

УДК 539.1.09

## НУКЛИДНАЯ КИНЕТИКА С УЧАСТИЕМ ЯДЕР ГАФНИЯ И ГАДОЛИНИЯ, НАХОДЯЩИХСЯ В ДОЛГОЖИВУЩИХ ИЗОМЕРНЫХ СОСТОЯНИЯХ

И. В. Шаманин<sup>1</sup>, М. А. Казарян<sup>2</sup>

*Показана возможность накопления избыточной энергии в материалах – поглотителях нейтронов за счет перехода ядер атомов материалов в изомерные состояния при радиационных захватах нейтронов ядрами стабильного изотопа с меньшей массой. Получено соотношение, позволяющее проводить оценки параметров нуклидной кинетики – процессов захвата нейтронов ядрами, образования и распада изомерных состояний ядер.*

**Ключевые слова:** нуклидная кинетика, ядра гафния, гадолиний, нейтроны, изотопический состав,  $\gamma$ -кванты, метастабильные ядра, избыточная энергия.

*Состояние вопроса.* Нуклидная кинетика – совокупность ядерных превращений, протекающих в веществе под действием потока нейтронов. Дифференциальные и интегральные характеристики нуклидной кинетики определяют изотопный состав вещества, которое находилось в поле нейтронов. Важнейшее на сегодня приложение результатов исследований нуклидной кинетики – это физика и техника ядерных реакторов [1, 2]. В частности, их ядерная безопасность.

В ядерной технике существует проблема, связанная с накоплением так называемой энергии Вигнера в графитовых конструкциях реакторных установок. Особенностью графита является накопление внутренней энергии при облучении нейтронами. При столкновениях быстрых нейтронов с атомами углерода в графите часть энергии замедляющихся нейтронов передается атомам и, в конце концов, выделяется в виде тепла практически мгновенно, другая часть энергии вызывает смещение атомов из их равновесного положения, деформацию кристаллической решетки графита, что сопровождается увеличением и накоплением внутренней энергии. Эта избыточная энергия

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 634050 Россия, Томск, пр. Ленина, 30; e-mail: shiva@tpu.ru.

<sup>2</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kazar@sci.lebedev.ru.

называется энергией Вигнера. Таким образом, в графите некоторых типов реакторных установок может быть аккумулировано значительное количество скрытой энергии. Эта энергия может быть высвобождена путем нагрева облученного графита до температуры, значительно превышающей температуру, при которой графит “работал”, находясь под действием потока нейтронов. Так, в 1952 году во время планового останова реактора 1-го блока британской АЭС “Виндскэйл Пайл” произошло спонтанное высвобождение энергии Вигнера. Это показало необходимость разработки и реализации на практике программы осуществления регулярных контрольных сбросов этой энергии. Спустя 5 лет на этом же блоке во время одного из таких “запланированных” сбросов энергии, произошла одна из крупнейших катастроф ядерного века. Температура активной зоны реактора достигла 1200 °С и перегрелась настолько, что возник пожар. В результате было повреждено около четверти активной зоны, а в окружающую среду поступило большое количество радиоактивности. До настоящего времени демонтаж этого энергоблока не завершен [3].

Мы обратили внимание на возможность накопления и неконтролируемого высвобождения избыточной энергии в конструкционных материалах реакторных установок по другой причине, которая на сегодня еще не обсуждалась. Это – накопление избыточной энергии в материалах систем управления и защиты реакторных установок. Основное назначение таких материалов состоит в поглощении нейтронов, что необходимо для компенсации избыточных запасов реактивности и для управления мощностью реакторных установок при их штатной эксплуатации. В состав материалов входят атомы, ядра которых имеют большие сечения поглощения нейтронов в тех или иных интервалах кинетической энергии нейтронов. Например, ядра гафния или гадолиния.

*Теоретические оценки.* Рассмотрим поглощающий нейтроны материал, в котором под действием нейтронов протекают процессы: ядро  $X + \text{нейтрон} \rightarrow \text{ядро } Y$  в возбужденном состоянии  $\rightarrow \text{ядро } Y$  в изомерном (метастабильном) состоянии  $\rightarrow \text{ядро } Z$  в основном состоянии. Например:  $\text{Gd}^{155} + n \rightarrow \text{Gd}^{156*} \rightarrow \text{Gd}^{156m} \rightarrow \text{Gd}^{156}$ . При этом ядра  $Y$  и  $Z$  тоже испытывают радиационный захват, то есть “расстреливаются”. Изомер  $\text{Gd}^{156m}$  имеет период полураспада 1.3 мкс и распадается с испусканием гамма-кванта с энергией 2.1376 МэВ. В табл. 1 приведены параметры ядер двух изотопов гадолиния, находящихся в основном и изомерном состояниях.

