

УДК 539.125.5

## ВЫБОР МАТЕРИАЛА МИШЕНИ КОМПАКТНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ ПРИ ЭНЕРГИИ ПРОТОНОВ 20–100 МэВ

© 2023 г. А. Р. Мороз<sup>a, b, \*</sup>, Н. А. Коваленко<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт” – Петербургский институт ядерной физики, Гатчина, 188300 Россия

<sup>b</sup>Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, 199034 Россия

\*e-mail: moroz\_ar@npi.nrcki.ru

Поступила в редакцию 17.01.2023 г.

После доработки 20.02.2023 г.

Принята к публикации 20.02.2023 г.

В качестве возможных материалов мишени для компактного источника нейтронов рассмотрены Ве, Nb, Ta и W. Учтены тепловые характеристики и коэффициент диффузии водорода. С помощью моделирования транспорта частиц в программе PHITS получены оценки выхода нейтронов при облучении мишени протонами с различной энергией. Разным диапазонам энергии соответствуют различные оптимальные материалы. Наилучшие результаты при энергии до 20 МэВ показывает Ве, 20–35 МэВ – Nb, а свыше 35 МэВ – Ta. Последние два материала обладают повышенной устойчивостью к блистерингу по сравнению с бериллием, но проигрывают по теплопроводности. Повышение энергии налетающих протонов также приводит к увеличению числа сгенерированных нейтронов на один протон источника в связи с уменьшенным временем кулоновского взаимодействия частицы с ядром атома мишени.

**Ключевые слова:** компактный источник нейтронов, DARIA, мишенная сборка, численное моделирование, PHITS, SRIM.

**DOI:** 10.31857/S1028096023070099, **EDN:** TCMDFW

### ВВЕДЕНИЕ

Разработка компактных источников нейтронов для нужд физики конденсированного состояния вещества является перспективным направлением современной науки. Нейтронные исследования позволяют получать уникальную информацию о структуре вещества, недоступную для иных методов. Однако сокращающееся число исследовательских реакторов не позволяет обеспечить существующий высокий спрос на нейтронные инструменты достаточным пучковым временем. В связи с уменьшенными радиационными и тепловыми нагрузками по сравнению с высокопоточными источниками нейтронов упрощается замена различных частей установки, а также появляется дополнительная свобода выбора различных конструкций и материалов мишени. Последовательная оптимизация установок позволяет свести потери нейтронов к минимуму. Получаемый в компактном источнике пучок нейтронов обладает высокой яркостью, а его импульсная структура позволяет наиболее эффективно использовать различные инструменты.

Интенсивность пучка нейтронов, генерируемого источником, зависит как от тока и энергии

налетающих протонов, так и от материала и конструкции мишени. Оптимизация мишени позволяет добиться значительного повышения эффективности источника нейтронов при неизменных параметрах ускорителя. Наиболее распространены компактные источники, использующие диапазон энергии протонов от 2 до 70 МэВ. Это обусловлено наличием серийно производимых для такого диапазона энергии ускорителей. Стоимость ускорителя в свою очередь является основной статьей расхода при строительстве компактного источника нейтронов. На сегодняшний день наибольшее распространение получили мишени из бериллия и лития – энергия связи нейтронов в ядре этих двух элементов мала. Поэтому для большинства источников применяются именно эти два материала. При низких энергиях – около 5–10 МэВ – наилучший выход нейтронов обеспечивает именно литий, но его низкая температура плавления 182°C предполагает использование жидкой мишени [1]. Также литий обладает высокой химической активностью, что дополнительно усложняет эксплуатацию такой мишени.

Бериллиевые мишени используют в твердом состоянии, они также обеспечивают высокий вы-

**Таблица 1.** Существующие в мире проекты компактных источников нейтронов [1]

Источник	Материал мишени	Энергия протонов, МэВ
KUANS	Be	3,5
RANS	Be	7
LENS	Be	13
SONATE	Be	20
ESS Bilbao	Be	50
LENOS	Li	5
SARAF	Li	40
HBS	Ta	70

ход нейтронов вплоть до энергии 20–30 МэВ. Информация о материалах мишеней, используемых в различных проектах, представлена в табл. 1.

