

NEWS

OF THE NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF THE REPUBLIC OF KAZAKHSTAN
PHYSICO-MATHEMATICAL SERIES

ISSN 1991-346X

Volume 2, Number 312 (2017), 48 – 52

M.Abishev¹, N. Kenzhebayev¹, S.Kenzhebayeva¹, A.Dzhanybekov¹

¹Kazakh National University named after Al-Farabi, Almaty, Kazakhstan
nurzat.kenzhebaev@gmail.com

CALCULATION OF ISOTOPIC COMPOSITION OF CATALYTIC MATERIAL UNDER RADIATION BY REACTOR NEUTRONS

Abstract. The purpose of this work is to calculate isotopic composition of the catalytic compound (hereinafter referred to as CC), irradiated with reactor neutrons, and comparison it with the older results. In the our previous works a stochastic methods was used to calculate the isotopic composition of the CC in the equilibrium state. In this paper we preferred to use a deterministic method that gives a more accurate result in calculating the concentration change. Also now the scheme of the cycle was extended, since beta decays of some lead isotopes that had not been taken into account before were taken into account. We also calculated the CC heat densities for several neutron fluxes in the range 10^{13} - 10^{18} $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. This made it clear at what neutron flux the energy release of the CC would be the most optimal.

Key words: Catalytic composition, burnup equation, Padé approximation, s-process.

М.Абишев¹, Н.Кенжебаев¹, С.Кенжебаева¹, А.Джанибеков¹

¹КазНУ им. аль-Фараби, физико-технический факультет, г. Алматы, Республика Казахстан

РАСЧЕТ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА КАТАЛИТИЧЕСКОГО МАТЕРИАЛА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ РЕАКТОРНЫМИ НЕЙТРОНАМИ

Аннотация. Целью данной работы является расчет концентрации изотопов каталитического состава (далее КС) при облучении состава реакторными нейтронами, и сравнение его с результатами предыдущих исследований. В предыдущих наших работах для расчета изотопного состава КС при равновесном состоянии был применен стохастический метод, но в этой работе мы предпочли применить детерминистический метод, который дает более точный результат при расчете изменений концентраций. Также схема замкнутого цикла была расширена, поскольку были учтены бета-распады некоторых изотопов свинца, которые ранее не учитывались. Также мы рассчитали плотности выделяемой энергии КС для нескольких значений потоков нейтронов в диапазоне 10^{13} - 10^{18} $\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Это дало возможность понять, при каком потоке нейтронов энерговыделение КС будет самым оптимальным.

Ключевые слова: каталитический состав, уравнение выгорания, аппроксимация Падэ, s-процесс.

Введение. Основной целью исследований каталитического состава является применение его в ядерных реакторах в качестве защиты от тепловых нейтронов и дополнительного источника энергии [1]. Поскольку изотопы каталитического состава не меняют свои концентрации при длительном облучении, то его срок эксплуатации будет дольше обычных конструктивных элементов. Энергия, выделяемая при превращении четырех нейтронов в одну альфа частицу, дает дополнительную энергию, что способствует увеличению КПД реактора.

В этой работе были проведены расчеты и моделирование с целью получения количественных данных, проясняющие более детально некоторые аспекты рассматриваемой нами задачи. Для этого заново были рассчитаны концентрации элементов каталитического состава, где предполагалось участие только восьми изотопов [2]. Далее была создано более расширенная модель состава, где в

реакциях участвуют пятнадцать изотопов. Поскольку концентрации изотопов состава сильно зависят от потока тепловых нейтронов, были получены результаты для нескольких уровней потока.

Для оценки энергии, выделяемой при облучении нейтронами, были сделаны расчеты по определению плотности тепла, испускаемого составом (heatdensity).

Основная часть. Выяснилось, что для расчета концентраций элементов лучше использовать детерминистический метод, чем метод Монте-Карло, поскольку стохастический метод не может обобщить поведение нескольких нейтронов на изменение концентрации элементов состава. Методом Монте-Карло удобно решать те задачи, которые определяют поток, размножение или функцию распределение нейтронов и т.д.

