2. А. Хитчкок. Устойчивость ядерных реакторов. М., Госатомиздат, 1963.
3. S. Kaplan et al. Доклад № 271, представленный США на Третью международную конференцию по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1964).
4. K. Mochizuki, A. Takeda. Nucl. Sci. and Engng, 7, 336 (1960).
5. G. Gyorey. Nucl. Sci. and Engng, 13, 338 (1962).
6. А. Д. Галанин. Теория ядерных реакторов на тепловых нейтронах. М., Атомиздат, 1957.

О возможности получения радиоактивных изотопов в реакторе на протонах отдачи

В. И. ЛЕВИН, А. Б. МАЛИНИН, В. С. НОВОСЕЛОВ, Р. В. ПЕТРИНА, Л. В. ЗАВЬЯЛОВА

УДК 539. 172.12

В работах [1—5] для получения изотопов в реакторе предложено использовать так называемые вторичные ядерные реакции, которые происходят в результате бомбардировки ядер мишени частицами, образующимися в первичной реакции с нейтронами. Наиболее часто используются α-частицы и тритоны из реакции $Li^6(n, \alpha)t$. В работах [4, 5] описано использование протонов и дейтонов отдачи для получения изотопов C^{11}, N^{13}, F^{18}, Be^7 при облучении нейтронами деления водородсодержащих соединений. Однако в экспериментах, описанных в литературе, рассматривались только изотопы с малыми Z (не выше 10—12).

В настоящей работе предпринята попытка использовать реакции с протонами отдачи для получения Y^{88} и Zn^{65}. В качестве генератора протонов использовался полистирол, имеющий достаточно большую температуру плавления и высокую стойкость по отношению к облучению нейтронами [6].

Оценка выходов изотопов

В комбинированной мишени протоны возникают в результате упругого рассеяния нейтронов деления на ядрах водорода, входящего в молекулы одного из компонентов мишени. Энергия протонов отдачи E зависит от энергии налетающего нейтрона E_n и угла θ между первоначальным направлением полета нейтрона и направлением вылета протона (в лабораторной системе координат): $E = E_n \cos^2\theta$. При этом вероятность рассеяния на любой угол в с. ц. м. практически одинакова [7], а относительное число протонов dP_p, рассеиваемых в телесный угол $d\Omega$, определяется выражением

$$dP_p = 2\sin\theta\cos\theta\, d\theta. \qquad (1)$$

Распределение по энергиям нейтронов деления описывается функцией $N(E_n)$, нормированной на единицу. Примем, что вид функции распределения не меняется в объеме мишени. Число протонов отдачи, возникших при рассеянии нейтронов с энергиями в промежутке от $E_n + dE_n$ до E_n в единице объема мишени, находится из выражения

$$d\Phi_p = n_H \Phi_n \sigma_1(E_n)\, N(E_n)\, dE_n dP_p, \qquad (2)$$

где $\sigma_1(E_n)$ — сечение упругого рассеяния нейтронов на протонах; Φ_p — поток нейтронов деления, *нейтр/см²·сек*; n_H — число ядер водорода в 1 *см³* мишени.

Протоны отдачи с первоначальной энергией $E_n\cos^2\theta$ замедляются в веществе мишени, поэтому интересующее нас взаимодействие протонов с ядрами мишенями происходит лишь в некотором эффективном слое вещества, в пределах которого их энергия достаточна для того, чтобы вызвать (p, n)-реакцию. Таким образом, энергия протонов в эффективном слое не должна быть ниже порога рассматриваемой реакции W_1.

Число реакций, протекающих в единицу времени в элементарном объеме 1 *см²* $\times\, dx$ в расчете на один протон, очевидно, равно

$$da = \sigma_2(E)\, n_м\, dx, \qquad (3)$$

где $\sigma_2(E)$ — функция возбуждения (p, n)-реакции; $n_м$ — число ядер мишеней в 1 *см³*.

Число (p, n)-реакций, возбуждаемых потоком протонов $d\Phi_p$, определяется из выражения

$$dA = \sigma_2(E)\, n_м \frac{dx}{dE}\, dE\, d\Phi_p. \qquad (4)$$

Проинтегрировав выражение (4) по энергиям протонов в пределах от W_1 до $E_n\cos^2\theta$, по энергиям нейтронов в пределах от W_1 до $E_n^{макс}$ (в нашем случае приняли $E_n^{макс} = 16$ *Мэв*) и по углам θ в пределах от 0 до $\pi/2$, получим полный выход изотопа в 1 *см³* комбинированной мишени за 1 *сек*:

$$A = 2n_H n_м \Phi_n \int_0^{\pi/2} \int_{W_1}^{E_n^{макс}} \int_{W_1}^{E_n\cos^2\theta} \sigma_1(E_n)\, N(E_n) \times$$
$$\times \sigma_2(E)\, \dot{x}(E) \cos\theta \sin\theta\, d\theta\, dE_n\, dE, \qquad (5)$$

где $\dot{x}(E) = -\dfrac{dx}{dE}$.

