

УДК 539.172.13

## ВЫБОР ОПТИМАЛЬНОЙ ТОЛЩИНЫ АКТИВНОГО СЛОЯ МЕТАЛЛОТРИТИЕВЫХ МИШЕНЕЙ НЕЙТРОННОГО ГЕНЕРАТОРА

С. А. Макаров

*Приведены результаты исследования поведения металлотритиевых мишеней различной толщины в мощных нейтронных генераторах. Предложена методика выбора оптимальной толщины активного слоя мишени, позволяющая значительно увеличить время жизни мишеней. Показано, что нейтронные генераторы с масс-сепарацией ускоренного пучка дейтронов и титанотритиевыми мишенями оптимальной толщины дают возможность получать высокие флюенсы нейтронов при длительных облучениях.*

Одним из основных недостатков мощных генераторов DT-нейтронов является быстрое уменьшение нейтронного потока со временем, что обусловлено процессами, протекающими при взаимодействии ускоренных дейтронов с металлотритиевой мишенью. Параметром, характеризующим нестабильность (скорость уменьшения) нейтронного потока, является время жизни мишени  $\tau$  – время, за которое выход нейтронов снижается вдвое по сравнению с начальным. В большинстве промышленных нейтронных генераторов, не использующих масс-сепарацию ускоренного пучка дейтронов, время жизни составляет  $\tau = 40 - 90$  мин, что существенно ограничивает их возможности.

Исследования причин нестабильности нейтронного потока со временем проводились на различных типах генераторов нейтронов. Анализ распределений изотопов водорода в облученных тритиевых мишенях [1 – 3] позволил изучить происходящие в них процессы. Было показано, что основным механизмом, обуславливающим падение выхода DT-нейтронов в процессе бомбардировки тритиевых мишеней ускоренными дейтронами, является процесс замещения трития имплантированным дейтерием [4 – 6].

Использование пучков атомарных дейтронов, бомбардирующих тритиевую мишень (нейтронный генератор с масс-сепарацией ускоренного пучка), позволило значительно увеличить время жизни мишеней [5 – 8]. Однако величина  $\tau$  и характер временной зависимости нейтронного потока  $\Phi$  зависят от толщины активного слоя тритиевой мишени  $q$ . Целью настоящей работы являлось исследование влияния величины  $q$  на время жизни мишени и на выход нейтронов.

Исследования проводились на нейтронном генераторе Т-400 "SAMES" (Франция) с магнитным масс-анализатором дейтронного пучка [9]. Энергия ускоренных дейтронов  $E_d = 200 - 350$  кэВ, плотность тока пучка на мишени  $j = 0,6 - 1,0$  мА/см<sup>2</sup>. В качестве мишеней использовались стандартные титанотритиевые мишени на медной подложке производства ИЯИ АН Украины.

Исследуемые  $Ti-T$ -мишени бомбардировались атомарным пучком дейтронов с энергией  $E_d = 210$  кэВ. Толщины активных слоев мишеней выбирались исходя из величины проективного пробега дейтронов  $R_d$  в тритиде титана  $TiT_{1,5}$ , рассчитанной в соответствии с правилом аддитивности Брэгга по данным работ [10, 11]. Для  $E_d = 210$  кэВ пробег  $R_d = 0,58$  мг/см<sup>2</sup>.

На рис. 1 приведены зависимости нейтронного потока от времени облучения мишеней. Кривая 1 соответствует мишени толщиной  $q = 0,81$  мг/см<sup>2</sup>  $> R_d$  (толстая мишень), в этом случае ускоренные дейтроны полностью тормозятся в активном слое мишени. Кривая 2 получена для тонкой мишени  $q = 0,32$  мг/см<sup>2</sup>  $< R_d$ , при этом бомбардирующие мишень дейтроны попадают в медную подложку. Кривая 3 – для мишени толщиной  $q = 0,52$  мг/см<sup>2</sup>, несколько меньшей значения  $R_d$ .

Как видно из экспериментальных кривых, переход на атомарный пучок дейтронов позволил значительно увеличить время жизни мишеней. Так, для неразделенного по массам пучка время жизни  $\tau = 40$  мин [4], а для атомарного пучка –  $\tau_1 = 3,5$  час,  $\tau_2 = 28$  час,  $\tau_3 = 25$  час (рис. 1). Значения  $\tau_2$  и  $\tau_3$  получены в предположении экспоненциальной зависимости  $\Phi(t)$ .