В этой работе для расчета концентрации изотопов использовался уравнение Бэйтмана или как часто называют *burnt equation* [4]:

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = -\lambda_i N_i(t) - \sigma_i \phi N_i(t) + \sum_{i \neq j} \lambda_j P_{j \rightarrow i} N_j(t) + \sum_{i \neq j} \sigma_i \phi Q_{j \rightarrow i} N_j(t), \quad (1)$$

где σ – сечение (n, g) реакций при энергии 0.025 эВ, λ – постоянная распада, ϕ – нейтронный поток, $P_{i \rightarrow j}, Q_{i \rightarrow j}$ – вероятности перехода от изотопа i к изотопу j при распадах и при захвате нейтрона.

Уравнение (1) можно написать в матричной форме:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{N}(t) = \mathbf{A} \mathbf{N}(t), \quad (2)$$

где \mathbf{N} – вектор концентраций изотопов $\mathbf{N}^T = (N_1, N_2, \dots, N_i)$, а \mathbf{A} – матрица выгорания (*burnup matrix*). Решением уравнения (2) является экспоненциальное уравнение:

$$\mathbf{N}(t) = \mathbf{N}(0) \exp(\mathbf{A}t). \quad (3)$$

Экспоненциальную матрицу $\exp(\mathbf{A}t)$ можно найти несколькими методами. В этой работе рассматривается метод *аппроксимации Паде* [3], который дает более точный результат, чем, например, метод разложения по ряду Тейлора [4]. Аппроксимация Паде для матричной экспоненциальной функции порядка $[p/q]$ определяется следующей формулой:

$$\exp(x) \approx \frac{N_{pq}(x)}{D_{pq}(x)}, \quad (4)$$

где,

$$N_{pq}(x) = \sum_{k=0}^p \frac{(p+q-k)! p!}{(p+q)! k! (p-k)!} x^k, \quad (5)$$

$$D_{pq}(x) = \sum_{k=0}^q \frac{(p+q-k)! p!}{(p+q)! k! (p-k)!} (-x)^k. \quad (6)$$

В равновесном состоянии выражение (2) должно равняться нулю:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{N}(t) = \mathbf{A} \mathbf{N}(t) = 0. \quad (7)$$

Собственное значение λ квадратной матрицы \mathbf{A} должно быть равно нулю. Найдя матрицу \mathbf{A} , т.е. решая систему линейных уравнений, находим концентрации элементов состава.

Есть и другой способ решения этой задачи: если в уравнении (2) время стремится к бесконечности ($t \rightarrow \infty$), то изначально заданный состав стремится к равновесному состоянию. В качестве начальной концентрации изотопов, когда $t = 0$, была взята природная смесь свинца (таб. 1).

Таблица 1 – Природный состав натурального свинца

Pb^{204}	1.4%
Pb^{206}	24.1%
Pb^{207}	22.1%
Pb^{208}	52.4%

Результаты расчетов. Для получения необходимых результатов была написана программа на языке C++ и были использованы ядерные данные из различных международных баз. Период полураспада и сечение поглощения нейтронов были взяты из оцененных дата файлов JEFF-3.1A, JEFF-3.2 и TENDL-2014 [5]. Программа в основном находит экспоненциальную матрицу $\exp(-At)$ методом аппроксимации Паде [6,7], которая дает всю необходимую информацию.

Результаты были получены для двух моделей: упрощенной модели (а) и расширенной модели (б).

(а). В предыдущих работах [1,2], в упрощенной модели, участвовали только восемь изотопов $Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208}, Pb^{209}, Bi^{209}, Bi^{210}, Po^{210}, Po^{211}$. В этой работе в упрощенную модель мы добавили еще два изотопа Pb^{204}, Pb^{205} поскольку они присутствуют в природной смеси свинца (таблица 1).

