости пучка на высоте 1300 мм над уровнем пола из бетона.

МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИЗМЕРЕНИЙ

На действующих коммерческих ускорителях для проведения измерений необходимо адаптироваться к реальным условиям, здесь нет возможности соорудить какие-то дополнительные устройства или установки. Измерения проводились в том же зале, где размещен ускоритель.

При измерении выходов нейтронов и их угловых распределений использован существующий в системе транспортировки пучка блок диагностики, в котором последовательно размещены подвижные многопроволочный профилометр пучка и цилиндр Фарадея. Блок диагностики расположен на расстоянии около 6 м от ускорителя.

С помощью профилометра предварительно измерялись форма и размер пучка ионов. Затем на нем крепилась исследуемая мишень. С использованием системы транспортировки и фокусировки на мишень направлялся и формировался пучок размером 2×3 см, чтобы избежать повышенной локальной тепловой нагрузки. Размер мишени 5×10 см. Ток пучка ионов предварительно измерялся цилиндром Фарадея, когда мишень была выведена. Стабильность тока пучка контролировалась. Установлено, что колебания тока пучка не превышали 5 %.

Как следует из описания условий эксперимента, они не были идеальными. При измерении выходов не было возможности установить какую-либо дополнительную защиту, чтобы выделить конкретный источник нейтронов. Это приводило к тому, что в результаты измерений с помощью детектора, установленного в какой-либо точке, кроме нейтронов из мишени могли дать вклад и нейтроны из других источников, например, из ускорителя или транспортной системы пучка.

Чтобы вклад нейтронов от исследуемой мишени был определяющим, измерения желательно проводить как можно ближе к ней. Но в этом случае размер детектора с замедлителем диаметром 8 дюймов и длиной 40 см становится сравним с расстоянием до источника излучения (R), что приводит к отличию зависимости показаний детектора от закона $1/R^2$. В этом случае для получения данных в абсолютных единицах необходимо проводить калибровку показаний детектора в каждой точке измерений.

Калибровка была сделана путем установки Ru–Be-источника с выходом нейтронов $(1 \pm 0,1) \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$ на место мишени при выключенном ускорителе. Были проведены измерения счета детекторов в точках на расстояниях 1, 2 и 3 м от мишени под углом 90° к оси пучка и на расстоянии 2 м под другими углами. При этом автоматически достигался учет влияния на результаты измерения ослабления и рассеяния нейтронов всем окружающим источник веществом.

На циклотроне ДЦ-110 в этих же точках при облучениях ионами Ag, Kr и Xe был измерен вклад нейтронов от других, исключая мишень, источников, для чего на место мишени была установлена пластина из tantalа. Пороговая энергия для ядерной реакции на tantalе около 5 МэВ/нуклон, и выход нейтронов из такой мишени при энергии 2,5 МэВ/нуклон пренебрежимо мал. В результате установлено, что при измерении выходов нейтронов из исследуемых мишеней вклад нейтронов от других источников в худшем случае не превышал 10 %, тем не менее этот вклад всегда вычитался из результатов измерений. Можно отметить, что зависимость результатов от расстояния до мишени хорошо повторяет зависимость результатов измерения с Ru–Be-источником нейтронов. Этим демонстрируется факт, что вклад нейтронов от других источников измерен с достаточной точностью.

На пучках ионов Ar, Kr и Xe с энергией 2,5 МэВ/нуклон были проведены измерения с мишенями из Be, C, Al и Cu. На пучке аргона был дополнительно исследован выход нейтронов из мишени из нержавеющей стали 12Х18Н10Т, поскольку это наиболее распространенный конструктивный материал на ускорителях. Измерения потока нейтронов проводились под углами 30, 45, 60, 90, 135 и 150° к оси пучка.

