

ИНТЕГРАЛЬНЫЕ СЕЧЕНИЯ ОБРАЗОВАНИЯ ^3H В Al ОБРАЗЦАХ, ОБЛУЧЕННЫХ ПРОТОНАМИ С ЭНЕРГИЯМИ ОТ 40 ДО 2600 МэВ

*Ю. Е. Титаренко¹, В. Ф. Батяев¹, С. В. Малиновский¹, К. В. Павлов¹,
В. И. Рогов¹, А. Ю. Титаренко¹, М. В. Чаузова¹, В. М. Живун¹, П. Н. Алексеев²,
Я. И. Штромбах², А. Б. Сазонов³, С. Г. Машник, А. Ю. Станковский⁵,
С. Лерэ⁶, Ж. -К. Давид⁶, Д. Манкузи⁶*

¹НИЦ «Курчатовский Институт»,

Институт Теоретической и Экспериментальной Физики, Москва, Россия,

²НИЦ «Курчатовский Институт», Москва, Россия,

³РХТУ им. Д. И. Менделеева, Москва, Россия,

⁴Лос-Аламоская Национальная лаборатория, США,

⁵Центр ядерных исследований Бельгии SCK/CEN, Мол, Бельгия,

⁶Комиссариат по атомной и альтернативным видам энергии СЕА,

Сакле, Франция

mar4a1@rambler.ru, yury.titarenko@itep.ru

Представлены интегральные сечения образования ^3H в ^{27}Al образцах-мониторах, облученных совместно с «тонкими» мишенями из ^{56}Fe , ^{nat}Cr , ^{nat}Ni , ^{93}Nb , ^{181}Ta , ^{nat}W , ^{nat}Pb , ^{209}Bi протонами с энергиями от 40 до 2600 МэВ. Образцы облучались на ускорителе НИЦ КИ ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ» У-10 в виде одинарных и двойных «сэндвичей» металл-алюминий, помещенных в полиэтиленовые пакетики.

Полученные экспериментальные значения интегральных сечений реакции $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$ были использованы для оценки предсказательной способности программы MCNP6 с ядерными моделями CEM03.03 и INCL4.5.5. Установлено, что ядерная модель INCL4.5.5 дает на 37 % более точный прогноз по сравнению с ядерной моделью CEM03.03.

Введение

Тритий (^3H) – один из продуктов ядерной реакции коалесценции, протекающей под воздействием протонов с мишенными и конструкционными материалами электро-ядерных установок. Его накопление помимо радиационных проблем также обуславливает и дополнительные экологические проблемы, связанные с его биогенностью и высокой миграционной способностью. Эти обстоятельства стимулируют интерес к изучению сечений образования ^3H в различных материалах, применяемых в ядерно-энергетических установках.

На рис. 1 представлены экспериментальные данные сечений реакции $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$, взятые из работ [1–15], в сравнении с расчетными данными, полученными в работе [16] с помощью программы MCNP6 (ядерная модель SEM03.03).

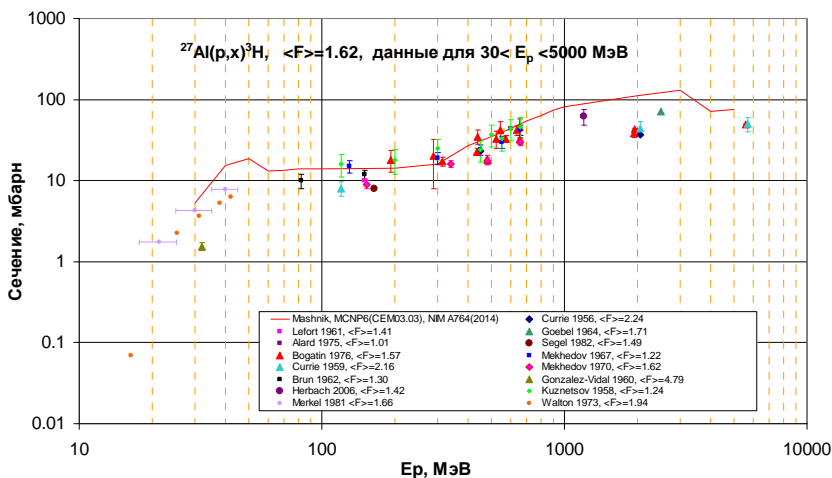


Рис. 1. Экспериментальные [1–15] и расчетные [16] значения сечения реакции $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$

Для оценки предсказательной способности ядерных моделей используются фактор среднеквадратичного отклонения $\langle F \rangle$, рассчитанный с использованием стандартной формулы (1) [17]:

$$\langle F \rangle = 10^{\left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left[\log \left(\frac{\sigma_i^{\text{calc}}}{\sigma_i^{\text{exp}}} \right) \right]^2 \right)^{1/2}}, \quad (1)$$

где σ_i^{calc} – расчетные значения; σ_i^{exp} – экспериментальные данные; N – число сечений используемых при сравнении.

Связь формулы (1) с критериями статистики выражается через формулы (2–4):

$$\langle F \rangle = 10^{\left([\log(\bar{F})]^2 + [\log(\Delta\bar{F})]^2 \right)^{1/2}}, \quad (2)$$

где \bar{F} – среднее значение логнормального распределения $\frac{\sigma_i^{\text{calc}}}{\sigma_i^{\text{exp}}}$; $\Delta\bar{F}$ – значение дисперсии логнормального распределения $\frac{\sigma_i^{\text{calc}}}{\sigma_i^{\text{exp}}}$.

$$\bar{F} = 10^{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left[\log \left(\frac{\sigma_i^{\text{calc}}}{\sigma_i^{\text{exp}}} \right) \right]}, \quad (3)$$

$$\overline{\Delta F} = 10^{\left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left[\log \left(\frac{\sigma_i^{calc}}{\sigma_i^{exp}} \right) - \log(\overline{F}) \right]^2 \right)^{1/2}}, \quad (4)$$

Сравнение расчетных данных [16] с отдельными группами экспериментальных данных, представленными на рис. 1, показывает, что значения фактора $\langle F \rangle$, лежат в диапазоне от ~ 1 до ~ 5 . Следует также отметить, что методы определения сечения образования ${}^3\text{H}$, используемые в работах [1–15], основаны на регистрации ${}^3\text{H}$, образующего в «тонких»³ ($\sim 1\text{--}10 \text{ мг/см}^2$) и «толстых» ($\sim 400\text{--}25000 \text{ мг/см}^2$) мишенях, с использованием, соответственно, $\Delta E\text{--}E$ телескопа и активационной методик. Значительный разброс значений фактора $\langle F \rangle$ обуславливают необходимость проведения уточняющих экспериментов.