(б). В расширенной модели участвуют пятнадцать изотопов таллия, свинца, висмута и полония. Схема приведена ниже, в рис. 1:

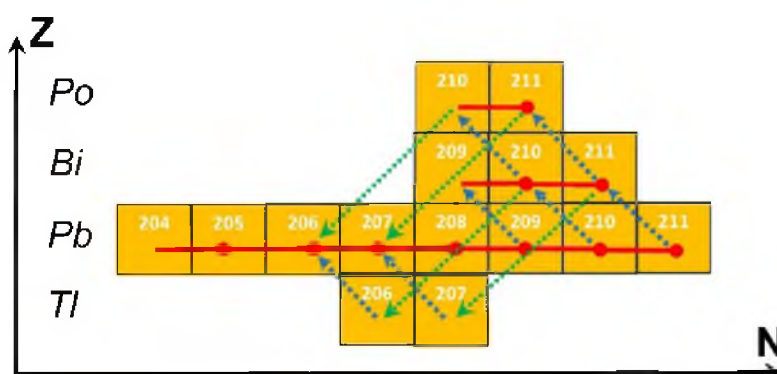


Рисунок 1 –Схема трансмутаций ядер в КС. Красные линии - это реакция радиационного захвата нейтрона, синие и зеленые линии - это альфа-распад и бета-распад соответственно.

В расширенной схеме добавлены все возможные каналы, взятые из базы данных ядерных реакций. Из рисунка видно, что весь цикл является замкнутым. Но надо иметь ввиду, что этот цикл будет замкнутым только при облучении тепловыми нейтронами, поскольку при энергии нейтронов выше 1 МэВ могут открыться другие каналы, которые приведут к неустойчивому состоянию.

Поскольку концентрация изотопов сильно зависит от потока нейтронов, результаты были получены для потоков нейтрона от 10^{13} до $10^{18} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$, а типичный нейтронный поток в современных реакторах лежит в диапазоне $5 \cdot 10^{13} - 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$.

Рисунок 2 показывает зависимость необходимого времени облучения природного свинца до достижения равновесного состояния состава в зависимости от нейтронного потока для расширенной модели.

Видно, что при нормальном нейтронном потоке 10^{14} состав придет к равновесному состоянию только через 60,000 лет. Концентрации изотопов Pb^{204}, Pb^{205} резко уменьшаются после ста секунд облучения, это понятно, поскольку никакие изотопы не превращаются в эти ядра.

