

УДК 539.123

PACS number(s): 26.65.+t,13.15.+g,14.60.Pq,91.35.-x

ОБЧИСЛЕННЯ АНТИНЕЙТРИННИХ СПЕКТРІВ

В. Русов, В. Тарасов, Д. Літвінов

*Одеський національний політехнічний університет,
пр. Шевченка, 1, 65044 Одеса, Україна
e-mail: siiis@te.net.ua*

Розглянено методику обчислення антинейтринних спектрів, що випромінює активна зона ядерного реактора, а також з бета-спектрів відходів ядерного палива. Для моделювання антинейтринного спектра застосовують метод прямого підсумовування антинейтринних спектрів окремих нуклідів, що формують суміш продуктів розпаду, з урахуванням конкретних режимів опромінення палива в ядерних реакторах. Даний метод дає змогу проводити розрахунки з використанням різних бібліотек ядерних даних, зокрема, незалежних виходів і схем розпаду. Для обчислення концентрацій нагромадження радіоактивних нуклідів в опроміненому ядерному паливі залежно від умов його опромінення використовують пакет SCALE та відповідні бібліотеки ядерних даних.

Ключові слова: антинейтринний спектр, β -розпад, нейтринна діагностика, активна зона реактора, ядерне паливо.

У статті розглянено методику обчислення $\tilde{\nu}$ -спектрів, що їх випускає активна зона ядерного реактора, а також β -спектрів опроміненого ядерного палива. Прогнозування $\tilde{\nu}$ -спектра важливо для правильної інтерпретації нейтринних експериментів на різних реакторах, зокрема експерименти Афоніна [1], Клімова [2] і Копейкіна [3], виконані групою Микаеляна на Рівненській АЕС (Україна) у 1984-1986, 1990 і 1997-х роках відповідно. Однак, унаслідок складності проведення нейтринних експериментів і через однакову природу й, відповідно, методику розрахунку $\tilde{\nu}$ - і β -спектрів, інтерес становить також експериментальна перевірка теоретично передбачених значень β -спектрів, розрахованих для визначених умов опромінення ядерного палива і використовуваної бібліотеки ядерних даних. Наприклад, рішення задачі нейтринної діагностики активної зони реактора [4] з метою відновлення ядерної щільності кожного з компонентів ізотопного складу ядерного палива і динаміки їхньої зміни безпосередньо в процесі роботи реактора вимагає апріорного знання енергетичних спектрів антинейтринно кожного з реакторних ізотопів. У [5] досліджено відношення $\tilde{\nu}$ -спектра до β -спектра суміші продуктів розподілу урану і плутонію в умовах вікової рівноваги і виявлено, що це відношення має гарну стійкість, що слабо

залежить від вибору вихідних передумов під час розрахунку окремо $\tilde{\nu}$ - і β -спектрів методом підсумовування. Однак слід зазначити ті обставини, що стійкість відношення $\tilde{\nu}$ - до β -спектра не має чіткого фізичного обґрунтування, а результати прогнозування $\tilde{\nu}$ -спектра відповідно до цієї методики навряд чи можуть конкурувати з результатами, отриманими методом прямого підсумовування $\tilde{\nu}$ -спектрів окремих нуклідів, що формують, власне, суміш продуктів розподілу з урахуванням конкретних режимів опромінення палива в ядерних реакторах [6]. З іншого боку, розрахункові результати, виконані за методом прямого підсумовування, залежать від способу розрахунку концентрацій в опроміненому ядерному паливі, якості і повноти використовуваних бібліотек ядерних даних за схемами розпаду і незалежних виходів, а також від вибору теоретичних моделей для короткоживучих нуклідів з невідомими схемами розпаду. Вплив перелічених чинників особливо помітно при дуже малих часах витримки після попереднього опромінення і в процесі роботи реактора, коли весь $\tilde{\nu}$ - і β -спектр суміші формується всією сукупністю коротко- і довгоживучих продуктів розподілу.

