СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
Дубна

13 - 6573

В.Л.Ломидзе, Е.П.Шабалин

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

О ВОЗМОЖНОСТИ ВЛИЯНИЯ СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ ИЗОМЕРОВ НА КИНЕТИКУ РАЗМНОЖАЮЩИХ СИСТЕМ

1972

13 - 6573

В.Л.Ломидзе, Е.П.Шабалин

О ВОЗМОЖНОСТИ ВЛИЯНИЯ СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ ИЗОМЕРОВ НА КИНЕТИКУ РАЗМНОЖАЮЩИХ СИСТЕМ

Направлено в сборник "Импульсные реакторы"

Введение

Большинство экспериментов по реакторной кинетике сводится к исследованию временного поведения общего количества нейтронов в системе. При этом во многих случаях анализ проводится на основе одноточечной модели кинетики. Например, при введении в начальный момент порции нейтронов за счет внешнего источника изменение мощности реактора со временем описывают функцией

$$e^{-\alpha t} = e^{\frac{k_p - 1}{\tau} t},$$

где k_p – коэффициент размножения на мгновенных нейтронах и τ – среднее время жизни ценности нейтронов в реакторе. В состоянии критичности на запаздывающих нейтронах постоянная α спада мгновенных нейтронов равна $\frac{\beta_э}{\tau}$ ($\beta_э$ – эффективная доля запаздывающих нейтронов).

В действительности экспонента $e^{-\alpha t}$ описывает спад только основной гармоники нейтронного потока, т.е. характеризует его асимптотическое поведение. Следовательно, предположение об экспоненциальной зависимости справедливо лишь во временной области, свободной от влияния высших гармоник и запаздывающих нейтронов.

Как показал опыт, расчетное значение времени жизни ценности нейтронов τ оказывается систематически заниженным по сравнению с экспериментальными значением $\frac{\beta_э}{a}$ на 20 ÷ 30% [1]. Более того, в некоторых случаях (обычно в реакторах с толстым отражателем) зависимость "мгновенной" мощности от времени носила явно не экспоненциальный характер [2].

Это несоответствие нельзя объяснить только неточностью одноточечной теории. Возможно, что существуют еще какие-то причины, приводящие к такому несогласию опыта с его теоретической интерпретацией. Одной из причин могут оказаться известные в настоящее время спонтанно делящиеся изомеры [3,7]. Время жизни относительно спонтанного деления некоторых изомеров достигает нескольких десятков микросекунд [3]. Это время сравнимо с периодом спада мгновенных нейтронов в реакторе, но много меньше периода распада любого из известных источников запаздывающих нейтронов.

Очевидно, что если доля изомерных нейтронов достаточно велика, то их вклад может качественно изменить исследуемую картину спада мощности. Поэтому представляет интерес дать оценку величине этого вклада в результат экспериментов, связанных с кинетикой мгновенных нейтронов. В качестве примера был выбран Росси-'a' -эксперимент, как наиболее распространенный опыт по измерению среднего времени жизни ценности нейтронов. Сделана попытка ответить на вопрос, можно ли в принципе обнаружить изомер в реакторном эксперименте и каковы оптимальные условия постановки такого опыта.

1. Уравнение одноточечной кинетики с учетом изомеров

Изомерное состояние ядра характеризуется аномально большим временем жизни по сравнению с временем жизни обычного возбужденного состояния. Механизм образования изомеров таков, что скорость их генерации в реакторе пропорциональна потоку нейтронов. Поэтому, если переход из изомерного состояния сопровождается испусканием нейтронов, то такие нейтроны, с точки зрения кинетики реактора, должны учитываться как обычные запаздывающие. Значит, для описания временного поведения мощности реактора с учетом изомерных нейтронов можно использовать известные уравнения кинетики, если ввести понятие доли этих нейтронов β в их общем числе ν, приходящемся на акт деления.

