

В. О. Желтоножський, Д. Є. Мизніков, А. М. Саврасов\*, В. І. Слісенко

*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна*

\*Відповідальний автор: asavrasov@kinr.kiev.ua

**ДОСЛІДЖЕННЯ ЗАСЕЛЕННЯ <sup>7</sup>Be В РЕАКЦІЯХ НА ЯДРАХ БЕРИЛІЮ І БОРУ  
З ГАЛЬМІВНИМИ  $\gamma$ -КВАНТАМИ В ШИРОКОМУ ДІАПАЗОНІ ВЕЛИЧИН ЕНЕРГІЇ**

Уперше виміряно середньозважені перерізи як заселення <sup>7</sup>Be при граничних значеннях енергії гальмівних  $\gamma$ -квантів 40 та 55 MeV, так і реакції <sup>10</sup>B( $\gamma$ , t)<sup>7</sup>Be при величині граничної енергії 20 MeV. Результати моделювання з використанням програмних кодів TALYS-1.9 та EMPIRE-3.2 демонструють домінування нестатистичних процесів.

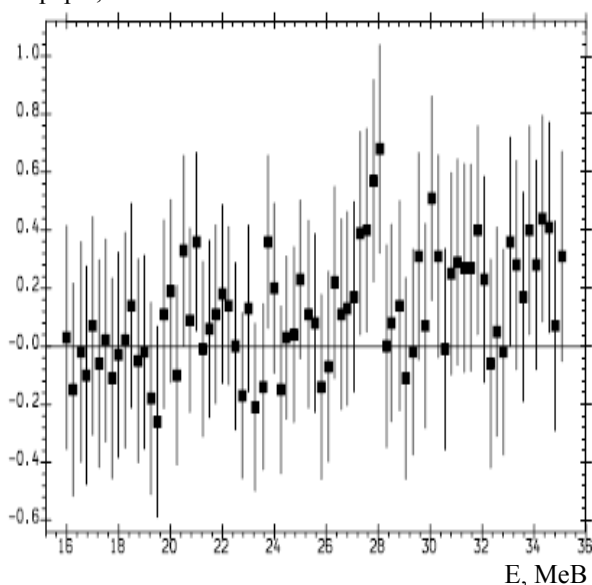
*Ключові слова:* середньозважені перерізи, активаційний метод,  $\gamma$ -спектрометрія, берилій, бор.

**1. Вступ**

Дослідження перерізів фотопоглинання на ядрах <sup>9</sup>Be і <sup>10,11</sup>B викликає значний науковий та прикладний інтерес, оскільки дані ядра відносяться до перехідної області з A = 6 – 11. У цій області ядер можуть відбуватися як прямі процеси, так і збудження через резонансні стани. Дослідження ( $\gamma$ , n)- і ( $\gamma$ , 2n)-реакцій у легких ядрах показують, що процес фотозбудження відбувається завдяки прямим процесам [1]. Виходячи

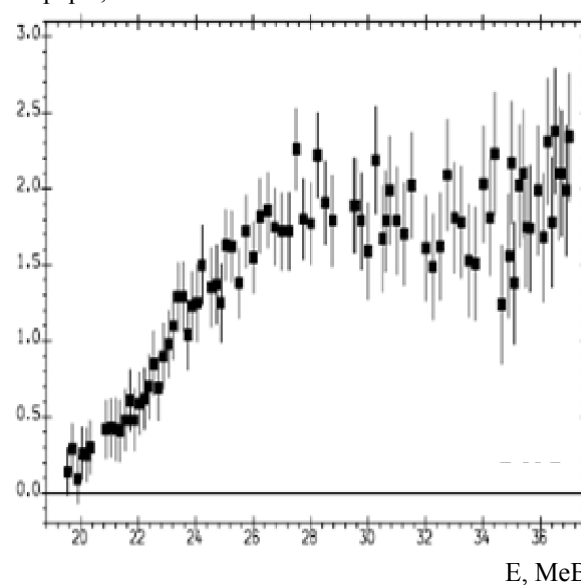
з цього, існує певна зацікавленість дослідити ( $\gamma$ , p2n)-, ( $\gamma$ , dn)- і ( $\gamma$ , t)-реакції на <sup>10</sup>B через активацію <sup>7</sup>Be, оскільки виліт заряджених частинок, як правило, також відбувається внаслідок прямого механізму. Експериментальні дані про перерізи реакцій ( $\gamma$ , 2n)-, ( $\gamma$ , p2n) на <sup>10</sup>B отримано до енергії 36 MeV, проте похибка цих вимірювань становить фактично 50 % (рис. 1, а). Для <sup>9</sup>Be також відсутні дані про перерізи в області енергії монохроматичних  $\gamma$ -квантів вище 36 MeV (див. рис. 1, б).

