

## АТОМНАЯ И ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 539.172.3

## ТРАНСМУТАЦИЯ $^{90}\text{Sr}$ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ТОРМОЗНОГО $\gamma$ -ИЗЛУЧЕНИЯ ВЫСОКОЙ ИНТЕНСИВНОСТИ

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

(НИИЯФ)

**Разработан метод переработки радиоактивных изотопов, основанный на использовании пучков тормозных  $\gamma$ -квантов высокой интенсивности. Развита методика описания и выполнены расчеты временной эволюции содержания и активности элементов трансмутационной цепочки  $^{90}\text{Sr}$ . Определена необходимая интенсивность тока электронов для эффективной переработки изотопа  $^{90}\text{Sr}$  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  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2} = 30$  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  $\gamma$ -излучения, верхняя граница энергии которых ниже порога рождения мезонов. В этой области энергий основным механизмом взаимодействия  $\gamma$ -квантов с тяжелыми изотопами ( $A > 60$ ), содержащимися в трансмутационных цепочках, являются  $(\gamma, n)$ -реакции, протекающие через возбуждение дипольного гигантского резонанса (ДГР). Интегральные сечения фотонейтронных реакций на порядок величины превосходят характерные сечения захвата тепловых нейтронов изотопами  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Таким образом, использование пучков тормозного  $\gamma$ -излучения открывает новые возможности в решении задач трансмутации. Первые расчеты временной эволюции трансмутационных цепочек  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  были выполнены в работе [2]. Однако в этой работе не изложены методы оценки сечений  $(\gamma, n)$ -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  $\gamma$ -излучения, что затрудняет применение предложенного в работе [2] подхода.

В настоящей работе развита методика описания и выполнены расчеты временной эволюции содержания и активности элементов трансмутационной цепочки  $^{90}\text{Sr}$ . 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]. Развита методика позволяет описывать трансмутацию изотопов, цепочки которых содержат элементы с  $A > 60$  для верхней границы тормозного  $\gamma$ -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  $\beta$ -переходами, так и процессами фоторасщепления. Накопление происходит как за счет  $(\gamma, n)$ -реакций, так и в результате радиоактивных распадов соседних ядер, приводящих к образованию рассматриваемого изотопа. Используемая в расчетах трансмутационная цепочка  $^{90}\text{Sr}$  показана на рис. 1. Помимо исходного изотопа она включает радиоактивные элементы с различными периодами полураспада — от 1 мин ( $^{82}\text{Rb}$ ) до  $10^5$  лет ( $^{81}\text{Kr}$ ) и стабильные элементы - продукты распада. В состав трансмутационной цепочки включено 34 элемента. Темным цветом выделены стабильные изотопы. Вертикальными стрелками обозначены  $\beta^\pm$ -переходы, горизонтальными —  $(\gamma, n)$ -реакции. Реакции с испусканием протонов  $(\gamma, p)$ , а также нескольких частиц не учитывались: оценки показывают, что вклад таких реакций в полное сечение фоторасщепления изотопов трансмутационной цепочки  $^{90}\text{Sr}$  не превышает 10% вклада  $(\gamma, n)$ -канала.

