

минимальная начальная температура ТНП была не ниже -18°C , а температура нераспространения трещины ТНТ для напряжений $0,5\sigma_T$ равна 6°C (кривая 6). При температуре облучения $130-220^{\circ}\text{C}$ ТНП смещается до 125°C ; тогда ТНТ можно полагать равной 150°C (кривая 1).

Облучение при температурах до 260°C приводит к увеличению ТНП до 110°C , причем температура нераспространения трещины для напряжений $0,5\sigma_T$ повышается до 135°C (кривая 2). Можно предполагать, что облучение при $300, 340$ и 400°C приведет к изменению ТНП до $75, 35$ и 10°C ; тогда величина ТНТ для напряжений $0,5\sigma_T$ составит $100, 60$ и 35°C соответственно (кривые 3–5).

Таким образом, температура ТНП для феррито-перлитных сталей типа 22К при температурах облучения $130-220^{\circ}\text{C}$ и интегральной дозе 10^{19} нейтр/см² остается не ниже 125°C .

По некоторым данным [8], для реакторов типа PWR и BWR из сталей A302-B и A212-B с начальной температурой ТНП без облучения в пределах $-12 \div +3^{\circ}\text{C}$ (область А) при ожидаемой дозе $(1,6-6,1) \cdot 10^{19}$ нейтр/см² ($E > 1$ Мэв) в конце срока службы, после 20–30 лет работы, температура ТНП смещается в диапазон $120-160^{\circ}\text{C}$ (область В) [8].

В настоящее время очевидной является потребность расширить основные сведения о переходной температуре хрупкого разрушения, механизме возникновения и залечивания радиационных повреждений, о влиянии энергетического спектра нейтронов и мощности дозы.

Поступила в Редакцию 11/VIII 1969 г.
В окончательной редакции 8/I 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Н. П. Мельников, А. С. Довженко. «Сварочное производство», № 5, 9 (1967).
2. К. Кална. В сб. «Исследование напряжений и прочности корпуса реактора». М., Атомиздат, 1968, стр. 183.
3. Н. А. Махутов. Там же, стр. 202.
4. W. Pellini, L. Steete, J. Hawthorne. Analysis of Engineering and Basic Research Aspects of Neutron Embrittlement of Steels (Italy, Venice, May 1962).
5. А. Д. Амаев, Н. Ф. Правдюк. См. [2], стр. 244.
6. C. Serpan, L. Steele. Report NRL-6445, 1966.
7. R. Berggren, W. Stelzman, T. Jones. Report, ORNL-4097, 1967.
8. Report ORNL-2829, 1959.

Оптимальный режим облучения при производстве изотопов

В. П. ТЕРЕНТЬЕВ, В. А. ЖАРКОВ, Г. М. ФРАДКИН, Т. П. ЧАВЫЧАЛОВА

УДК 621.039.574.5

В связи с развитием радиоизотопной энергетики, использующей в качестве «топлива» большое количество изотопов тяжелых элементов, которые испускаются при распаде α -частицы (Pu^{238} , Cm^{242} , Cm^{244} , U^{232} и пр.), появилась необходимость разработать экономически выгодные режимы облучения для получения этого топлива. Во многих работах [1, 2] определяются режимы облучения, которые позволяют либо максимально быстро получить требуемый изотоп, либо получить его максимальное количество при однократном облучении. В настоящей работе в качестве критериев оптимизации выбраны минимальные затраты на получение необходимого изотопа и максимальное значение его выхода в расчете на единицу израсходованного исходного материала.

Большинство используемых в качестве топлива изотопов получают по следующей схеме. Практически стабильный исходный изотоп (его количество в момент времени t обозначим n_1)

захватывает нейтроны, образуя промежуточный изотоп n_2 , который быстро (период полураспада не превышает нескольких дней) распадается в топливный изотоп n_3 . Принята нормировка: $n_1(0) = 1$, $n_2(0) = n_3(0) = 0$. Затраты c на получение 1 г-атома топливного изотопа определяют из равенства

$$c_1 + c_2 + C_3 + c_4 = c_1 \alpha n_1 + c\beta (\gamma n_2 + n_3). \quad (1)$$

Здесь c_1 , c_2 , c_4 — затраты на приобретение исходного изотопа, его ампулирование и химическую переработку после облучения (в расчете на 1 г-атом исходного изотопа); α и β — прямые выходы исходного и топливного изотопов в процессе химической переработки; γ — доля распадов промежуточного изотопа, приводящая к образованию топливного изотопа; C_3 — затраты на облучение.

