

МЕТОДИКА И РАСЧЕТЫ ХАРАКТЕРИСТИК БЕТА-ЭЛЕКТРОНОВ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ В РЕЗУЛЬТАТЕ РАСПАДА ТЯЖЕЛЫХ НУКЛИДОВ

И. В. Пенягин, А. Е. Широков

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

Введение

Определение характеристик бета-излучения, испускаемого радиоактивными материалами, представляет интерес в ряде научных и прикладных направлений: исследования свойств нейтрино, космическая погода, и так далее.

Исследования параметров бета-излучения U и Pu проводились рядом зарубежных и отечественных исследователей [1-4]. В работе [1] реализована методика расчета количества электронов, образующихся в результате распада продуктов деления ^{235}U , и их энергии в зависимости от времени, приведены расчеты этих величин до 100 секунд после деления ядер урана.

В прикладных задачах зачастую важно знать интенсивность образования бета-электронов по истечении периода времени порядка нескольких дней. Для решения такой задачи необходима обширная база данных по параметрам радионуклидов и весьма точная математическая модель расчета состава продуктов деления.

В ходе работы мы преследовали следующие цели:

- разработать методику, позволяющую рассчитывать спектр и интенсивность образования бета-частиц и с использованием последней версии базы данных ENDFB.
- получение характеристик бета-излучения, испускаемого радиоактивными продуктами реакции деления тяжелых нуклидов, на временах порядка нескольких дней после момента деления.

Методика расчета спектра бета электронов

Открытая электронная база данных ENDF/B 71 [6], включает в себя информацию о 3839 изотопах: период полураспада, продукты распада, доля ветвей распада и др. Эти данные дают возможность рассчитать состав продуктов ядерной реакции на различные моменты после первого деления. Ниже приведены уравнения химической кинетики для одной цепочки ядерных превращений, которые позволяют рассчитать состав продуктов распада

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_z}{dt} = -\lambda_z N_z \quad N_z(0) = Y_z \\ \frac{dN_{z+1}}{dt} = -\lambda_{z+1} N_{z+1} + \lambda_z N_z \quad N_{z+1}(0) = 0 \\ \frac{dN_{z+2}}{dt} = -\lambda_{z+2} N_{z+2} + \lambda_{z+1} N_{z+1} \quad N_{z+2}(0) = 0, \\ \frac{dN_{z+3}}{dt} = -\lambda_{z+3} N_{z+3} + \lambda_{z+2} N_{z+2} \quad N_{z+3}(0) = 0 \\ \dots \end{array} \right. \quad (1)$$

где Y_z – количество радионуклида $^A_Z X$ на начальный момент времени. Решение этой системы уравнений довольно громоздко в записи и не приводится в тексте настоящей работы, интересующийся читатель сможет найти его в рукописи [2]. Известный состав продуктов деления в различные моменты времени, позволяет рассчитать скорость образования бета-частиц по формуле

$$\frac{dN_\beta}{dt} = \sum (e_z \lambda_z N_z + e_{z+1} \lambda_{z+1} N_{z+1} + e_{z+2} \lambda_{z+2} N_{z+2} + \dots)_i, \quad (2)$$

где e_z – среднее число электронов, образующихся при одном делении элемента N_z , а суммирование ведется по различным веткам деления. Интегрируя зависимость (2) по времени и принимая изначальное количество электронов равным нулю, можно отыскать зависимость количества бета-электронов от времени.

Существует, однако, и другой способ расчета количества электронов – прямое суммирование образовавшихся частиц (электрон можно принять как отдельный вид частиц, присутствующих в продуктах распада. Изначальный состав смеси продуктов ядерной реакции так же приведен в библиотеке ENDF/B. Предоставлена информация для различных изотопов и трех различных энергий инициирующих нейтронов. Для ^{235}U распределение продуктов ядерной реакции от массового приведено на рис. 1, который был взят из работы [1].