Характер изменения нейтронного выхода для толстой мишени (кривая 1) подтверждает предложенный в работах [1, 3, 4, 6] механизм поведения изотопов водорода в мишенях: замещение трития внедренным в  $Ti-T$ -слой дейтерием с последующей десорбцией изотопов водорода из мишени. Изменение наклона кривой выхода нейтронов (на рис. 1 отмечено стрелкой) соответствует дозе дейтронов, попавших в мишень,  $Q_{члп} = 1,3 \cdot 10^{19}$  ядер/см<sup>2</sup>. При этой дозе суммарное содержание дейтерия и трития в  $Ti-T$ -слое достигает максимального значения  $\alpha_{D+T} = 2$ , где  $\alpha_{D+T}$  – число атомов

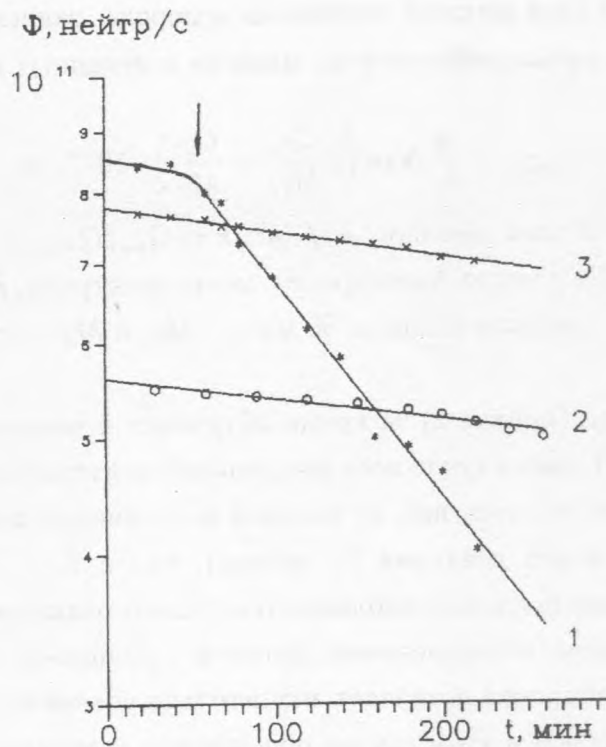


Рис. 1. Зависимость нейтронного потока от времени облучения на нейтронном генераторе при  $E_d = 210$  кэВ,  $j = 1$  мА/см<sup>2</sup> для титанотритиевых мишеней толщиной  $q > R_d$  (1);  $q < R_d$  (2);  $q \leq R_d$  (3). Изменение наклона кривой 1 (отмечено стрелкой) соответствует дозе дейтронов, попавших в мишень,  $Q_{имп} = 1,3 \cdot 10^{19}$  ядер/см<sup>2</sup>.

изотопов водорода на один атом титана. Дальнейшее увеличение дозы имплантированных дейтронов приводит к вытеснению трития из активного слоя мишени внедренными дейтронами и, соответственно, к более быстрому падению нейтронного выхода.

Отличие количества имплантированных дейтронов  $Q_{имп}$  от внедренных в активный слой мишени  $Q_{вн}$  объясняется особенностями диффузии дейтерия в металлах. В работах [12, 13] показано, что задолго до достижения динамического равновесия часть имплантированного дейтерия выходит из мишени, не сорбируясь в ней. Согласно экспериментальным данным, доза внедренных в мишень ядер дейтерия составляет 30-35% от общего числа имплантированных дейтронов [4, 13].

Время  $t_{\alpha=2}$ , за которое величина  $\alpha$  достигает значения 2, т.е. происходит полное насыщение активного слоя мишени изотопами водорода, зависит от толщины  $Ti - T$ -слоя, плотности тока пучка дейтронов на мишени и исходных концентраций титана и трития в мишени:

$$t_{\alpha=2} = \frac{q}{kj} N_A e \left( 2 \frac{C_{Ti}}{M_{Ti}} - \frac{C_T}{M_T} \right) \cdot 10^{-2}, \text{ с,}$$

где  $q$  – толщина  $Ti - T$ -слоя мишени,  $мг/см^2$ ;  $k = Q_{он}/Q_{умн} = 0,35$  [4];  $j$  – плотность тока пучка,  $мА/см^2$ ;  $N_A$  – число Авогадро;  $e$  – заряд электрона, Кл;  $C_{Ti}$  и  $C_T$  – исходные содержания титана и трития в мишени, % масс.;  $M_{Ti}$  и  $M_T$  – атомные массы титана и трития.