Послідовний опис реактора як джерела антинейтрино потребує коректного обліку для кожної тепловидільної касети таких чинників, як, наприклад, спектр щільності потоку нейтронів, нерівномірність збагачення нейтронного поля по висоті касети, збагачення палива ^{235}U , глибина вигорання тощо, залежно від часу перебування касети в активній зоні. Наступне підсумовування по всіх касетах, звісно, дозволить описати весь реактор загалом як єдине джерело $\tilde{\nu}$ -випромінювання зі своїм характерним у будь-який момент часу $\tilde{\nu}$ -спектром [7].

Якщо за одиницю виміру кількості палива в активній зоні прийняти одну касету, то в загальному випадку вираження для абсолютного ефективного $\tilde{\nu}$ -спектра всієї активної зони реактора в будь-який момент часу T після початку експлуатації реактора можна записати в такий спосіб:

$$N_{abc}^{\tilde{\nu}}(E, U, T) = \sum_m \omega_m \sum_j N_j^{\tilde{\nu}}(E) Q_{mj}(U, T), \quad (1)$$

де m – індекс підсумовування за касетами; j – індекс підсумовування по продуктах розподілу, що накопичились у зборці на момент часу T ; ω_m – кількість зборок m -го сорту з однаковими умовами опромінення, складом палива тощо; $N_j^{\tilde{\nu}}(E)$ – сумарний $\tilde{\nu}$ -спектр j -го продукту розподілу; $Q_{jm}(U, T)$ – активність j -го продукту розподілу в момент часу T , що утворюється в результаті розпаду на всіх компонентах палива в касетах m -го сорту, залежно від умов опромінення U (сполуки вихідного палива, щільності потоку нейтронів, вигорання й інших параметрів, що так чи інакше впливають на нагромадження кожного j -го нукліда).

Наприклад, для енергетичного реактора типу ВВЭР-440, що працює в штатному стаціонарному режимі один раз у рік, проводять часткове перевантаження палива з зупинкою реактора приблизно на один місяць. Під час перевантаження приблизно одну третину касет з максимальною глибиною вигорання вивантажують з активної зони і замінюють касетами зі свіжим паливом зі збагаченням ^{235}U , яке дорівнює 3,6%. Інші дві третини касет переставляють в активній зоні за такою схемою, щоб зі збільшенням глибини вигорання кожної з

них вона переміщалася до центра активної зони. Отже, можна говорити про три сорти касет з різними часами опромінення T : від 0 до 1 року, від 1 до 2 років, від 2 до 3 років, що знаходяться в рівній кількості в активній зоні в будь-який момент часу протягом річного циклу опромінення. Ці три сорти касет унаслідок різних часів опромінення розрізняються між собою концентраціями важких ядер, що поділяються, (ізоотопів урану, плутонію), швидкостями поділу на кожному компоненті палива, концентраціями продуктів поділу, накопиченими у касетах того або іншого сорту, і нарешті, внеском в ефективний $\tilde{\nu}$ -спектр усєї зони.

Імовірність прогнозу ефективного $\tilde{\nu}$ -спектра визначають точністю використовуваного каталогу сумарних $\tilde{\nu}$ -спектрів окремих продуктів поділу, з одного боку, і коректністю опису нагромадження тих же продуктів поділу – з іншого. Кожна частина є досить складною і самостійною задачею.

Обчислення парціальних і сумарних β - і $\tilde{\nu}$ -спектрів радіоактивних нуклідів. Найповніша інтерпретація будь-якого радіоактивного нукліда, схема розпаду якого містить кілька парціальних переходів, як джерела β -, $\tilde{\nu}$ -випромінювань полягає в детальному описі форми β -, $\tilde{\nu}$ -спектрів кожного окремого β -переходу з урахуванням його класифікації за ступенями заборони. Однак для рішення більшості практичних задач більш оптимальною характеристикою, що описує радіоактивний нуклід як джерело β -, $\tilde{\nu}$ -випромінювань, доцільно вважати сумарні β -, $\tilde{\nu}$ -спектри емісії, що представляють лінійну комбінацію всіх парціальних β -, $\tilde{\nu}$ -спектрів цього ядра. Звичайно при розпаді одного ядра простежено п'ять-десять β -переходів, однак для багатьох ядер (особливо продуктів розподілу) кількість парціальних β -переходів може досягати декількох десятків; наприклад для $^{139}_{55}\text{Cs}$ воно дорівнює 62.