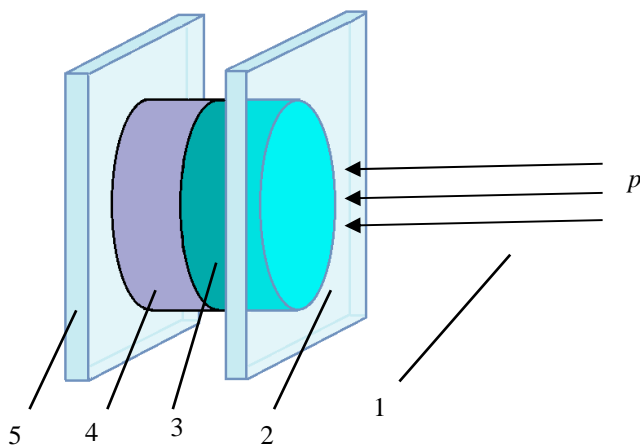


Рис. 2. Схема облучения экспериментальных образцов. 1 – протонный пучок; 2, 5 – полиэтилен; 3 – металлическая мишень; 4 – ${}^{27}\text{Al}$ образец-монитор

Описание методики эксперимента

1. Облучение образцов

Исследуемые в данной работе ${}^{27}\text{Al}$ образцы (далее – ${}^{27}\text{Al}$ образцы-мониторы) использовались в качестве мониторов потока протонов при облучении «тонких» мишеней из металлов (${}^{56}\text{Fe}$, ${}^{nat}\text{Cr}$, ${}^{nat}\text{Ni}$, ${}^{93}\text{Nb}$, ${}^{181}\text{Ta}$, ${}^{nat}\text{W}$, ${}^{nat}\text{Pb}$, ${}^{209}\text{Bi}$) на ускорителе НИЦ КИ ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ» У-10 в 2002–2004 гг., в рамках проекта МНТЦ 2002, и в 2006–2009 гг., в рамках проекта МНТЦ 3266. Параметры облучения и результаты определения независимых и кумулятивных сечений образования продуктов протонных реакций в металлических мишенях приведены в [18–20].

³Под «тонкой» понимаем такую мишень, которая удовлетворяет двум критериям: (1) энергетические потери налетающей частицы после прохождения мишени пренебрежительно малы по сравнению с ее начальной энергией; (2) длина свободного пробега частицы значительно превышает толщину мишени.

Облучаемые образцы представляли собой «сэндвичи» из исследуемой «тонкой» металлической мишени и ^{27}Al образца-монитора, помещенные в пакетики из полиэтилена толщиной 175 мкм для геометрического совмещения. Облучение проводилось как в виде отдельных «сэндвичей» $\text{CH}_2+\text{Me}+\text{Al}+\text{CH}_2$, (схема такого «сэндвича» приведена на рис. 2) так и в виде парных «сэндвичей» $\text{CH}_2+\text{Me}_1+\text{Al}_1+\text{CH}_2+\text{CH}_2+\text{Me}_2+\text{Al}_2+\text{CH}_2$ (для мишеней из ^{56}Fe , ^{nat}Cr , ^{nat}Ni , ^{93}Nb , ^{181}Ta , ^{nat}W при энергиях протонов от 40 до 1200 МэВ). Диаметр всех металлических мишеней и ^{27}Al образцов-мониторов был 10,5 мм, их характерные толщины приведены в табл. 1. Общее количество ^{27}Al образцов-мониторов, облученных протонами с энергией от 40 до 2600 МэВ, составило 121.

Таблица 1

Характерные толщины мишеней и ^{27}Al образцов-мониторов

Мишень	Толщина металлической мишени		Толщина ^{27}Al образца-монитора	
	г/см ²	см	г/см ²	см
^{56}Fe	0,2825	0,0538	0,0602	0,0223
^{nat}Cr	0,3899	0,0863	0,0583	0,0216
^{nat}Ni	0,2376	0,0267	0,0602	0,0223
^{93}Nb	0,2187	0,0255	0,0626	0,0232
^{181}Ta	0,4123	0,0248	0,0648	0,0240
^{nat}W	0,3078	0,0159	0,0662	0,0245
^{nat}Pb	0,2054	0,0181	0,1406	0,0520
^{209}Bi	0,3462	0,0389	0,1509	0,0559

2. Определение активности ^3H в образцах

Выделение ^3H из облученных ^{27}Al образцов-мониторов проводилось с помощью системы автоматической пробоподготовки A307 Sample Oxidizer. Под действием высокой температуры в системе происходила десорбция ^3H из образца и его окисление током кислорода. Образующаяся при этом тритиевая вода собиралась в конденсаторе, а затем смешивалась с жидким сцинтиллятором Monophase S в низкофоновой полиэтиленовой виае. В качестве изотопного носителя для тритиевой воды использовалась обычная вода, образующаяся при окислении целлюлозной прокладки COMBUSTO-PAD, помещенной совместно с облученным образцом в систему Sample Oxidizer. Выделение ^3H проводилось последовательно с одним набором образцов-мониторов из «сэндвичей» одинакового состава, облученных протонами различных энергий, начиная с наименьшей. Помимо обязательных тестов по контролю выхода ^3H и возможного остаточного загрязнения им трактов системы Sample Oxidizer, были приготовлены фоновые образцы с использованием необлученных алюминиевых фольг, состав которых идентичен облученным образцам-мониторам.

