

ISOL靶—源中铀靶的放射性活度研究*

闫芳^{1,1)} 崔保群¹ 舒能川¹ 刘廷进¹ 吴海成¹ 樊胜^{1,2}

1 (中国原子能科学研究院 北京 102413)

2 (上海大学射线研究所 上海 201800)

摘要 用3种方法计算在线同位素分离器(ISOL)靶—源中铀靶在100MeV, 200 μ A强流质子束照射下产生的放射性核素活度及 γ 射线强度随时间的变化,为铀靶的设计、更换及后期处理提供一定的设计依据.

关键词 ISOL 靶材料 γ 射线强度

1 引言

在串列升级工程北京放射性核素装置方案中,高温、强放射性靶—源是ISOL项目的关键技术之一^[1;2].整个装置对靶材料的要求很高:靶材料必须能与初级束发生核反应产生所需的放射性核素;应具有较大的反应截面和较高的产生效率;应耐高温,具备低蒸气压特性;核反应产生的放射性核素则应具有高蒸气压、易扩散的特征,而且不能与靶材料发生化学反应生成难挥发物质;应避免生成寿命放射性核素,以免为靶的后处理造成困难^[2].所以在初步选定靶材料后,计算强流照射下靶中产生的放射性核素及冷却指定时间后靶中残留放射性核素活度及 γ 射线强度随时间的变化是很有必要的,以便为靶的设计、更换及后期处理提供一定的设计依据.

铀通过裂变可以同时生成多种放射性核素,其本身又难熔,采用铀作靶材料可以大大降低对靶材料制备的要求.但铀用作靶材料比较特殊:首先铀是锕系元素,属于裂变核,在100MeV, 200 μ A强流质子束的轰击下会产生不少长寿命放射性核素;其次由于铀的敏感性,国际上公开的质子与铀发生反应的数据很少,并且国际上用于加速器材料的核素一般都在 $Z \leq 84$ 的范围内^[3],所以利用评价过的可靠数据准确地描述铀靶与100MeV, 200 μ A质子束反应的过程比较困难.

本工作选用理论模型及系统学等3种方法计算铀靶在质子束照射下产生的放射性核素活度及 γ 射线强度和能谱,并将结果进行比较.

2 应用程序简介

LAHET程序系统(LCS)可以模拟质子在厚靶中的运输过程, CBURN程序用于计算高流强、中高能加速器靶中放射性核素的精确分布, LCS和CBURN程序比较详细的介绍见文献[3].

目前除LCS外可用于该计算的程序有GEANT4^[4], FLUKA^[5]和SHIELD^[6]及系统学方法. GEANT4主要的问题在于它更新得很快,内核没有经过长期广泛的实践检验; FLUKA主要是它的源代码不公开,给实际的应用带来很大的制约. SHIELD程序虽然是基于理论模型的计算,但由于它考虑过程很全面,且其开放式结构有利于修改和发展,同时还采用了不少基于实验的数据库,程序运行快,且界面友好,在缺乏实验数据的情况下其计算结果还是有一定的参考意义.

CYF是一个用系统学方法描述裂变产额的计算程序,适用于复合核质量 $A_F=230-252$ 、电荷数 $Z_F=90-98$,激发能小于200MeV的裂变核,可以给出裂变产物核的独立产额、累计产额及相应的误差^[7].

2006-09-12 收稿

* 国家自然科学基金(10405035)和中国原子能科学研究院核物理所所长基金资助

1) E-mail: yf991@mails.ciae.ac.cn

2) 关遐令, 在线同位素分离器和超导重离子直线加速器物理设计, 中国原子能科学研究院, 1996, 1-2

3) 核数据中心, CBURN说明书, 中国原子能科学研究院

核反应网络方程(ReacNetwork)可用来描述核反应场所中核素丰度随时间的变化,根据核素丰度可计算得到 γ 射线的辐射强度.相关文献可参考舒能川的博士论文^[8].