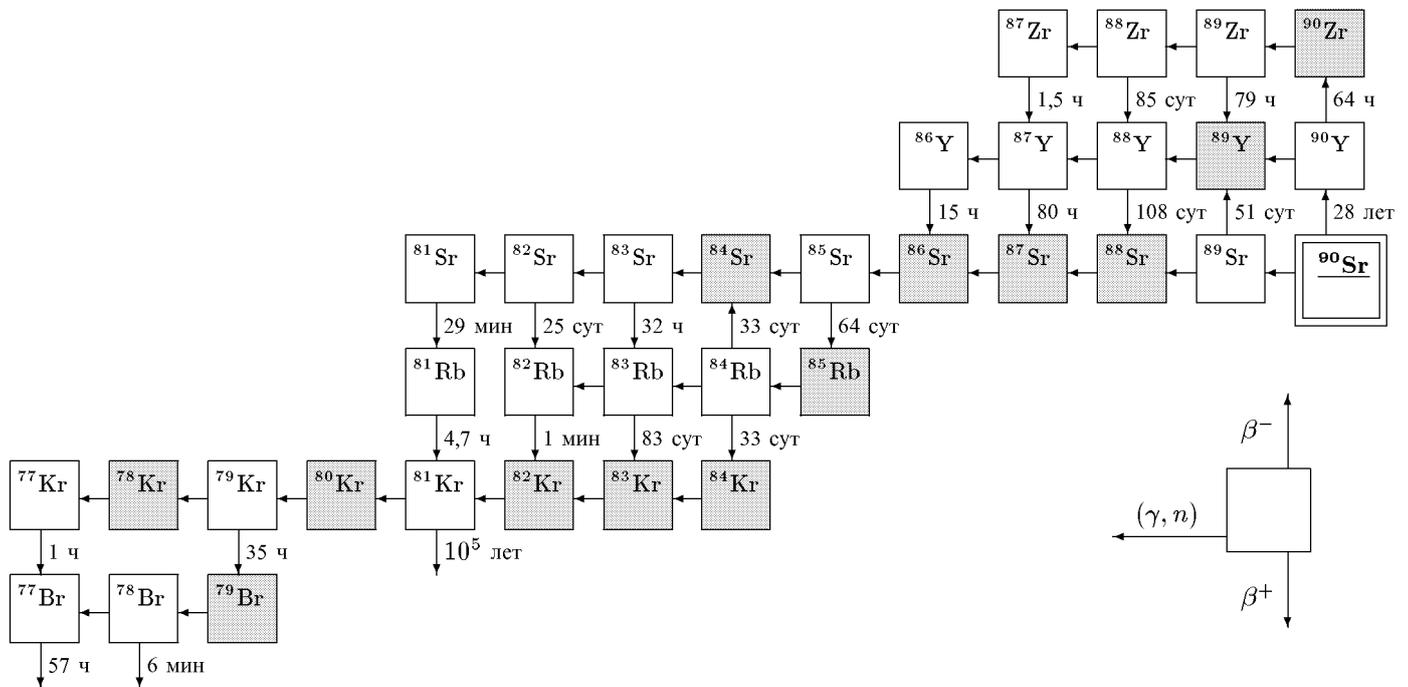


Рис. 1. Трансмутационная цепочка  $^{90}\text{Sr}$

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  $t$ ,  $\lambda_j$  — постоянная  $\beta$ -распада  $j$ -го изотопа,  $\lambda_{ij}$  — постоянная  $\beta$ -распада изотопа  $i$  с образованием в конечном состоянии изотопа  $j$ ,  $\Phi$  — усредненная по углу эмиссии плотность потока тормозных фотонов [фотон·с $^{-1}$ ·см $^{-2}$ ],  $\sigma_j$  — взвешенное по тормозному спектру интегральное сечение фоторасщепления изотопа  $j$ ,  $\sigma_{ij}$  — 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  $\gamma$ -квант ( $\sigma_{j(ij)}(E_\gamma)$  — сечение  $(\gamma, n)$ -реакции [см $^2$ ] на  $j$ -м ( $i$ -м) изотопе при энергии фотона  $E_\gamma$ ).

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

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

Постоянные  $\beta$ -распадов  $\lambda_j$  и  $\lambda_{ij}$  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  $(\gamma, n)$ -реакции на ядрах с  $A > 60$  (5 МэВ). Величина  $E_m$  полагалась равной 30 МэВ, так как вклад в интегральные сечения  $(\gamma, n)$ -реакций фотонов с энергиями больше 30 МэВ не превышает нескольких процентов.

Спектр  $\gamma$ -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

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

Плотность потока фотонов с энергией от 5 до 30 МэВ  $\Phi$ [фотон·с $^{-1}$ ·см $^{-2}$ ] связана с током электронов соотношением

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

где  $N_{\text{tot}}$  — число промоделированных электронов,  $I$  — ток электронов в амперах,  $S$  — площадь мишени, облучаемая фотонами (в  $\text{см}^2$ ). 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  $^{90}\text{Sr}$  при токах электронов в интервале от 0,1 до 10 А и верхних границ тормозного излучения 30 и 60 МэВ. Время облучения менялось от 1 до 10 месяцев.

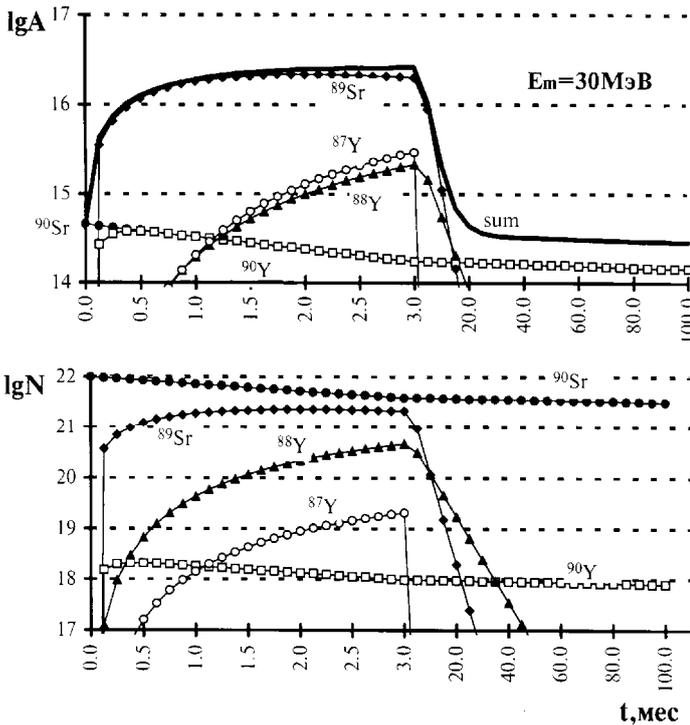


Рис. 2. Временная эволюция активности  $A$  и содержания  $N$  радиоактивных элементов трансмутационной цепочки  $^{90}\text{Sr}$ . Время облучения 3 месяца, ток электронов 1 А