Класифікація кожного k -го β -переходу ядра за ступенем заборони ґрунтується на аналізі зміни $\Delta I^{\Delta\pi}$ моменту і парності початкового (основний стан материнського ядра) і кінцевого (збуджений стан дочірнього ядра) станів, між якими відбувається перехід. Момент, що забирається парою $\beta + \tilde{\nu}$, визначають рівнянням

$$\Delta I_k = |(I_i) - (I_l)_k|, \quad (2)$$

а зміну парності, своєю чергою, визначають за початковою і кінцевою парністю станів ядра, що має вигляд

$$\Delta\pi_k = (\pi_i)(\pi_l)_k. \quad (3)$$

Будь-який β -перехід після аналізу усєї схеми розпаду ядра може бути класифікований за ступенем заборони в такий спосіб:

$\Delta I^{\Delta\pi} = 0^+$; 1^+ – дозволений;

$\Delta I^{\Delta\pi} = 0^-$; 1^- – заборонений за парністю першого порядку;

$\Delta I^{\Delta\pi} = 2^-$ – унікальний першого порядку;

$\Delta I^{\Delta\pi} = 2^+$ – заборонений за парністю другого порядку;

$\Delta I^{\Delta\pi} = 3^+$ – унікальний другого порядку;

$\Delta I^{\Delta\pi} = 3^-$ – заборонений за парністю третього порядку.

Парціальні β -спектри розраховують за однією з наступних формул [6, 8]:

дозволені β -переходи

$$N_{\beta}(E_{\beta})dE_{\beta} = F(E_{\beta}, Z)E_{\beta}\sqrt{E_{\beta}^2 - 1}(E_0 - E_{\beta})^2 dE_{\beta}; \quad (4)$$

унікальні β -переходи першого порядку

$$N_{\beta}(E_{\beta})dE_{\beta} = F(E_{\beta}, Z)E_{\beta}\sqrt{E_{\beta}^2 - 1}(E_0 - E_{\beta})^2 \left[\frac{1}{3}L_0(E_0 - E_{\beta})^2 + 3L_1 \right] dE_{\beta}; \quad (5)$$

унікальні β -переходи другого порядку

$$N_{\beta}(E_{\beta})dE_{\beta} = F(E_{\beta}, Z)E_{\beta}\sqrt{E_{\beta}^2 - 1}(E_0 - E_{\beta})^2 \times \\ \times \left[\frac{1}{30}L_0(E_0 - E_{\beta})^4 + L_1(E_0 - E_{\beta})^2 + \frac{15}{2}L_2 \right] dE_{\beta}. \quad (6)$$

Тут F , L_0 , L_1 , L_2 – кулонівські функції, що враховують вплив поля атома на β -, $\tilde{\nu}$ -спектри, методику обчислень яких наведено нижче; Z – заряд материнського ядра, E_0 – гранична енергія β -переходу.

Аналітичні вираження, що описують форму β -, $\tilde{\nu}$ -спектрів заборонених за парністю переходів не придатні для практичного використання через відсутність кількісних значень деяких величин, передусім матричних елементів β -переходів. Тому в ситуаціях, коли, з одного боку, один або декілька парціальних β -переходів розглянутого нукліда можуть бути класифіковані як заборонені за парністю (однак не можуть бути розраховані точно), а з іншого боку – відомі експериментально виміряні β -спектри цих β -переходів, β -спектри переходів такого типу розраховували як дозволені і далі результати розрахунку виправляли за формулою

$$N_{занр}(E) = N_{разр}(E)\chi(E), \quad (7)$$

де $\chi(E)$ – так звані експериментальні виправлення, що мають вигляд

$$\chi(E) = a + bE + cE^2 + dE^{-1} + e(E_0 - E)^2 + f(E^2 - 1). \quad (8)$$

Перелік ядер і кількісні значення коефіцієнтів a , b , c , d , e , f наведені в [6]. У тих випадках, коли експериментальні виправлення невідомі, заборонені переходи розраховували як дозволені.