Некоторые ядра-изомеры спонтанно делятся с испусканием нескольких нейтронов (ν_i). Одним из таких примеров является изомер $Pu-239$, который может образоваться, например, в результате неупругого рассеяния нейтрона на ядре изотопа $Pu-239$. Время жизни относительно спонтанного деления этого изомера ~12 мксек, а среднее число ν_i мгновенных нейтронов, возникающих при делении, порядка 2,5 ÷ 3.

Если $\phi(\vec{r}, E, t)$ –поток нейтронов в реакторе, то количество изомеров, генерируемых за одну секунду в момент t, будет равно:

$$J(t) = \int \Phi(\vec{r}, E, t)\, \Sigma_i(E)\, d\vec{r}\, dE = \int \Phi(\vec{r}, E, t)\, \Sigma_x(E)\, \rho_x(E)\, d\vec{r}\, dE, \qquad (1)$$

где Σ_i – и Σ_x –макроскопические сечения образования изомера и процесса, в результате которого данный изомер образуется, а $\rho_x = \sigma_i / \sigma_x$ – выход изомеров относительно этого (неупругого) процесса. Скорость генерации $J(t)$ удобнее выражать через мощность $\frac{N(t)}{\tau_f}$. Поэтому формулу (1) следует записать в виде:

$$J(t) = \rho \frac{N(t)}{\tau_f} = 3{,}1\cdot 10^{16}\rho W(t). \qquad (2)$$

Здесь $\rho \equiv \rho_f = \dfrac{<\Sigma_i>}{<\Sigma_f>}$ – выход изомеров в пересчете на одно деление (сечения Σ_i и Σ_f усреднены по потоку нейтронов), τ_f –время жизни нейтронов относительно деления, $N(t)$ –число нейтронов в реакторе и $W(t)$ –мощность в Мвт (без учета вклада от спонтанного деления изомеров).

Пусть ν –среднее число мгновенных и изомерных нейтронов, возникающих при делении. Тогда доля β изомерных нейтронов в этом числе равна:

$$\beta = \frac{\rho\nu_i}{\nu} = \frac{\rho\nu_i}{\rho\nu_i + \nu_p}. \qquad (3)$$

Следовательно, коэффициент размножения на мгновенных нейтронах будет равен: $k_p = (1 - \beta)k$, где k –коэффициент размножения на мгновенных и изомерных нейтронах. Теперь, определив таким образом долю β и зная выражение для скорости генерации изомеров, можно записать уравнения кинетики:

$$\frac{dN}{dt} = \frac{k_p - 1}{\tau} N + \lambda\nu_i C$$

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda C + \frac{k\beta}{\nu_i \tau} N. \qquad (4)$$

Здесь $C(t)$ –число изомеров в реакторе в момент времени t, λ – постоянная распада изомера, $N(t)$ –общее количество мгновенных и изомерных нейтронов. Эта система уравнений справедлива в предположении, что одноточечная модель реактора достаточно верна и что запаздывающие нейтроны, обусловленные другими источниками, не влияют на кинетику в рассматриваемом интервале времени наблюдения. Легко видеть, что при замене $C(t)$ на $C(t)/\nu_i$ уравнения (4) принимают обычный вид.

Последний член в первом уравнении (4) характеризует "изомерную" поправку к картине спада мгновенных нейтронов. Величина этой поправки зависит, очевидно, от того, каковы постоянные λ и β для данного изомера. В следующем разделе на примере Росси-α -эксперимента будет показано, что изомерные нейтроны могут или дать вклад в постоянную спада мгновенных нейтронов (что может являться одной из причин разногласия между расчетными и экспериментальным временами жизни) или качественно изменить характер спада.

2. Анализ результатов Росси-α -измерений с учетом изомеров

Целью Росси-α -эксперимента является измерение характера временной корреляции между двумя последовательными регистрациями пары нейтронов в реакторе.