В большинстве практически важных случаев затраты на облучение можно выразить одной

из трех формул (или их линейной комбинацией):

$$C_3 = c_3(1 - n_1);$$

$$C_3 = c_3(\gamma n_2 + n_3);$$

$$C_3 = c_3;$$

c_3 в приведенных формулах обозначает соответственно затраты на получение 1 г-нейтрона, поглощенного в исходном материале; затраты на облучение, приводящее к образованию 1 г-атома топливного изотопа; затраты на размещение 1 г-атома исходного изотопа в реакторе. Подставив эти формулы в уравнение (1), получим выражение для определения величины c во всех трех случаях:

$$c = k_1 \left(\frac{1 - \delta n_1}{\gamma n_2 + n_3} + k_2 \right), \quad (2)$$

где $0 < \delta < 1$, $k_1 > 0$, $k_2 \geq 0$ — коэффициенты, не зависящие от условий облучения. Так, используя формулу $C_3 = c_3(1 - n_1)$, получим следующие значения:

$$k_1 = \frac{c_1 + c_2 + c_3 + c_4}{\beta}; \quad k_2 = 0; \quad \delta = \frac{c_1 \alpha + c_3}{c_1 + c_2 + c_3 + c_4}.$$

Из выражения (2) следует, что режим облучения должен обеспечить получение возможно малой величины $(1 - \delta n_1)/(\gamma n_2 + n_3)$ или, что то же самое, максимальной величины $\kappa = (\gamma n_2 + n_3)/(1 - \delta n_1)$. Последнее требование по форме совпадает со вторым критерием оптимизации, который упоминался выше. Действительно, потери исходного материала во время облучения и химической переработки равны $1 - \alpha n_1$, поэтому выход топливного изотопа на единицу израсходованного исходного изотопа равен $\beta \frac{\gamma n_2 + n_3}{1 - \alpha n_1}$, где β не зависит от условий облучения и $0 < \alpha < 1$. В дальнейшем будем трактовать величину $\kappa = \frac{\gamma n_2 + n_3}{1 - \delta n_1}$ как относительный выход топливного изотопа и понимать под величиной δ прямой выход исходного изотопа в процессе химической переработки.

Если величина и распределение потока нейтронов во времени заданы, т. е. известны зависимости n_i от времени, то оптимальную длительность облучения можно найти, приравняв нулю производную от величины κ по длительности облучения t и решив полученное уравнение относительно t . Для постоянного во времени потока нейтронов зависимости $n_i(t)$ принимают особенно простой вид [3], и урав-

нение для определения длительности облучения записывается в виде

$$a_1 + a_2 x^{p-1} + a_3 x^{q-1} = \delta (a_4 x^p + a_5 x^q), \quad (3)$$

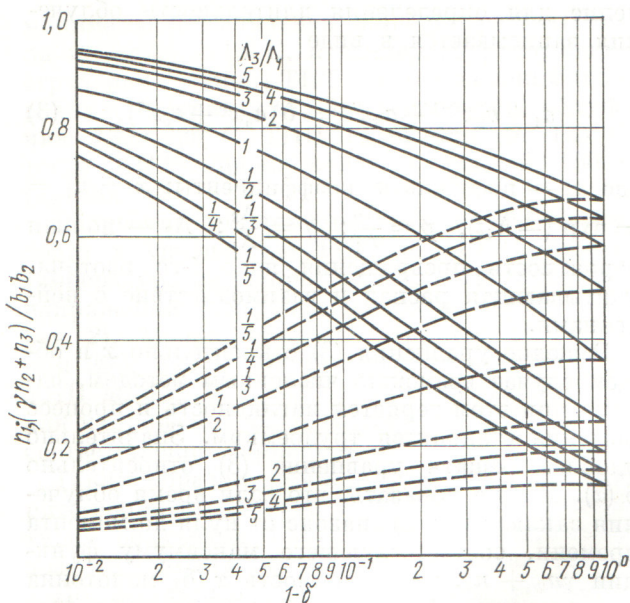
где a_i — постоянные коэффициенты; $x = n_1 = \exp(-\Lambda_1 t)$; $p = \frac{\Lambda_2}{\Lambda_1}$; $q = \frac{\Lambda_3}{\Lambda_1}$; Λ_i — полная вероятность превращения ядер i -го изотопа, учитывающая распад и взаимодействие с нейтронами.