Выбор конструкции мишенной сборки зависит от энергии и тока протонного пучка, которые задают критерии для системы охлаждения, а также от необходимого набора нейтронных инструментов, которые требуют определенных параметров входного нейтронного пучка. В настоящее время существует немалое количество технологических решений для конструкции мишени, включающих струйные, ленточные, сферические [2], вращающиеся [3] мишени, а также мишени с внутренними [4] и внешними [5] охлаждающими микро- и миниканалами.

В рамках расчетов, выполненных в проекте по созданию компактного источника DARIA, было установлено, что использование налетающих на бериллиевую мишень протонов с энергией 13 МэВ дает наилучшие результаты по сравнению с более низкими энергиями. Помимо очевидного преимущества, заключающегося в более высоком выходе нейтронов, также отмечается более высокое соотношение сгенерированных нейтронов и начальной энергии протона. Поэтому существует вполне определенный интерес в расчете характеристик мишени при дальнейшем повышении энергии.

Целью настоящей работы было обоснование выбора материала мишени при увеличении энергии протонного пучка вплоть до 100 МэВ для проекта компактного источника нейтронов DARIA.

## ФИЗИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ПОВЫШЕНИЯ ВЫХОДА НЕЙТРОНОВ

Физической основой для работы компактных источников нейтронов являются ядерные реакции ускоренных ионов с использованием ядер со слабосвязанными нейтронами, например  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ ,  ${}^9\text{Be}(p,\text{Be}){}^9\text{B}$ ,  ${}^{51}\text{V}(p,n){}^{51}\text{Cr}$  [2]. Для протекания ядерной реакции ускоренный ион должен обладать

достаточной энергией для преодоления кулоновского барьера атома мишени.

В нерелятивистской области с увеличением энергии ионов снижается доля потерь на ионизацию атомов мишени среди всех каналов взаимодействия – в связи с растущей скоростью налетающей частицы сокращается время кулоновского взаимодействия с электронами атомов. Сложная зависимость ионизационных потерь иона от его энергии выражается формулой Бете–Блоха:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = \frac{4\pi n_e z^2 e^4}{m_e v^2} \left[ \ln \frac{2m_e v^2}{I(1-\beta^2)} - \beta^2 \right].$$

Здесь  $z$  и  $v$  – заряд иона и его скорость,  $n_e$  – электронная плотность,  $I$  – средний ионизационный потенциал атомов, а  $\beta = v/c$ . Эта зависимость имеет ярко выраженный максимум в области малых значений энергии, который затем резко спадает. При появлении релятивистских эффектов наблюдается медленный логарифмический рост ионизационных потерь до некоего предела, после достижения которого происходит насыщение [6].

С уменьшающейся долей энергии, затраченной на ионизацию, повышается вероятность взаимодействия иона с ядром и протекания реакций, производящих нейтроны. Этот факт обуславливает необходимость перехода от бериллия к элементам с более высоким порядковым номером. Такая мысль не нова и широко используется как при разработке высокомоощных нейтронных источников ускорительного типа, так и компактных источников нейтронов. Недостатком использования более тяжелых элементов является более интенсивная активация, вызванная появлением большего количества возможных каналов реакций и более длинных цепочек распадов.

Главным требованием к материалу мишени после обеспечения высокого выхода нейтронов является устойчивость к разрушению при работе источника. Основными разрушающими факторами являются различные виды тепловой нагрузки, блистеринг и радиационные повреждения материала. Проблему блистеринга можно решить, используя жидкую мишень, однако, как упоминалось выше, такой вариант существенно усложняет ее конструкцию. Для разработки твердотельной мишени, устойчивой к блистерингу, необходимо рассматривать материалы с высоким коэффициентом диффузии водорода. С одной стороны, наилучшими вариантами с данной точки зрения являются ванадий, ниобий и тантал [7]. Эти элементы также обладают высокой температурой плавления, но их теплопроводность невысока. Тем не менее в связи с растущим средним пробегом протонов в веществе при повышении их энергии увеличивается и необходимая толщина мишени. Это, в свою очередь, дает дополнитель-

**Таблица 2.** Характеристики материалов мишени

Материал мишени	$DH_2, 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$	$T_{\text{пл}}, \text{ }^\circ\text{C}$	Теплопроводность, Вт/(м · К)
Be	1 [8]	1287	165
W	10 [9]	3422	170
Ta	200 [10]	3017	57
Nb	800 [11]	2477	54
V	5000 [7]	1910	31

Примечание.  $DH_2$  – коэффициент диффузии водорода при 300 К,  $T_{\text{пл}}$  – температура плавления.