Активность выделенного ^3H измерялась с использованием низкофонового жидкосцинтилляционного спектрометра Quantilus 1220. Время измерения каждого счетного образца, включая фоновые, составляло 12 часов. Обработка

измеренных бета-спектров осуществлялась в программе RadSpectraDec, которая позволяет разделять непрерывный аппаратный спектр на элементарные спектры отдельных радионуклидов из предварительно подготовленной библиотеки [21–23]. В правой части рис. 3 представлен исходный измеренный (аппаратный) бета-спектр до обработки, на котором синим цветом представлен спектр измеряемого образца, красным – спектр фонового образца, зеленым – спектр, полученный после вычитания фона из спектра образца. Слева на рис. 3 приведен тот же бета-спектр, обработанный программой RadSpectraDec, на котором представлен спектр, относящийся непосредственно к бета-излучению ${}^3\text{H}$, и спектр люминесценции (Lum).

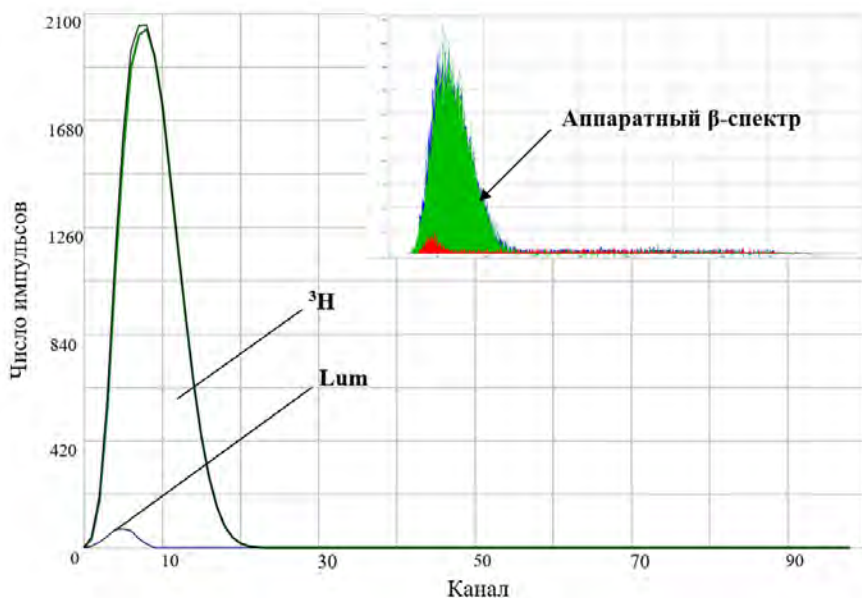


Рис. 3. Измеренный (аппаратный) и обработанный в программе RadSpectraDec бета-спектры ${}^3\text{H}$, выделенного из ${}^{27}\text{Al}$ образцов-мониторов, облученного протонами с энергией 1600 МэВ

3. Расчет сечений образования ${}^3\text{H}$ в образцах

Сечение образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образце-мониторе вычисляется из выражений

$$\sigma_{{}^3\text{H}} = \frac{R_{{}^3\text{H}}}{\hat{\Phi}} \quad , \quad (5)$$

где $\sigma_{{}^3\text{H}}$ (барн) – сечение образования ${}^3\text{H}$ в образце; $R_{{}^3\text{H}}$ (с^{-1}) – независимая скорость образования ${}^3\text{H}$ в образце; $\hat{\Phi}$ ($\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$) – плотность потока протонов, данные о которой приведены в работе [18].

Независимую скорость образования ${}^3\text{H}$ в образце рассчитывали по формуле

$$R_{3\text{H}} = \frac{A}{N_{\text{Al}} \lambda k_{\beta} k_{\epsilon} t_{\text{irr}}}, \quad (6)$$

где A (Бк) – активность ^3H , приведенная к концу облучения; N_{Al} – число ядер ^{27}Al в образце-мониторе; λ (с^{-1}) – постоянная распада ^3H ; k_{β} – поправка, учитывающая потери за счет вылета ядер ^3H во время облучения; k_{ϵ} – поправка, учитывающая потери ^3H из образца за счет его выхода в окружающую среду за время хранения; t_{irr} (с) – время облучения (так как $t_{\text{irr}} \ll T_{1/2}^{3\text{H}} = 12,33$ года, поправкой на распад ^3H за время облучения можно пренебречь).

Погрешность определения сечений образования ^3H в образцах рассчитывалась в соответствии с рекомендациями [24].

$$\Delta_{3\text{H}} \sigma = \sigma_{3\text{H}} \sqrt{\left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta}{\lambda}\right)^2 + \left(\frac{\Delta k_{\beta}}{k_{\beta}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta k_{\epsilon}}{k_{\epsilon}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t_{\text{irr}}}{t_{\text{irr}}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \Phi}{\Phi}\right)^2}, \quad (7)$$

Погрешность активности ^3H включает: статистическую погрешность определения площади пика с учетом активности фоновых образцов, погрешность определения эффективности регистрации излучения, определенная при калибровке, погрешность, возникающая при подготовке счетного образца (при выделении ^3H из образцов в системе A307 Sample Oxidizer).

4. Оценка потерь ^3H за счет его выхода из образца в окружающую среду за время хранения

Время, прошедшее от момента облучения образцов до момента выделения из них ^3H , было достаточно длительным и составило от 5,9 до 13,6 года. В течение этого времени облученные образцы хранились при комнатной температуре в полиэтиленовых пакетиках, в которые они переупаковывались после облучения.

Расчет потерь ^3H за счет его выхода из образца в окружающую среду за время хранения был выполнен для каждого облученного ^{27}Al образца-монитора с использованием модели, рассматривающей три состояния водорода вблизи границы газовой фазы с поверхностью металла (газ – хемосорбированный монослой – твердый раствор) и описывающей переходы между состояниями аррениусовской кинетикой [25]. Для расчетов были использованы следующие параметры: частота колебаний атома ^3H в алюминии $\nu = 1,7 \cdot 10^{13}$ Гц; энергия хемосорбции водорода в алюминии $Q_c = -0,35$ эВ [26]; энергия растворения водорода в алюминии $Q_s = 0,173$ эВ [27]; энергия активации диффузии водорода в алюминии $U = 0,5$ эВ [28]; площадь поверхности газ – металл равна геометрической поверхности образца-монитора; адсорбционная емкость по водороду оценивалась по эмпирическому соотношению между атомным (металлическим) радиусом и величиной «посадочной площадки» для атома водорода, установленному для никеля [29].