Спектр бета-электронов может быть найден из формулы Ферми

$$N_\beta(\varepsilon) d\varepsilon = CF(z, \varepsilon) \varepsilon (\varepsilon^2 - 1)^{\frac{1}{2}} (\varepsilon_0 - \varepsilon)^2 d\varepsilon, \quad (3)$$

где C – нормирующий множитель, $\varepsilon = 1 + E_k / m_0 c^2$, E_k – кинетическая энергия электронов, $\varepsilon_0 = 1 + E_k^{\max} / m_0 c^2$, E_k^{\max} – максимальная кинетическая энергия электронов, а $F(z, \varepsilon)$ – функция Ферми

$$F(z, \varepsilon) = 2(1 + \gamma) \left(\frac{2pR}{h} \right)^{2\gamma-2} e^{\pi\eta} |\Gamma(\gamma + i\eta)|^2 / |\Gamma(2\gamma + 1)|^2, \quad (4)$$

где $\gamma = (1 - (\alpha z)^2)^{\frac{1}{2}}$, $\eta = \frac{ze^2}{\hbar V}$, R – радиус ядра, p – импульс электрона.

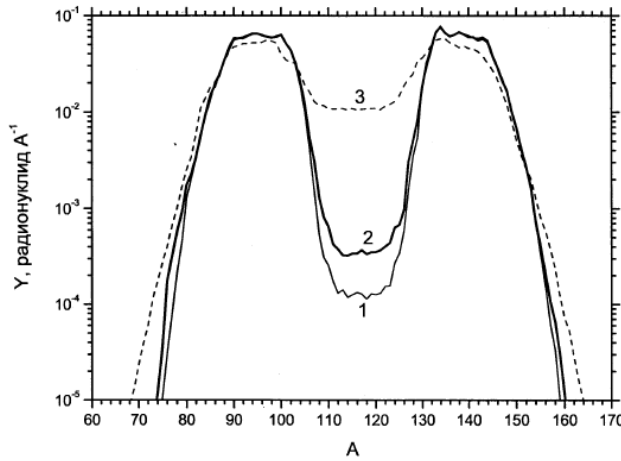


Рис. 1. Выход радионуклидов, нормированный на два, в зависимости от массового числа при делении ядра ^{235}U нейтронами: 1 – нейтроны с тепловой энергией, 2 – нейтроны с кинетической энергией 0,5 МэВ, 3 – нейтроны с кинетической энергией 14 МэВ [1]

После ядерной реакции не только бета-активные ядра продуктов распада будут являться источником электронов. Если электронные оболочки вокруг ядра будут хотя бы частично заполнены, будут возможны процессы, в результате которых гамма излучение ядра или бета-электрон будут выбивать до-

полнительные электроны с оболочек атомов. Эти электроны должны быть прибавлены к бета-электронам вылетающим из ядра, а так же должна быть учтена соответствующая добавка к спектру. В библиотеке ENDF/B присутствуют параметры, необходимые для расчета непрерывной составляющей спектра по формуле Ферми, а так же данные по дискретному спектру электронов выбитых с внутренних оболочек нейтральных атомов.

В результате распада нейтронов, так же образуются бета-электроны, однако наши оценки показывают, что при расчете количества бета-электронов и их спектра можно пренебречь нейтронным распадом с точностью до $\sim 0,5\%$ (при условии, что на одно деление изначального ядра образуется 1,5 нейтрона). К аналогичному выводу приходят и другие исследователи, см. например [5].

Тестовые расчеты

Первая группа тестовых расчетов производилась с целью сравнения с результатами расчетов [1]. В качестве базы данных по радионуклидам использовалась версия библиотеки ENDF/B 68 [6] (использовалась полная версия библиотеки, а не урезанная ее часть как в [1]), изначальный состав смеси так же был взят из работы [1] для более точного сравнения. Результаты расчетов темпа образования бета-электронов и их количества от времени приведены на рис. 2 и рис. 3 соответственно.

Зависимость количества образовавшихся электронов от времени может быть получена двумя способами: в результате интегрирования скорости образования электронов, которые были получены из формулы (2), и прямым суммированием в процессе расчета. Разница между результатами, полученными этими двумя разными методами, в основном определяется ошибкой интегрирования кривой скорости образования электронов, которая определяется шагом по времени. Для согласования результатов, во всех расчетах, обсуждаемых в настоящем отчете, шаг