**Таблица 3.** Средняя длина пробега протона (мм) в материалах

$E, \text{ МэВ}$	Be		Nb	Ta		W
	SRIM	[13]	SRIM	SRIM	[13]	SRIM
10	0.80	0.78	0.28	0.19	0.20	0.17
13	1.28	1.26	0.44	0.30	0.31	0.26
20	2.78	2.74	0.91	0.61	0.63	0.52
30	5.80	5.73	1.83	1.20	1.24	1.03
40	9.77	9.65	3.02	1.96	2.02	1.68
50	14.63	14.45	4.45	2.86	2.95	2.46
60	20.34	20.26	6.11	3.91	4.03	3.36
70	26.85	26.49	7.99	5.09	5.24	4.37
80	34.13	33.65	10.08	6.40	6.58	5.49
90	42.15	41.52	12.36	7.82	8.04	6.72
100	50.87	50.07	14.84	9.37	9.62	8.04

ные технологические возможности для разработки системы охлаждения. Несмотря на высокие сечения производящих нейтроны реакций, ионизационные потери протонов на атомах ванадия слишком высоки для эффективной генерации нейтронов при малых энергиях. Таким образом, выход нейтронов из ванадия остается невысоким. С другой стороны, давно зарекомендовавшим себя претендентом является вольфрам, обладающий высокой плотностью и хорошими тепловыми характеристиками. Некоторые характеристики рассматриваемых материалов мишени представлены в табл. 2. Переход от Be к Nb или Ta позволяет выиграть более двух порядков в коэффициенте диффузии водорода или один порядок в случае выбора вольфрама. Однако теплопроводность всех рассмотренных элементов, кроме вольфрама, значительно хуже, чем бериллия. По балансу тепловых характеристик и коэффициенту диффузии водорода наилучший результат показывает вольфрам.

### МЕТОДОЛОГИЯ РАСЧЕТА

Для расчета необходимых толщин мишеней для полной остановки протонов с заданной энергией использован программный код SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) [12]. Полученные результаты хорошо согласуются с имеющимися данными [13]. В то же время расчет толщины с помощью PHITS (Features of Particle and Heavy Ion Transport code System) дает результаты, хорошо согласующиеся с данными SRIM. Необходимые толщины мишени для различной энергии протонов представлены в табл. 3.

С использованием программы PHITS [14] выполнены расчеты выхода нейтронов из Be, Nb, Ta и W мишеней при облучении протонами с энергией в диапазоне 10–100 МэВ с шагом 10 МэВ. Расчеты выполнены в случае толстых мишеней, в которых протон оставляет всю свою энергию. Модель мишени представляет собой диск диаметром 2.5 см. Моноэнергетический пучок протонов падает на ее поверхность по нормали слева (рис. 1). Рассчитывают выход нейтронов из всего

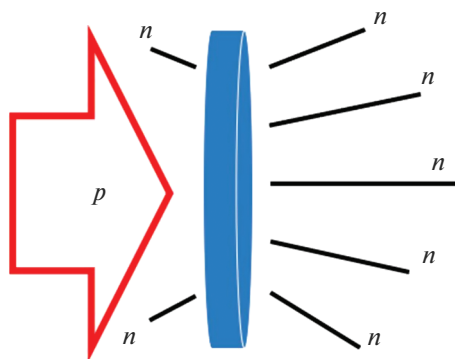


Рис. 1. Расчетная схема задачи в программе PHITS.