本工作采用以下方法计算铀靶中的放射性:

(1) 利用LCS的理论模型RAL结合CBURN程序计算铀靶在质子束照射下产生的放射性核素活度及 γ 射线的辐射强度和能谱;

(2) 基于SHIELD程序计算质子束照射铀靶240h冷却32h后出射不同射线的辐射强度及 γ 射线能谱;

(3) 利用CYF+ReacNetwork计算铀靶在质子束照射后产生的 γ 射线辐射强度.

3 计算方法

3.1 利用SHIELD程序计算的理论基础

SHIELD程序可算出质子束在厚靶中输运(包括裂变)产生各种放射性核素的生成率,即每个质子在靶中产生各种放射性核素的几率或个数.要计算质子束照射铀靶240h冷却32h后靶中辐射各种射线的放射性强度,需要在SHIELD程序的计算基础上,考虑每种放射性核素在质子束照射下不断地生成,同时不断向下一代子体衰变,直至衰变到稳定核素或长寿命放射性核素的过程.

放射性核素经10个半衰期以上时间的衰变后,剩余的核素数目已经很少,可忽略不计.我们考虑的是停止照射后冷却32h的射线强度,从整个衰变链的顶端开始,衰变链中连续几个核素的半衰期在3h内的 γ 衰变就可以认为直接生成了下一代子体.

100MeV, 200 μ A质子束照射铀靶,入射强度是固定的,则对于每一种核素来说单位时间内产生该种放射性核素的原子核数目,即产生率 P 也是一定的.另一方面,生成的放射性核也在衰变,其衰变常量为 λ .令 $N(t)$ 代表照射开始后 t 时刻生成任意一种放射性原子核的数目,则 N 的变化率为^[9]

$$\frac{dN}{dt} = P - \lambda N, \quad (1)$$

$$\lambda = \ln 2 / T, \quad (T \text{ 为半衰期}) \quad (2)$$

$$P = N_0 \times 200 \times 10^{-6} / (10^6 \times 1.6 \times 10^{-19}),$$

其中 N_0 是 10^6 个质子入射生成任意一种剩余核的数目,由SHIELD程序计算给出.

利用初始条件($t=0$ 时, $N=0$),可得生成该种放

射性原子核数目随时间的变化:

$$N(t) = \frac{P}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}). \quad (3)$$

计算过程中要考虑母体及各代子体本身照射240h,冷却32h后的放射性,还要考虑母体及各代子体向下一代子体衰变和下一代子体增加的数目所产生的放射性.每一条衰变链虽然都很长,但从衰变链顶端开始半衰期连续3h以下的核素比较多,只需考虑它们衰变成子体的放射性.这样近似后,对整个衰变链计算到两代子体的递次衰变就足够了.

对于只有一代子体的衰变链,每种核素射线强度的计算可分两部分:

第一部分,240h内母体边按公式(3)生成,边向子体衰变,用 $N_2(t)$ 代表照射开始后 t 时刻母体向下衰变所产生子体的放射性原子核数目,则利用公式(3), N_2 的变化率为

$$\frac{dN_2}{dt} = N\lambda_1 - N_2\lambda_2. \quad (4)$$

利用初始条件($t=0$ 时, $N=0$),可得240h内母体共生成子体数目随时间的变化:

$$N_2(t) = \frac{P}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t}) + \frac{P}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (5)$$

则随后冷却的32h内这部分子体随时间的变化服从指数衰减规律:

$$N_2 = N_2(t_1) e^{-\lambda_2 t}, \quad t_1 = 240\text{h}. \quad (6)$$

而240h内总共生成的子体一部分来自于母体的衰变,另一部分由质子束照射生成(可利用公式(3)计算得出),后者生成的子体也遵循指数衰减规律.

第二部分,母体经240h照射后还剩余的量(可由公式(3)求出),即 $N(t_1)$ 在余下的32h内不断向子体衰变,则子体的放射性原子核数目 $N_2(t)$ 随时间的变化为

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N(t_1) (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}). \quad (7)$$

将两部分各核素的原子核数目分别累加,并根据以下公式即得每种核素的放射性强度:

$$I = \lambda N_{\text{tot}} k, \quad (8)$$

其中 N_{tot} 是各种核素冷却32h后的总数, k 是每种核素衰变放出相应射线的百分比.