На облучательном комплексе «Альфа» проведено измерение выхода нейтронов при облучении полимерной пленки ионами аргона. На циклотроне ДЦ-110 такие исследования не проводились.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Полный выход нейтронов рассчитывался путем интегрирования угловых распределений, измеренных в доступной области углов. Как показано в [2, 3], угловое распределение нейтронов при бомбардировке тяжелыми ионами удовлетворительно описывается полуэмпирической формулой:

$$f(\theta) = \left(4\pi \left(\gamma + \sin^2 \frac{\theta}{2} \right) \ln \left(1 + \frac{1}{\gamma} \right) \right)^{-1}, \quad (1)$$

где θ есть угол к оси пучка, а γ — параметр, который нужно определять экспериментально для каждого конкретного иона, его энергии и вещества мишени. Для описания измеренных угловых распределений с помощью формулы (1) параметр γ подбирался по результатам измерений под углами 30, 45, 60 и 90°. При облучении мишеней из Al и Cu описание распределений формулой (1) удовлетворительно в области всех углов. В случае же мишеней из Be и C результаты измерений удовлетворительно описываются формулой (1) в области передних углов, но в области задних углов в экспериментах наблюдается изотропное распределение, не соответствующее расчетам по формуле (1).

В табл. 1 приведены параметры γ , подобранные из эксперимента для описания угловых распределений в передние углы для всех измеренных сочетаний пучков и мишеней. С уменьшением параметра γ угловое распределение становится более узконаправленным. Для сравнения распределений и наглядного восприятия в скобках приведены рассчитанные по формуле (1) при данном параметре γ отношения потока нейтронов под 0° к потоку под 90°.

Таблица 1. Коеффициент γ в формуле углового распределения:

$$F(\theta) = \frac{1}{4\pi(\gamma + \sin^2 \theta/2) \ln(1 + 1/\gamma)}, F(0^\circ)/F(90^\circ)$$

Мишень	Ион пучка		
	$^{40}\text{Ar}^{+6}$	$^{86}\text{Kr}^{+13}$	$^{132}\text{Xe}^{+20}$
Be	0,11(5,5)	0,1(6,0)	0,3(2,7)
C	0,14(4,6)	0,25(3,0)	0,25(3,0)
Al	0,3 (2,7)	0,4 (2,2)	0,3 (2,7)
Cu	0,9 (1,5)	—	—

В табл. 2 приведены результаты измерений выходов нейтронов, полученные путем интегрирования угловых распределений. Кроме того, в результате экспериментов установлено, что выход нейтронов из полимерной пленки практически таков же, как из чистого графита.

Таблица 2. Выходы нейтронов (нейtron/ион) из толстой мишени

Мишень	Ион пучка		
	$^{40}\text{Ar}^{+6}$	$^{86}\text{Kr}^{+13}$	$^{132}\text{Xe}^{+20}$
Be	$(9,3 \pm 3) \cdot 10^{-5}$	$(3,5 \pm 1,2) \cdot 10^{-6}$	$(2,2 \pm 0,7) \cdot 10^{-6}$
C	$(2,6 \pm 0,9) \cdot 10^{-5}$	$(1,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-8}$	$(3,3 \pm 1,1) \cdot 10^{-8}$
Al	$(7,5 \pm 2,5) \cdot 10^{-6}$	$(7,7 \pm 0,3) \cdot 10^{-9}$	$(2,5 \pm 0,8) \cdot 10^{-8}$
Cu	$(1,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-6}$	$< 5 \cdot 10^{-10}$	$< 5 \cdot 10^{-10}$
Нержавеющая сталь 12Х18Н10Т	$(2,6 \pm 0,9) \cdot 10^{-6}$	—	—

Ошибка при измерении выходов нейтронов обусловлена главным образом тем обстоятельством, что функция чувствительности используемого детектора зависит от энергии нейтронов. Спектры же измеряемых потоков зависят от угла вылета нейтронов из мишени, вещества мишени и частиц пучка. Кроме того, спектры нейтронов, вылетающих из мишеней, отличаются от спектра источника Pu–Be, использованного для калибровки.

Для оценки ошибки проведены дополнительные измерения угловых распределений эквивалентной дозы при облучении ионами аргона бериллиевой и графитовой мишеней. Измерения сделаны с помощью дозиметра ДКС-96н на расстоянии 2 м от мишени. Интенсивности потока нейтронов из этих мишеней было вполне достаточно, чтобы достичь статистической ошибки измерения менее 5 %. Эти мишени являются наиболее легкими, и для них зависимость спектра нейтронов от угла к оси пучка наиболее ярко выражена. Здесь дозиметр использовался только как детектор в полиэтиленовом замедлителе диаметром 10 дюймов, имеющий другую функцию чувствительности от энергии нейтронов. Для нормирования показаний дозиметра использовался тот же источник Pu–Be с выходом нейтронов $(1 \pm 0,1) \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$, установленный на место мишени.