Переріз, мб



а

Переріз, мб



б

Рис. 1. Експериментальні перерізи реакцій <sup>10</sup>B( $\gamma$ , 2n)<sup>8</sup>B + <sup>10</sup>B( $\gamma$ , 2np)<sup>7</sup>Be (а) і <sup>9</sup>Be( $\gamma$ , 2n)<sup>7</sup>Be + <sup>9</sup>Be( $\gamma$ , 2np)<sup>6</sup>Li (б), отримані з експериментальної бази EXFOR [2].

Дані дослідження викликають також значний прикладний інтерес, оскільки дані про перерізи на нуклідах, що приводять до утворення <sup>7</sup>Be, необхідно знати при активаційному аналізі домішок <sup>9</sup>Be та <sup>10</sup>B в конструкційних матеріалах АЕС.

Як відомо, берилій має унікальне поєднання двох ядерних характеристик: низький ефективний переріз захоплення теплових нейтронів та високий коефіцієнт розсіяння нейтронів. Крім того, оксид берилію витримує дуже високі тем-

пературі і є хімічно інертним. Завдяки цим властивостям і з урахуванням його високої жаростійкості та теплоємності стабільний берилій  ${}^9\text{Be}$  (моноізотоп) використовується в конструкційних матеріалах відбивачів і в оболонках твєлів на АЕС. Проте після тривалої експлуатації станцій у конструкційних матеріалах активної зони реактора і в навколишніх приміщеннях ідентифікується  ${}^{10}\text{Be}$  з періодом напіврозпаду  $T_{1/2} = 1,6 \cdot 10^6$  років. Унаслідок його токсичності, яскраво вираженої канцерогенної дії (для повітря гранично допустима концентрація забруднюючої речовини в перерахунку на берилій становить  $1 \cdot 10^{-6}$  г/м<sup>3</sup>) і значної радіобіологічної небезпеки (при такому тривалому періоді напіврозпаду, потрапляючи в організм, берилій відкладається або в нирках, або в кістках, де заміщає магній) необхідно організувати ретельний оперативний контроль за його вмістом у відходах, конструкційних матеріалах та приміщеннях АЕС. Технологічним матеріалом в атомних реакторах є також борна кислота. А при опроміненні тепловими нейтронами бору на  ${}^{10}\text{B}$  протікає реакція (n, p) з перерізом, рівним перерізу (n,  $\gamma$ )-реакції на  ${}^9\text{Be}$ . Цей канал також приводить до утворення  ${}^{10}\text{Be}$ . Даний нуклід є чистим  $\beta$ -випромінювачем, при розпаді якого випромінюються лише електрони з граничною енергією 555 кеВ, і тому традиційними методами його виявлення та вимірювання концентрації є методично складні й високовартісні радіохімічні процедури виділення  ${}^{10}\text{Be}$ . Нами для розв'язання даної проблеми розроблено фотоактиваційну методику, що ґрунтується на визначенні концентрації  ${}^9\text{Be}$  та  ${}^{10}\text{B}$  в конструкційних матеріалах за допомогою фотоядерних реакцій [3].

Метою даної роботи було дослідження заселення  ${}^7\text{Be}$  в реакціях на мішенях з природних берилію і бору в широкому діапазоні граничних величин енергії ( $E_{\text{гр}}$ ) гальмівних  $\gamma$ -квантів.