Без пространственно-энергетической зависимости общая формула для вероятности зарегистрировать нейтрон в момент времени t в промежутке (t , $t + dt$), если предыдущий отсчет произошел в момент t = 0, имеет вид (см., например, /4/):

$$\Gamma(t)\,dt = \epsilon \dot{F}_0\,dt + \epsilon\,\frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{\bar{\nu}^2}\,\frac{k^2}{\tau^2}\int_0^\infty \Psi(t')\,\Psi(t'+t)\,dt'dt\,. \qquad (5)$$

В этой формуле: ϵ -эффективность детектора в отсчетах на деление, $\dot{F}_0$ -средняя скорость делений в системе, $k = \nu\,\frac{\tau}{\tau_f}$ -коэффициент размножения (в нашем случае на мгновенных и изомерных нейтронах). Функция $\Psi(t)$ равна:

$$\Psi(t) = \int_0^t G(t-t')\,e(t')\,dt', \tag{6}$$

где $G(t)$ –закон, в среднем описывающий цепочку, которая инициирована одним начальным нейтроном и $e(t)\,dt$ –вероятность того, что нейтрон деления, которое произошло в момент $t = 0$, появится в момент t в промежутке $(t, t + dt)$.

Первое слагаемое в (5) представляет собой вероятность регистрации нейтрона из произвольной цепочки, т.е. это постоянный во времени фон случайных совпадений. Второе слагаемое – это вероятность в момент t в промежутке $(t, t + dt)$ иметь отсчет, скоррелированный с отсчетом в момент $t = 0$. Произведение $\nu(\nu - 1)$ учитывает тот факт, что от возникших при делении ν цепочек нейтронов можно иметь $\nu(\nu - 1)$ пар скоррелированных отсчетов, так как число пар цепочек равно $\dfrac{\nu(\nu-1)}{2}$, а две цепочки могут дать две пары отсчетов.

Если в цепочке следует учитывать только одну группу запаздывающих нейтронов, доля которых равна β, то

$$e(t) = (1-\beta)\,\delta(t) + \lambda\beta e^{-\lambda t}. \tag{7}$$

Когда существенное значение имеют лишь мгновенные нейтроны, то $e(t) = \delta(t)$; при этом $\Psi(t) = G(t) = \exp\{-\alpha t\}$ и интеграл в формуле (5) равен $\exp\{-\alpha t\}/2\alpha$. В этом случае имеем хорошо известную формулу Орндоффа для вероятности зарегистрировать скоррелированную пару отсчетов, разделенных промежутком времени t:

$$P(t) = \epsilon\,\frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{\overline{\nu}^{2}}\,\frac{k^2}{\tau^2}\,\frac{e^{-\alpha t}}{2\alpha}. \tag{8}$$

Эту зависимость и измеряют обычно в Росси-α -эксперименте.

Наличие изомеров в реакторе, очевидно, изменит формулу (8).

Если принимать во внимание только один тип изомеров, характеризующихся параметрами λ и β, то для того, чтобы получить выражение для $G(t)$, следует решить систему уравнений (4) с начальными условиями $G(0) = 1$, $C(0) = 0$. Решение имеет вид:

$$G(t) = \frac{1}{s_1 - s_2}\left[(s_1 + \lambda)e^{s_1 t} - (s_2 + \lambda)e^{s_2 t}\right], \qquad (9)$$

где

$$s_{1,2} = -\frac{a+\lambda}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{a+\lambda}{2}\right)^2 - \lambda\frac{1-k}{r}} \qquad (10)$$

-корни характеристического уравнения, в которых, как и прежде, $a = (1-k_p)/r$, $k = k_p/(1-\beta)$ и λ -постоянная распада изомера.

Используя $e(t)$ и $G(t)$ в форме (7) и (9), для вероятности скоррелированных отсчетов получим выражение:

$$P(t) = \epsilon\frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{\bar{\nu}^2}\frac{k^2}{r^2}\frac{1}{2(s_1^2 - s_2^2)}\left[\frac{\lambda^2 - s_1^2(1-\beta)^2}{s_1}e^{s_1 t} - \frac{\lambda^2 - s_2^2(1-\beta)^2}{s_2}e^{s_2 t}\right]. \qquad (11)$$

Нашей целью является выявить степень отличия формулы (11) от формулы Орндоффа (8), которой обычно интерпретируются результаты Росси-a -измерений.