Результаты измерений также были описаны с помощью функции (1). Параметр γ в этих измерениях составлял 0,072 и 0,1 для углового распределения с бериллиевой и углеродной мишнями соответственно. Уменьшение параметра объясняется смещением функции чувствительности дозиметра, имеющего замедлитель с большим диаметром, в область более высоких энергий [8]. В этих измерениях также наблюдалась изотропия выхода нейтронов в заднюю полусферу. Путем интегрирования измеренных распределений был определен выход нейтронов из облучаемых мишеней. Результаты этих измерений совпали с результатами предыдущих измерений, сделанных с помощью детектора нейтронов СНМ-18 в полиэтиленовом замедлителе, в пределах 3 %.

На основании такого сравнения сделан вывод, что ошибка всех наших измерений того же порядка, что и ошибка при измерении дозиметром. Как указано в описании прибора ДКС-96н, она составляет 25 %. Такую же величину ошибки приводят и авторы [3] применительно к измерению выхода нейтронов при бомбардировке мишени тяжелыми ионами с помощью детекторов, окруженных замедлителем.

Кроме того, в результаты измерений вносится ошибка, связанная с неопределенностью выхода нейтронов Pu–Be-источника, ошибка стабильности тока пучка и статистическая. Общая ошибка измерения оценивается как $\pm 30 \%$.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ПО ИЗМЕРЕНИЮ ВЫХОДОВ НЕЙТРОНОВ

Для проверки достоверности полученных результатов желательно сопоставить их с данными других измерений, но в литературе нами не найдено ни одного из исследуемых сочетаний мишени, иона и его энергии. Мы не могли также воспользоваться рекомендуемыми в [2] формулами для экстраполяции. В этой работе изначально принято, что выход нейтронов не зависит от материала мишени. Мы же наблюдаем обратную ситуацию. Для сопоставления наших данных с данными из литературы и возможностью экстраполяции на другие энергии или другие ионы были проведены расчеты выходов нейтронов с использованием программы LISE⁺⁺ [9]. Это довольно универсальная программа, в которой, в частности, имеется опция для расчета сечения образования нейтронов и других легких частиц в реакциях с ускоренными ионами. В программе учитываются индивидуальные особенности взаимодействующих ядер.

Образование нейтронов в рассматриваемой области энергий происходит в результате реакции слияния и последующего испарения из возбужденного ядра. Расчеты проводились по последовательным слоям мишени, в которых исследуемый ион терял одинаковую порцию своей энергии ΔE . Толщина i -го слоя $t_i = \Delta E / (dE/dX)_i$, где $(dE/dX)_i$ — дифференциальные потери энергии, принятые для этого слоя постоянными и равными потерям при энергии E_i при входе в слой. Постоянным также принимается и сечение образования нейтронов σ_{ni} в слое. Толщина мишени выбиралась довольно малой, примерно равной 0,1 мг/см², чтобы избежать зависимости сечения от толщины мишени, так как в программе LISE⁺⁺ предполагается, что реакция имеет место в середине мишени.

Выход нейтронов Y_i из слоя рассчитывался по формуле

$$Y_i(E_i) = N_{\text{я}} \sigma_{ni} t_i,$$

где $N_{\text{я}}$ — плотность ядер (см⁻³) вещества мишени. Полный выход нейтронов из толстой мишени определялся суммированием по всем слоям, в которых происходили последовательные потери энергии.

На рис. 1 приведены выходы нейтронов при облучении ионами аргона, полученные на ускорителе ДЦ-110, в сравнении с результатами расчетов по программе LISE⁺⁺. Результаты расчета на рисунках приведены в виде линий и обозначены знаком, например, Y(AL), где в скобках отмечен материал мишени. Экспериментальные значения представлены точками с обозначением материала мишени.

Программа LISE⁺⁺ была использована и для расчета выходов нейтронов в реакциях, в которых измерены выходы в [1]. Полные выходы из данных [1] получены путем того, что значения, измеренные под углами 0 и 90°, были умножены на соответствующие коэффициенты, учитывающие угловое распределение, согласно формуле (1).