Відповідні вираження для парціальних $\tilde{\nu}$ -спектрів легко виходять з (4)-(6) з урахуванням кінематичного зв'язку (не беручи до уваги енергію віддачі ядра) між електроном і антинейтрино $E_0 \approx E_{\beta} + E_{\tilde{\nu}}$ заміною перемінної E_{β} змінною $(E_0 - E_{\tilde{\nu}})$. Зокрема, форму $\tilde{\nu}$ -спектра дозволеного переходу описують:

$$N_{\tilde{\nu}}(E_{\tilde{\nu}})dE_{\tilde{\nu}} = F(E_0 - E_{\tilde{\nu}}, Z)\sqrt{(E_0 - E_{\tilde{\nu}})^2 - 1}(E_0 - E_{\tilde{\nu}})E_{\tilde{\nu}}^2 dE_{\tilde{\nu}}. \quad (9)$$

Для визначення кулонівських функцій $F(E, Z)$, $L_{k-1}(E, Z)$, що враховують вплив поля атома на β -, $\tilde{\nu}$ -спектри як при описі дозволених, так і заборонених

переходів, був використаний метод, запропонований у [9] за таких допущень: поле атомних електронів описується самоузгодженим потенціалом Хартри-Фока-Слетера; розподіл заряду ядра прийнято однорідним за обсягом кулі радіусом $R = 1.24A^{1/3}$.

Рух електронів розглядали в центрально-симетричному полі, потенціал якого задавали у вигляді

$$V(r) = \begin{cases} -\frac{\alpha Z'}{R} \left[3 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right], & r \leq R \\ -\frac{\alpha Z}{R} U(r) - \frac{\alpha}{r}, & r > R \end{cases}, \quad (10)$$

де $\alpha = 1/137$ – постійна тонкої структури; $Z' = Z + 1$ – заряд дочірнього ядра. При $r > R$ вид потенціалу відповідає кулонівському полю ядра з обліком екранування електронів за допомогою уведення функції $U(r)$, значення якої визначають шляхом чисельного інтегрування рівняння Шредингера із самоузгодженим потенціалом Хартри-Фока-Слетера для нейтрального атома з включенням у розгляд оболонкової енергії взаємодії електронів атома [10]. Для обчислення кулонівських функцій можна також скористатися аналітичним вираженням для наближеного опису виправлень на екранування для кулонівських функцій [11], отриманим на основі рішення рівняння Дірака з потенціалом

$$V(r) = -\alpha Z \beta [\exp(\beta r) - 1]^{-1}, \quad (11)$$

де β – параметр, що враховує екранування: $\beta = 2c\alpha Z^{1/3} m_e$; m_e – маса електрона, $c \approx 1,2 \div 1,4$.

Рівняння Дірака для опису руху частки в центрально-симетричному полі обчислюють методом поділу змінних, при цьому радіальна частина має вигляд (при використанні безрозмірних одиниць $\hbar = c = m = 1$):

$$\begin{aligned} \frac{d(rg_k)}{dr} &= -\frac{k}{r}(rg_k) + [E - V(r) + 1](rf_k) \\ \frac{d(rf_k)}{dr} &= \frac{k}{r}(rf_k) - [E - V(r) - 1](rg_k) \end{aligned}, \quad (12)$$

де $g_k(r)$, $f_k(r)$ – радіальні частини чотирьохкомпонентного спінора $\psi_e(r)$; k – величина, пов'язана з повним кутовим моментом електрона співвідношенням

$$|k| = j + 1/2, \quad (13)$$

яке набуває значень $\pm 1; \pm 2; \pm 3 \dots$. Орбітальний момент виражають через k у такий спосіб:

$$l = \begin{cases} k, & k > 0 \\ -(k+1), & k < 0 \end{cases}. \quad (14)$$

Сукупність функцій $F(E, Z)$, $L_{k-1}(E, Z)$ пов'язана з хвильовими функціями електрона такими рівняннями:

$$F(E, Z) = \frac{g_{-1}^2(R) + f_1^2(R)}{2p^2}; \quad (15)$$

$$L_{k-1}(E, Z) = \frac{g_{-k}^2(R) + f_k^2(R)}{2p^2 F(E, Z) R^{2(k-1)}}, \quad (16)$$

де значення радіальних функцій задані в точці $r = R$, тобто на поверхні ядра;
 $p = \sqrt{E^2 - 1}$ – імпульс електрона.