Проведенные расчеты показали, что для ^3H , растворенного в чистом алюминии, с течением времени характерен переход из объема образца на его поверхность и дальнейшее существование там в хемосорбированной форме. На рис. 4 показан начальный участок кинетических кривых распределения ^3H по состояниям в алюминии, как видно, равновесие достигается за время менее 100 с, дальнейших изменений состояния атомов ^3H не происходит. Наличие оксидной пленки на поверхности алюминиевых образцов дополнительно снижает выход ^3H в газовую фазу за счет увеличения энергии активации хемосорбции.

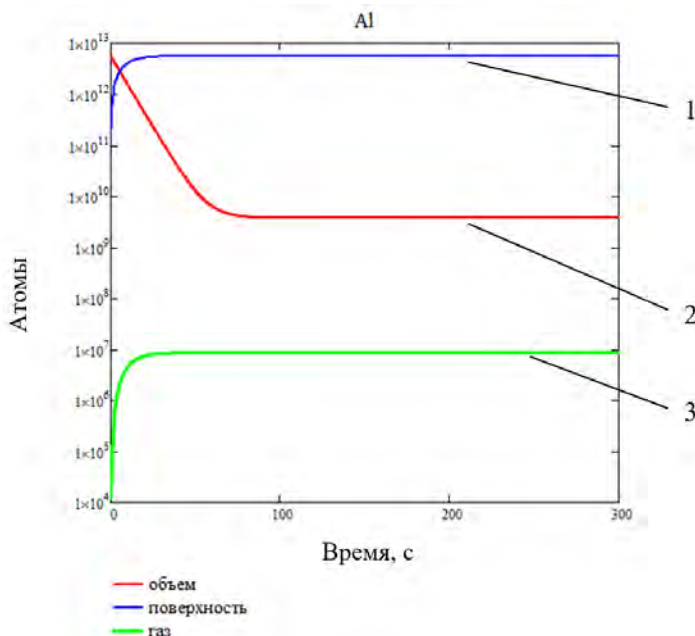


Рис. 4. Изменение содержания ^3H в объеме и на поверхности алюминия при хранении образца в полиэтиленовом пакете. 1 – хемосорбированный монослой, 2 – твердый раствор, 3 – газовая фаза

В табл. 2 представлены результаты расчета потерь ^3H в исследуемых ^{27}Al образцах-мониторах за счет его выхода из образца в окружающую среду за время хранения.

Таблица 2

Расчетные потери ^3H из ^{27}Al образцов-мониторов за время хранения

Образцы (мишени, с которыми облучались образцы)	Время, прошедшее с момента облучения образцов до момента выделения ^3H , лет	Потери ^3H за время хранения, %
^{27}Al (^{56}Fe , ^{nat}Cr)	от 5,9 до 8,1	$7,3 \cdot 10^{-7} \div 6,4 \cdot 10^{-5}$
^{27}Al (^{nat}Ni , ^{93}Nb)	от 6,8 до 8,5	$8,9 \cdot 10^{-8} \div 3,4 \cdot 10^{-5}$
^{27}Al (^{181}Ta , ^{nat}W)	от 6,9 до 8,5	$1,8 \cdot 10^{-6} \div 9,6 \cdot 10^{-5}$
^{27}Al (^{nat}Pb , ^{209}Bi)	от 11,6 до 13,6	$3,3 \cdot 10^{-6} \div 2,3 \cdot 10^{-4}$

Как видно из табл. 2, расчетные потери ^3H за счет его выхода из образца в окружающую среду за время хранения не превышают $2,3 \cdot 10^{-4} \%$ от его общего количества, присутствующего в образце на момент окончания облучения, что существенно ниже погрешности измерения активности ^3H . Реальные потери ^3H будут еще меньше за счет наличия дефектов в структуре и наличия оксидной пленки на поверхности образцов. Поправка на потери ^3H из образца за время хранения не вносит вклада в значения сечений образования ^3H в ^{27}Al образцах-мониторах, при дальнейших расчетах ее не учитывали.

5. Оценка потерь ^3H за счет вылета во время облучения

Как указано в табл. 1, все ^{27}Al образцы-мониторы являются «тонкими» мишенями и имеют характерные толщины от 58 до 150 $\text{мг}/\text{см}^2$, что обуславливает потери образующихся высокоэнергетических ядер ^3H за счет их вылета из облучаемого образца.

Для оценки возможных потерь ^3H в них во время облучения были вычислены дважды дифференциальные сечения образовавшихся ядер ^3H по углам и энергиям, а также построены спектры ядер ^3H в ^{27}Al образцах, металлических мишенях и ^{nat}C , который присутствует в полиэтилене. Для каждой из 11 энергии протонов в диапазоне от 40 до 2600 МэВ спектры ядер ^3H были рассчитаны под углами $167,5^\circ \pm 12,5^\circ$, $150,0^\circ \pm 5,0^\circ$, $130,0^\circ \pm 15,0^\circ$, $110,0^\circ \pm 5,0^\circ$, $100,0^\circ \pm 5,0^\circ$, $90,0^\circ \pm 5,0^\circ$, $70,0^\circ \pm 15,0^\circ$, $50,0^\circ \pm 5,0^\circ$, $20,0^\circ \pm 5,0^\circ$ и $7,5^\circ \pm 7,5^\circ$, примеры таких спектров представлены на рис. 5–14.