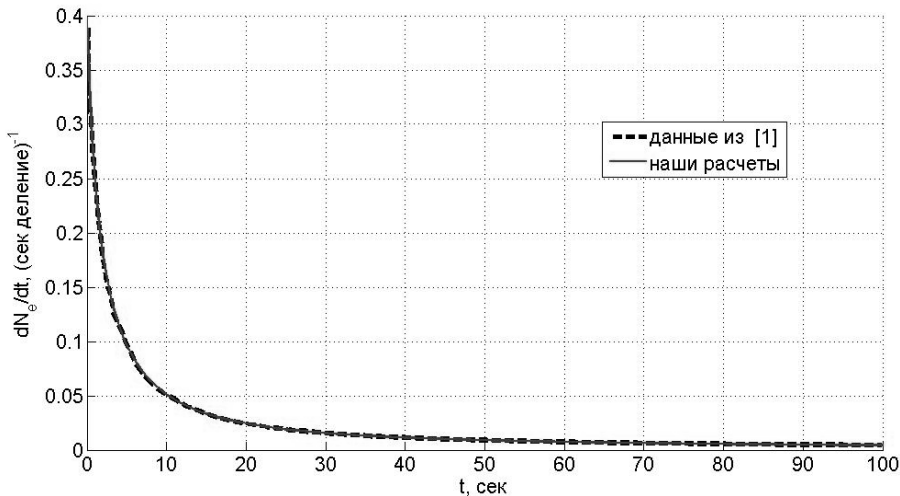


Рис. 2. Результаты расчетов темпа образования бета-электронов от времени

по времени выбирался таким, чтобы разница между количеством электронов, полученным двумя разными способами, была меньше процента.

Восстановленный по формуле Ферми спектр бета-частиц для случая деления ядра урана 235 нейтронами с энергией 0,5 МэВ приведен на рис. 4 на моменты времени 0, 1, 10 и 100 сек

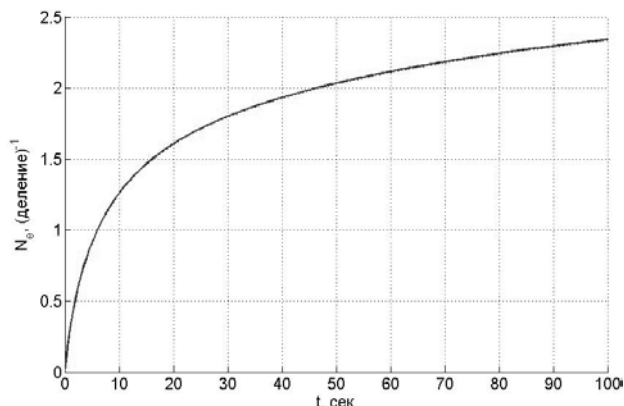


Рис. 3. Результаты расчетов количества бета-электронов от времени

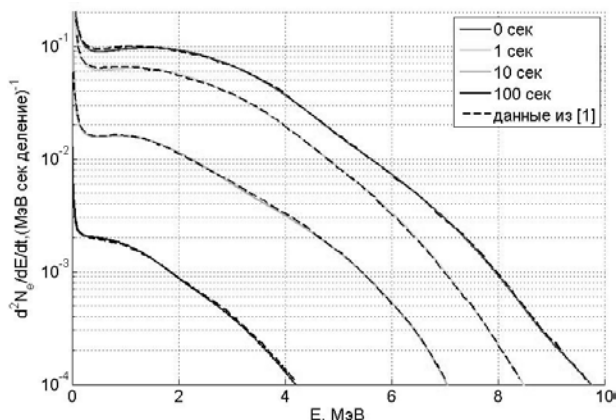


Рис. 4. Спектр бета-электронов на моменты времени 0,1; 10 и 100 секунд, сверху вниз соответственно

Большинство расчетов полностью совпадает с результатами [1], небольшие различия вероятно связаны с различным числом рассчитываемых поколений распада, и с различиями в числе изотопов в базе данных.

Вторая группа тестовых расчетов производилась с целью сравнения с результатами расчетов приведенных в [3]. В качестве базы данных по радионуклидам использовалась версия библиотеки ENDF/B 71, изначальный состав изотопов так же, целиком, был взят из библиотеки ENDF/B 71. Более подробные детали постановки расчетов описаны в начале следующего раздела.

Результаты расчетов спектра бета-электронов на различные моменты времени приведены на рис. 5. Результаты проведенных расчетов хорошо согласуются с результатами исследователей 1971 г. [3], особенно для высокоэнергетической части рассчитываемого ими диапазона энергий. В низкоэнергетической

части присутствует расхождение примерно на 20–30 %. Наиболее сильное расхождение результатов наблюдается при времени 61 мин. после деления. Поскольку в [3] отсутствуют данные о постановке расчетов, нет возможности установить причины расхождения результатов.