Т а б л и ц а 1

Параметры ядер изотопов гадолиния [4]

Ядро	Период полураспада	Содержание в естественной смеси изотопов	Спин и четность ядра
$^{155}\text{Gd}$	стабилен	14.80%	3/2-
$^{155m}\text{Gd}$	31.97 мс		11/2-
$^{156}\text{Gd}$	стабилен	20.47%	0+
$^{156m}\text{Gd}$	1.3 мкс		7-

Для проведения оценок возможности накопления энергии в изомерных состояниях ядер за счет радиационного захвата нейтронов в таком материале необходимо решить систему дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = -\sigma_1 x \Phi, \\ \frac{dy}{dt} = \sigma_1 x \Phi - \sigma_2 y \Phi - \lambda y, \\ \frac{dz}{dt} = -\sigma_3 z \Phi + \lambda y. \end{cases}$$

Здесь  $x(t)$ ,  $y(t)$ ,  $z(t)$  – концентрации ядер,  $\Phi$  – плотность потока нейтронов,  $\sigma$  – микросечение радиационного захвата нейтронов,  $\lambda$  – постоянная распада ядер-изомеров. Решение системы уравнений дает формулу для определения возможности достижения условия, при котором концентрация ядер в изомерном состоянии  $y(t)$  становится больше либо равной концентрации ядер в основном состоянии  $z(t)$  при воздействии нейтронов с плотностью потока  $\Phi$  до  $10^{16} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ :

$$\frac{y(t)}{z(t)} \approx \frac{\lambda t - (\sigma_1 - \sigma_2)\Phi t}{S\lambda},$$

где

$$S = \frac{1 - (\lambda + 2\sigma_3\Phi)t}{\lambda + \sigma_3\Phi} - \frac{1 - (\sigma_1 - \sigma_2 + 2\sigma_3)\Phi t}{(\sigma_1 - \sigma_2 + \sigma_3)\Phi} + \frac{(\lambda - (\sigma_1 - \sigma_2)\Phi)(1 - \sigma_3\Phi t)}{(\sigma_1 - \sigma_2 + \sigma_3)\Phi(\lambda + \sigma_3\Phi)}.$$

При воздействии нейтронов с плотностью потока  $\Phi = 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  на поглотитель нейтронов, образованный ядрами гадолиния, условие  $\frac{y(t)}{z(t)} \approx 1$  достигается за несколько десятков секунд. Возможно накопление избыточной энергии.

Метастабильные ядра гафния-178m2 образуются из ядер гафния-178 (стабильный изотоп, содержание в естественной смеси – 27.28%). По современным данным [4] энергия излучаемого гамма-кванта 2.446 МэВ при переходе в основное состояние и период полураспада 31.0 года соответствуют метастабильным ядрам гафния-178m2. Для метастабильных ядер гафния-178m3 (более высокий уровень энергии) эти параметры другие – 2.534 МэВ и 68 мкс, для метастабильных ядер гафния-178m1 – 1.147 МэВ и 4 с.

Метастабильные ядра гафния-178m2 образуются не только при неупругом рассеянии быстрых нейтронов на ядрах гафния-178, но и при радиационном захвате нейтронов ядрами гафния-177 (стабильный изотоп, содержание в естественной смеси – 18.6%). В результате захвата нейтрона образуется составное ядро гафния-178\* в сильно возбужденном состоянии. Энергия возбуждения равна сумме энергии связи нейтрона в ядре и кинетической энергии нейтрона. Время жизни составного ядра в возбужденном состоянии составляет не более  $10^{-13}$  с, возбуждение снимается испусканием высокоэнергетического гамма-кванта, ядро переходит либо в основное, либо в одно из метастабильных состояний.

Сечение неупругого рассеяния нейтронов на ядрах гафния-178 не превышает 2.5 барн в широком интервале энергий нейтронов, что приводит к невозможности накопления значительного количества энергии в изомерных состояниях только за счет неупругих рассеяний даже при плотностях потока нейтронов  $\Phi \sim 10^{14}$  см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>. Условие  $\frac{y(t)}{z(t)} \geq 1$  только за счет неупругих рассеяний будет достигнуто через очень большой промежуток времени. Доля ядер гафния-178, находящихся в изомерном состоянии m2, увеличивается, если учесть их образование за счет радиационного захвата нейтронов ядрами гафния-177. Сечение данного процесса составляет сотни барн для тепловых нейтронов и превышает 1 барн для нейтронов с энергией до 100 эВ. Условие  $\frac{y(t)}{z(t)} \geq 1$  с учетом радиационных захватов нейтронов может быть достигнуто через значительно меньший промежуток времени, но если учесть радиационный захват нейтронов ядрами гафния-178 и ядрами его изомеров (сечение процесса для тепловых нейтронов составляет десятки барн), в результате которого все эти ядра исчезают, то условие  $\frac{y(t)}{z(t)} \geq 1$  может быть не достигнуто никогда.

*Заключение.* Накопление избыточной энергии в материалах систем управления и защиты реакторных установок за счет перехода ядер атомов материалов в изомерные состояния при радиационных захватах нейтронов ядрами стабильного изотопа с меньшей массой возможно. При проектировании систем управления и защиты реакторных

установок, в частности, при выборе конструкционных материалов, необходимо предусмотреть возможность накопления и неконтролируемого высвобождения избыточной энергии в них.

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] И. В. Шаманин, С. В. Беденко, А. О. Павлюк, В. А. Лызко, Известия ТПУ. Энергетика **317**(4), 25 (2010).
- [2] Е. Ф. Селезнев, А. А. Белов, Известия Российской академии наук. Энергетика, № 3, 27 (2010).
- [3] *INES Руководство для пользователей международной шкалы ядерных и радиологических событий* (Вена, МАГАТЭ, 2010), 235 с.
- [4] G. Audi et al., Nuclear Physics A **624**, 1 (1997).

Поступила в редакцию 24 апреля 2017 г.