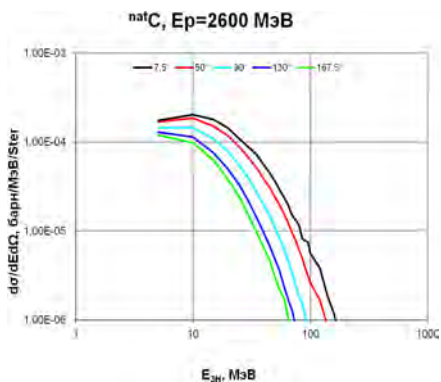


Рис. 5. Спектры ядер ^3H , вылетевших из ^{nat}C под различными углами, облучаемой протонами с энергией 2600 МэВ

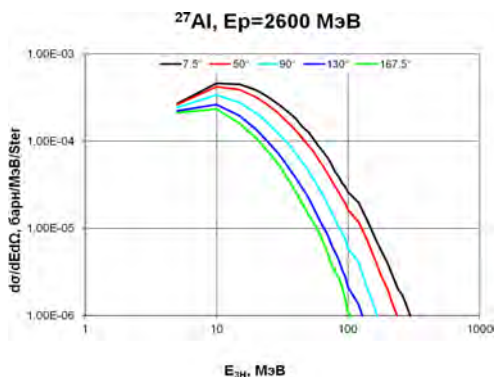


Рис. 6. Спектры ядер ^3H , вылетевших из ^{27}Al мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 2600 МэВ

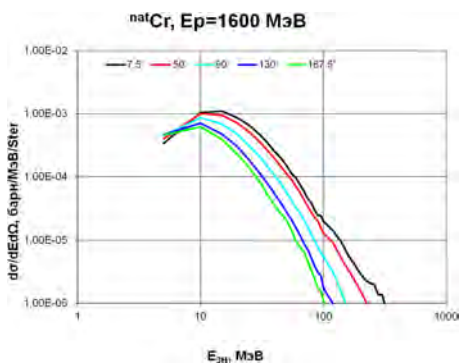


Рис. 7. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{\text{nat}}\text{Cr}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 1600 МэВ

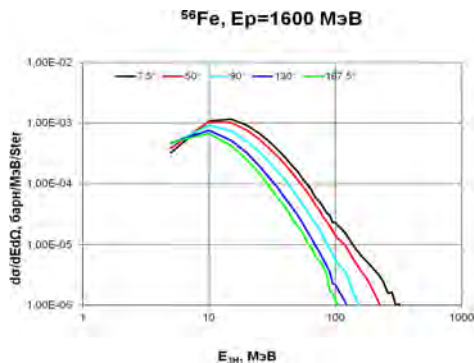


Рис. 8. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{56}\text{Fe}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 1600 МэВ

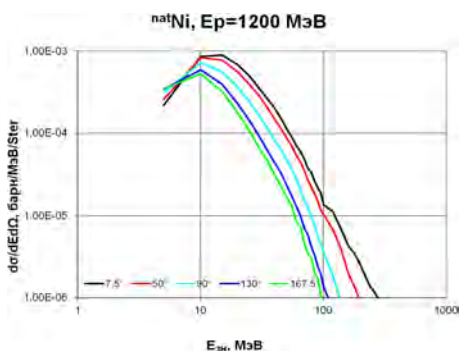


Рис. 9. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{\text{nat}}\text{Ni}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 1200 МэВ

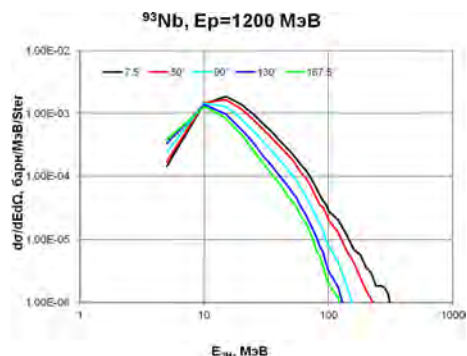


Рис. 10. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{93}\text{Nb}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 1200 МэВ

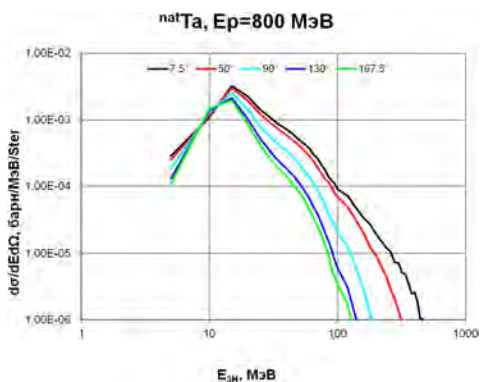


Рис. 11. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{\text{nat}}\text{Ta}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 800 МэВ

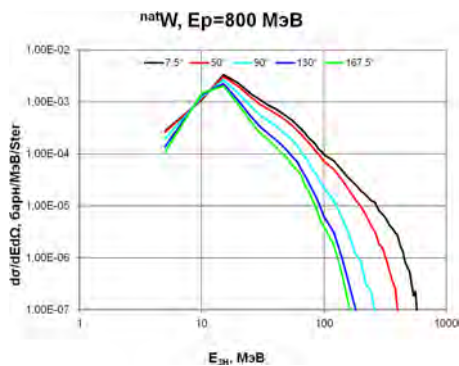


Рис. 12. Спектры ядер ${}^3\text{H}$, вылетевших из ${}^{\text{nat}}\text{W}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 800 МэВ

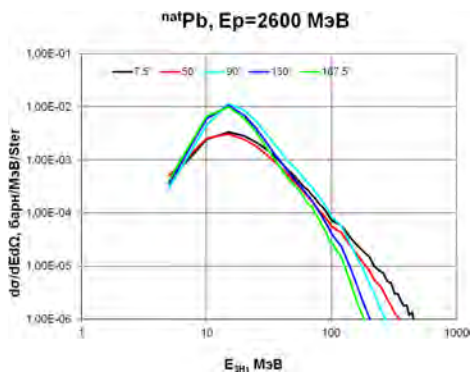


Рис. 13. Спектры ядер ^3H , вылетевших из $^{\text{nat}}\text{Pb}$ мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 2600 МэВ

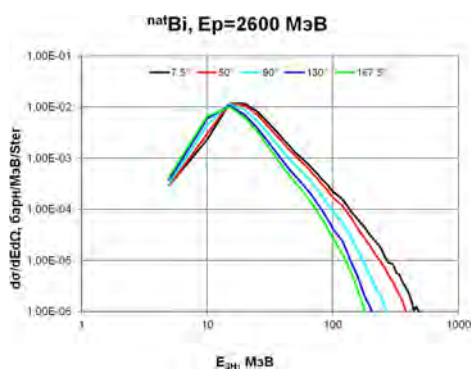


Рис. 14. Спектры ядер ^3H , вылетевших из ^{209}Bi мишени под различными углами, облучаемой протонами с энергией 2600 МэВ

Результаты расчетов показывают, что при облучении протонами с энергиями от 40 до 2600 МэВ образцов для всех материалов максимум спектра энергий образовавшихся ядер ^3H лежит в диапазоне от 10 до 20 МэВ, однако граничная энергия спектра, при которой в образце остается $\sim 90\%$ всех ядер ^3H , достигает значения 60–65 МэВ.

