

УДК 621.384

**ВКЛАД РЕЗОНАНСНЫХ НЕЙТРОНОВ В АКТИВАЦИЮ МОЛИБДЕНА НА НЕЙТРОННОМ ГЕНЕРАТОРЕ****А.Н. Довбня<sup>1</sup>, В.А. Цымбал<sup>1</sup>, Н.Д. Масалитин<sup>1</sup>, С.А. Письменецкий<sup>2</sup>,  
А.Ф. Стоянов<sup>1</sup>, Д.Ю. Шахов<sup>1</sup>**<sup>1</sup>Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»,  
ул. Академическая, 1, 61108, г. Харьков, Украина<sup>2</sup>Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина  
пл. Свободы, 4, 61077, г. Харьков, УкраинаE-mail: [wind@kipt.kharkov.ua](mailto:wind@kipt.kharkov.ua)

Поступила в редакцию 5 октября 2009 г.

Рассмотрено взаимодействие нейтронов, создаваемых нейтронным Be(d,n)-генератором и специальным мишенным устройством из массивного бериллия, с образцом из молибдена. Количественные оценки выполнены на основе решения уравнения возраста для точечного источника быстрых нейтронов, энергий и сечений резонансов радиационного захвата молибденом. Учтено влияние температуры Mo-мишени на форму резонансов (доплеровское уширение). На основе расчетов оценен вклад резонансных нейтронов в полный выход (n,γ) реакции на <sup>98</sup>Mo, который в рассмотренных условиях составляет около 35%. Такое влияние резонансных нейтронов обусловлено как зависимостью (n,γ)-сечения <sup>98</sup>Mo от энергии, так и спектром нейтронов, формируемым массивным Be-замедлителем из быстрых нейтронов.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** генератор нейтронов, мишень-замедлитель, бериллий, радиационный захват, вклад резонансов, уравнение возраста, уширение резонансов.

**THE CONTRIBUTION OF RESONANT NEUTRONS TO MOLYBDENUM ACTIVATION IN THE NEUTRON GENERATOR****A.N. Dovbnja, V.A. Tsybmal, N.D. Masalitin, S.A. Pismenetskiy, A.F. Stoyanov, D.Y. Shahov<sup>1</sup>**<sup>1</sup>National Scientific Center, Kharkov Institute of Physics and Technology

Akademicheskaja st., 61108, Kharkiv, Ukraine

<sup>2</sup>V.N. Karazin Kharkov National University

Svoboda sq.4, 61077, Kharkiv, Ukraine

Interaction of the neutrons created by neutron Be (d, n) - generator and special target device from beryllium, with the sample from molybdenum is considered. Quantitative estimations are executed on the basis of the decision of the equation of age for a dot source of fast neutrons, energy and sections of resonances of radiating capture by molybdenum. Influence of temperature of the Mo-target on the form of resonances (Doppler broadening) is considered. On the basis of calculations the contribution of resonant neutrons to a full exit (n, γ) reactions on <sup>98</sup>Mo which in the considered conditions makes about 35 % is estimated. Such influence of resonant neutrons is caused by dependence (n, γ)- sections <sup>98</sup>Mo from energy, and the spectrum of neutrons formed by massive Be-moderator from fast neutrons.

**KEY WORDS:** the generator of neutrons, a target- moderator, beryllium, radiating capture, the contribution of resonances, the age equation, broadening of resonances.

**ВНЕСОК РЕЗОНАНСНИХ НЕЙТРОНІВ ДО АКТИВАЦІЇ МОЛІБДЕНУ НА НЕЙТРОННОМУ ГЕНЕРАТОРІ****А.Н. Довбня<sup>1</sup>, В.О. Цимбал<sup>1</sup>, Н.Д. Масалітін<sup>1</sup>, С.О. Письменецький<sup>2</sup>, О.Ф. Стоянов<sup>1</sup>, Д.Ю. Шахов<sup>1</sup>**<sup>1</sup>Національний Науковий Центр «Харківський Фізико-Технічний Інститут»