В результате сравнения расчетных и экспериментальных данных было сделано заключение, что совпадение результатов расчета и эксперимента находится в пределах коэффициента 2. Исключение составили только измерения на пучках Li.

В качестве примера на рис. 2 приведены измеренные в [1] выходы нейтронов из Al в сравнении с результатами, полученными расчетным путем по программе LISE⁺⁺. Там же приведены измеренные на ускорителе ДЦ-110 выходы нейтронов из алюминия при бомбардировке пучком Ar в сравнении с расчетами по программе LISE⁺⁺.

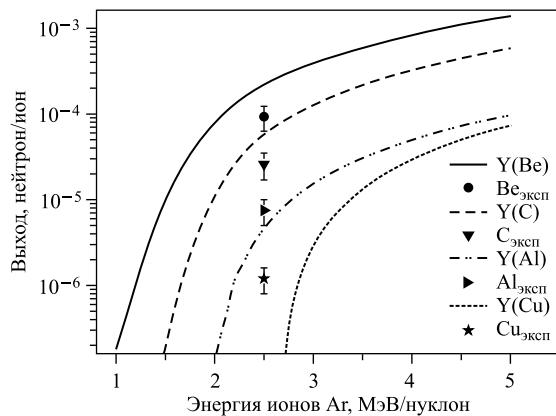


Рис. 1. Выходы нейтронов при бомбардировке ионами аргона в зависимости от энергии. Y(Be), Y(C), Y(Al) и Y(Cu) — выходы нейтронов при бомбардировке мишней из бериллия, углерода, алюминия и меди, рассчитанные по программе LISE⁺⁺, точки — экспериментальные значения, полученные на ускорителе ДЦ-110

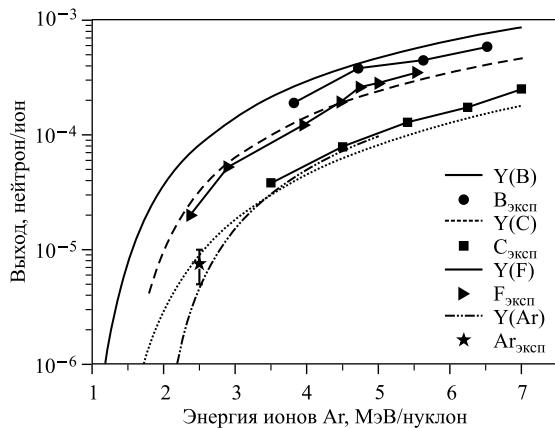


Рис. 2. Выходы нейтронов при бомбардировке мишени из Al пучками ионов бора, углерода, фтора и аргона в зависимости от энергии. Y(B), Y(C), Y(F) и Y(Ar) — выходы нейтронов при бомбардировке мишени из алюминия ионами бора, углерода, фтора и аргона, рассчитанные по программе LISE⁺⁺, точки — экспериментальные значения из [1] и значение для аргона, полученное на ускорителе ДЦ-110

Результаты этих сравнений можно рассматривать в качестве теста, демонстрирующего, насколько пригоден для сравнений или экстраполяции наших данных принятый метод расчета. Можно сделать заключение, что в области энергии ионов выше порога реакции расчеты по программе LISE⁺⁺ позволяют решить эту задачу в пределах коэффициента 2.

В области самого порога результаты могут отличаться существенно, как, например, в реакции аргона с медью. В пользу того, что мы наблюдаем реакцию именно с ядрами меди, а не с возможными легкими примесями, служит малая направленность излучения на ось пучка (см. табл. 1).

ВТОРИЧНЫЕ ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ

При анализе приведенных в табл. 2 данных по выходу нейтронов обращает на себя внимание тот факт, что нейтроны были зарегистрированы при облучении мишени пучком ионов в сочетаниях, при которых из-за кулоновского барьера при энергии 2,5 МэВ/нуклон невозможны прямые ядерные реакции, например, между Xe и Al.