При расчете выхода A необходимо также учитывать фактор накопления $(1 - e^{-\lambda t})$, где λ — постоянная распада; t — время облучения мишени в реакторе.

Для нахождения числового значения интеграла (5) использовали метод Монте-Карло [8, 9]. При этом область интегрирования была преобразована в объем единичного куба в новых координатах ξ_1, ξ_2 и ξ_3, соответствующих старым переменным E_n, θ и E, для которых возможные промежутки равны $[W_1, E_n^{макс}]$ $[0, \pi/2]$ и $[W_1, E_n^{макс}]$.

В соответствии с этим была проведена следующая замена переменных:

$$\left.\begin{aligned} E_n &= W_1 + (E_n^{макс} - W_1)\,\xi_1; \\ \theta &= \frac{\pi}{2}\,\xi_2; \\ E &= W_1 + (E_n^{макс} - W_1)\,\xi_3. \end{aligned}\right\} \qquad (6)$$

После замены переменных интеграл в выражении (5) принимает вид

$$I=\frac{\pi}{2}(E_n^{\text{макс}}-W_1)^2\iiint\limits_{(\sigma)}\sigma_1(\xi_1)N(\xi_1)\sigma_2(\xi_3)\dot{x}(\xi_3)\times\sin\pi\xi_2\,d\xi_1\,d\xi_2\,d\xi_3, \quad (7)$$

где множитель $\pi/2\ (E_n^{\text{макс}}-W_1^2)$ — якобиан преобразования.

Новая область интегрирования σ, лежащая внутри единичного куба, определяется возможными интервалами для переменных ξ_k. Эти интервалы находятся из возможных промежутков для величин E_n, θ и E. Отсюда область изменения величин ξ_k можно записать в виде

$$\left.\begin{array}{l} 0\leqslant\xi_1\leqslant 1; \\ 0\leqslant\xi_2\leqslant 1; \\ 0\leqslant\xi_3\leqslant\dfrac{W_1\left(\cos^2\dfrac{\pi}{2}\xi_2-1\right)}{E_n^{\text{макс}}-W_1}+\xi_1\cos^2\dfrac{\pi}{2}\xi_2. \end{array}\right\} \quad (8)$$

По методу Монте-Карло интеграл (7) вычисляется путем многократного задания тройки случайных чисел в промежутке [0, 1], которые испытываются условиями (8) и после «удачного» испытания служат переменными для вычисления функции

$$F(\zeta_k)=\sigma_1(\zeta_{1k})\,\sigma_2(\zeta_{3k})\,\dot{x}(\zeta_{3k})\sin\pi\zeta_{2k}. \quad (9)$$

Число троек случайных чисел ξ_k, удовлетворяющих условиям (8), обозначим n, а общее число ξ_k обозначим N, тогда отношение $\frac{n}{N}$ будет представлять собой область интегрирования σ, а интеграл (7) примет вид

$$I=\frac{\pi}{2}(E_n^{\text{макс}}-W_1)^2\frac{n}{N}\sum_{k=1}^{n}F(\zeta_k), \quad (10)$$

откуда искомая активность изотопа определяется из выражения

$$A=n_{\text{Н}}n_{\text{м}}\Phi_n I. \quad (11)$$

Для расчета интеграла (7) необходимо аналитическое выражение входящих в него функций $\sigma_1(E_n)$, $N(E_n)$, $\sigma_2(E)$ и $\dot{x}(E)$. Сечение упругого рассеяния нейтрон — протон в зависимости от энергии нейтронов были взяты из работы [10].

Функцию распределения нейтронов деления [11] в пределах точности проведенных расчетов можно представить в виде

$$N(E_n)=0{,}242\exp\left(\sqrt{2E_n}-E_n\right). \quad (12)$$

Удельную потерю энергии протона в веществе мишени определяли по нерелятивистской формуле Бете [12]. Для аналитического выражения функции возбуждения $(p,\ n)$-реакции применяли метод Максимова [13], основанный на представлениях статистической теории ядра.