вул. Академічна, 1, 61108, м. Харків, Україна

<sup>2</sup>Харківський Національний Університет ім. В.Н. Каразіна

майдан Свободи, 4, 61077, м. Харків, Україна

Розглянуто взаємодію нейтронів, що створюються нейтронним Be(d,n)-генератором і спеціальним мішенним пристроєм з массивного берилію, із зразком з молибдену. Кількісні оцінки виконано на підставі розв'язання рівняння віку для точкового джерела швидких нейтронів, енергій та перерізів радіаційного захоплення молибденом. Ураховано вплив температури Mo-мішені на форму резонансів (доплерівське уширення). На підставі розрахунків оцінено внесок резонансних нейтронів на загальний вихід (n,γ) реакції на <sup>98</sup>Mo, котрий у даних умовах складає біля 35%. Такий вплив резонансних нейтронів обумовлено як залежністю (n,γ)-перерізу <sup>98</sup>Mo від енергії, так і спектром нейтронів, який формується массивним Be-уповільнювачем зі швидких нейтронів.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** генератор нейтронів, мішень-уповільнювач, берилій, радіаційне захоплення, внесок резонансів, рівняння віку, уширення резонансів.

Реакция радиационного захвата нейтронов наиболее часто используется для получения радиоизотопов медицинского назначения, в частности, <sup>99</sup>Mo как генератора короткоживущего <sup>99m</sup>Tc. При получении <sup>99</sup>Mo в реакторе скорость его наработки оценивается как 10<sup>-5</sup> на один атом исходного <sup>98</sup>Mo за сутки при потоке нейтронов 10<sup>14</sup> н/(см<sup>2</sup>с). Однако реакторное производство подобных изотопов далеко не всегда целесообразно, в связи с чем активно продвигается идея получения данного изотопа на достаточно компактных нейтронных генераторах, не требующих больших затрат на возведение биологической защиты. Особенности работы Be

(d,n)-нейтронного генератора, использующего толстую Ве- мишень и пучок дейтронов с энергией 2,5МэВ, были рассмотрены авторами в [1]. Целью настоящей работы является оценка вклада резонансных нейтронов в активацию  $^{98}\text{Mo}$  на Ве(d,n)-нейтронном генераторе специальной конструкции.

### ПРОЦЕДУРА РАСЧЕТА ВКЛАДА РЕЗОНАНСНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

В целом зависимость сечения радиационного захвата нейтронов ядрами  $^{98}\text{Mo}$  от энергии имеет вид типичный для средних и тяжелых ядер и содержит 2 области: область типа  $1/v$  (на Рис. 1 полностью не представлена) и область резонансов (рис. 1) [2].

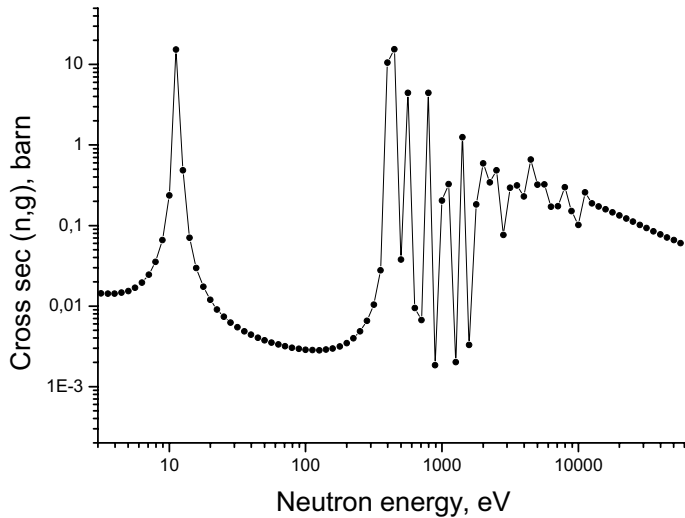


Рис. 1. Сечение радиационного захвата нейтронов как функция энергии.

Как видно, сечение радиационного захвата тепловых нейтронов ядрами  $^{98}\text{Mo}$  гораздо меньше сечений в максимумах отдельных резонансов, в то время, как основная часть потока нейтронов - именно тепловые (полагаем, что жесткость спектра нейтронов достаточно мала), потому для полной оценки эффективности активации на нейтронном генераторе необходимо учесть влияние всех групп нейтронов в соответствии со спектром, который формируется в замедляющих структурах мишенного устройства нейтронного генератора. Для этого, во-первых, необходимо знать энергии и ширины нейтронных резонансов  $^{98}\text{Mo}$  и, во-вторых, плотность потока нейтронов при энергиях этих резонансов.

