

АТОМНАЯ И ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 539.172.3

ТРАНСМУТАЦИЯ ^{90}Sr ПОД ДЕЙСТВИЕМ ТОРМОЗНОГО γ -ИЗЛУЧЕНИЯ ВЫСОКОЙ ИНТЕНСИВНОСТИ

С. С. Бородина, Б. С. Ишханов, В. И. Мокеев

(НИИЯФ)

Разработан метод переработки радиоактивных изотопов, основанный на использовании пучков тормозных γ -квантов высокой интенсивности. Развита метод описания и выполнены расчеты временной эволюции содержания и активности элементов трансмутационной цепочки ^{90}Sr . Определена необходимая интенсивность тока электронов для эффективной переработки изотопа ^{90}Sr при фиксированном времени облучения и энергии электронов.

Введение

Разработка методов трансмутации радиоактивных отходов является актуальным направлением в решении глобальных проблем защиты окружающей среды. Создание эффективных способов снижения активности радиоактивных изотопов будет во многом влиять на дальнейший прогресс ядерной энергетики и ядерных технологий. Широкие перспективы в решении этой проблемы открывает использование пучков ускорителей высокой интенсивности. В последние годы ведутся исследования по применению реакций *spallation* для трансмутации изотопов - продуктов деления [1]. В этом методе при облучении тяжелых ядер ($A > 200$) протонами с энергией около 1 ГэВ формируются интенсивные потоки нейтронов (10^{14} – 10^{15} нейтр·с $^{-1}$ ·см $^{-2}$), которые используются для трансмутации изотопов. Однако использование реакций *spallation* имеет ряд ограничений. Сечения захвата тепловых нейтронов долгоживущими изотопами-продуктами деления ^{90}Sr и ^{137}Cs ($t_{1/2} = 30$ лет) малы — около 1 мб, и реакции под действием нейтронов не обеспечивают их эффективной переработки.

Представляет интерес исследование возможности использования других частиц для трансмутации изотопов с малыми сечениями нейтронного захвата, в частности пучков тормозного γ -излучения, верхняя граница энергии которых ниже порога рождения мезонов. В этой области энергий основным механизмом взаимодействия γ -квантов с тяжелыми изотопами ($A > 60$), содержащимися в трансмутационных цепочках, являются (γ, n) -реакции, протекающие через возбуждение дипольного гигантского резонанса (ДГР). Интегральные сечения фотонейтронных реакций на порядок величины превосходят характерные сечения захвата тепловых нейтронов изотопами ^{90}Sr и ^{137}Cs . Таким образом, использование пучков тормозного γ -излучения открывает новые возможности в решении задач трансмутации. Первые расчеты временной эволюции трансмутационных цепочек ^{90}Sr и ^{137}Cs были выполнены в работе [2]. Однако в этой работе не изложены методы оценки сечений (γ, n) -реакций на ядрах, для которых эксперименталь-

ные данные отсутствуют, хотя подобная ситуация имеет место для большинства элементов трансмутационных цепочек. Также отсутствует информация и об использованном в расчетах спектре тормозного γ -излучения, что затрудняет применение предложенного в работе [2] подхода.

В настоящей работе развит метод описания и выполнены расчеты временной эволюции содержания и активности элементов трансмутационной цепочки ^{90}Sr . Метод использует феноменологическую модель [3] описания сечений фотонейтронных реакций. Форма спектра фотонов получена путем моделирования процессов формирования тормозного излучения в мишени конечной толщины с применением библиотеки GEANT [4–6]. Разработанный метод позволяет описывать трансмутацию изотопов, цепочки которых содержат элементы с $A > 60$ для верхней границы тормозного γ -спектра E_m , лежащей ниже порога рождения мезонов.

Описание метода

Временная эволюция содержания и активности элементов трансмутационной цепочки определяется конкуренцией процессов их распада и накопления. Распад изотопов определяется как β -переходами, так и процессами фоторасщепления. Накопление происходит как за счет (γ, n) -реакций, так и в результате радиоактивных распадов соседних ядер, приводящих к образованию рассматриваемого изотопа. Используемая в расчетах трансмутационная цепочка ^{90}Sr показана на рис. 1. Помимо исходного изотопа она включает радиоактивные элементы с различными периодами полураспада — от 1 мин (^{82}Rb) до 10^5 лет (^{81}Kr) и стабильные элементы - продукты распада. В состав трансмутационной цепочки включено 34 элемента. Темным цветом выделены стабильные изотопы. Вертикальными стрелками обозначены β^\pm -переходы, горизонтальными — (γ, n) -реакции. Реакции с испусканием протонов (γ, p) , а также нескольких частиц не учитывались: оценки показывают, что вклад таких реакций в полное сечение фоторасщепления изотопов трансмутационной цепочки ^{90}Sr не превышает 10% вклада (γ, n) -канала.