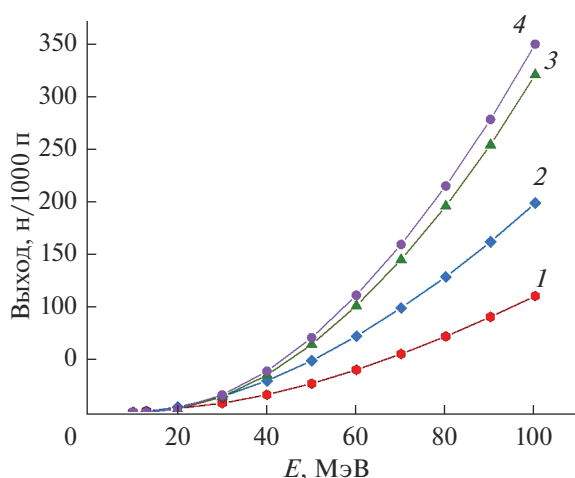


Рис. 2. Выход нейтронов при различной энергии налетающих протонов из мишени: 1 – Be; 2 – Nb; 3 – Ta; 4 – W.

Таблица 4. Выход нейтронов для различных материалов мишени

E, МэВ	Выход, н/1000 п			
	Be	Nb	Ta	W
10	1.1	0.4	0.1	0.4
13	1.9	1.2	0.5	0.4
20	4.3	5.4	3.6	4.1
30	9.1	15.5	15.2	17.0
40	17.2	30.4	35.8	39.5
50	27.8	49.5	64.9	71.4
60	40.9	72.8	101.6	111.7
70	56.0	99.7	145.4	159.9
80	72.6	129.1	196.2	215.3
90	91.1	162.3	254.4	278.6
100	111.0	199.1	320.8	350.0

Примечание. н – нейтрон, п – протон.

объема мишени в вакуум в единицах один нейтрон на 1000 протонов. Таким образом, полученный результат можно масштабировать для любого протонного тока от ускорителя. Для учета сечений взаимодействия протонов с веществом использованы данные библиотеки TENDL-2019 [15]. Для областей, в которых данные библиотеки отсутствуют (Nb, Ta, W, энергия выше 30 МэВ), сечения рассчитывали аналитически по модели INCL [16].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные результаты выхода нейтронов (табл. 4), также наглядно изображенные на рис. 2, подтверждают выводы [17]. Абсолютные значения выхода могут отличаться от получаемых с помощью других программных кодов. Тем не менее четко прослеживаются следующие закономерности. Бериллий обеспечивает наилучший выход нейтронов вплоть до энергии протонов около 18 МэВ. Далее преимущество переходит к ниобию, а затем при энергии около 35 МэВ – к танталу. Как и ожидалось, с увеличением энергии растет и энергетическая эффективность мишени, выражаемая в количестве сгенерированных нейтронов на каждый МэВ энергии протона (рис. 3). Данная закономерность прослеживается в испарительных источниках нейтронов, обладающих самым низким энерговыделением в расчете на один произведенный нейтрон [18].

Бериллий, тантал и вольфрам уже достаточно широко изучены в качестве материалов мишени, ниобий для такой цели обычно не рассматривали. Однако его свойства, особенно высокая устойчивость к блистерингу, делают его весьма привлекательным для такого применения. Благодаря высокой ценности ниобия как технологического материала существует множество экспериментов, в которых проводили облучение протонами в рассматриваемом диапазоне энергии. Так, в [19] ниобиевую мишень облучали протонами с энергией от 5.7 до 37 МэВ. Протекающие ядерные реакции с образованием радиоактивных изотопов являются пороговыми, поэтому набор таких изотопов зависит от выбора энергии протона. Так, например, при энергии 35 МэВ рождаются следующие изотопы:  $^{90}\text{Mo}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Mo}$ ,  $^{90}\text{Nb}$ ,  $^{91\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{88}\text{Zr}$ ,  $^{89}\text{Zr}$  и  $^{88}\text{Y}$ . Самым долгоживущим из них с периодом полураспада 106.6 дней является  $^{88}\text{Y}$ . Если же энергия протонов равна 21 МэВ, то период полураспада самого долгоживущего продукта  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  составляет уже 10.1 дней. Для полной оценки возможности использования ниобия в качестве мишени для компактного источника нейтрона требуются дополнительные исследования.