两代子体衰变与一代子体衰变的情况相类似,母体在240h内向子体衰变,子体再向下一代子体衰变,

则第二代子体的原子核数目为

$$N_3 = \frac{p}{\lambda_3} + \frac{p\lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_1)} e^{-\lambda_1 t} - \frac{p\lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} e^{-\lambda_2 t} - \frac{p\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_3(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_1)} e^{-\lambda_3 t}. \quad (9)$$

母体在停止照射后剩余的原子核数目衰变到第二代子体, 则

$$N_3(t) = N(t_1) (h_1 e^{-\lambda_1 t} + h_2 e^{-\lambda_2 t} + h_3 e^{-\lambda_3 t}), \quad (10)$$

$$\text{其中 } h_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)}, \quad h_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)}, \\ h_3 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)}.$$

最后将各个衰变链中 α , β , γ 射线的强度分别累加可得 100MeV, 200 μ A 质子束照射铀靶产生放射性核素的射线强度.

3.2 利用 CYF+ReacNetwork 计算的理论基础

利用 CYF 程序可计算出独立产额 $Y(Z, A)$, 一般每次核裂变产生两个碎块, 3 个以上碎块产生的几率很小, 可以近似地不考虑, 所以有

$$\sum_{Z, A} Y(Z, A) \approx 2. \quad (11)$$

对于质子入射薄靶, 由独立产额与对应裂变截面的乘积可得靶中剩余核的生成截面.

铀靶的计算基于以下几个近似和假定:

(1) 考虑一次反应过程, 认为质子持续照射每次生成的核素是一样的;

(2) 不考虑入射粒子与反应生成核的反应;

(3) 不考虑生成核与其他核的反应.

因为铀靶中生成核的数量相比于入射束流很少, 与其他核反应生成的粒子更少, 不影响靶物质的成分, 所以上述假设是合理的. 利用 SRIM^[10] 程序计算 100MeV 质子在 ²³⁸U 中的最大射程为 0.884cm, 所以用 177 个厚为 50 μ m 的薄靶片就可以将质子全部阻挡在铀靶内. 本工作中铀靶厚度为 $L=0.884$ cm, 直径为 $\phi=3$ cm.

1999 年 A.V.IGNATYUK 给出 0—150MeV 质子入射 ²³⁸U 的裂变截面, 文献 [11] 对 IGNATYUK 的数据做了进一步的改进, 本工作采用改进后的裂变截面数据, 对相应能量下的裂变产额采用 CYF 程序计算.

文献 [11] 给出的裂变截面数据有 63 个, 则第 n 个

薄靶片中生成的粒子数目

$$N(n, Z, A) = INY(E_{in}, Z, A)\sigma(E_{in}), \quad (12)$$

其中 $Y(E_{in}, Z, A)$ 是能量为 E_{in} 的质子入射铀靶的裂变产额, $\sigma(E_{in})$ 是相应入射能量的裂变截面, I, N 分别是束流强度和每个薄片中的靶核数.

将 $N(n, Z, A)$ 输入网络方程可得第 n 个薄靶片中的 γ 射线强度 $I(n, t_c)$ 和能谱 $S(n, E_\gamma, t_c)$ 随冷却时间 t_c 的变化, 则 0—150MeV 所有能量点下 γ 射线强度及能谱在同一冷却时间下的近似值 I 和 S 为

$$I = \int_1^\infty I(n, t_c) dn, \quad S = \int_1^\infty S(n, E_\gamma, t_c) dn. \quad (13)$$

其中文献 [12] 中其余能量点的反应截面由最小二乘法拟和得到.

对每一个冷却时间点进行同样的计算, 最终可得总射线强度 $I(t_c)$ 随冷却时间的变化.