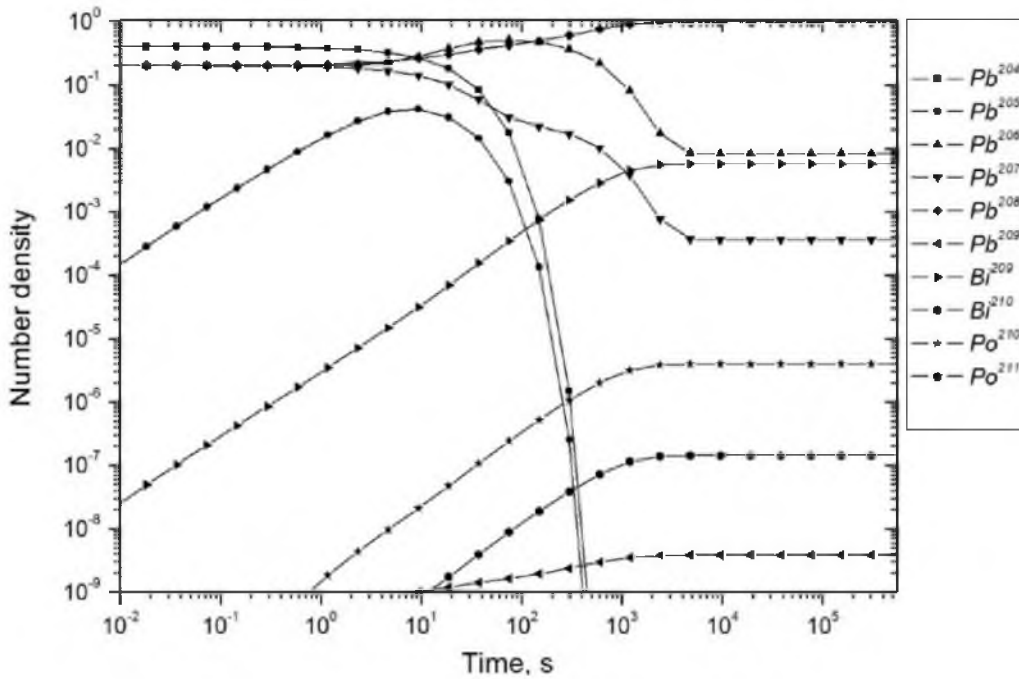


Рисунок 2 – Изменение концентрации изотопов в зависимости от времени при нейтронном потоке $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$

Конечно, если мы сможем задать начальную концентрацию смеси (который должен состоять из 15 изотопов) как в равновесном состоянии, то концентрация не будет меняться во времени с начала облучения нейтронами.

На рисунке 3 приведена процентная доля каждого изотопа в каталитическом составе, при котором возможно равновесное состояние.

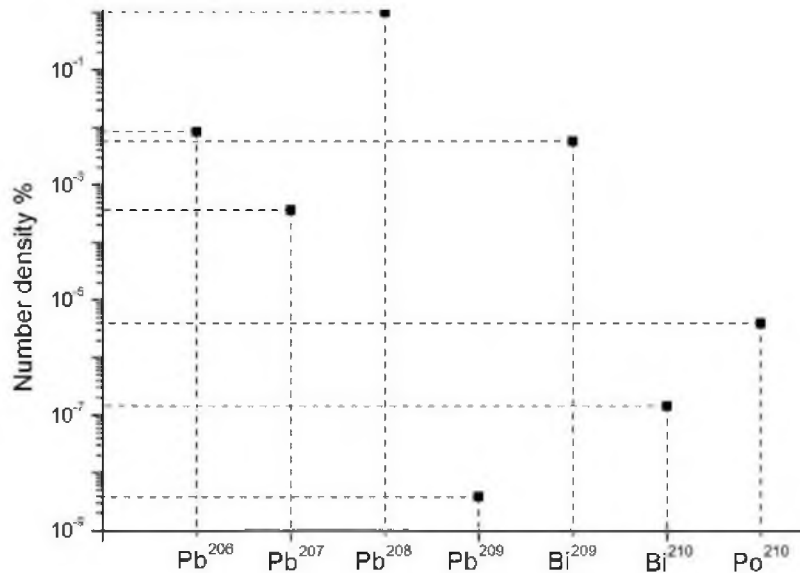


Рисунок 3 – Процентная доля изотопов КС при достижении равновесного состояния. Расчет был сделан с помощью детерминированного метода.

Заключение. В этой работе было получено время облучения, необходимое для перехода состава в равновесное состояние. Поскольку обогащение состава до равновесной концентрации очень дорогой процесс, было предложено в качестве начальной концентрации взять природную смесь свинца, который состоит из четырех изотопов Pb^{204} , Pb^{206} , Pb^{207} , Pb^{208} . Плотность энергии сос-

тава при облучении тепловыми нейтронами. При нормальном нейтронном потоке плотность энергии, выделяемой натуральном свинцом, очень мала по сравнению с урановым топливом даже в равновесном состоянии: энергия, выделяемая КС ниже 1 Вт/см³.