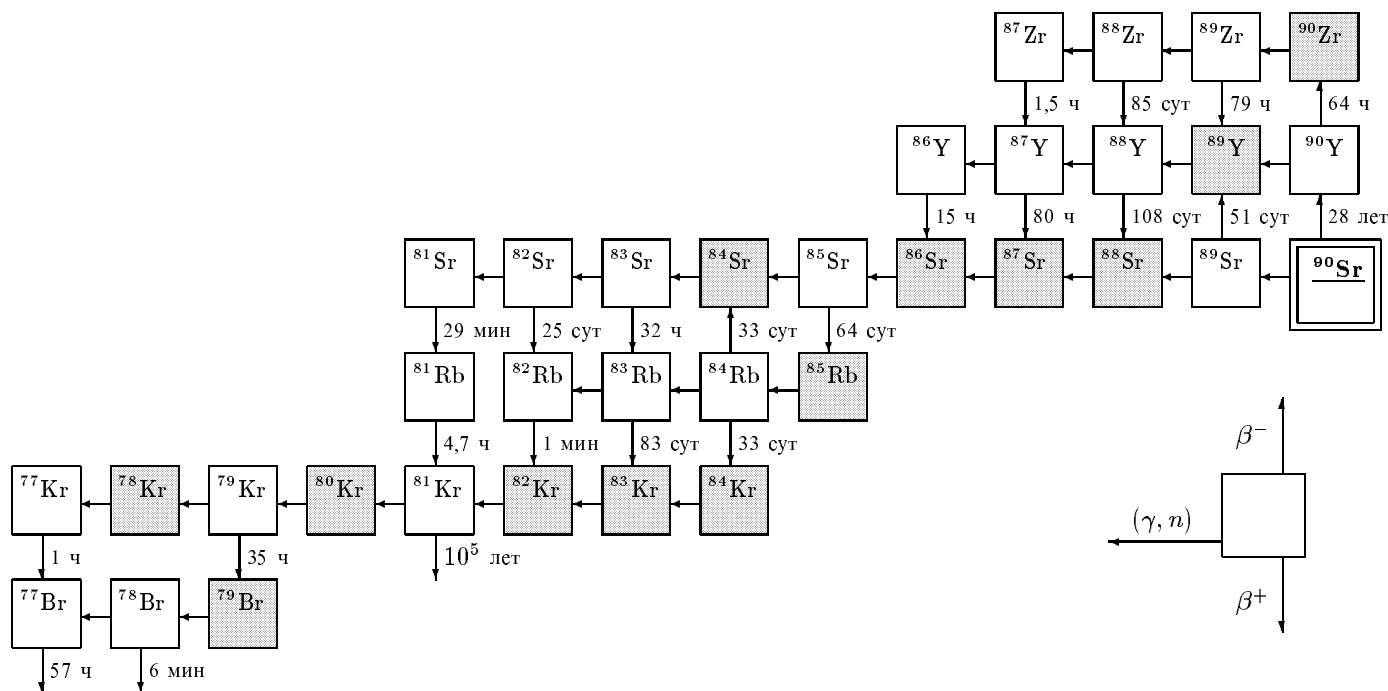


Рис. 1. Трансмутационная цепочка ⁹⁰Sr

Временная эволюция содержания j -го изотопа трансмутационной цепочки $N_j(t)$ и его активности $A_j(t)$ описывается соотношениями