Наше объяснение заключается в том, что мы наблюдаем вторичные ядерные реакции. При энергиях ниже кулоновского барьера с большим сечением происходит упругое рассеяние ядер мишени на бомбардирующих ядрах. Сечение упругого рассеяния описывается формулой Резерфорда. Для ядер отдачи в л. с. это сечение имеет вид

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_R = 5,185 \cdot 10^{-27} \frac{[z_1 z_2 (m_1 + m_2) / m_1 m_2 E_1]^2}{\cos^3 \theta_2},$$

где E_1 , m_1 и z_1 — энергия (МэВ/нуклон), масса (а. е. м.) и атомный номер налетающего иона; m_2 , z_2 и θ_2 — масса, атомный номер и угол вылета ядра отдачи. Единица сечения Резерфорда — см². Энергия (МэВ/нуклон) ядра отдачи E_2 определяется соотношением

$$E_2 = 4 \left(m_1 \frac{\cos \theta_2}{m_1 + m_2} \right)^2 E_1.$$

Довольно большая доля рассеянных ядер мишени приобретает энергию значительно выше пороговой для взаимодействия с покоящимися ядрами мишени. В результате этого происходят реакции слияния с вылетом нейтронов и других частиц.

Такое объяснение хорошо подтверждается наблюдаемым нами ростом выхода нейтронов с ростом массы бомбардирующего иона m_1 , например, при бомбардировке мишней из C и Al пучками Kr и Xe. Угловая анизотропия тоже примерно такая же, как в реакции при взаимодействии ядер с близкими массами, например, Ar и Al. Кроме того, анизотропия снижается за счет того, что в реакциях участвуют и ядра, рассеянные на некоторый угол.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Измерены выходы нейтронов при облучении ионами аргона, криптона и ксенона с энергией 2,4 и 2,5 МэВ/нуклон конструкционных металлов и полимерной пленки. Измерены угловые распределения нейтронов из мишени.

Для экстраполяции полученных данных на другие ионы, их энергию и на другие мишени использована программа LISE⁺⁺. Программа была протестирована на экспериментальных данных, найденных в литературе. В результате сравнения установлено, что результаты расчета совпадают с экспериментальными данными в пределах коэффициента 2.

Авторы благодарны сотрудникам облучательного комплекса «Альфа» и ускорителя ДЦ-110 за предоставленную возможность проведения измерений и обеспечение бесперебойной работы ускорителей.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sunil C. et al.* Neutron Yield and Dose Equivalent from Heavy Ion Interactions on Thick Target // Nucl. Instr. Meth. A. 2004. V. 534. P. 518–530.
2. *Clapier F. B., Zaidins C. S.* Neutron Dose Equivalent Rates due to Heavy Ion Beams // Nucl. Instr. Meth. 1983. V. 217. P. 489–494.
3. *Aleinikov V. E. et al.* Neutron Radiation Field due to 6.6 MeV/amu ^{58}Ni Ions Bombarding a Thick Cu Target // Rad. Protection Dosimetry. 1985. V. 11, No. 4. P. 245–248.
4. *Ohnesorge W.F. et al.* Heavy Ion Target Area Fast Neutron Dose Equivalent Rates // Health Phys. 1980. V. 39. P. 633–636.
5. Гикал Б. Н. и др. Проект циклотрона тяжелых ионов ДЦ-110 для промышленного применения и прикладных исследований в области нанотехнологий. Препринт ОИЯИ Р9-2009-111. Дубна, 2009.
6. Аленицкий Ю. Г. и др. Разработка и создание облучательного комплекса «Альфа» для производства трековых мембран. Препринт ОИЯИ Р9-2004-5. Дубна, 2004; АЭ. 2004. Т. 97, вып. 1. С. 34–40.
7. *Mares V., Schraube G., Schraube H.* Calculated Neutron Response of Bonner Sphere Spectrometer with ^3He Counter // Nucl. Instr. Meth. 1991. V. 307. P. 398–412.
8. *Мартинкович Й., Тимошенко Г. Н.* Расчет функций чувствительности многосферного спектрометра нейтронов. Препринт ОИЯИ Р16-2005-105. Дубна, 2005.
9. *Tarasov O. B., Bazin D.* LISE⁺⁺: Radioactive Beam Production with In-flight Separators // Nucl. Instr. Meth. B. 2008. V. 266. P. 4657–4664.

Получено 4 июля 2013 г.