В следующих работах мы планируем использовать для расчетов потоки нейтронов термоядерного и импульсного реактора для получения более высокой энергии, где потоки нейтронов достигает до $10^{30} \text{ см}^{-1} \text{ с}^{-1}$.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] М.Абишев, Н.Кенжебаев, С.Кенжебаева, А.Джанибеков. Расчет прохождения нейтронов через каталитический состав (Pb, Bi, Po) с помощью программного комплекса MCNP. //Известия НАН РК. – 2016. – №3. – С. 5-11.
- [2] М.Абишев, М.Хасанов, Н.Кенжебаев. О циклической реакции с участием тепловых нейтронов. // Вестник НАН РК. – 2013. – № 6. – С. 12.
- [3] E.Burbridge, G.R.Burbridge, W.A.Fowler, F.Hoyle. Synthesis of the Elements in Stars. //Reviews of Modern Physics 29. – 1957. – №4. – С.547.
- [4] Maria Pusa. Rational Approximations to the Matrix Exponential in Burnup Calculations//Nuclear Science and Engineering. – 2011. – №16. – С.155-167.
- [5] Otto Schwerer. EXFOR Formats Description for Users. – IAEA Nuclear Data Section, 2014. P 3.
- [6] H. Bateman. Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radio-active Transformations. // Proc. Cambridge Phil. Soc. IS. – 1910. – №423. – С.12-19.
- [7] P. Parvaresh, M. Sohrabpour. // Design and testing of a neutron porosity probe using MCNP code. // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2004. – № 260. – PP 335-337.

REFERENCES

- [1] M.Abishev, N. Kenzhebayev, S.Kenzhebayeva, A.Dzhanybekov. Calculation of neutron passage through catalytic composition (Pb, Bi, Po) by MCNP program. *News of the NAS the RK*. 2016. 3. 5-11. (in Russ)
- [2] M.Abishev, M.Hasanov, N.Kenzhebayev. Cyclic reactions involving thermal neutrons. *Journal of National Academy of Sciences of Kazakhstan*. 2013. 6. 12-16.
- [3] E.Burbridge, G.R.Burbridge, W.A.Fowler, F.Hoyle. Synthesis of the Elements in Stars. *Reviews of Modern Physics*. 1957. 4. 547-554.
- [4] Maria Pusa. Rational Approximations to the Matrix Exponential in Burnup Calculations. *Nuclear Science and Engineering* 2011. 16. 155-167.
- [5] Otto Schwerer. EXFOR Formats Description for Users. *IAEA Nuclear Data Section*, 2014. 3-345.
- [6] H. Bateman. Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radio-active Transformations. *Proc. Cambridge Phil. Soc. IS*. 1910. 423. 12-19.
- [7] P. Parvaresh, M. Sohrabpour. Design and testing of a neutron porosity probe using MCNP code. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2004. 260. 335-337.

М.Абишев, Н. Кенжебаев, С.Кенжебаева, А.Джанибеков

Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан

РЕАКТОРЛЫҚ НЕЙТРОНДАРМЕН ӘСЕРЛЕСУДЕГІ КАТАЛИЗДЫҚ ҚОСПАНЫҢ ИЗОТОПТЫҚ ҚҰРАМЫН ЖӘНЕ ЭНЕРГИЯ ШЫҒАРУЫН ЕСЕПТЕУ

Аннотация. Жұмыстың мақсаты реакторлық нейтрондармен әсерлесудегі катализдық қоспадан (ары қарай КҚ) шығатын энергияны және энергия тығыздығын есептеу мен ВВЭР және КВВР коммерциялық реакторлардағы уранның бөлінуінен шығатын энергиямен салыстыру. Алдыңғы жұмыстарымызда КҚ-ның калыпты жағдайдағы изотоптық құрамын есептеу үшін стохастикалық әдіс қолданылған болатын, ал бұл жұмыста біз детерминистік әдіс қолданғанды жөн көрдік, өйткені бұл әдіс дәлірек нәтиже береді. Сонымен қатар тұйық цикл кескіні ұлғайтылды, өйткені алдыңғы жұмыста ескерілмеген кейбір қорғасын изотоптарының бета-ыдырауға ұшырауы ескерілді. Сонымен қатар біз КҚ-ның энергия тығыздығын бірнеше нейтрондар ағыны үшін есептедік $10^{13}-10^{18} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$. Бұл есептеу КҚ-ның энергия шығаруы қандай нейтрон ағынында ең оптималды болатынын түсінуге көмектесті.

Түйін сөздер: катализдік қоспа, жанып кету тенденуі, Падэ жуықтауы, s-процесі.