Систему (12) з потенційною енергією (10) вирішують за допомогою чисельного інтегрування за умови обмеженості при $r \rightarrow 0$ і нормованості на одиничний інтервал енергії при $r \rightarrow \infty$. У ділянці $r \leq R$ рішення кожного з рівнянь системи шукають у вигляді розкладу за ступенями r :

при $k < 0$

$$G_k = r^{|k|} (a_1 r + a_3 r^3 + \dots + a_{2n+1} r^{2n+1} + \dots); \quad (17)$$

$$F_k = r^{|k|} (b_0 + b_2 r^2 + \dots + b_{2n} r^{2n} + \dots), \quad (18)$$

де введені нові функції

$$G_k(r) = r g_k(r), \quad F_k(r) = r f_k(r). \quad (19)$$

При $k > 0$

$$G_k = r^k (c_0 + c_2 r^2 + \dots + c_{2n} r^{2n} + \dots); \quad (20)$$

$$F_k = r^k (d_1 r + d_3 r^3 + \dots + d_{2n+1} r^{2n+1} + \dots). \quad (21)$$

Наступною підстановкою цих рядів у (12) одержуємо зв'язок між коефіцієнтами розкладань, при цьому загальне рішення системи для $r < R$ буде містити тільки дві довільні постійні. Їх визначають чисельним інтегруванням системи в ділянці $r > R$ з граничними умовами в точці $r = R$, що попередньо розраховують, знаючи рішення в ділянці $r \leq R$. У крапці, починаючи з якої можна зневажити потенційною енергією порівняно з кінетичною енергією електрона, проводять “зшивання” рішень системи з асимптотичними рішеннями, що дозволяє знайти дві довільні постійні в загальному рішенні системи і далі нормовані значення функцій $G_k(R)$, $F_k(R)$ і $g_k(R)$, $f_k(R)$, а з урахуванням співвідношень (15) і (16) – необхідні функції $F(E, Z)$, $L_{k-1}(E, Z)$.

Розрахунок концентрацій продуктів поділу в опромінену ядерному паливі залежно від умов його опромінення. У загальному випадку при описі нагромадження того або іншого j -го продукту розподілу у виділеному обсязі активної зони реактора потрібно враховувати такі основні чинники: склад вхідного завантаження палива; утворення й одночасний розподіл вторинного ядерного палива; природний розпад продуктів поділу по ланцюжках радіоактивних перетворень; радіаційне захоплення нейтронів продуктами поділу, що, загалом, зумовлює те, що в концентрацію розглянутого j -го нукліда дають внесок усі $(j-1)$ ядра: попередників в ізобарних ланцюжках; зміна спектра щільності потоку нейтронів протягом роботи реактора T ; необхідність усереднення незалежних виходів продуктів розподілу урану і плутонію за діючим спектром нейтронів;

потреба одержання одноступових перетинів розподілу захоплення актиноїдів і продуктів розподілу і тощо.

Диференціальні рівняння, що описують зміну в часі концентрації j -го нукліда, мають такий вигляд:

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = -\lambda_j N_j(t) - \bar{\sigma}_i^f \bar{\Phi} N_j(t) + \sum_{i=1}^p \bar{y}_{ij} \bar{\sigma}_i^f \bar{\Phi} U_i(t) + \sum_{m=1}^{j-1} \lambda_{mj} N_m(t) + \sum_{m=1}^{j-1} \bar{\sigma}_{mj}^c \bar{\Phi} B_m(t) \quad (22)$$