Пусть Росси-a -эксперимент проводится на критическом по запаздывающим нейтронам реакторе (практически реактор может находится только вблизи критичности, а постоянный уровень мощности поддерживается слабым внешним источником). Не предполагая существования каких-либо источников запаздывающих нейтронов, способных проявлять себя в интересующем интервале времени наблюдения, экспериментатор надеется аппроксимировать результат опыта зависимостью (8), в которой $a = \beta_э/r$, тогда как измеряемая вероятность $P(t)$ точно (допустим это) следует закону (11).

Возможность выделить вторую экспоненту зависит от точности измерений и, прежде всего, от значений величин λ и β. Например, при фиксированной доле β изомерных нейтронов существуют два предельных случая: $\lambda = 0$ и $\lambda = \infty$, что соответствует изомеру, который является постоянным во времени источником, и изомеру, как источнику мгновенных нейтронов. В первом случае $P(t) \sim exp\{-(\beta_э + \beta)\frac{t}{\tau}\}$, так как реактор критичен на всех запаздывающих нейтронах, а во втором: $P(t) \sim exp\{-\beta_э t/\tau\}$, так как изомерные нейтроны являются мгновенными. Из этих предельных значений формулы (11) ясно, что при фиксированной доле β существует некое промежуточное значение λ, когда в данном временном интервале измерений отклонение закона (11) от экспоненциального наиболее заметно. Можно оценить, что в случае, когда кривую спада можно достаточно точно измерить в пределах двух-трех порядков, экспоненты практически возможно разделить, если

$$0,1 \lesssim (\frac{\lambda}{a}) \lesssim 1 \div 2, \qquad (12)$$

а наиболее "удобное" в этом смысле соотношение между λ и a оказывается в районе 0,5:

$$(\frac{\lambda}{a})_{опт.} \sim 0,5 \qquad (13)$$

При $\beta = 0$ выражение (11) полностью переходит в формулу Орндоффа, т.е. вторая экспонента исчезает. Следовательно, помимо ограничения (12), нужно наложить некоторое условие и на величину β. Анализ показывает, что если кривая спада измерена до трех порядков, то экспоненты можно разделить, если $\beta \gtrsim 0,01\ \beta_э$ и выполняется условие (12). Это значит, что в принципе (если исключить влияние дополнительных факторов) можно обнаружить изомер с $\beta_{min} = 0,01\ \beta_э$ и постоянной λ распада, которая порядка постоянной a спада мгновенных нейтронов в этом реакторе. Например, в плутониевом реакторе с тонким отражателем и $\beta_э = 2{,}3 \cdot 10^{-3}$, $\tau = 1{,}5 \cdot 10^{-8}$ сек можно заметить изомер Pu–239 с долей нейтронов от спонтанного деления $\beta_{min} = 2{,}3 \cdot 10^{-5}$ и постоянной распада $\lambda = 0{,}087$ мксек$^{-1}$. Такой эксперимент был бы близок к оптимальному, так как $\frac{\lambda}{a} \approx 0{,}5$ и влияние отражателя практически исключено. Об оптимальной постановке опыта можно говорить, разумеется, только в том случае, когда существует предварительная оценка измеряемой величины λ.