## 2. Методи дослідження та результати

Вимірювання середньозважених перерізів для берилію та бору проводились для гальмівних

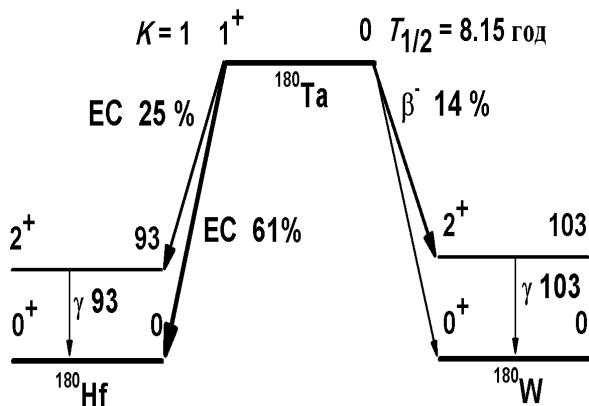
$\gamma$ -квантів з граничними величинами енергії 20, 40 і 55 МеВ на прискорювачі електронів ЛУЕ-40 Харківського фізико-технічного інституту НАН України [4]. Опромінювались збірки, що складалась з природних берилію, бору та танталу. Мішені з природного танталу опромінювались з метою моніторингу пучка гальмівних  $\gamma$ -квантів. Тривалість опромінювання варіювалась від 20 до 80 хв, часи охолодження та вимірювання змінювались від 1 год до 14 діб. Струм пучка електронів варіювався в межах 1 - 5 мкА.

Після опромінення вимірювались  $\gamma$ -спектри наведеної активності в низькофоновій лабораторії за допомогою спектрометрів, зібраних на базі HPGe-детекторів фірм Canberra та Ortec з ефективністю реєстрації 15 - 40 % порівняно з NaI(Tl)-детектором розмірами  $3'' \times 3''$ . Енергетична роздільна здатність спектрометрів становила 1,2 кеВ на  $\gamma$ -лінії 343 кеВ  ${}^{175}\text{Hf}$  та 1,8 - 2,0 кеВ на  $\gamma$ -лініях 1173 і 1332 кеВ  ${}^{60}\text{Co}$ .

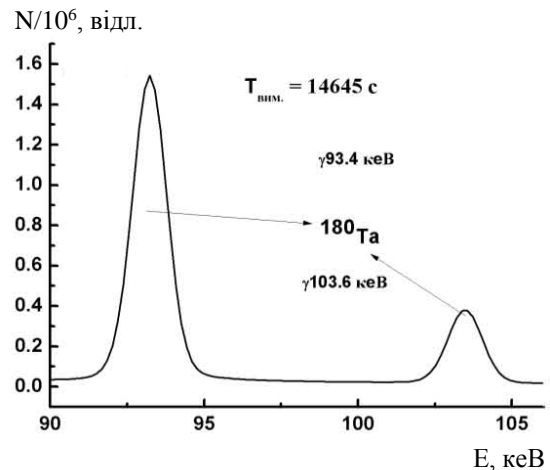
Моніторування пучка  $\gamma$ -квантів проводилось за допомогою ( $\gamma, n$ )-реакції на  ${}^{181}\text{Ta}$ . При цьому утворюється  ${}^{180}\text{Ta}$ , який розпадається з  $T_{1/2} = 8,15$  год (рис. 2 для  $E_{\text{гр}} = 55$  МеВ). Для визначення щільності потоку гальмівних  $\gamma$ -квантів визначались площі фотопіків  $\gamma$ -ліній 93,3 і 103,6 кеВ, що супроводжують розпад  ${}^{180}\text{Ta}$  (див. рисунок) і середньозважений переріз реакції  ${}^{181}\text{Ta}(\gamma, n){}^{180}\text{Ta}$ . Цей переріз визначався в результаті згортки з кроком 1 МеВ за формулою (1)

$$\sigma^{\text{aver}} = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i}, \quad (1)$$

де  $\sigma_i$  – табличні значення перерізів реакції  ${}^{181}\text{Ta}(\gamma, n){}^{180}\text{Ta}$  для монохроматичних  $\gamma$ -квантів [5] (рис. 3, а);  $\varphi_i$  – відносні величини потоку, модельованого в Geant4 [6] спектра гальмівних  $\gamma$ -квантів (див. рис. 3, б), приведені до граничної величини реакції  $E_{\text{гр}}$ .