Решение уравнения (3) относительно x в общем случае возможно численным методом, однако при этом теряется наглядность и процесс решения становится трудоемким. Значительно удобнее решать уравнение (3) относительно $\delta(x)$. Можно показать, что если время облучения заключено в диапазоне от нуля до момента времени, соответствующего максимуму функции $\gamma n_2 + n_3$, то зависимость $x(\delta)$ монотонна и однозначна. В этом случае построение графика обратной функции $\delta(x)$ и нахождение по нему значений $x(\delta)$ не вызывает затруднений. Оптимальное время облучения определяется по формуле $t_{\text{опт}} = -(\ln x_{\text{опт}})/\Lambda_1$.

Зависимость оптимального времени облучения от коэффициента δ имеет следующий характер. Если потери исходного продукта при химической переработке велики (δ мало), то время облучения выбирается достаточно большим. В предельном случае, когда $\delta = 0$ (исходный продукт полностью теряется при переработке), оптимальная длительность облучения должна соответствовать максимальному накоплению $\gamma n_2 + n_3$. Наоборот, если потери при переработке малы ($\delta \approx 1$), то исходный изотоп выгодно облучать в течение малого промежутка времени, чтобы исключить потери в процессе облучения.

На рисунке приведены функции n_1 и $(\gamma n_2 + n_3)/b_1 b_2$ в зависимости от δ для предельного случая $\Lambda_2/\Lambda_1 = \infty$ ($b_1 = \tilde{\Lambda}_1/\Lambda_1$, $b_2 = \tilde{\Lambda}_2/\Lambda_2$, $\tilde{\Lambda}_i$ — вероятность превращения ядра i -го изотопа в ядро $i+1$ -го изотопа). Расчеты показали, что в практически важной области ($0 < \delta < 0,9$; $0,8 < b_2 \leq 1,0$; $\Lambda_2/\Lambda_1 > 100$) отличие точного решения от кривых, представленных на рисунке, не превышает 2–3%. Этот же рисунок позволяет определить функцию $\kappa/b_1 b_2$, так как график $\frac{\kappa}{b_1 b_2} \Big|_{\frac{\Lambda_3}{\Lambda_1} = r}$ совпадает

с графиком $n_1 \Big|_{\frac{\Lambda_3}{\Lambda_1} = \frac{1}{r}}$ (r — произвольное число).



Оптимальные выходы исходного и топливного изотопов при облучении постоянным потоком нейтронов:

— — — — — n_1 ; - - - - - $(\gamma n_2 + n_3)/b_1 b_2$.

Помимо выбора оптимального времени облучения необходимо, естественно, стремиться к выбору такой величины нейтронного потока и жесткости спектра, которые при прочих равных условиях позволят получить максимально возможную величину κ для данного изотопа при облучении постоянным потоком нейтронов.

Постоянный во времени поток нейтронов часто встречается на практике. Тем не менее значительный интерес представляет определение оптимальной зависимости нейтронного потока от времени. Зависимость потока от времени найдем в приближении большого значения Λ_2/Λ_1 , считая, что промежуточный изотоп, находящийся в пренебрежимо малом количестве, за очень короткое время приходит в равновесие с исходным изотопом и его присутствие сказывается лишь на увеличении потерь вследствие выгорания. В этом случае уравнения накопления изотопов в общепринятых обозначениях имеют вид

$$\frac{dn_1}{dt} = -\sigma_1 \Phi n_1, \quad n_1(0) = 1; \quad (4)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = \tilde{\sigma}_1 \Phi \frac{\gamma \lambda_2}{\lambda_2 + \sigma_2 \Phi} n_1 - (\sigma_3 \Phi + \lambda_3) n_3, \quad n_3(0) = 0. \quad (5)$$

Представив величину κ в виде произведения $\kappa = \frac{n_3}{1-n_1} \cdot \frac{1-n_1}{1-\delta n_1} \equiv \kappa_{\text{обл}} \varepsilon$, где $\kappa_{\text{обл}}$ — относитель-

ный выход топливного изотопа при облучении; ε — коэффициент, учитывающий потери исходного изотопа при переработке, нетрудно убедиться, что при любом значении n_1 , получающемся к концу облучения, величина κ будет тем больше, чем больше отношение $n_3/(1-n_1)$. Таким образом, зависимость потока от времени должна выбираться из условия оптимизации величины $\kappa_{\text{обл}}$, а значение n_1 определяется условием оптимизации произведения $\kappa_{\text{обл}} \varepsilon$.