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = -(\lambda_j + \Phi\sigma_j)N_j(t) + \sum_{i \neq j} (\lambda_{ij} + \Phi\sigma_{ij})N_i(t), \quad (1)$$

$$A_j(t) = \lambda_j N_j(t), \quad (2)$$

где $N_j(t)$ и $A_j(t)$ — соответственно содержание и активность j -го элемента трансмутационной цепочки в момент времени t , λ_j — постоянная β -распада j -го изотопа, λ_{ij} — постоянная β -распада изотопа i с образованием в конечном состоянии изотопа j , Φ — усредненная по углу эмиссии плотность потока тормозных фотонов [фотон·с⁻¹·см⁻²], σ_j — взвешенное по тормозному спектру интегральное сечение фоторасщепления изотопа j , σ_{ij} — взвешенное по тормозному спектру интегральное сечение фоторасщепления изотопа i с образованием в конечном состоянии изотопа j , где

$$\sigma_{j(ij)} = \int_{E_{\min}}^{E_m} \sigma_{j(ij)}(E_\gamma) \frac{W(E_\gamma, E_{\gamma m}) dE_\gamma}{\int_{E_{\min}}^{E_m} W(E_\gamma, E_{\gamma m}) dE_\gamma},$$

выражение $\frac{W(E_\gamma, E_{\gamma m}) dE_\gamma}{\int_{E_{\min}}^{E_m} W(E_\gamma, E_{\gamma m}) dE_\gamma}$ описывает форму тор-

мозного спектра фотонов, нормированного на один γ -квант ($\sigma_{j(ij)}(E_\gamma)$ — сечение (γ, n) -реакции [см²] на j -м (i -м) изотопе при энергии фотона E_γ).

Первое слагаемое в (1) описывает разрушение j -го изотопа в процессах β -распада и фоторасщепления. Второе слагаемое отвечает накоплению j -го изотопа в

β -распадах соседних (i -х) ядер и в (γ, n) -реакциях на изотопе с массовым числом $A + 1$.

Постоянные β -распадов λ_j и λ_{ij} взяты из работы [5]. Сечения фотонейтронных реакций $\sigma_{j(ij)}(E_\gamma)$ вычислялись в рамках феноменологической модели [3]. Верхний m и нижний \min пределы интегрирования в (1) отвечают максимальной и минимальной энергии фотонов тормозного спектра, вносящих вклад в эмиссию фотонейтронов. Величина E_{\min} выбрана равной величине порога (γ, n) -реакции на ядрах с $A > 60$ (5 МэВ). Величина E_m полагалась равной 30 МэВ, так как вклад в интегральные сечения (γ, n) -реакций фотонов с энергиями больше 30 МэВ не превышает нескольких процентов.

Спектр γ -квантов получен в результате компьютерного моделирования методом Монте-Карло процессов образования тормозного излучения в мишени из вольфрама толщиной 0,2 см с использованием программной библиотеки GEANT3.21 (CERN) [6]. Определялось число тормозных фотонов $N(\gamma, m)$, испущенных под углами до 40° в интервале энергий от 5 до 30 МэВ с шагом 0,25 МэВ. Величина $N(\gamma, m)$ связана с формой спектра тормозного излучения $W(\gamma, m)$ соотношением

$$\frac{W(E_\gamma, E_m) dE_\gamma}{\int_{E_{\min}}^{E_m} W(E_\gamma, E_m) dE_\gamma} = \frac{N(E_\gamma, E_m)}{\sum_{E_\gamma=E_{\min}}^{E_m} N(E_\gamma, E_m)}. \quad (3)$$

Плотность потока фотонов с энергией от 5 до 30 МэВ Φ [фотон·с⁻¹·см⁻²] связана с током электронов соотношением

$$\Phi = \frac{6,25 \cdot 10^{18} I}{S} \cdot \frac{\sum_{E_\gamma=E_{\min}}^{E_m} N(E_\gamma, E_m)}{N_{\text{tot}}}, \quad (4)$$

где N_{tot} — число промоделированных электронов, I — ток электронов в амперах, S — площадь мишени, облучаемая фотонами (в см^2). Уравнения (1) интегрировались численно с использованием модуля MERSON программной библиотеки CERN.

Обсуждение полученных результатов

В рамках описанного метода выполнены расчеты временной эволюции содержания и активности изотопов трансмутационной цепочки ^{90}Sr при токах электронов в интервале от 0,1 до 10 А и верхних границах тормозного излучения 30 и 60 МэВ. Время облучения менялось от 1 до 10 месяцев.