Оценки возможных потерь ^3H в образцах во время облучения были выполнены методом Монте-Карло на основании полученных спектров и зависимостей пробега ионов ^3H в металле от их энергии, полученных с использованием программы SRIM [30]. Количественные оценки потерь ^3H за счет вылета из образцов во время облучения с характерными для них размерами представлены в табл. 3.

Таблица 3

Оценки потерь ^3H за счет вылета из образцов во время облучения

Облучаемые образцы	Потери ^3H за счет вылета, %
^{27}Al	38 ÷ 75
^{56}Fe	24 ÷ 50
$^{\text{nat}}\text{Cr}$	16 ÷ 40
$^{\text{nat}}\text{Ni}$	40 ÷ 64
^{93}Nb	55 ÷ 69
$^{\text{nat}}\text{Ta}$	52 ÷ 71
$^{\text{nat}}\text{W}$	55 ÷ 76
$^{\text{nat}}\text{Pb}$	53 ÷ 77
^{209}Bi	58 ÷ 77

Из данных табл. 3 следует, что для реальной геометрии облучаемых образцов – «сэндвичей», из-за недостаточной толщины исследуемого алюминиевого слоя, кроме существенных потерь ^3H за счет его вылета, все предыдущие

слои служат дополнительными источником ядер ${}^3\text{H}$, влетающих в алюминиевый слой образца при облучении.

Этим обстоятельством и определяется тот факт, что в данной работе определяются и приводятся не фундаментальные значения сечений образования ${}^3\text{H}$, а интегральные (т. е. сечения накопления ${}^3\text{H}$ для «сэндвичей» в виде ячеек конкретного состава и геометрии), вычисляемые по формуле (6) без учета значений k_ε и k_β .

Экспериментальные результаты и их теоретическое моделирование

Полученные экспериментальные результаты были использованы для оценки предсказательной способности ядерных моделей [31]. Значения интегральных сечений образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах были промоделированы с учетом потерь ${}^3\text{H}$ с использованием программы MCNP6 (ядерные модели SEM03.03 и INCL4.5.5). В расчетах были заданы реальные параметры (толщина, диаметр, плотность, изотопный состав и последовательность слоев-ячеек) облучаемых «сэндвичей», включая толщину полиэтиленовых пакетиков, в соответствующих слоях-ячейках.

Тогда, если обозначить рассчитанные программой MCNP6 величины:

P_i – количество ядер ${}^3\text{H}$, образовавшихся в соответствующей i -ой ячейке «сэндвича» (${}^{27}\text{Al}$, ${}^{56}\text{Fe}$, ${}^{nat}\text{Cr}$, ${}^{nat}\text{Ni}$, ${}^{93}\text{Nb}$, ${}^{181}\text{Ta}$, ${}^{nat}\text{W}$, ${}^{nat}\text{Pb}$ и ${}^{209}\text{Bi}$), нормализованное на 1 протон,

M_i – количество ядер ${}^3\text{H}$, влетевших в i -ую ячейку снаружи (через все поверхности),

N_i – суммарное число ядер ${}^3\text{H}$, пересекших поверхность i -ой ячейки (влетевшие + вылетевшие),

и ввести параметр R_i – количество ядер ${}^3\text{H}$, остановившихся в i -ой ячейке, то число ядер ${}^3\text{H}$ X_i , которые при расчете историй были в i -ой ячейке, можно определить из двух выражений:

$$X_i = P_i + M_i \quad (8)$$

$$X_i = R_i + N_i - M_i \quad (9)$$

Выражения (8) и (9) позволяют вычислить величину R_i в виде

$$R_i = P_i + 2M_i - N_i, \quad (10)$$

Тогда интегральное сечение образования ${}^3\text{H}$ в каждом i -ой ячейке «сэндвича» можно представить в виде

$$\sigma_i = \frac{R_i S}{\rho_i V_i}, \quad (11)$$

где σ_i (барн) – интегральное сечение образования ${}^3\text{H}$ в i -ой ячейке-образце; S (см^2) – площадь образца; ρ_i ($\text{атом}/\text{см}^3$) – атомная плотность i -го образца; V_i (см^3) – объем i -ого образца.

Расчетные значения интегральных сечений образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ вместе с экспериментальными данными представлены на рис. 15–18.

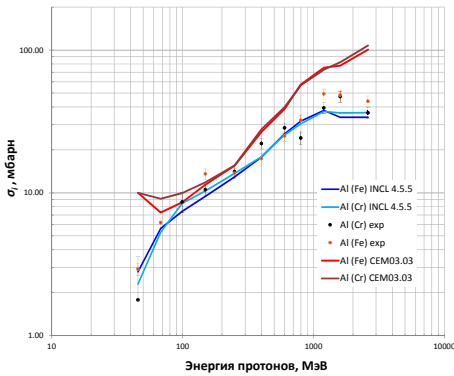


Рис. 15. Экспериментальные и расчетные интегральные сечения образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах в составе «сэндвичей» Fe-Al, Cr-Al