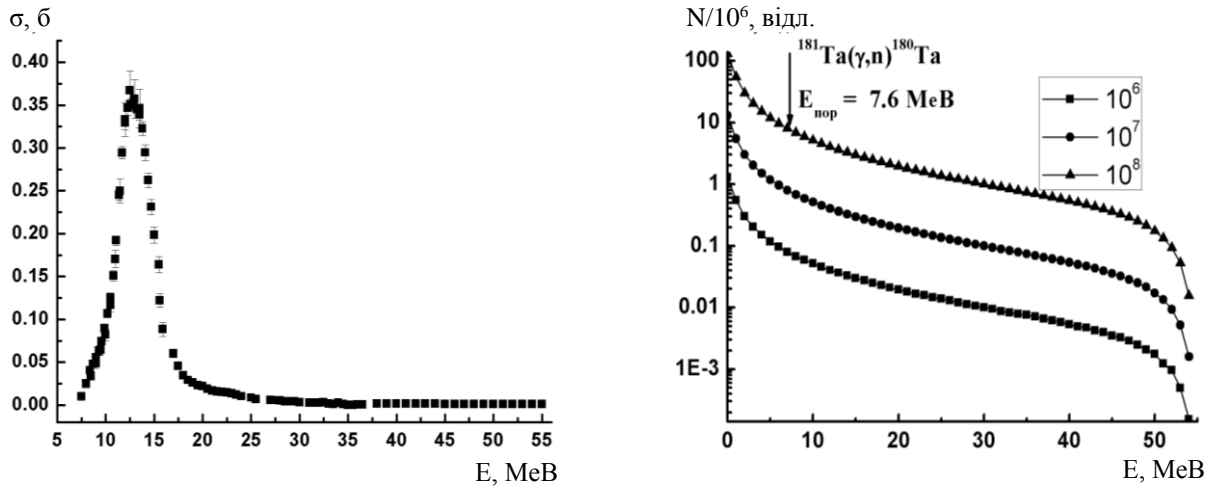


а



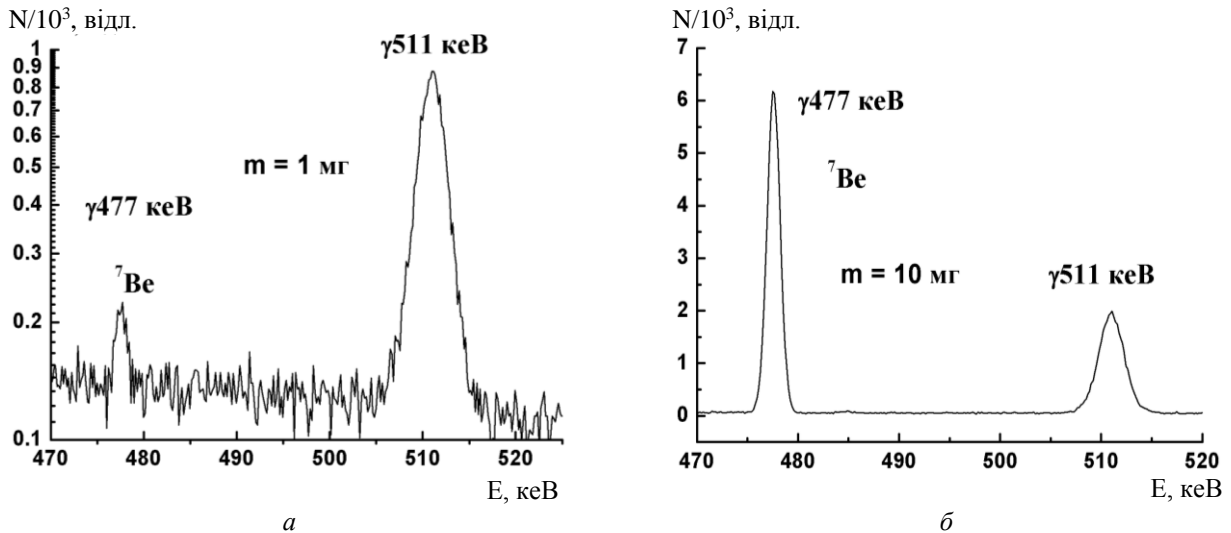
б

Рис. 2. Фрагменти схеми розпаду  ${}^{180}\text{Ta}$  (а) та  $\gamma$ -спектра танталу (б), опроміненого гальмівними  $\gamma$ -квантами.