Введем функцию

$$\mu = \left(\frac{dn_3}{dt} \right) / \left(-\frac{dn_1}{dt} \right) = \frac{\tilde{\sigma}_1}{\sigma_1} \cdot \frac{\gamma \lambda_2}{\lambda_2 + \sigma_2 \Phi} \frac{\lambda_3 n_3}{\sigma_1 \Phi n_1} - \frac{\sigma_3 n_3}{\sigma_1 n_1}. \quad (6)$$

Можно показать, что при заданном в конце облучения значении n_1 величина $\kappa_{\text{обл}}$ будет максимальной, если в каждый момент времени при любых значениях n_1 и n_3 выбирать такое значение потока Φ , чтобы функция μ была максимальной (принцип оптимальности [4]). Приняв $\frac{\partial \mu}{\partial \Phi} = 0$, получим соотношение между n_1 , n_3 и Φ в любой момент времени облучения:

$$\frac{n_3}{n_1} = \tilde{\sigma}_1 \sigma_2 \gamma \frac{\lambda_2}{\lambda_3} \cdot \frac{\Phi^2}{(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)^2}. \quad (7)$$

Формулы (4), (5), (7) представляют собой систему трех уравнений для определения n_1 , n_3 и Φ как функций времени. Из уравнений (4) и (7) следует, что

$$n_1 = \exp \left[- \int_0^t \sigma_1 \Phi(t') dt' \right]; \quad (8)$$

$$n_3 = \tilde{\sigma}_1 \sigma_2 \gamma \frac{\lambda_2}{\lambda_3} \cdot \frac{\Phi^2}{(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)^2} \exp \left[- \int_0^t \sigma_1 \Phi(t') dt' \right]. \quad (9)$$

Подстановка полученных выражений в равенство (5) приводит к соотношению для определения потока: $2 \frac{d\Phi}{d\tau} = (1 + \varphi)(1 + Q\varphi^2)$, где $\varphi = \frac{\sigma_2 \Phi}{\lambda_2}$, $\tau = \lambda_3 t$, $Q = \frac{\sigma_1 - \sigma_3}{\sigma_2} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_3}$. Это уравнение интегрируется методом разделения переменных. Постоянная интегрирования определяется из условия $\varphi(0) = 0$, что следует из равенств (5)

■ (а). Решение имеет вид:

$$\tau = \begin{cases} \frac{2}{Q+1} \left[\ln(1+\varphi) - \frac{1}{2} \ln(1+Q\varphi^2) + \right. \\ \left. + V\overline{Q} \arctg(\varphi \sqrt{Q}) \right], & Q > 0; \\ 2 \ln(1+\varphi), & Q = 0; \\ -\frac{2}{R^2-1} \ln(1+\varphi) - \\ -\frac{1}{R+1} \ln(1-R\varphi) + \\ + \frac{1}{R-1} \ln(1+R\varphi), & -Q = R^2 > 0. \end{cases} \quad (10)$$

В этих формулах безразмерный поток может изменяться от нуля до некоторой максимальной величины, которая соответствует максимуму накопления топливного изотопа ($\frac{dn_3}{dt} = 0$).