Для тонкой мишени (кривая 2) за время облучения 4 часа поток нейтронов уменьшился всего на 10%. В этом случае весь внедренный дейтерий попадает в медную подложку и диффундирует в глубь нее, не попадая в активный слой мишени. Анализ мишени на содержание в ней дейтерия [1] показал, что в  $Ti - T$ -слое он практически отсутствует, а в медной подложке наблюдается сильно размытый по глубине профиль дейтерия. Таким образом, использование мишеней с толщиной активного слоя меньше пробега ускоренных дейтронов позволяет значительно увеличить время жизни мишени. Падение выхода нейтронов в этом случае обусловлено совокупностью других механизмов, вызывающих уменьшение нейтронного потока. В основном оно определяется диффузией трития из приповерхностного слоя в вакуум [14]. Однако величина начального потока нейтронов для тонкой мишени приблизительно на 30% меньше, чем для толстой мишени. Для полутонкой мишени (кривая 3) зависимость  $\Phi(t)$  аналогична кривой 2, а начальный выход нейтронов несколько меньше, чем из толстой.

Приведенные результаты показывают, что существует оптимальная толщина активного слоя мишени, для которой при незначительной потере в начальном выходе нейтронов количество попадающего в  $Ti - T$ -слой дейтерия мало, т.е. практически не влияет на уменьшение нейтронного потока со временем.

Условием выбора оптимальной толщины  $Ti - T$ -слоя мишени является максимальное значение отношения начальных выходов нейтронов из мишени с оптимальной толщиной активного слоя  $q_{онт}$  и из толстой мишени –  $\Phi/\Phi_1$  (рис. 2) при минимальной доле внедренного в активный слой мишени дейтерия  $\Delta Q_{он}$  (рис. 3). Распределение внедренного в мишень дейтерия можно с достаточной точностью аппроксимировать функцией Гаусса (рис. 3), параметрами которой являются проективный пробег дейтронов в мишени  $R_d$  (центр нормального распределения) и страгглинг пробега  $\Delta R_d$  ( $\Delta R_d^2$  – дисперсия нормального распределения). Величина  $\Delta Q_{он} = k \Delta Q_{умн}$  и определяет время насыщения

Время  $t_{\alpha=2}$ , за которое величина  $\alpha$  достигает значения 2, т.е. происходит полное насыщение активного слоя мишени изотопами водорода, зависит от толщины  $Ti - T$ -слоя, плотности тока пучка дейтронов на мишени и исходных концентраций титана и трития в мишени:

$$t_{\alpha=2} = \frac{q}{kj} N_A e \left( 2 \frac{C_{Ti}}{M_{Ti}} - \frac{C_T}{M_T} \right) \cdot 10^{-2}, \text{ с,}$$

где  $q$  – толщина  $Ti - T$ -слоя мишени,  $мг/см^2$ ;  $k = Q_{вн}/Q_{умн} = 0,35$  [4];  $j$  – плотность тока пучка,  $мА/см^2$ ;  $N_A$  – число Авогадро;  $e$  – заряд электрона, Кл;  $C_{Ti}$  и  $C_T$  – исходные содержания титана и трития в мишени, % масс.;  $M_{Ti}$  и  $M_T$  – атомные массы титана и трития.

Для тонкой мишени (кривая 2) за время облучения 4 часа поток нейтронов уменьшился всего на 10%. В этом случае весь внедренный дейтерий попадает в медную подложку и диффундирует в глубь нее, не попадая в активный слой мишени. Анализ мишени на содержание в ней дейтерия [1] показал, что в  $Ti - T$ -слое он практически отсутствует, а в медной подложке наблюдается сильно размытый по глубине профиль дейтерия. Таким образом, использование мишеней с толщиной активного слоя меньше пробега ускоренных дейтронов позволяет значительно увеличить время жизни мишени. Падение выхода нейтронов в этом случае обусловлено совокупностью других механизмов, вызывающих уменьшение нейтронного потока. В основном оно определяется диффузией трития из приповерхностного слоя в вакуум [14]. Однако величина начального потока нейтронов для тонкой мишени приблизительно на 30% меньше, чем для толстой мишени. Для полутонкой мишени (кривая 3) зависимость  $\Phi(t)$  аналогична кривой 2, а начальный выход нейтронов несколько меньше, чем из толстой.