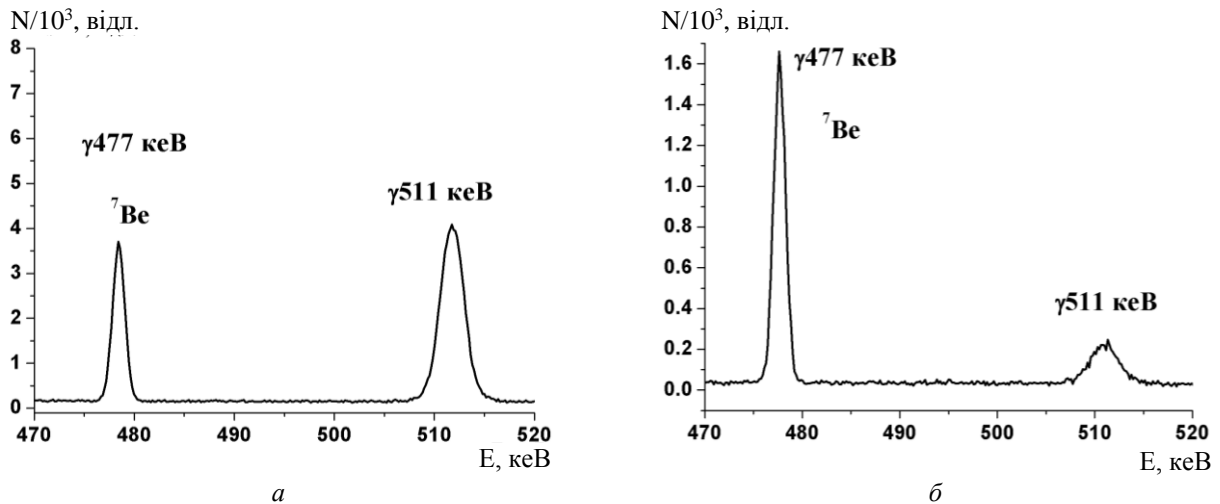
*a* *б*  
 Рис. 3. Експериментальні перерізи реакції  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$  (*a*) та гальмівний спектр для різної кількості подій (*б*).  $E_{\text{пор}} = 55 \text{ MeV}$ .

При  $E_{\text{гр}} = 55 \text{ MeV}$  у реакції  $(\gamma, 2n)$  на  $^9\text{Be}$  та в реакціях  $(\gamma, p2n)$ -,  $(\gamma, dn)$ - і  $(\gamma, t)$  на  $^{10}\text{B}$  та  $(\gamma, p3n)$ -,  $(\gamma, d2n)$ - і  $(\gamma, tn)$  на  $^{11}\text{B}$  утворюється  $^7\text{Be}$  (рис. 4).



*a* *б*  
 Рис. 4. Фрагменти  $\gamma$ -спектрів опромінених мішеней  $^{\text{nat}}\text{B}$  (*a*) і  $\text{Be}$  (*б*) при  $E_{\text{гр}} = 55 \text{ MeV}$ .

При  $E_{\text{гр}} = 40 \text{ MeV}$  утворення  $^7\text{Be}$  можливе лише в реакціях  $(\gamma, p2n)$ -,  $(\gamma, dn)$ - і  $(\gamma, t)$  на  $^{10}\text{B}$  та  $(\gamma, tn)$  на  $^{11}\text{B}$  (рис. 5).



*a* *б*  
 Рис. 5. Фрагменти  $\gamma$ -спектрів опромінених мішеней  $^{\text{nat}}\text{B}$  (*a*) та  $\text{Be}$  (*б*) при  $E_{\text{гр}} = 40 \text{ MeV}$ .

При  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV збудження  ${}^7\text{Be}$  можливе лише в реакції  ${}^{10}\text{B}(\gamma, t){}^7\text{Be}$ , енергетичний поріг якої 18,7 MeV (рис. 6), а кулонівський бар'єр  $\sim 1,5$  MeV. Таким чином, дана реакція можлива лише через прямий канал, оскільки тривалість протікання прямої реакції  $\sim 10^{-21}$  с, а час формування кулонівського бар'єра  $\sim 10^{-18} - 10^{-19}$  с. З точністю 15 - 20 % нами реєструється активація  ${}^7\text{Be}$ . У той же час енергетичний поріг реакції  ${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}$  рівний 20,6 MeV і вона не відбувається на атомах берилію.