Подставив формулу (7) в выражение (6) и приняв $\mu = 0$, получим

$$\varphi_{\max} = \sqrt{\frac{\sigma_2 \lambda_3}{\sigma_3 \lambda_2}}.$$

Значения φ и τ для заданного изотопа связаны между собой взаимнооднозначно соотношением (10): зависимость $\varphi(\tau)$ в интервале $0 < \varphi < \varphi_{\max}$ представляет собой монотонно растущую функцию, поэтому длительность облучения можно задать не только величиной τ , но и величиной потока φ в конце облучения. Так, с помощью равенств (8) и (9) определяем значения n_1 и n_3 в конце облучения:

$$n_1 = e^{-S}, \quad n_3 = b_1 \gamma \frac{h}{\varphi_{\max}^2} \cdot \frac{\varphi^2}{(1+\varphi)^2} e^{-S},$$

где $h = \sigma_1/\sigma_3$,

$$S = \int_0^t \sigma_1 \Phi(t') dt' = \frac{h}{\varphi_{\max}^2} \int_0^{\varphi=\varphi(\tau)} \frac{2\varphi' d\varphi'}{(1+\varphi') [1+Q(\varphi')^2]}.$$

Зависимость $\varphi(\delta)$, позволяющую при заданном значении δ определить оптимальную длительность облучения, можно найти из условия равенства нулю производной по времени облучения от величины $\kappa = n_3/(1-\delta n_1)$. После несложных преобразований получим

$$\delta = \frac{1 - \left(\frac{\varphi}{\varphi_{\max}} \right)^2}{1 + Q\varphi^2} e^S.$$

Значения параметра $\varphi_{\max}$ для наиболее перспективных [5] топливных изотопов приведены в табл. 1 при облучении тепловыми нейтронами.

Параметры оптимальных режимов облучения

Таблица 1

Изотоп	$\varphi_{\max}$	Φ , нейтр/см ² ·сек
Ac ²²⁷	0,005	5·10 ¹³ —5·10 ¹⁵
Th ²²⁸	0,1	—
U ²³²	0,015	10 ¹³ —10 ¹⁴
Pu ²³⁸	0,02	10 ¹³ —10 ¹⁴
Cm ²⁴²	0,7	—
Cm ²⁴⁴	0,025	10 ¹⁵ —10 ¹⁶

Для четырех изотопов величина $\varphi_{\max} < 0,03$.

В приближении $\varphi_{\max} \ll 1$ приведенные выше формулы значительно упрощаются. В частности, для определения величины κ в зависимости от δ получается выражение

$$\delta = \begin{cases} \left[h - \left(\frac{\kappa}{b_1 \gamma} \right)^{1-h} \right] / \left[(h-1) \frac{\kappa}{b_1 \gamma} \right], & h \neq 1; \\ \left[1 + \ln \left(\frac{\kappa}{b_1 \gamma} \right) \right] / \left(\frac{\kappa}{b_1 \gamma} \right), & h = 1, \end{cases}$$

где $0 < \delta < 1$; $h^{1-h} < \frac{\kappa}{b_1 \gamma} < 1$.

Точно такое же выражение, но с заменой γ на $\tilde{\Lambda}_2/\Lambda_2$ и $h = \sigma_1/\sigma_3$ на Λ_1/Λ_3 получается в рассмотренном выше случае облучения постоянным во времени потоком нейтронов для $\Lambda_2/\Lambda_1 \rightarrow \infty$ (см. рисунок). Если удовлетворяется условие $\varphi_{\max} \ll 1$, то всегда можно выбрать такую величину постоянного потока нейтронов Φ , когда одновременно выполняются неравенства $\frac{\sigma_2 \Phi}{\lambda_2} \ll 1$

и $\frac{\lambda_3}{\sigma_3 \Phi} \ll 1$ (соответствующие величины потоков также приведены в табл. 1). При этом значения $\tilde{\Lambda}_2/\Lambda_2 = \gamma \lambda_2/(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)$ близко к величине γ и значение $\Lambda_1/\Lambda_3 = \sigma_1 \Phi/(\lambda_3 + \sigma_3 \Phi)$ близко к σ_1/σ_3 , что приводит к совпадению зависимостей $\kappa(\delta)$ для случаев облучения постоянным и оптимальным потоками. Расчеты показывают, что для Ac²²⁷, U²²⁷, Pu²³⁸ и Cm²⁴⁴ различие в величине κ при облучении в разных режимах составляет 1—2%. В случае же Cm²⁴² ($\varphi_{\max} = 0,7$) облучение оптимальным потоком нейтронов приводит к увеличению значения κ на 7—8%.