При повышении энергии протонов значительно увеличивается интенсивность нейтронного

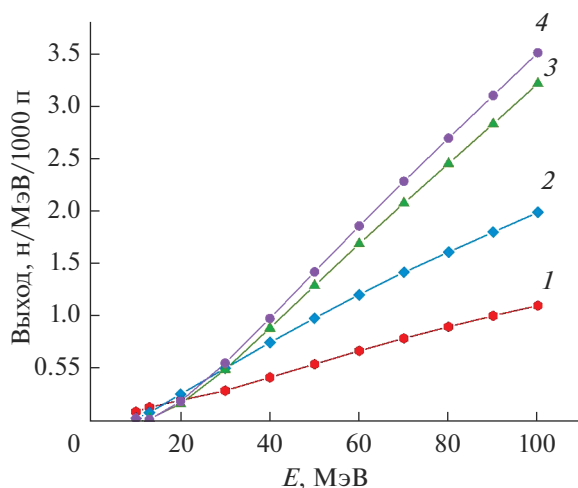


Рис. 3. Выход нейтронов, нормированный на начальную энергию протонов, для различных материалов мишеней: 1 – Вe; 2 – Nb; 3 – Та; 4 – W.

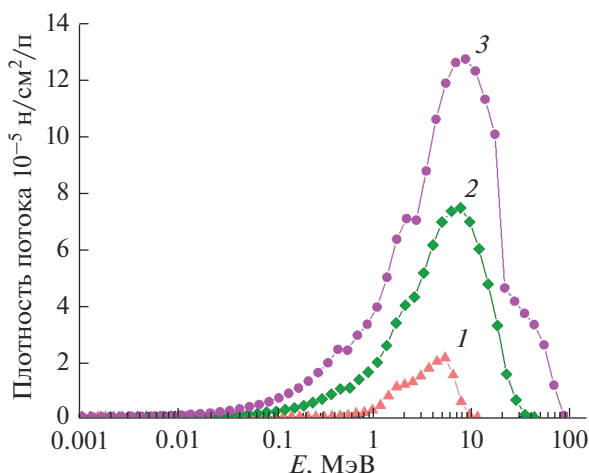


Рис. 4. Спектры нейтронов при облучении бериллиевой мишени протонами с энергией: 1 – 13; 2 – 50; 3 – 100 МэВ.

пучка. Однако форма нейтронного спектра и положение его пика изменяются не столь значительно. Так, при энергии протона 13, 50 и 100 МэВ средняя энергия спектра нейтронов, соответственно, составляет 2.5, 8 и 10 МэВ. Форма спектра остается практически неизменной (рис. 4). Данный факт позволяет использовать одинаковые конструкции замедлителей для широких диапазонов энергии протонного пучка.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Повышение начальной энергии протонов требует выбора материалов и толщины мишени. При значениях энергии до 18–20 МэВ оптимальным

вариантом остается бериллий. Далее преимущество переходит к ниобию. При энергии 35 МэВ и более тантал или вольфрам показывают лучшие результаты. При увеличении энергии от 10 до 100 МэВ рост выхода нейтронов составляет более двух порядков. Растет и энергетическая эффективность мишени – число нейтронов, сгенерированных на каждый МэВ протонной энергии. Большая толщина мишени и возможность выбора материала с хорошими тепловыми характеристиками дают возможность упростить конструкцию охлаждения мишени.

Сравнение эффективности мишеней только лишь по выходу нейтронов не является исчерпывающим, поскольку необходимо принимать во внимание энергетический спектр генерируемых нейтронов и их угловое распределение, а также механические и тепловые характеристики материалов. Также немаловажно оценивать активацию материала мишени и сопутствующее гамма-излучение. Тем не менее на эти характеристики можно в некоторой степени влиять с помощью других компонентов мишени сборки, а выход нейтронов остается хорошей отправной точкой для дальнейшей оптимизации.

### БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-15-2022-830 от 27 мая 2022 г. (продолжение Соглашения № 075-15-2021-1358 от 12 октября 2021 г.).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Low Energy Accelerator-Driven Neutron Sources: Rep. League of Advanced European Neutron Sources; Executor: hoc working group CANS LENS Ad, 2020.
2. Таскаев С.Ю. // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2015. Т. 46. Вып. 6. С. 1770.
3. Sordo F., Fernández-Alonso F., Terrón S., Magán M., Ghigolino A., Martínez F., Bermejo F.J., Perlado J.M. // Phys. Procedia. 2014. V. 60. P. 125.
4. Gutberlet T. Conceptual Design Report–Jülich High Brilliance Neutron Source (HBS). Forschungszentrum Jülich GmbH, Zentralbibliothek, Verlag, 2020.
5. Annighofer S.N., Meuriot J.-L., Tessier O., Permingeat P., Sauce Y., Chauvin N., Senee F., Schwindling J., Ott F. A Solid Beryllium Target Design for SONATE // Proc. Int. Symposium UCANS8. Paris, France, July, 8–11, 2019.
6. Мурзина Е.А. Взаимодействие излучений высокой энергии с веществом: Учеб. пособие. М.: Изд-во МГУ, 1990. 369 с.
7. Yamagata Y., Hirota K., Ju J., Wang S., Morita S.Y., Kato J.I., Otake Y., Taketani A., Sek, Y., Yamada M., Ota H., Bautista U., Jia Q. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2015. V. 305. № 3. P. 787.

8. *Ferry L., Virost F., Ferro Y., Matveev D., Linsmeier C., Barrachin M.* // J. Nucl. Mater. 2019. V. 524. P. 323.
9. *Liu Y.N., Wu T., Yu Y., Li X.C., Shu X., Lu G.H.* // J. Nucl. Mater. 2014. V. 455. № 1–3. P. 676.
10. *Wipf H.* // Phys. Scripta. 2001. V. 2001. № T94. P. 43.
11. *Bauer H.C., Völkl J., Tretkowski J., Alefeld G.* // Z. Physik. B. 1978. B. 29. № 1. S. 17.
12. *Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2010. V. 268. № 11–12. P. 1818.
13. *Немец О.Ф., Гофман Ю.В.* Справочник по ядерной физике. Киев, Наукова думка, 1975. 416 с.
14. *Sato T., Iwamoto Y., Hashimoto S., Ogawa T., Furuta T., Abe S.I., Kai T., Tsai P.-E., Matsuda N., Iwase H., Shigyo N., Sihver L., Niita K.* // J. Nucl. Sci. Technol. 2018. V. 55. № 6. P. 684.
15. *Koning A.J., Rochman D., Sublet J.C., Dzysiuk N., Fleming M., Van der Marck S.* // Nucl. Data Sheets. 2019. V. 155. P. 1.
16. *Boudard A., Cugnon J., David J.C., Leray S., Mancusi D.* // Phys. Rev. C. 2013. V. 87. № 1. P. 014606.
17. *Zakalek P., Doege P.E., Baggemann J., Mauerhofer E., Brückel T.* // EPJ Web Conf. 2020. V. 231. P. 03006.
18. *Аксенов В.Л.* // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 1995. Т. 26. Вып. 6. С. 1449.
19. *Ditroi F., Hermanne A., Corniani E., Takacs S., Tárkányi F., Csikai J., Shubin Y.N.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2009. V. 267. № 19. P. 3364.

## Choice of the Target Material for a Compact Neutron Source at a Proton Energy of 20–100 MeV

A. R. Moroz<sup>1, 2, \*</sup>, N. A. Kovalenko<sup>1</sup>

<sup>1</sup>National Research Center “Kurchatov Institute”—PNPI, Gatchina, 188300 Russia

<sup>2</sup>Saint Petersburg State University, St. Petersburg, 199034 Russia

\*e-mail: moroz\_ar@pnpi.nrcki.ru

Be, Nb, Ta and W are considered as candidate target materials for a compact neutron source. The thermal characteristics and the hydrogen diffusion coefficients are taken into account. Using the simulation of particle transport in the PHITS program, estimates are obtained for the neutron yield when the target is irradiated with protons of various energies. Different optimal materials correspond to different energy ranges. The best results at energies up to 20 MeV are shown by Be, 20–35 MeV by Nb, and above 35 MeV by Ta. The last two materials have an increased blistering resistance compared to beryllium, but lose in thermal conductivity. An increase in the energy of incident protons also leads to an increase in the number of neutrons generated per one source proton due to a reduced time of the Coulomb interaction between a particle and the target atom nucleus.

**Keywords:** compact neutron source, DARIA, target, numerical simulation, PHITS, SRIM.