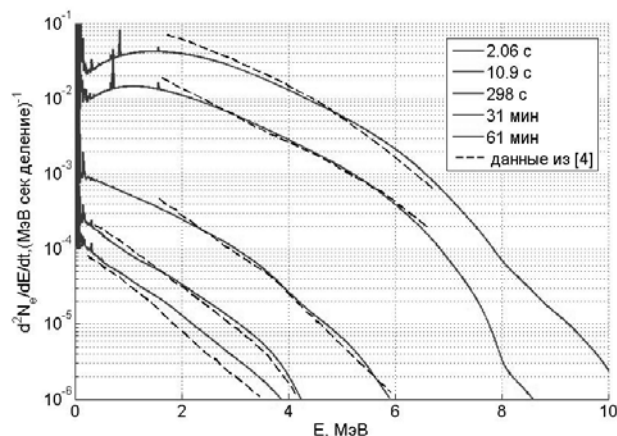


Рис. 5. Результаты расчетов спектра электронов, образующихся в результате деления ядра ²³⁵U тепловыми нейтронами на различные моменты времени, сравнение с расчетами [3] (штриховая линия), сверху вниз соответственно приведены данные для времен 2,06 сек, 10,9 сек., 298 сек., 31 мин., 61 мин. после первого деления

Так же были проведены сравнения результатов с экспериментальными данными из [4], однако в силу своей громоздкости рисунки не приведены в настоящей работе. Основные результаты таковы: в большинстве случаев результаты наших расчетов или попадают в экспериментальную погрешность или отличаются на величину ~20 %, однако существует несколько точек, где различие достигает 50–100 %. Наиболее точное совпадение результатов наблюдается в области 0,3–4 МэВ. В работе [4] отсутствует информация о деталях проведения экспериментов, что существенно затрудняет поиск причины расхождения результатов.

Результаты расчетов

В библиотеке ENDF/B 71 содержится информация о 3839 радионуклидах. В настоящей работе произведены расчеты состава продуктов распада, а так же спектра бета-электронов для различных изотопов и различных энергий инициирующих нейтронов. При этом учитывалось шесть ступеней распада (см. систему 1). Количество изначального вещества нормировалось на 2. В расчетах неизбежно присутствуют такие продукты распада, информация о которых не содержится в библиотеке ENDF/B 71. Количество такого вещества во всех расчетах находится в диапазоне $0,01 \pm 0,005$, в основном оно зависит от изначального состава продуктов распада, и слабо зависит от времени после распада.

На рис. 6 приведены результаты расчета количества образовавшихся электронов от времени для различных изотопов и энергий инициирующих электронов.

Зависимость спектра электронов зависит от времени, энергии инициирующих нейтронов и первоначального вещества. В данной работе мы приведем лишь в качестве примера на рис. 7 типичный вид спектра электронов для разных изотопов.

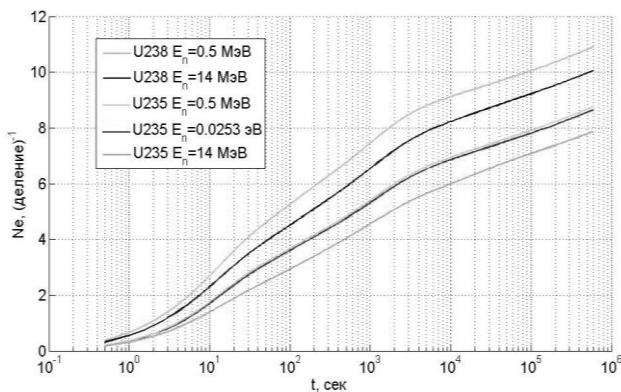


Рис. 6. Результаты расчетов количества бета-электронов от времени: сверху вниз соответственно записи в рамке