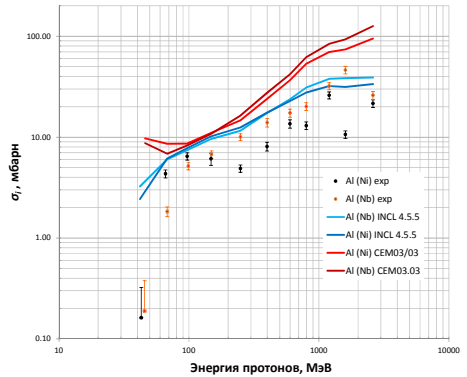


Рис. 16. Экспериментальные и расчетные интегральные сечения образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах в составе «сэндвичей» Ni-Al, Nb-Al

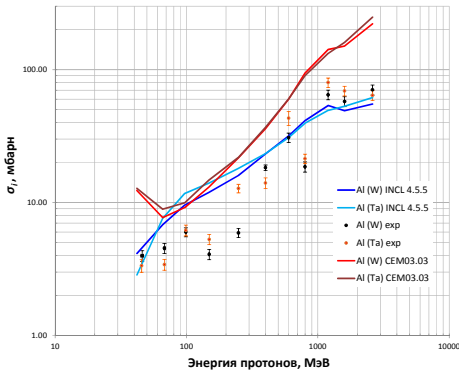


Рис. 17. Экспериментальные и расчетные интегральные сечения образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах в составе «сэндвичей» Ta-Al, W-Al

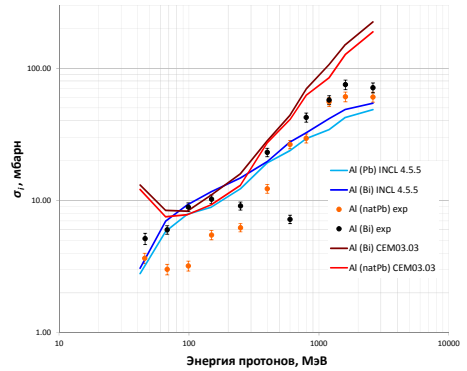


Рис. 18. Экспериментальные и расчетные интегральные сечения образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах в составе «сэндвичей» ${}^{\text{nat}}\text{Pb}$ -Al, Bi-Al

Для определения предсказательной способности ядерных моделей использовались формулы (1–3)

Результаты вычислений $\langle F \rangle$, \overline{F} и $\Delta \overline{F}$ при сравнении экспериментальных данных с данными полученным при использовании ядерных моделей CEM03.03 и INCL4.5.5 представлены в табл. 4.

Из расчета факторов $\langle F \rangle$ видно, что для интегральных сечений образования ${}^3\text{H}$ в ${}^{27}\text{Al}$ образцах-мониторах программа MCNP6 с ядерной моделью INCL4.5.5 дает на 37 % более точный прогноз по сравнению с ядерной моделью CEM03.03.

Таблица 4

Расчетные значения фактора $\langle F \rangle$, \bar{F} и $\Delta\bar{F}$

Образец	CEM03.03			INCL4.5.5		
	$\langle F \rangle$	\bar{F}	$\Delta\bar{F}$	$\langle F \rangle$	\bar{F}	$\Delta\bar{F}$
$^{27}\text{Al}(^{56}\text{Fe})$	1,79	1,57	1,51	1,23	0,87	1,22
$^{27}\text{Al}(\text{natCr})$	2,14	1,78	1,69	1,17	0,98	1,18
$^{27}\text{Al}(^{93}\text{Nb})$	4,31	3,12	2,68	2,64	1,76	2,34
$^{27}\text{Al}(\text{natNi})$	5,21	3,79	2,78	2,78	2,16	2,02
$^{27}\text{Al}(\text{natW})$	2,74	2,57	1,45	1,73	1,37	1,62
$^{27}\text{Al}(^{181}\text{Ta})$	2,62	2,43	1,47	1,71	1,27	1,66
$^{27}\text{Al}(\text{natPb})$	2,26	2,17	1,29	1,63	1,17	1,62
$^{27}\text{Al}(^{209}\text{Bi})$	2,23	1,85	1,75	1,66	1,02	1,73
Суммарное значение для всех образцов ^{27}Al	2,23	1,94	1,66	1,62	1,20	1,66

Заключение

В представленной работе получены значения интегральных сечений реакции $^{27}\text{Al}(p, x)^3\text{H}$ при энергиях протонов от 40 до 2600 МэВ, которые были использованы для оценки предсказательной способности программы MCNP6 с ядерными моделями CEM03.03 и INCL4.5.5. Показано, что ядерная модель INCL4.5.5 дает на 37 % более точный прогноз, чем CEM03.03, что связано с использованием в ней более совершенной модели деления.

Из полученных данных не представляется возможным сделать однозначные выводы о предсказательной способности ядерных моделей CEM03.03 и INCL4.5.5, поскольку существуют систематические погрешности эксперимента, обусловленные:

- 1) нестабильностью протонного пучка в плоскости облучения, что влияет на учет потерь ^3H во время облучения образцов;
- 2) потерями за счет вылета ^3H из облученных ^{27}Al образцов-мониторов за счет недостаточной толщины;
- 3) потерями ^3H из-за неплотного прилегания образцов друг к другу в «сэндвиче» во время облучения.

Благодарность

Авторы признательны за поддержку, оказанную Национальным Исследовательским Центром «Курчатовский институт», и частичную поддержку, полученную в ходе выполнения проектов МНТЦ и коллаборации с Лос-Аламосской лабораторией.

Список литературы

1. Currie L. A., Libby W. F., Wolfgang R. L. Tritium Production by High-Energy Protons, Phys. Rev, 101, (1956), 1557–1563.