де $N_j(t)$ – кількість ядер j -го нукліда в момент часу t , пов'язана з активністю j -го нукліда в такий спосіб: $Q_j(t) = \lambda_j N_j(t)$; $\bar{\Phi}$ – одноступова інтегральна щільність потоку нейтронів; індекс m належить ядру попередників, $m < j$; \bar{y}_{ij} – незалежний вихід j -го нукліда при розподілі i -го компонента палива, усереднений за діючим спектром нейтронів; λ_{mj} – імовірність розпаду m -го нукліда в j -й шляхом β^- , β^+ -розпаду, E -захоплення, ізомерного переходу і т.ін.; $\bar{\sigma}_i^f$ – одноступовий перетин розподілу i -го актиноїду, що поділяється; $\bar{\sigma}_i^c$ – одноступовий перетин реакцій (n, γ) , $(n, 2n)$ i -го нукліда; $\bar{\sigma}_{mj}^c$ – одноступовий перетин реакцій (n, γ) , $(n, 2n)$ на m -му ядрі з утворенням j -го; $U_i(t)$ – концентрація i -го актиноїду, що поділяється; $1 \leq i \leq p$.

Спосіб рішення системи, який ґрунтується на висновку рекурентних співвідношень для $N_j(t)$, детально описаний у [12] і реалізований у вигляді комплексу програм AFPA (Accumulation of Fission Products and Actinides). Також для рішення системи може бути використаний модуль ORIGEN-S з пакета SCALE, розробленого в Оак-Ридзькій національній лабораторії США [13].

1. *Александрин В.Г., Родичев С.В., Рубцов П.М.* и др. // Бета- и антинейтринное излучение радиоактивных ядер: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1989. 800 с.
2. *Афонин А.И., Копейкин В.И., Микаэлян Л.А.* и др. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. С. 1–17.
3. *Боровой А.А., Копейкин В.И., Микаэлян Л.А.* и др. // О связи между спектрами реакторных $\check{\nu}_e$ и β -электронов // Ядерная физика. 1982. Т. 36. С. 400–402.
4. *Джелепов Б.С., Зырянова Л.П., Суслов Ю.П.* Бета-процессы. Функции для анализа бета-спектров и электронного захвата, М.: Наука, 1974. 550 с.
5. *Климов Ю.В., Копейкин В.И., Микаэлян Л.А.* и др. // Ядерная физика. 1990. Т. 52. С. 1574–1581.
6. *Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Александрин В.Г.* Бета-излучение продуктов деления: Справочник, М.: Атомиздат, 1978. 472 с.
7. *Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А.* и др. // Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник. М.:

- Энергоатомиздат, 1983.
8. *Копейкин В.И., Микаэлян Л.А., Синев В.В.* // Ядерная физика. 1997. Т. 60. С. 230–234.
 9. *Рубцов П. М., Ружанский П.А., Алексанкин В.Г.* и др. // Спектр и сечение взаимодействия антинейтрино, излучаемых ядерным реактором. Ядерная физика, 1987. Т. 43. С. 1028–1037.
 10. *Русов В.Д., Зеленцова Т.М., Тарасов В.О., Шаабан І.* // Статистичні властивості реакторних антинейтрино. Доповіді НАН України, № 6. 2002. С. 79–83.
 11. *Bell M.* ORIGEN – The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-4628, Union Carbide Corp., Nucl. Div., Oak Ridge Natl. Lab., May 1973.
 12. *Buhring W.* The screening correction to the Fermi function on nuclear beta-decay and its model dependence // Nucl. Phys. 1984. Vol. A430, P 1–20.
 13. *Herman P., Skillman S.* Atomic Structure Calculations, Prentice Hall, New Jersey 1968.

ANTINEUTRINO SPECTRUM CALCULATION

V. Rusov, V. Tarasov, D. Litvinov

*The Odessa national polytechnical university
Shevchenko Av. 1, UA-65044 Odessa, Ukraine
e-mail: siiiis@te.net.ua*

The methodic of the calculation of the antineutrino spectrum from nuclear core and beta spectrum from nuclear fuel waste are described. The method of the direct summation of the partial antineutrino spectra from individual nuclides is used for construction of the effective antineutrino spectrum from mixture of decay products. This method allows to carry out calculation by using different libraries of the nuclear data. The SCALE system with corresponding nuclear data is used for calculation of the concentrations of radioactive isotopes that are generated with specified conditions.

Key words: antineutrino spectrum, β -decay, neutrino diagnostic, nuclear core, nuclear fuel.

Стаття надійшла до редколегії 19.05.2004
Прийнята до друку 21.11.2005