Рассмотрим для начала поглощение нейтронов изолированным резонансом, следуя основным формулам и обозначениям работы

[3]. Будем полагать, что распределение по скоростям ядер молибдена- максвелловское  $F(V)$ . Тогда:

$$F(V) = \sqrt{\frac{mA}{2\pi \cdot kT}} e^{-\frac{mA}{2kT}v^2} \quad (1)$$

Резонансное сечение при этом будет зависеть от температуры следующим образом:

$$\sigma(E) = \sigma_0 \frac{\Gamma}{\pi} \sqrt{\frac{E_r}{E}} \sqrt{\frac{mA}{2\pi \cdot kT}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{mA}{2kT}V^2} \frac{\Gamma^2 dV}{\Gamma^2 + 4(E_r - E')^2}, \quad (2)$$

где

- $\Gamma$ - ширина резонанса,
- $E$  - энергия нейтрона в системе центра масс,
- $E_r$ - энергия резонанса,
- $E$ - энергия нейтрона в лабораторной системе,
- $m$ - масса нейтрона,
- $A$ - массовое число замедлителя,
- $\sigma_0$ - сечение резонанса,
- $v, V$ - скорости нейтрона и ядра  $^{98}\text{Mo}$  до столкновения.

Очевидно:

$$E' = E - m'vV + \frac{m'v^2}{2}, \quad m' = m \frac{A}{1+A} \quad (3)$$

Это позволяет получить следующую оценку (в оценке полагаем что энергия нейтрона порядка тепловой, что соответствует оценке соотношения слагаемых (3) сверху):

$$\frac{m'V^2}{2m'vV} = \sqrt{\left(\frac{V}{v}\right)^2} = \sqrt{\frac{1}{A} \frac{E_{\text{ядра}}}{E_{\text{нейтрона}}}} \sim \sqrt{\frac{1}{9} \cdot \frac{300 \cdot 10^{-23}}{0,1 \cdot 10^{-19}}} \sim 0,15. \quad (4)$$

Поэтому можно в дальнейшем положить:

$$E' = E - \sqrt{2m'E}V. \quad (5)$$

Обозначим:

$$\frac{2}{\Gamma}(E' - E_r) = y, \quad \frac{2}{\Gamma}(E - E_r) = x, \quad \Delta = \sqrt{\frac{kTE}{A}} \cong \sqrt{\frac{kTE_r}{A}}, \quad \zeta = \frac{\Gamma}{\Delta} = \frac{\Gamma\sqrt{A}}{\sqrt{kTE_r}}. \quad (6)$$

В обозначениях (6) величину  $\Delta$  называют доплеровской шириной уровня, а параметр  $\zeta$  характеризует влияние температуры на форму резонансной кривой. Так, при малых температурах  $\zeta \gg 1$  и форма резонансной кривой приближается к естественной, а при высоких температурах  $\zeta \rightarrow 0$ , и форму кривой называют чисто доплеровской. Учитывая (6), можно написать:

$$\sigma(E) = \sigma(x) = \sigma_0 \sqrt{\frac{E_r}{E}} \Psi(x, \zeta) = \sigma_0 \sqrt{\frac{E_r}{E}} \frac{\zeta}{2\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{\zeta^2}{4}(x-y)^2}}{1+y^2} dy. \quad (7)$$

Отметим следующее. Формула (7) подразумевает подстановку величин резонансного сечения и ширины резонанса для неподвижного ядра, т.е. при абсолютном нуле температуры.

На рис. 2 приведены графики  $F(x, \zeta) = \frac{\zeta}{2\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{\zeta^2}{4}(x-y)^2}}{1+y^2} dy$  для трех случаев:  $\zeta \rightarrow \infty$  ( $F_0(x) = F(\infty, x)$ ),

$\zeta = 10$  и  $\zeta = 3$ .