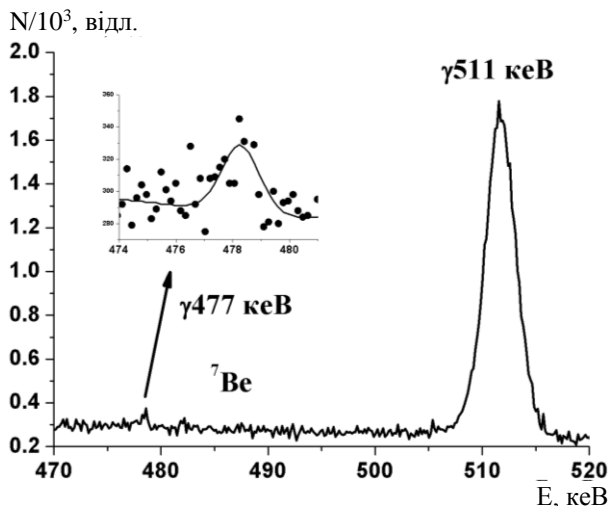


Рис. 6. Фрагменти  $\gamma$ -спектра опроміненої мішені  ${}^{\text{nat}}\text{B}$  при  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV.

Щільності потоків гальмівних  $\gamma$ -квантів розраховувались за формулою

$$F = \frac{S\lambda A}{(1 - e^{-\lambda t_{\text{опр}}})e^{-\lambda t_{\text{охол}}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{вим}}})\xi k \eta \sigma^{\text{aver}} N_A m p}, \quad (2)$$

### Середньозважені експериментальні та модельовані перерізи реакцій заселення ${}^7\text{Be}$ при різних граничних енергіях гальмівних $\gamma$ -квантів

E, MeV	20	40	40	55	55
$\sigma^{\text{aver}}$ , мкб	11(2)	390(40)	423(40)	675(90)	920(90)
Ядерні реакції/енергетичні пороги, MeV	${}^{10}\text{B}(\gamma, t)/18,7$	${}^{10}\text{B}(\gamma, t)/18,7$ ${}^{11}\text{B}(\gamma, tn)/30,1$ ${}^{10}\text{B}(\gamma, dn)/24,9$ ${}^{10}\text{B}(\gamma, p2n)/27,2$	${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}/20,6$	${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}/20,6$	${}^{10}\text{B}(\gamma, t)/18,7$ ${}^{11}\text{B}(\gamma, tn)/30,1$ ${}^{10}\text{B}(\gamma, dn)/24,9$ ${}^{10}\text{B}(\gamma, p2n)/27,2$ ${}^{11}\text{B}(\gamma, d2n)/36,4$ ${}^{11}\text{B}(\gamma, p3n)/38,6$
TALYS-1.9	0,09	556	–	0,3	491
EMPIRE-3.2	–	58	134	155	99

### 3. Обговорення результатів

З метою оцінки механізмів протікання досліджуваних ядерних реакцій нами проведено їхнє моделювання в рамках програмних кодів TALYS-1.9 та EMPIRE-3.2. Більш детально про