Приведенные результаты показывают, что существует оптимальная толщина активного слоя мишени, для которой при незначительной потере в начальном выходе нейтронов количество попадающего в  $Ti - T$ -слой дейтерия мало, т.е. практически не влияет на уменьшение нейтронного потока со временем.

Условием выбора оптимальной толщины  $Ti - T$ -слоя мишени является максимальное значение отношения начальных выходов нейтронов из мишени с оптимальной толщиной активного слоя  $q_{опт}$  и из толстой мишени –  $\Phi/\Phi_1$  (рис. 2) при минимальной доле внедренного в активный слой мишени дейтерия  $\Delta Q_{вн}$  (рис. 3). Распределение внедренного в мишень дейтерия можно с достаточной точностью аппроксимировать функцией Гаусса (рис. 3), параметрами которой являются проективный пробег дейтронов в мишени  $R_d$  (центр нормального распределения) и страгглинг пробега  $\Delta R_d$  ( $\Delta R_d^2$  – дисперсия нормального распределения). Величина  $\Delta Q_{вн} = k \Delta Q_{умн}$  и определяет время насыщения

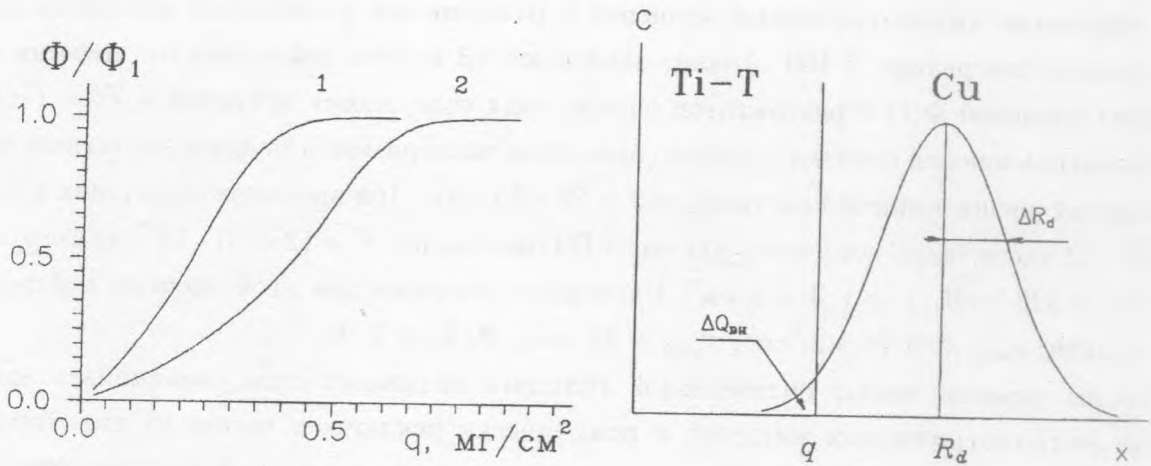


Рис. 2. Зависимость выхода нейтронов  $\Phi$  из титанотритиевой мишени ( $\alpha_T = 1,5$ ) от толщины активного слоя для энергий дейтронов 200 кэВ (1) и 300 кэВ (2).  $\Phi_1$  - выход нейтронов из толстой мишени.

Рис. 3. Распределение по глубине  $x$  внедренного в тритиевую мишень дейтерия (гауссово приближение).