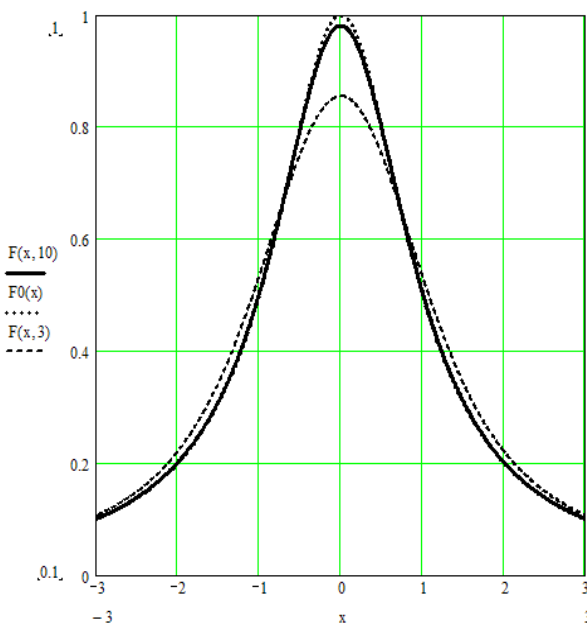


Рис. 2. Изменение формы резонанса сечения захвата нейтронов  $^{98}\text{Mo}$  при разных значениях параметра  $\zeta$ .

Количество реакций в единице массы молибдена в единицу времени:

$$W = \frac{\lambda}{4\rho \cdot \xi} \frac{Qn_0}{(4\pi \cdot r)^2} e^{-\frac{r^2}{4\tau}} \sigma_0 \frac{\Gamma}{E_r} \int_{-\infty}^{\infty} F(x, \zeta) dx = 5 \cdot 10^6 \frac{\text{реакций}}{\text{г} \cdot \text{с}}. \quad (9)$$

В частности, если  $\zeta \ll 1$  (что соответствует высоким температурам), то:

$$W = \frac{\lambda\pi}{4\rho \cdot \xi} \frac{Qn_0}{(4\pi \cdot r)^2} e^{-\frac{r^2}{4\tau}} \sigma_0 \frac{\Gamma}{E_r}. \quad (10)$$

Здесь:  $\Gamma$ - ширина резонанса (около 0,2 эВ),  $T$ - температура в системе (будем полагать, что  $T$ - около 300<sup>0</sup> К),  $E_r$ - энергия резонанса (около 12 эВ),  $\sigma_0$ - резонансное сечение (около 60 б),  $n_0 = 6,22 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ - концентрация ядер природного молибдена,  $r = 5 \text{ см.}$ - характерное предполагаемое расстояние от источника образования нейтронов до облучаемого образца,  $Q$ - количество нейтронов, производимых нейтронным генератором в секунду,  $\Phi_0$ - плотность потока тепловых нейтронов в рабочей зоне нейтронного генератора. Количество реакций в секунду на единицу массы природного молибдена, обусловленное тепловыми нейтронами, равно:

$$W_0 = \frac{1}{4 \cdot \rho} n_0 \cdot \Phi_0 \cdot \sigma_0 = 8,2 \cdot 10^7 \frac{\text{реакций}}{\text{г} \cdot \text{с}}. \quad (11)$$

Таким образом, добавка к поглощению тепловых нейтронов за счет первого резонанса (12,1 эВ)- около 10%. Рассмотрим далее влияние других резонансов реакции ( $n\gamma$ ) на ядрах  $^{98}\text{Mo}$ . Используем базу данных сечений ENDF/B-VI [4]. Общая картина резонансов приведена на рис. 3.

Данных в базе достаточно для того, чтобы определить ширину каждого резонанса (полагаем, что сечения приведены без учета эффекта Доплера). Для того, чтобы применить формулу оценки количества актов реакции

Рассчитаем вклад резонансных нейтронов в реакцию с молибденом в случае первого резонанса (энергия  $E_r = 12,1$  эВ). Будем полагать, что замедление и дрейф тепловых нейтронов происходят внутри бериллиевого блока с размерами порядка длины замедления. Легко показать, что окружение блока из бериллия слоем графита для увеличения полного размера замедляющего блока не вносит существенных изменений в расчеты.