Следует сказать, что возможности метода Росси- a значительно ограничены статистической точностью. Оценка статистически надежной области значений $P(t)$ в три порядка является завышенной. Поэтому при долях $\beta \sim 10^{-5}$ изомер вероятнее обнаружить, например, в импульсном эксперименте, где кривую спада (9) можно проследить в гораздо более широких пределах и с существенно лучшей статистической точностью. Однако при одинаковой статистической точности метод Росси- a имеет некоторое, хотя и незначительное, преимущество. Дело в том, что коэффициенты при экспонентах в выражениях (11) и (9) по-разному зависят от λ. В формуле (11) при $\lambda < \frac{1-k}{\tau}$ относительное различие в коэффициентах оказывается несколько меньшим, чем в формуле (9). Поэтому вклад изомеров при таких λ будет более заметен в Росси – a -эксперименте, нежели в эксперименте с импульсным источником.

На рис. 1 приведен пример (кривая 1) зависимости мощности от времени с учетом изомеров ($\lambda = 1/8$ мксек$^{-1}$, $\beta = 8 \cdot 10^{-5}$), которая обусловлена введением в реактор с $(1 - k_p) = 10^{-2}$ и $\tau = 4 \cdot 10^{-8}$ сек нейтронного импульса шириной 2 мксек. Из рисунка видно, что даже в пределах трех порядков зависимость 1 существенно не отличается от 2, соответствующей случаю $\beta = 0$. Это обусловлено малым значением отношения $\beta / (1 - k_p) = 8 \cdot 10^{-3}$. На реакторе с меньшей подкритич-

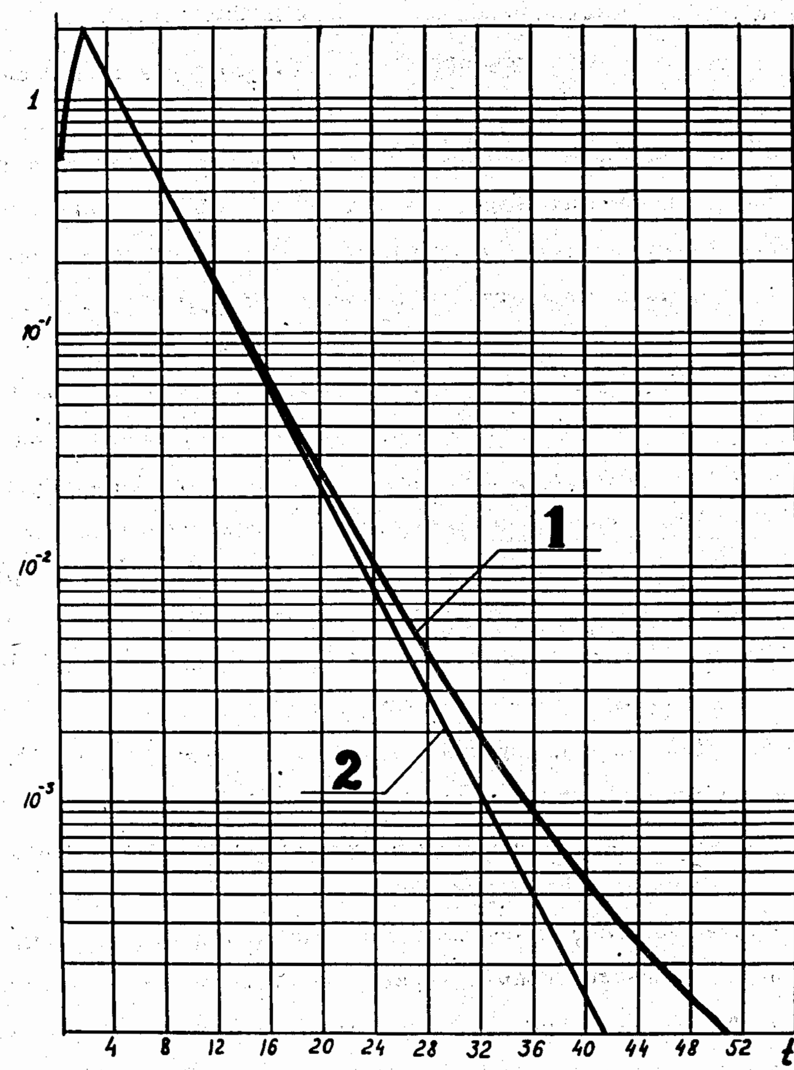

Рис. 1. Зависимость мощности (отн. ед.) от времени (мксек) с учетом (кривая 1) и без учета (кривая 2) изомера Pu-239 при $\beta = 8 \cdot 10^{-5}$ и $\lambda = 1/8$ мксек$^{-1}$. Ширина вводимого прямоугольного импульса нейтронов 2 мксек.