В рассматриваемом случае функция $F(\xi_k)$ рассчитывалась методом Монте-Карло в двух областях энергий протона E: ниже и выше кулоновского барьера, т. е. выборки случайных чисел $(\xi_1,\ \xi_2,\ \xi_3)_k$ разделялись на две группы в зависимости от того, больше или меньше число ξ_{3k} величины $\frac{B-W_1}{E_n^{\text{макс}}-W_1}$, что соответствует условиям $E\geqslant B$ или $E<B$.

Выходы активности изотопов Y^{88} и Zn^{65}, получаемых по реакциям $Sr^{88}(p,\ n)Y^{88}$ и $Cu^{65}(p,\ n)Zn^{65}$, рассчитывались на электронно-счетной машине «Урал-2».

Выход изотопа Y^{88} на 1 *г* мишени определялся из выражения

$$A=0{,}52\varphi_n\left(1-e^{-\lambda_{Y}t}\right)\ \text{мкк/г Sr}, \quad (13)$$

а для выхода изотопа Zn^{65} использовалась формула

$$A=2{,}78\varphi_n\left(1-e^{-\lambda_{Zn}t}\right)\ \text{мкк/г Cu}, \quad (14)$$

где φ_n — нейтронный поток в единицах 10^{13} *н/см²·сек*.

Экспериментальная часть

Комбинированные мишени готовили следующим образом. Полистирол растворяли в бензоле, затем добавляли окись стронция (для получения изотопа Y^{88}) или окись меди (для получения Zn^{65}). Смесь тщательно перемешивали, бензол выпаривали и помещали в кварцевую ампулу, которую заворачивали в кадмиевую фольгу. Затем ампулу помещали в алюминиевый контейнер и облучали внутри топливного элемента реактора в течение трех месяцев.

В качестве монитора для определения потока быстрых нейтронов использовали окись никеля, в которой образовывался изотоп Co^{58}.

Облученную комбинированную мишень с окисью стронция обрабатывали небольшим количеством воды, добавляли раствор азотнокислого иттрия, а затем концентрированную азотную кислоту. Для отделения полистирола к раствору добавляли бензол, после этого бензольную фракцию, не содержащую иттрия, отбрасывали. Из оставшейся водной фазы экстрагировали иттрий трибутилфосфатом.

Для выделения Zn^{65} из облученной смеси окиси меди с полистиролом мишень растворяли в концентрированной соляной кислоте и упаривали досуха. Затем остаток растворяли в 2N HCl, цинк экстрагировали трибутилфосфатом.

Облученную навеску окиси никеля растворяли в 9N HCl и экстрагировали кобальт трибутилфосфатом.

Измерения активности изотопов Co^{58}, Y^{88} и Zn^{65} проводили по γ-излучению на сцинтилляционном счетчике с кристаллом NaJ(Tl).

Изотопы Y^{88} и Zn^{65} индентифицировали по соответствующим пикам на γ-спектрах, кроме того, для Y^{88} был определен период полураспада, равный 105 суткам. Абсолютную активность Y^{88} определяли по пику 0,9 *Мэв*, она оказалась равной (в конце облучения) ~1,7 *мкк/г* Sr. Активность Zn^{65}, рассчитанная по фотопику 1,12 *Мэв*, составила ~3 *мкк/г* Cu.

При теоретической оценке выхода Y^{88} на 1 *г* стронция по формуле (13) была получена величина 0,52 *мкк/г* Sr, которая в три раза меньше экспериментальной.

Для Zn^{65} расчетная величина удельной активности равна 1,22 *мкк/г* Cu, что меньше опытного значения в 2,5 раза.

Расхождение опытных и расчетных данных в два—три раза, по нашему мнению, вполне приемлемо и не является препятствием для приближенных расчетов активности изотопов.

Описанный метод получения изотопов на протонах отдачи в реакторе может быть применен для некоторых изотопов при больших потоках нейтронов (порядка 10^{14}—10^{16} *нейтр/см²·сек*).

Поступило в Редакцию 12/V 1967 г.
В окончательной редакции 3/XI 1967 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. И. Левин, Л. С. Козырева. «Радиохимия», V, 41 (1963).
2. Н. П. Руденко, А. С. Севастьянов. «Радиохимия», I, 691 (1959).
3. J. Roy, J. Hawton. Canad. J. Phys., **39**, 1528 (1961).
4. S. Glickstein, R. Winter. Nucl. Instrum. and Methods, **9**, 226 (1960).
5. J. Roy et al. Canad. J. Phys., **38**, 1428 (1960).
6. А. Чарлзби. Ядерное излучение и полимеры. М., Изд-во иностр. лит., 1962.
7. Дж. Блатт, В. Вайскопф. Теоретическая ядерная физика. М., Изд-во иностр. лит., 1954.
8. А. П. Демидович, И. А. Марон. Основы вычислительной математики. М., Физматгиз, 1960.
9. Метод статистических испытаний (метод Монте-Карло). Под ред. Ю. А. Шрейдера. М., Физматгиз, 1962.
10. Экспериментальная ядерная физика. Под ред. Э. Сегре. Т. 1. М., Изд-во иностр. лит., 1955.
11. Константы для расчета ядерных реакторов ANL-5800.
12. S. Livingston, H. Bethe. Rev. Mod. Phys., **9**, 263 (1937).
13. М. З. Максимов. ЖЭТФ, **33**, 1411 (1957).