Определим возраст нейтронов, соответствующий энергии первого резонанса, при условии, что длина пробега в интервале (0,025-10) эВ меняется слабо. Исходя из известного значения возраста тепловых нейтронов  $\tau_0 = 90 \text{ см}^2$ , находим:

$$\tau = \tau_0 - \frac{1}{3\xi} \int_{\ln 0,025}^{\ln 10} \lambda^2 d\eta = \tau_0 - \frac{\lambda^2}{3\xi} \ln \frac{10}{0,025} = 72,3. \quad (8)$$

Далее можно получить для сечения и параметра  $\zeta$  следующие оценки:

$$\zeta = \frac{\Gamma}{\Lambda} = \frac{\Gamma\sqrt{A}}{2\sqrt{kT \cdot E_r}} \sim \frac{0,2 \cdot 3}{\sqrt{2 \cdot 10^{-2} \cdot 10}} \sim 1. \quad (9)$$

в единице объема к каждому из резонансов, необходимы следующие данные:

- 1) энергия резонанса  $E_r$  (эВ),
- 2) ширина резонанса  $\Gamma$  (эВ),
- 3) возраст нейтронов для энергии каждого резонанса ( $\text{см}^2$ ).
- 4) длина пробега нейтронов  $\lambda$  в области торможения для энергии каждого из резонансов (полагаем, что торможение осуществляется в одном материале- например, бериллии или графите).

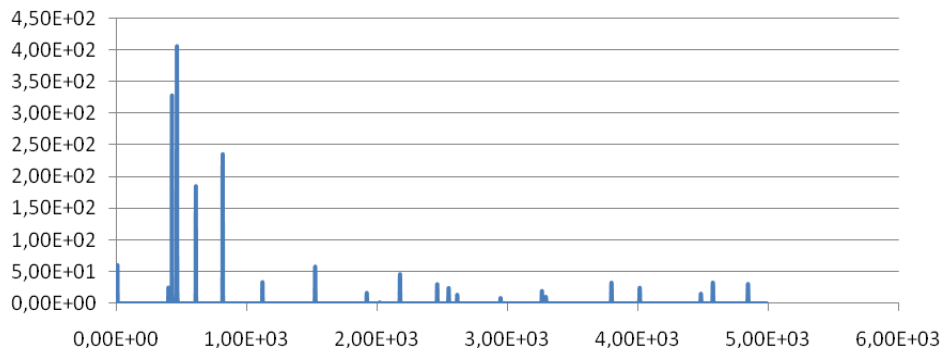


Рис. 3. Положения и сечения в максимуме резонансов реакции  $(n,\gamma)$  на ядрах  $^{98}\text{Mo}$ . Ось абсцисс- энергия в эВ, по оси ординат- сечение в максимуме резонанса, барн.

Данные (1) и (2) были вычислены на основе базы данных ENDF/B-VI. Данные (3) и (4) касаются характеристик замедления нейтронов в рабочей зоне нейтронного генератора (в данном случае, в бериллиевом блоке).

Имеющиеся в литературе макроскопические сечения и диффузионные характеристики [3] позволяют получить численную оценку вклада резонансного поглощения в полное сечение захвата нейтронов  $^{98}\text{Mo}$ . Полученные нами из [4] исходные характеристики резонансов  $^{98}\text{Mo}$  приведены в табл. 1.

Таблица 1.

Характеристики резонансов поглощения нейтронов  $^{98}\text{Mo}$  [4]

Номер резонанса	Сечение (барн)	Энергия нейтронов $E_r$ (эВ)	Ширина $\Gamma$ (эВ)
1	60	12,1	0,2
2	25	402	1,5
3	325	429,5	1,3
4	400	467,5	1,2
5	185	612,5	1,6
6	240	818,5	2
7	34	1122	2,1
8	60	1526,5	2,9
9	16	1922	2,2
10	46	2177	2,9
11	30	2461	3,7
12	25	2549	4
13	14	2615	3,3
14	8	2947	3,5
15	20	3264	3
16	11	3294	6
17	33	3797	4
18	25	4013	4
19	16	4482	4,1
20	34	4574	4,2
21	31	4843	5,2