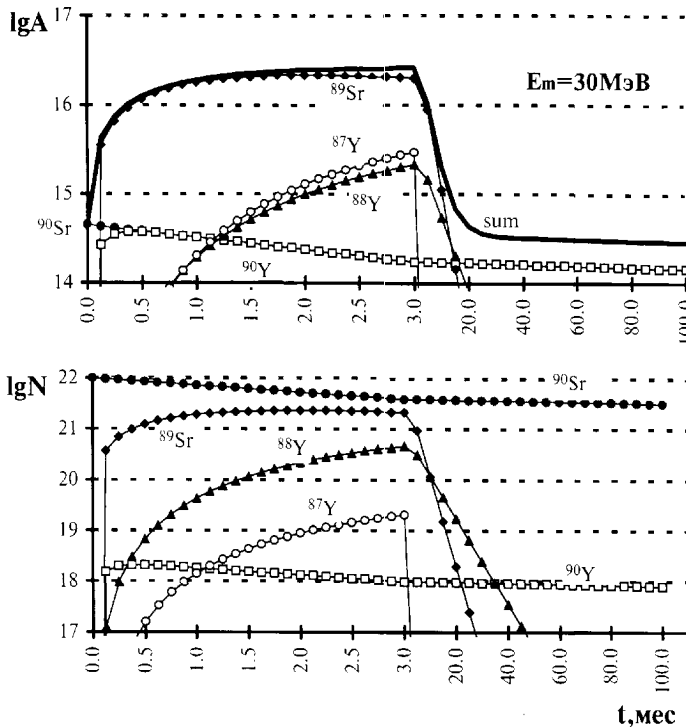


Рис. 2. Временная эволюция активности A и содержания N радиоактивных элементов трансмутационной цепочки ^{90}Sr . Время облучения 3 месяца, ток электронов 1 А

На рис. 2 показаны результаты расчетов содержания и активности изотопов трансмутационной цепочки ^{90}Sr для $E_m = 30$ МэВ, времени облучения 3 месяца при токе электронов 1 А. В начальный момент времени ($t = 0$) в рассматриваемом образце содержалось 10^{22} ядер. Как следует из представленных на рис. 2 данных, при включении пучка происходит возрастание величины суммарной активности (жирная линия) примерно на два порядка. Этот эффект обусловлен тем, что в (γ, n) -реакциях и последующем β -распаде ядер-продуктов образуются изотопы со сравнительно малыми временами жизни. Полученный в расчетах большой рост активности указывает на возможность использования пучков тормозных фотонов для формирования радиоактивных источников высокой интенсивности. Наблюдается выгорание изотопа ^{90}Sr , вносящего основной вклад в долгоживущую компоненту активности.

После выключения пучка электронов эволюция смеси изотопов определяется лишь процессами их β -распада. Активность короткоживущих изотопов уменьшается и начиная с некоторого момента времени, зависящего от тока электронов и продолжительности облучения, суммарная активность определяется лишь сохранившейся частью ^{90}Sr и образующимся ^{90}Y . Эта величина может рассматриваться как конечная активность, достигнутая при трансмутации.