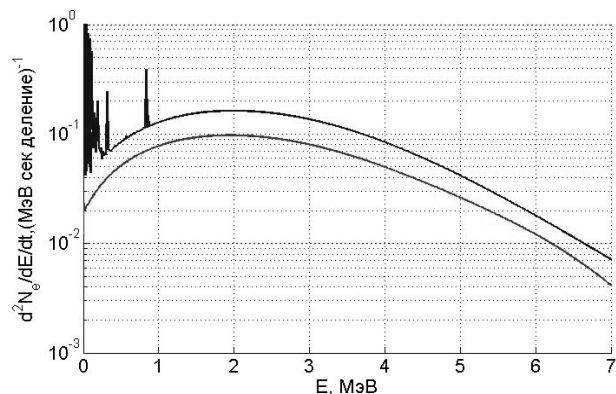


Рис. 7. Результаты расчетов спектра бета-электронов в момент времени 0 сек.: верхняя кривая соответствует случаю U^{238} , энергии инициирующих нейтронов 14 МэВ, учитываются как электроны вылетающие из ядра, так и электроны выбиваемые с энергетических оболочек; нижняя кривая соответствует случаю U^{235} , энергии инициирующих нейтронов 0,0253 эВ, учитываются только электроны вылетающие из ядра

Результатом интегрирования зависимости $\frac{d^2N_e}{dE dt}$ по времени будет являться функция $\frac{dN_e}{dE}$, которая приведена на рис. 8 различных моментов времени. Изначальный состав изотопов соответствует делению ядра ^{235}U тепловыми нейтронами. Наибольшие изменения с течением времени претерпевает низкоэнергетическая часть спектра: количество электронов с энергиями меньше 1 МэВ возрастает в 46 раз за 1000 с, в то время как количество электронов с энергиями больше 10 МэВ всего в 3 раза.

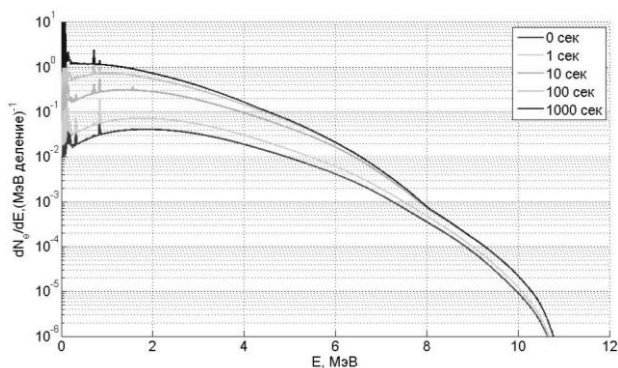


Рис. 8. Спектр бета-электронов проинтегрированный по времени для продуктов деления ядра ^{235}U тепловыми нейтронами, сверху вниз соответственно рамке на рисунке

Рис. 9–11 изображают графики зависимости средней энергии от времени:

на рис. 9 учитывается лишь электроны непрерывного спектра;

на рис. 10 учитываются электроны и из дискретного и из непрерывного спектра;

на рис. 11, так же как и на рис. 10, учитываются электроны и из дискретного и из непрерывного спектра, но на более продолжительной временной шкале.

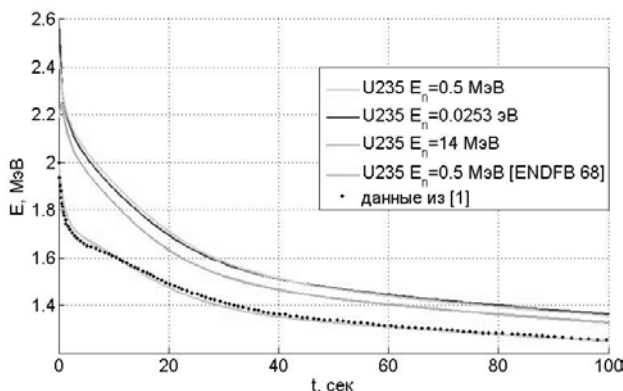


Рис. 9. График зависимости средней энергии бета-частиц от времени (учитываются только электроны, вылетающие из ядра), сверху вниз соответственно рамке на рисунке