Расчет распределения нейтронов в ячейке реактора на промежуточных нейтронах с поглощающим стержнем

В. С. АНДРЕЯНОВ, В. Н. МОРОЗОВ, В. В. ЧЕКУНОВ

УДК 621.039.51.134

Для практических целей представляет интерес выбор достаточно эффективной методики расчета распределения нейтронов вблизи и внутри поглощающего стержня, помещенного в реактор. Часто имеют дело либо с однородной решеткой таких стержней, либо с одиночным стержнем, расположенным по оси реактора. В обоих случаях достаточно точное решение кинетического уравнения во всем объеме реактора с помощью известных численных методов требует большого числа пространственных расчетных узлов. Поэтому при расчете полезно выделить некоторую эффективную ячейку.

В случае решетки стержней такой ячейкой может быть ячейка Вигнера — Зейтца с условиями отражения на внешней границе $R_{\text{гр}}$ для нейтронов любой энергии (определение условий отражения см., например, в [1]).

В случае одиночного центрального стержня также можно выбрать эффективную ячейку с постановкой на ее границе условий отражения. При такой постановке граничных условий будет приближенно учтено то обстоятельство, что в реакторе с центральным поглощающим стержнем поток нейтронов с любой энергией E на некотором расстоянии $r_{\text{макс}}(E)$ от оси симметрии достигает максимума. В качестве $R_{\text{гр}}$ можно брать, например, точку максимума распределения нейтронов деления по радиусу реактора, которую можно получить из расчета реактора с центральным стержнем в более грубом приближении. Как показали исследования, выбор одного и того же значения $R_{\text{гр}}$ для всех E не оказывает большого влияния на результаты расчета пространственно-энергетического распределения потока нейтронов в стержне и вблизи него.

В данной работе приведены результаты расчетов распределения нейтронов для поглощающего стержня из карбида бора плотностью $\gamma = 2{,}1$ *г/см³*, помещенного в центр уран-бериллиевого реактора на промежуточных нейтронах ПФ-4 [2]. Отношение числа ядер бериллия и урана в реакторе составляло ~ 80. Соответствующая эффективная ячейка состояла из двух зон: первая зона — поглощающий стержень радиусом $\sim 0{,}97$ *см* из карбида бора, вторая зона — кольцевой слой активной зоны с внешним радиусом $\sim 8{,}0$ *см*.

Расчет пространственно-энергетического распределения потока нейтронов в эффективной ячейке проводился в 18-групповом приближении по энергии с учетом анизотропии углового распределения рассеянных нейтронов в транспортном приближении. При этом использовалась 18-групповая система констант, описанная в работе [3].

Соответствующая система кинетических уравнений имеет вид

$$\cos\theta\cos\varphi\,\frac{\partial F_g(r,\varphi,\theta)}{\partial r}-\cos\theta\sin\varphi\,\frac{1}{r}\cdot\frac{\partial F_g(r,\varphi,\theta)}{\partial\varphi}+\alpha_g(r)\,F_g(r,\varphi,\theta)=\sum_{h=1}^{g}\beta_{gh}(r)\,N_h(r)+\chi_g\,\frac{Q(r)}{k_{\text{эфф}}},\qquad(1)$$

где

$$g=1,\ 2,\ \ldots,\ 18;$$

$$N_h(r)=\frac{1}{\pi}\int_0^{\pi}d\varphi\int_0^{\pi/2}F_h(r,\varphi,\theta)\cos\theta\,d\theta;\qquad(2)$$

$k_{\text{эфф}}$ — эффективный коэффициент размножения нейтронов для ячейки;

$$Q(r)=\sum_{g=1}^{18}\nu_g\Sigma_{f,\,g}(r)\,N_g(r)\qquad(3)$$

— плотность нейтронов деления.

Система кинетических уравнений (1) решалась в S_8-приближении S_n-метода и в P_1-приближении метода сферических гармоник. При решении системы (1) в S_8-приближении использовалась программа расчета на ЭВМ с численным алгоритмом, полученным на основе формул работы [1]. Схема решения систе-