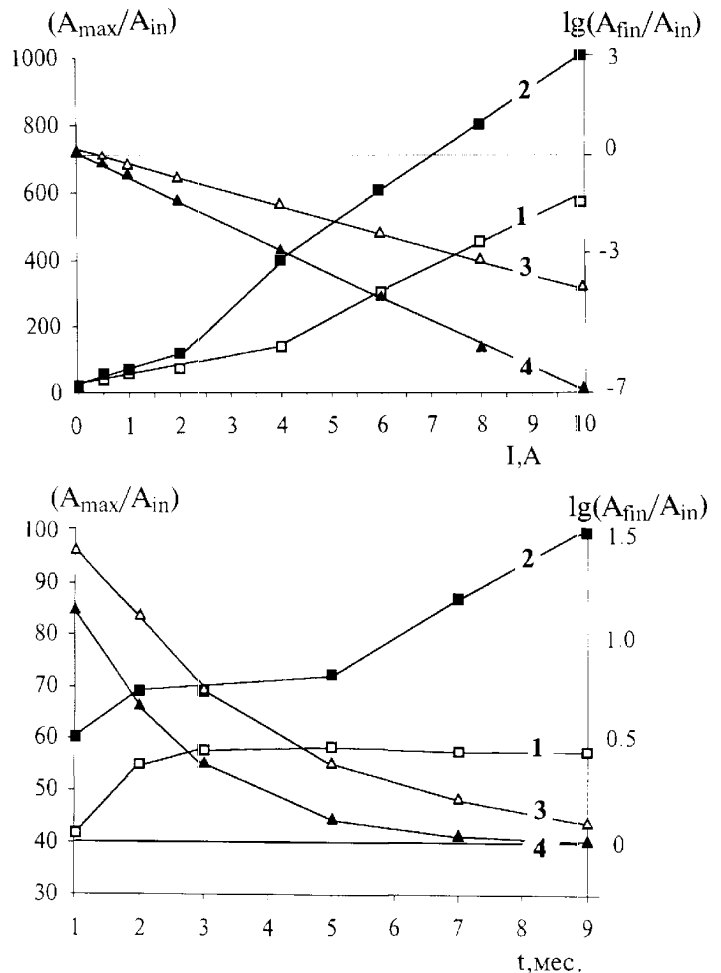


Рис. 3. Зависимость отношений $A_{\text{max}}/A_{\text{in}}$ (1, 2) и $A_{\text{fin}}/A_{\text{in}}$ (3, 4) от тока электронов I и времени облучения t для верхних границ спектра $E_m = 30$ (1, 3) и 60 МэВ (2, 4)

Количественно эффективность трансмутации может описываться отношением конечной активности (A_{fin}) к начальной (A_{in}). При исследовании возможностей создания радиоактивных источников высокой интенсивности представляет интерес также отношение максимальной активности, достигнутой при облучении, A_{max} , к начальной A_{in} . На рис. 3 приведены отношения $A_{\text{fin}}/A_{\text{in}}$ и $A_{\text{max}}/A_{\text{in}}$ в зависимости от тока электронов при постоянном времени облучения (3 месяца) и в зависимости от времени облучения при постоянном токе электронов (1 А). Как следует из представленных данных, отношение $A_{\text{fin}}/A_{\text{in}}$ уменьшается, а отношение

A_{\max}/A_{in} резко возрастает при токе электронов более 2 А. При меньших значениях отношение A_{\max}/A_{in} слабо зависит от токов. Это связано с тем что плотность потока тормозных фотонов при токе электронов менее 1 А недостаточна для оказания заметного влияния на процессы трансмутации и временная эволюция изотопов определяется их β -распадами. Таким образом, для эффективной трансмутации ^{90}Sr , так же как и для формирования радиоактивных источников большой интенсивности, необходимо, чтобы непрерывный ток электронов был не менее 1 А.

Наблюдается увеличение эффективности трансмутации с ростом верхней границы спектра тормозного излучения. Оно обусловлено увеличением числа тормозных фотонов в области энергий 5–30 МэВ. Как видно из рис. 2, эффективность трансмутации возрастает с увеличением времени облучения, однако для верхней границы тормозного спектра 30 МэВ при токе электронов 1 А уже через 3–5 месяцев достигается максимально возможная эффективность трансмутации ^{90}Sr .

Качественно иное поведение временной зависимости отношения A_{\max}/A_{in} наблюдается при верхней границе тормозного спектра 60 МэВ и времени облучения более 5 месяцев. Величина отношения A_{\max}/A_{in} сильно возрастает с увеличением времени облучения. Это связано с накоплением короткоживущих изотопов со сравнительно небольшими периодами полураспада.

Заключение

Развитый метод описания процессов трансмутации радиоактивных изотопов под действием пучка тормозного γ -излучения может использоваться для моделирования трансмутации цепочек, содержащих элементы с массовыми числами $A > 60$, при верхних границах тормозного спектра, лежащих ниже порога рождения мезонов. Показано, что для эффективной трансмутации изотопа ^{90}Sr необходимы непрерывные токи электронов не менее нескольких ампер. Пучки тормозного γ -излучения могут быть использованы для формирования радиоактивных источников высокой интенсивности.

Литература

1. *Bowman C.D.* // Second Intern. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Application, 3–7 June 1996. Kalmar, Sweden. P. 1.
2. *Matsumoto T.* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 1988. **A268**. P. 234.
3. *Бородин С.С., Ишханов Б.С., Мокеев В.И.* // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1997. № 2. С. 6 (Moscow University Phys. Bull. 1997. No. 2.).
4. *Бородин С.С., Ишханов Б.С., Капитонов И.М.* и др. Препринт НИИЯФ МГУ № 96-28/435. М., 1996.
5. *Tuli J.K.*, Nuclear Wallet Cards. July 1995. National Nuclear Data Center. Brookhaven National Laboratory, USA.
6. *Brun R., Bruyant F., Maire M., McPherson A.C., Zanarini P.* GEANT, CERN, September 1987.

Поступила в редакцию
07.04.97