$t'_{\alpha=2}$  для полутонкой мишени, после чего начинается быстрое падение выхода нейтронов. Исходя из гауссова приближения:

$$\Delta Q_{\text{вн}} = \frac{kQ_{\text{вн}}}{\sqrt{2\pi}} \int_0^u \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{x - R_d}{\Delta R_d}\right)^2\right) dx,$$

где  $u = (q - R_d)/(\Delta R_d)$ , а время насыщения активного слоя мишени изотопами водорода определяется соотношением:

$$t'_{\alpha=2} = \frac{q}{kj} N_A e \left(2 \frac{C_{Ti}}{M_{Ti}} - \frac{C_T}{M_T}\right) \cdot 10^{-2} / \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^u \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{x - R_d}{\Delta R_d}\right)^2\right) dx, \text{ с.} \quad (1)$$

Таким образом, величина  $q_{\text{opt}}$  выбирается так, чтобы получить максимальный флюенс нейтронов при длительных облучениях (более 15 часов). Для реального использования тритиевых мишеней оптимальная толщина  $Ti - T$ -слоя рассчитывается по формуле (1) для  $t'_{\alpha=2} = 20 - 40$  час при условии  $\Phi/\Phi_1 \geq 0,96$ .

Проверка проведенных расчетов оптимальных толщин активных слоев проводилась при облучении титанотритиевых мишеней с различными значениями величины  $q$  на нейтронном генераторе Т-400. Анализ зависимостей потока нейтронов от времени облучения мишеней  $\Phi(t)$  и результатов определения содержания дейтерия в  $Ti - T$ -слое облученных мишеней показал хорошее совпадение экспериментальных и расчетных данных; время жизни мишеней составляло  $\tau = 25 - 35$  час. При временах облучения порядка 10 - 12 часов были получены флюенсы ДТ-нейтронов  $F = (2 - 3) \cdot 10^{15}$  нейтр/см<sup>2</sup> при  $E_d = 320$  кэВ,  $j = 1,0$  мА/см<sup>2</sup>. Расчетные значения для этой энергии дейтронов составляли:  $q_{opt} = 0,78$  мг/см<sup>2</sup>;  $t'_{\alpha=2} = 32$  час;  $\Phi/\Phi_1 = 0,98$ .

Таким образом, выбор оптимальной толщины активного слоя увеличивает время жизни металлтритиевых мишеней и практически исключает выход из них трития. Так, например, после 20 часов облучения мишени содержание в ней трития уменьшилось на  $\sim 3\%$ . При этом нейтронные генераторы можно использовать для длительных облучений (более 10 часов облучения на одной мишени) и получения больших флюенсов ДТ-нейтронов, что ранее не применялось из-за быстрого падения выхода нейтронов. Это позволяет расширить области применения генераторов нейтронов в активационном анализе (использование долгоживущих аналитических радиоизотопов, облучение и анализ с использованием замедлителя быстрых нейтронов) и при исследовании радиационных дефектов под воздействием нейтронов.

## ЛИТЕРАТУРА

- [1] Барит И. Я., Кузьмин Л. Е., Макаров С. А. Поверхность. Физика, химия, механика, N 11, 49 (1984).
- [2] Booth R. et al. Nucl. Instr. and Meth., **145**, 25 (1977).
- [3] Немиллов Ю. А. и др. ПТЭ, N 6, 23 (1981).
- [4] Барит И. Я., Кузьмин Л. Е., Макаров С. А. Атомная энергия, **52**, 423 (1982).
- [5] Кузьмин Л. Е., Макаров С. А., Пронман И. М. Атомная энергия, **60**, 67 (1986).
- [6] Heß A., Franke H. D. Strahlentherapie, **155**, 486 (1979).
- [7] Stengl G., Vonach H. Nucl. Instr. and Meth., **140**, 197 (1977).
- [8] Logan C. M., Heikkinen P. L. Nucl. Instr. and Meth., **200**, 105 (1982).
- [9] Андреев А. В. и др. Атомная энергия, **66**, 134 (1989).

- [10] J a n n y J. F. Atomic data and nuclear data tables, **27**, 341 (1982).
- [11] Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark U. The Stopping and Ranges of Ions in Solids. Pergamon Press, N. Y., 1988.
- [12] Robinson M. T., Southern A. L., Willis W. R. J. Appl. Phys., **31**, 1474 (1960).
- [13] Немиллов Ю. А. и др. Препринт РИ-132. Л., Радиевый институт им. В. Г. Хлопина, 1980.
- [14] Барит И. Я., Кузьмин Л. Е., Макаров С. А. Докл. IV Всес. Сов. по применению ускорителей заряженных частиц в народном хозяйстве, т. 4, 251 (1982).

Институт ядерных исследований РАН

Поступила в редакцию 10 августа 1995 г.