На рис. 2 показаны результаты расчетов содержания и активности изотопов трансмутационной цепочки  $^{90}\text{Sr}$  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  $(\gamma, n)$ -реакциях и последующем  $\beta$ -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  $^{90}\text{Sr}$ , вносящего основной вклад в долгоживущую компоненту активности.

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

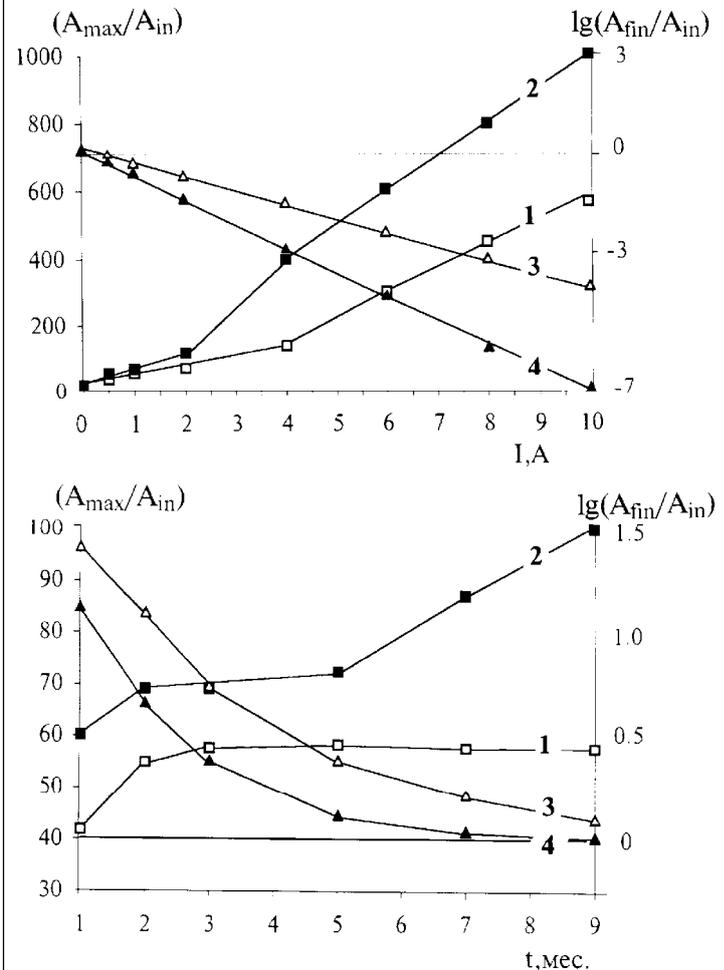


Рис. 3. Зависимость отношений  $A_{\text{max}}/A_{\text{in}}$  (1, 2) и  $A_{\text{fin}}/A_{\text{in}}$  (3, 4) от тока электронов  $I$  и времени облучения  $t$  для верхних границ спектра  $E_m = 30$  (1, 3) и 60 МэВ (2, 4)

Количественно эффективность трансмутации может описываться отношением конечной активности ( $A_{\text{fin}}$ ) к начальной ( $A_{\text{in}}$ ). При исследовании возможностей создания радиоактивных источников высокой интенсивности представляет интерес также отношение максимальной активности, достигнутой при облучении,  $A_{\text{max}}$ , к начальной  $A_{\text{in}}$ . 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

$A_{\max}/A_{\text{in}}$  резко возрастает при токе электронов более 2 А. При меньших значениях отношение  $A_{\max}/A_{\text{in}}$  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  $\beta$ -распадами. Таким образом, для эффективной трансмутации  $^{90}\text{Sr}$ , 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  $^{90}\text{Sr}$ .

Качественно иное поведение временной зависимости отношения  $A_{\max}/A_{\text{in}}$  наблюдается при верхней границе тормозного спектра 60 МэВ и времени облучения более 5 месяцев. Величина отношения  $A_{\max}/A_{\text{in}}$  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  $\gamma$ -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  $^{90}\text{Sr}$  необходимы непрерывные токи электронов не менее нескольких ампер. Пучки тормозного  $\gamma$ -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., Ииханов 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., Ииханов 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