В заключение отметим, что процесс накопления устойчив к флуктуациям отношения $y = n_3/n_1$, на это указывает отрицательная величина производной $\frac{\partial y}{\partial \delta} < 0$. Поэтому можно надеяться, что точность полученных решений будет не хуже, чем точность приближенной

Величина κ для различных режимов облучения Таблица 2

Форма потока	Способ решения	$\kappa/\kappa_{\text{пост точн}}$
Постоянный	Точное решение	1,00
	Формула (3) для $\Lambda_2/\Lambda_1 = \infty$	1,00
Оптимальный	Точное решение для ступенчатой функции	1,07
	Формулы (4) — (10)	1,08

формулы (5). Для проверки применимости полученных решений проведен точный расчет максимального накопления Cm^{242} при однократном облучении (случай, соответствующий значению $\delta = 0$). Использованы следующие зависимости потока от времени: а) постоянный поток $\Phi = 10^{15}$ нейтр/см²·сек; б) кусочно-постоянная растущая функция, приближенно описывающая оптимальную форму потока (10). Результаты, полученные различными способами, приведены в табл. 2. Различие двух последних цифр можно объяснить тем, что выбранная ступенчатая функция недостаточно хорошо описывает точную форму оптимального потока.

Таким образом, можно сделать следующие выводы:

1. Для получения минимальной стоимости топливного изотопа и максимального выхода его в расчете на единицу затраченного исход-

ного материала необходимо выбирать режим облучения таким, при котором величина $\kappa = (\gamma n_2 + n_3/(1 - \delta n_1))$ принимает максимальное значение.

2. Для случая облучения постоянным во времени потоком определена оптимальная длительность облучения, зависящая от потерь при химической переработке и стоимости отдельных процессов, которая обеспечивает максимальное значение величины κ .

3. Определена оптимальная зависимость нейтронного потока от времени [формула (10)] и необходимая длительность облучения. Для Cm^{242} использование оптимальной зависимости потока от времени приводит к увеличению значения κ на 7—8%.

Авторы благодарят О. А. Орешникову за помощь при вычислениях и оформлении графического материала.

Поступила в Редакцию 17/IX 1969 г.
В окончательной редакции 12/II 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Butch et al. Nucl. Sci. and Engng., 17, 438 (1963).
2. Т. С. Зарицкая, А. П. Рудик, «Атомная энергия», 26, 432 (1969).
3. М. А. Бак и др. «Атомная энергия», 23, 561 (1967).
4. Р. Беллман, С. Дрейфус. Прикладные задачи динамического программирования. Перев. с англ. Под ред. А. Первозванского. М., «Наука», 1965.
5. У. Корлисс, Д. Харви. Источники энергии на радиоактивных изотопах. Перев. с англ. М., «Мир», 1967.

Возможности получения изотопов в реакциях деления

Ю. Ц. ОГАНЕСЯН, Ю. Э. ПЕНИОНЖКЕВИЧ, А. О. ШАМСУТДИНОВ, Н. С. МАЛЬЦЕВА,
И. И. ЧУБУРКОВА, З. ШЕГЛОВСКИЙ

УДК 546.02:66.091

В последние годы большое внимание уделяется способам получения ядер, находящихся далеко от полосы стабильности. Некоторые представления о том, насколько далеко удалось продвинуться от линии стабильности и каковы принципиальные возможности дальнейшего синтеза изотопов, можно получить из рис. 1, где условно представлена карта известных изотопов. Черные точки соответствуют стабильным ядрам ($T_{1/2} \geq 10^{16}$ лет). Сплошная ломаная линия ограничивает области известных изотопов, полученных в различных ядерных реакциях. Сплошной плавной линией показаны формальные границы стабильности ($B_n = 0$, $B_p = 0$), полученные путем теоретических экстраполяций. Анализ различных способов получе-

ния нейтроноизбыточных и нейтронодефицитных изотопов был проведен в работах [1—5]. Из сравнения результатов этих работ видно, что в реакциях деления можно получать ядра с большим избытком нейтронов. Уже первые опыты по изучению массовых и зарядовых распределений осколков при делении U^{235} тепловыми нейтронами показали, что эта реакция может быть успешно использована для синтеза нейтроноизбыточных изотопов. Реакция имеет большое сечение, наиболее вероятная масса осколков соответствует нейтроноизбыточному изотопу, и дисперсия по массе относительно наиболее вероятного значения оказывается достаточно большой. Реакции деления тепловыми нейтронами, дейтонами и α -частицами могут