Рис. 1

ностью ($1 - k_p$) эффект был бы более заметен. Вклад изомеров становится существенным при $t \geq 30$ мксек, а при $t \geq 50$ мксек кривая 1 описывается практически одной экспонентой. В Росси-α -эксперименте можно заметить влияние изомерных нейтронов, но с долей β не менее 10^{-4}.

Если $\frac{\lambda}{a} \geq 2$, то экспонента с меньшей амплитудой быстро спадает и ее вклад заметен только в самом начале спада, т.е. в области влияния высших гармоник. Для остальных времен, которые и представляют интерес, характер функции $P(t)$ будет определяться только экспонентой $e^{s_1 t}$. При $\beta > 0$ всегда $|s_1| < a = \frac{\beta_э}{\tau}$, так что измеренное время жизни ценности нейтронов будет завышено по сравнению с расчетом на

$$\delta = \frac{a - |s_1|}{a} 100 = \frac{1}{2} \{ \sqrt{(X+Y-1)^2 + 4Y} - (X+Y-1) \} 100 \qquad (14)$$

процентов. Здесь $Y = \frac{\beta}{\beta_э}$ и $X = \frac{\lambda}{a}$, причем $X \geq 2$. Значение $X = 2$ оценивает верхний предел для δ (при фиксированном Y). Например, при $\beta_э = 2{,}3 \cdot 10^{-3}$ и $\beta = 0{,}1 \cdot \beta_э = 2{,}3 \cdot 10^{-4}$ получим $\delta_{max} \approx 8{,}5\%$. Для $\beta = 10^{-3}$ будем иметь $\delta_{max} \approx 24\%$, т.е. обычно наблюдаемое расхождение между измеренным и расчетным временами жизни можно объяснить лишь изомерами, для которых β не менее 10^{-3}.

Выводы

1. С помощью Росси-α -эксперимента можно обнаружить наличие в реакторе спонтанно делящихся изомеров с долей $\beta \geq 10^{-4}$ и постоянной распада λ, сравнимой с постоянной спада a мгновенных нейтронов;

при этом вклад, обусловленный изомерными нейтронами, тем заметнее, чем больше отношение их доли β к мгновенной подкритичности реактора. Для этой цели могут служить малые системы на быстрых нейтронах, находящиеся вблизи критичности на запаздывающих нейтронах.

При долях $\beta \sim 10^{-5}$ изомер вероятнее обнаружить в эксперименте с импульсным источником, каковыми, например, являются импульсные реакторы-бустеры.

2. Расхождение между наблюдаемым и расчетным временами жизни ценности нейтронов в 20 ÷ 30% нельзя полностью объяснить влиянием изомеров. Так как ожидаемый выход изомера *Pu-239* не превышает 10^{-4}, то его вклад в величину среднего времени жизни ценности нейтронов не более нескольких процентов.

Литература

1. E.Kiefhaber. "Comment of the Calculation of Neutron Lifetime and Material Worth", KFK-882,Karlsruhe, 1968.
2. Nucl. Sci. and Eng., 35, 27, (1969).
3. Nucl. Phys., A151, 656 (1970).
4. Nukleonik, 4, 213 - 226 (1962).
5. Дж. Р. Кипин. "Физические основы кинетики ядерных реакторов". Атомиздат, Москва, 1967.
6. Nucl. Sci. and Eng., 2, 450 (1957).
7. АЭ, т. 31, вып. 2, 156 (1971).

Рукопись поступила в издательский отдел
5 июля 1972 года.