2. Goebel K., Schultes H., Zaehring J. Production cross-sections of tritium and rare gases in various target elements, CERN Europ. Org. for Nuclear Res. Rep. # 64, (1964), 12–24.
3. Segel R. E., Chen T., Rutledge Jr L. L., Maher J. V., Wiggins J., Singh P. P., Debevec P. T. Inclusive proton reactions at 164 MeV. Phys. Rev. C, 26, (1982) 2424–2432.
4. Mekhedov V. N. Formation of tritium in C, Al and Fe under the influence of protons with $E_p = 130\text{--}660$ MeV, Yad. Fiz. (1967), 5, 34–36.
5. Mekhedov B. N., Mekhedov V. N. Production of Tritium in Al, Sn, Pb, and Bi under the Influence of High-Energy Protons, Yad. Fiz., 11, (1970), 708–710.
6. Gonzalez-Vidal J., Wade W. H. Survey of Tritium-Producing Nuclear Reactions, Phys. Rev., 120, (1960), 1354–1359.
7. Merkel M., Munzel H. Formation of Tritons in Nuclear Reactions Induced by Protons up to 45 MeV. Radiochim. Acta 29 (1981) 173.
8. Lefort M., Simonoff G. N., Tarrago X. Tritium Production by High-Energy Protons, Nucl. Phys., 25, (1961), 216–247.
9. Alard J. P., Baldit A., Brun R., Costilhes J. P., Dhermain J., Fargeix J., Fraysse L., Pellet J., Roche G., Tamain J. C. Light-fragment production in P-nucleus interactions at 600 MeV. Astrophys. appl., Nuovo Cimento A, 30, (1975), 320–344.
10. Bogatin V. I., Litvin V. F., Lozhkin O. V., Perfilov N. A., Yakovlev Yu. P. Isotopic Effects in High-Energy Nuclear Reactions and Isospin Correlations of Fragmentation Cross Sections, Nucl. Phys. A, 260, (1976), 446–460.
11. Currie L. A. Tritium production by 6-Bev protons, Phys. Rev., 114, (1959), 878–880.
12. Brun P. C., Lefort M., Tarrago X. Contribution a l'etude du double pick-up indirect mesure de la production de tritium par des protons de 82 et 105 MeV dans diverses cibles. Journal de Physique Vol. 23, p. 167–172, 1962.
13. Herbach a C. -M., Hilscher D., Jahnke U. et. al. Charged-particle evaporation and pre-equilibrium emission in 1,2 GeV proton-induced spallation reactions, Nucl. Phys. A, 765 (2006), 426–463.
14. Kuznetsov V. V., Mekhedov V. N. Formation of Tritium in Metals under the Action of 120–660 MeV Protons. JETP 35 (1958) 587.
15. Walton J. R., Yaniv A., Heymann D. et al. He and Ne Cross Sections in Natural Mg, Al, and Si Targets and Radionuclide Cross Sections in Natural Si, Ca, Ti, and Fe Targets Bombarded with 14- to 45-MeV Protons (1973).
16. Mashnik S. G., Kerby L. M. MCNP6 fragmentation of light nuclei at intermediate energies NIM A, 764(2014) 59–81.
17. Titarenko Yu. E., Batyaev V. F., Butko M. A. et. al. Verification of high-energy transport codes on the basis of activation data. Phys. Rev. C, 84, (2011), 064612–12011.
18. Titarenko Yu. E., Batyaev V. F., Belonozhenko A. A., Borovlev S. P. et. al. Experimental and Theoretical Study of the Residual Nuclide Production in 40–2600 MeV Proton-Irradiated Thin Targets of ADS Structure Materials, IAEA, IAEA Nuclear Data Section, Vienna International Centre, A-1400 Vienna, Austria, INDC(CCP)-0453, October 2011.

19. Titarenko Yu. E., Batyaev V. F., Titarenko A. Yu., Butko M. A. et. al. Measurement and simulation of the cross sections for nuclide production in ^{56}Fe and ^{nat}Cr targets irradiated with 0,04- to 2,6-GeV protons. *Physics of atomic nuclei*, 2011, Vol. 74, No. 4, p. 523–536.
20. Titarenko Yu. E., Batyaev V. F., Titarenko A. Yu., Butko M. A. et. al. Measurement and simulation of the cross sections for nuclide production in ^{93}Nb and ^{nat}Ni targets irradiated with 0,04- to 2,6-GeV protons. *Physics of atomic nuclei*, 2011, Vol. 74, No. 4, p. 537–550.
21. Belanov S. V., Kashirin I. A., Malinovskiy S. V., Egorova M. E. et. al. The method of identifying radionuclides with the use of a liquid scintillation counter. RF Patent 2 120 646, 1997;
22. Belanov S. V., Kashirin I. A., Malinovskiy S. V., Ermakov A. I. et. al. The method of identifying radionuclides with the use of a liquid scintillation counter. RF Patent 98 106 407, 1998;
23. Kashirin I. A., Ermakov A. I., Malinovskiy S. V., Belanov S. V. et. al. Liquid scintillation determination of low level components in complex mixtures of radionuclides. *Applied Radiation and Isotopes*, 53, 303–308 (2000).
24. JCGM 100:2008, GUM 1995 with minor corrections, GUM Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement, First edition, September 2008.
25. Pisarev A. A., Ogorodnikova O. V. Elementary Processes near the Interface between Hydrogen Gas and Solid. – *Journal of Nuclear Materials* 248 (1997), 52–59.
26. Holden S. J., Rossington D. R. Hydrogen Adsorption on Silver, Gold, and Aluminum. Studies of Parahydrogen Conversion. – *Journal of Physical Chemistry* 68 (1964), 5, 1061–1067.
27. Никифоров Г. Д. Металлургия сварки плавлением алюминиевых сплавов. – М.: Metallurgy, 1972. 264 с.
28. Денисов Е. А., Компаниец Т. Н., Курдюмов А. А., Димовасили Е., Иоанну П. Исследование водородопроницаемости алюминия методом концентрационных импульсов. – Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами. ИИИМ-04. Сборник докладов Второго международного семинара. – Саров, РФЯЦ ВНИИЭФ, 2005. С. 62–70.
29. Трепнел Б. Хемосорбция. – Пер. с. Англ. – М.: Изд-во иностр. лит-ры, 1958. 328 с.
30. SRIM – The stopping and Range of Ions in Matter, <http://www.srim.org>.
31. Titarenko Yu. E., Batyaev V. F., Chauzova M. V., Kashirin I. A. et. al. Determination of integral cross sections of ^3H in Al foils monitors irradiated by protons with energies ranging from 40 to 2600 MeV, 12th International Conference on Nucleus-Nucleus Collision (NN2015). June 21–26, 2015, Catania, Italy. EPJ Web of Conferences 117, 05009 (2016).