де  $S$  – площі фотопіків, які відповідають розпаду  ${}^{180}\text{Ta}$ ;  $\eta$  – квантові виходи  $\gamma$ -квантів при розпаді  ${}^{180}\text{Ta}$ ;  $\xi$  – ефективності реєстрації  $\gamma$ -квантів, що супроводжують розпад ядер – продуктів реакції  ${}^{181}\text{Ta}(\gamma, n){}^{180}\text{Ta}$ ;  $t_{\text{опр}}$ ,  $t_{\text{охол}}$ ,  $t_{\text{вим}}$  – тривалості опромінення, охолодження та вимірювання відповідно;  $k$  – коефіцієнти самопоглинання  $\gamma$ -квантів розпаду. Вони розраховуються після моделювання реальних опромінених мішеней у програмному коді MCNP [7]. Спочатку розраховується ефективність реєстрації потрібних  $\gamma$ -ліній для точкової ( $\epsilon_r$ ) та реальної ( $\epsilon_p$ ) мішеней, а потім вводиться поправка на самопоглинання  $k = \epsilon_p/\epsilon_r$ . При цьому ефективність реєстрації для точкової мішені збігається з експериментальною, отриманою за допомогою калібрувальних точкових джерел;  $p$  – абсолютний вміст  ${}^{181}\text{Ta}$  в природній суміші;  $N_A = 6,02 \cdot 10^{23}$  – число Авогадро (кількість ядер/(г·моль));  $\sigma^{\text{aver}}$  – середньозважений переріз реакції  ${}^{181}\text{Ta}(\gamma, n){}^{180}\text{Ta}$ , який розрахований згідно з формулою (1);  $m$  – маси мішеней танталу на одиницю площі (г/см<sup>2</sup>);  $A = 181$  – масове число атомів танталу (а.о.м.);  $\lambda$  – стала розпаду  ${}^{180}\text{Ta}$  (с<sup>-1</sup>).

Величини  $\lambda$ ,  $A$ ,  $p$ ,  $\eta$  беруться з [8],  $S$  – з експериментальних  $\gamma$ -спектрів, а  $\xi$  – з калібрувальних кривих, що додатково перевіряються за допомогою моделювання з використанням програмного коду Geant4.

Далі за формулою (2), використовуючи отримані щільності потоків та поправки на різницю енергетичних порогів і кулонівських бар'єрів досліджуваних реакцій і реакції на моніторах, розраховувались  $\sigma^{\text{aver}}$  реакцій  ${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 40$  та 55 MeV,  ${}^{10}\text{B}(\gamma, t){}^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV і  ${}^{\text{nat}}\text{B}(\gamma, x){}^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 40$  та 55 MeV. Результати наведено в таблиці.

моделювання за допомогою цих кодів викладено в [9, 10], у них домінують статистичний та перерівноважний процеси.

У теоретичних розрахунках визначаються перерізи досліджуваних реакцій починаючи від порога з кроком 1 MeV для монохроматичних

$\gamma$ -квантів і далі за формулою (1) розраховуються середньозважені перерізи. Результати теоретичних розрахунків наведено в таблиці.

Як видно, код TALYS-1.9 задовільно описує середньозважені перерізи на  $^{nat}\text{B}$  при величинах енергії 40 та 55 MeV і в той же час  $(\gamma, 2n)$ -реакція практично не відтворюється. Це можна пояснити тим, що  $(\gamma, 2n)$ -реакція на  $^9\text{Be}$  протікає переважно через прямий канал. Проте в кодї EMPIRE-3.2 середньозважені перерізи якісно описуються. Ми на даний момент не можемо зрозуміти таку значну різницю між даними обох кодів при моделюванні реакції  $^9\text{Be}(\gamma, 2n)^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 40$  та 55 MeV. Можливо, це пов'язано з різною параметризацією густин рівнів залишкового ядра в обох кодах. Значне заниження теоретичних даних порівняно з експериментальними можна якісно пояснити значним внеском прямого каналу. Розрахунки середньозважених перерізів  $(\gamma, t)$ -реакції при 20 MeV навіть якісно не можуть пояснити експериментальні дані. Це свідчить про повністю прямий механізм реакції, як вище й обговорювалось. У цілому подібна поведінка характерна для перехідної області ядер з  $A = 6 - 11$ . У цій області співвідношення між прямим і статистичним каналами може змінюватись у межах  $1 \div 10$  [11, 12].

Важливим результатом даних досліджень є те, що в області величин енергії  $\gamma$ -квантів 30 - 40 MeV співвідношення середньозважених перерізів реакцій  $(\gamma, 2n)$  та  $(\gamma, p2n)$  приблизно однакове. Це дозволяє розробляти методи визначення  $^{10}\text{Be}$ , який активується в  $(n, \gamma)$  і  $(n, p)$ -реакціях на базі єдиного підходу.