Длина свободного пробега нейтрона в бериллии практически одинакова от тепловых нейтронов до нейтронов с энергией порядка 1 МэВ. Поэтому возраст нейтронов можно вычислять аналогично описанному выше для первого резонанса. В 4 колонке таблицы 2 приведены результаты расчета числа реакций  $(n\gamma)$   $F$  в 1 грамме облучаемого  $^{98}\text{Mo}$  для 21 резонанса, нормированные на число актов захвата тепловых нейтронов (в

процентах). Отметим, что коэффициент  $\zeta$  во всех случаях близок к 1, поэтому в расчетах учитывалось доплеровское уширение.

Таблица 2.

Вклад резонансного захвата в полное сечение активации $^{98}\text{Mo}$			
Номер резонанса	Возраст нейтронов (см <sup>2</sup> )	$\zeta$	F, %
1	71,8	0,575	6,2
2	61,48	0,75	0,72
3	61,28	0,63	7,7
4	61,03	0,55	8
5	60,24	0,65	3,9
6	59,38	0,7	4,7
7	58,45	0,63	0,535
8	57,55	0,74	0,9
9	56,87	0,5	0,15
10	56,5	0,62	0,53
11	56,14	0,75	0,4
12	56,04	0,8	0,35
13	56,0	0,65	0,16
14	55,61	0,645	0,085
15	55,3	0,53	0,167
16	55,28	1,04	0,18
17	54,9	0,65	0,315
18	54,7	0,63	0,23
19	54,4	0,61	0,14
20	54,3	0,62	0,29
21	54,15	0,73	0,3
Всего			36,2

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Разработанная схема расчета взаимодействия быстрых нейтронов  $\text{Be}(d,n)$ -источника с  $\text{Be}$ -замедлителем (отражателем) и образцом, выполненным из молибдена, позволяет аналитически оценить вклад разных частей спектра нейтронов в  $(n,\gamma)$ -активацию образца. Важно отметить, что количество надтепловых нейтронов (в нашем случае понимаем нейтроны с энергией выше 0,1-1эВ) в единице объема образца значительно меньше, чем количество тепловых нейтронов. В то же время действие таких нейтронов оказывается сравнимым с действием тепловых нейтронов по следующим причинам:

а) плотность потока нейтронов в малом энергетическом интервале пропорциональна скорости нейтронов, а скорости быстрых нейтронов значительно больше, чем тепловых,

б) для рассматриваемого вещества – молибдена существенно поглощение образцом быстрых нейтронов в резонансной области из-за малости сечения захвата в тепловой области.

Подчеркнем, что вторая причина (б) не носит универсального характера и в разной степени существенна для разных веществ.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные расчеты вклада резонансного захвата в полную активацию мишени  $^{98}\text{Mo}$  на нейтронном генераторе, оборудованном замедлителем из бериллия достаточных размеров, показывают заметную добавку ( $\approx 36\%$ ) выхода реакции  $(n,\gamma)$  по сравнению с воздействием на молибден только тепловых нейтронов. Для уточнения полученной оценки следует, на наш взгляд, использовать более точные данные о спектре нейтронов, формируемом в разных точках замедлителя, и корректно учесть эффект блокировки резонансных интегралов в облучаемой мишени.

Работа выполнена при поддержке УНТЦ (проект Р- 333).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. В.А. Цымбал, Н.Д. Масалитин, С.А. Письменецкий, В.Г. Рудычев, Е.В. Рудычев, А.Ф. Стоянов Расчет характеристик  $^{9}\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$  нейтронного источника при  $E_d < 2,5$  МэВ // Вісник Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна, серія фізична «Ядра, частинки, поля».- 2009. - №859, вип.2(42).- С.4-8.
2. JEF-2.2 Radioactive Decay Data, OECD Nuclear Energy Agency, JEF Report 13, 1994.
3. А.Д. Галанин Введение в теорию ядерных реакторов на тепловых нейтронах. – 2-е изд. – М.: Энергоатомиздат, 1990.- 536с.
4. Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR/CSISRS), Database version 4.09.2009, [www.nndc.bnl.gov/exfor/](http://www.nndc.bnl.gov/exfor/)