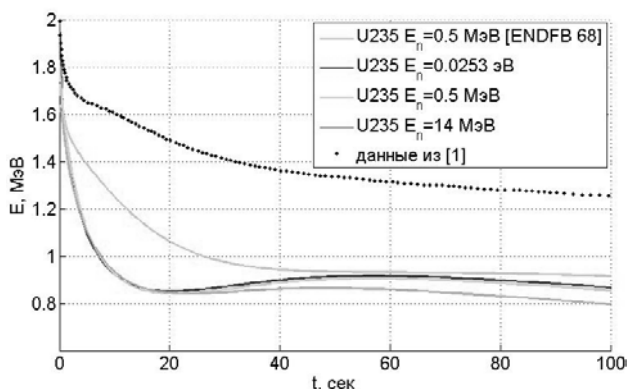


Рис. 10. График зависимости средней энергии бета-частиц от времени (учитываются все типы электронов), сверху вниз соответственно рамке на рисунке

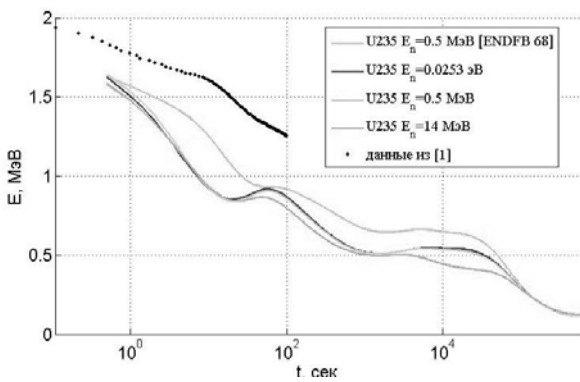


Рис. 11. График зависимости средней энергии полного спектра бета-электронов от времени (учитываются все типы электронов), сверху вниз соответственно рамке на рисунке

Заключение

В данной работе описывается методика, позволяющая рассчитывать состав продуктов распада на длительном промежутке времени после ядерной реакции, а так же спектр бета-электронов, образующихся в ходе деления продуктов распада. В качестве исходных данных она использует базу данных параметров радионуклидов ENDF/B 71.

С помощью данной методики проведены расчеты характеристик бета-излучения и проведено сравнение их результатов с расчетами исследователей [1, 2]. Установлено почти полное совпадение результатов с данными из [1]. При сравнении результатов с данными из [2], было обнаружено расхождение со стороны низких энергий $\sim 20\%$, в остальных областях расхождение результатов почти отсутствует.

Проведено сравнение результатов расчетов с экспериментальными данными взятыми из [3]. В диапазоне энергий 0,3–4 МэВ в большинстве точек наблюдается совпадение в пределах экспериментальной погрешности либо отличие на величину $\sim 20\%$. В других областях в отдельно стоящих точках бывают расхождения в 2–2,5 раза, однако в большинстве случаев отличия в результатах не столь велики и составляют 1,3–1,5 раз.

Получены результаты по расчету энергетического спектра бета-частиц, с использованием последней версии базы данных ENDF/B 71, и их количества в зависимости от времени, для различных изотопов урана и плутония, а так же для различных энергий инициирующих нейтронов.

Созданная методика имеет ряд преимуществ по сравнению с аналогичными:

- она позволяет, в частности, использовать наиболее новую и полную базу данных – ENDF/B 71, которая включает в себя информацию о 3839 радионуклидах и их параметрах;
- учитывается шесть поколений распада для каждой реакции деления;
- учитываются как электроны, вылетающие из ядра, так и электроны, выбиваемые с электронных оболочек атомов.

Литература

1. Кондратьев А. А., Матвеев Ю. И. Спектр β электронов, образующихся при делении ^{235}U нейтронами: Ядерная физика и инжиниринг, 2013. Т. 4, № 11–12. С. 943–948.
2. Jerzy Cetnar. General Solution Of Bateman Equations For Nuclear Transmutations: ELSEVIER, Annals of Nuclear Energy. 2006. 33. С. 640–645.
3. John B. Cladis et al. The trapped radiation handbook: Lockheed Palo Alto research laboratory. Palo Alto, California 1971.
4. England T. R., Stamatelatos M. R. Comparisons of calculated and experimental delayed fission-product beta and gamma spectra from ^{235}U thermal fission: Los Alamos scientific laboratory of university of California. Los Alamos. New Mexico. USA. 1977.
5. Mars R. E. Contribution of Neutron Beta Decay to Radiation Belt Pumping from High Altitude Nuclear Explosions: Lawrence Livermore National Laboratory. 2002.
6. ENDFB User's guide. National Nuclear Data Center Brookhaven National Laboratory. 2011. www.nndc.bnl.gov.