#### 4. Висновки

Уперше виміряно середньозважені перерізи ядерних реакцій  $^{10}\text{B}(\gamma, t)^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV,  $^{nat}\text{B}(\gamma, x)^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 40$  та 55 MeV,  $^9\text{Be}(\gamma, 2n)^7\text{Be}$  при  $E_{\text{гр}} = 40$  і 55 MeV. Результати моделювання в рамках програмних кодів TALYS-1.9 та EMPIRE-3.2 демонструють домінування нестатистичних процесів у  $(\gamma, t)$ -реакції при  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV. Проте зі зростанням енергії гальмівних  $\gamma$ -квантів внесок статистичних та передрівноважених процесів зростає на 1 - 2 порядки й починає давати значний внесок у перерізи досліджуваних реакцій.

Робота виконана за фінансової підтримки бюджетної програми «Підтримка розвитку пріоритетних напрямів наукових досліджень» (КПКВК 6541230) на 2020 - 2021 рр.

#### СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ / REFERENCES

1. M.H. Ahsan, S.A. Siddiqui, H.H. Thies. The photoneutron cross section of  $^{10}\text{B}$ . *Nucl. Phys. A* 469(3) (1987) 381.
2. <https://www-nds.iaea.org/exfor/>
3. М.В. Желтоножская, А.П. Черняев. Фотоактивационная методика определения активности  $^{10}\text{Be}$  в конструкционных материалах АЭС. В кн.: Сб. матер. научно-практ. конф. «Ядерные технологии: от исследований к внедрению», Нижний Новгород, 21 ноября 2018 г. (Нижний Новгород: Нижегородский государственный технический университет им. Р.Е. Алексеева, 2018) с. 189. / M.V. Zheltonozhskaya, A.P. Chernyaev. Photoactivation method for determining the activity of  $^{10}\text{Be}$  in structural materials of NPP. In: Proc. of Scientific and Practical Conf. "Nuclear Technologies: from Research to Implementation", Nizhny Novgorod, November 21, 2018 (Nizhny Novgorod: Nizhny Novgorod State Technical University named after R.E. Alekseev, 2018) p. 189. (Rus)
4. M.I. Aizatskyi et. al. State and prospects of the Linac of nuclear-physics complex with energy of electrons up to 100 MeV. *Problems Atom. Science Technology* 3(91) (2014) 60.
5. V.V. Varlamov et al. New data on  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$ , and  $(\gamma, 3n)$  partial photoneutron reactions. *Phys. At. Nucl.* 76 (2013) 1403.
6. S. Agostinelli et al. GEANT4 – a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* 506 (2003) 250.
7. J.F. Briesmeister. MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Los Alamos National Laboratory Report LA-12625-M, 1997.
8. R.B. Firestone et al. *Table of Isotopes*. 8-th ed. (New York: Wiley Interscience, 1996).
9. A.J. Koning, S. Hilaire, M.C. Duijvestijn. TALYS: Comprehensive nuclear reaction modeling. *AIP Conf. Proc.* 769 (2005) 1154.
10. M. Herman et al. EMPIRE: Nuclear Reaction Model Code System for Data Evaluation. *Nucl. Data Sheets* 108(12) (2007) 2655.
11. E.V. Weinstock, J. Halpern. Systematics of Photoproton Reactions. *Phys. Rev.* 94 (1954) 1651.
12. D.H. Wilkinson. Nuclear photodisintegration. *Physica* 22 (1956) 1039.

V. O. Zheltonozhsky, D. E. Myznikov, A. M. Savrasov\*, V. I. Slisenko

*Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine*

\*Corresponding author: asavrasov@kinr.kiev.ua

**INVESTIGATION OF  ${}^7\text{Be}$  POPULATION IN REACTIONS ON NUCLEI OF BERYLLIUM AND BORON WITH BREMSSTRAHLUNG  $\gamma$ -RAYS IN WIDE ENERGY RANGE**

The average cross-sections were measured at the first time for  ${}^7\text{Be}$  population at bremsstrahlung end-point energies 40 and 55 MeV and for the  ${}^{10}\text{B}(\gamma, t){}^7\text{Be}$  reaction at bremsstrahlung end-point energy 20 MeV. The theoretical calculations carried out within the framework of the software packages EMPIRE-3.2 and TALYS-1.9 demonstrate the domination of the nonstatistical processes.

*Keywords:* average cross-sections, activation method,  $\gamma$ -spectrometry, beryllium, boron.

Надійшла/Received 21.08.2020