4 计算结果及分析

4.1 LCS 理论模型结合 CBURN 程序的计算结果

图 1 是铀靶中 γ 射线强度随冷却时间的变化, LCS+CBURN 的计算结果冷却 32h 后为 $3.5 \times 10^{13}/s$, 但照射 240h 冷却前却高达 $4.8 \times 10^{14}/s$, 可见质子照射铀靶产生的短寿命放射性核素很多, 且衰变很快, 图 2 是铀靶中 γ 谱随冷却时间的变化.

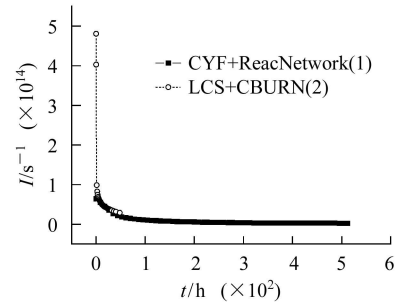


图 1 铀靶中 γ 射线强度随冷却时间的变化

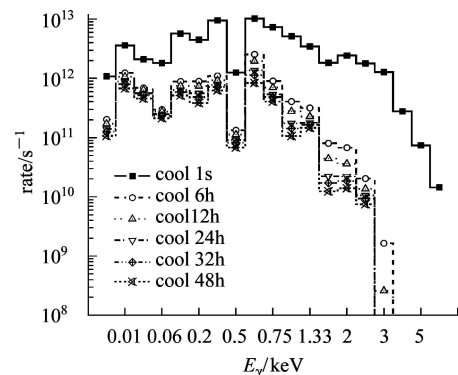


图 2 铀靶中 γ 谱随冷却时间的变化

质子照射铀靶产生的长寿命放射性核素较多,但是冷却32h后活度大于1Ci的核素却不多,分别有 In^{115} , Te^{129*} , I^{131} , Cs^{136} , Ce^{141} 和 Sm^{151} ,其活度依次为43.3, 1.21, 30.6, 5.18, 8.78和1.73Ci,其中 I^{131} 高达30.6Ci,这是靶后期处理的难题,铀靶中 H^3 活度为 $6.33 \times 10^{-2}\text{Ci}$.

4.2 基于SHIELD程序的计算结果

SHIELD程序给出100MeV质子与厚靶相互作用产生的剩余核数目,蒙卡统计数目 1×10^6 ,基于此进一步计算照射240h冷却32h后靶材料的放射性强度.表1是铀靶中不同出射粒子总的放射性强度, α 射线能量在4—5MeV之间.图3是SHIELD程序计算的铀靶的 γ 射线能谱.

表1 冷却32h后铀靶中不同出射粒子总的放射性强度

放射粒子种类	γ 射线	β 射线	α 射线
总强度(10^{13}s^{-1})	2.4	2.5	3.1×10^{-4}

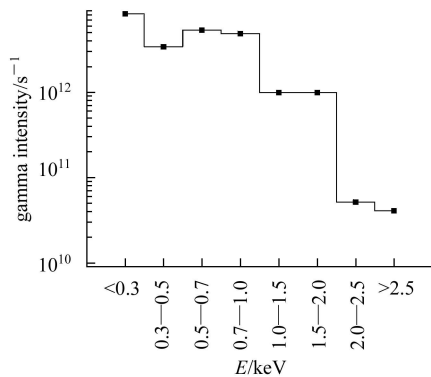


图3 铀靶 γ 射线能谱

4.3 CYF+ReacNetwork的计算结果

为简化计算,用 ^{238}U 代替天然铀,利用系统学公

式CYF+ReacNetwork程序计算100MeV, 200 μA 强流质子束照射下产生 γ 射线的辐射强度.

质子入射铀靶所产生的放射性核素多数来自裂变反应,其他反应机制产生的放射性核素多为铀附近的核素,多放射 α 粒子,不是我们关心的主要内容.为进一步简化,用裂变后的剩余核数据代替质子入射铀靶产生的核素数据进行计算. γ 射线强度随冷却时间的变化见图1实心点所示,其中冷却32h后 γ 射线强度为 $2.87 \times 10^{13}/\text{s}$.

CYF+ReacNetwork程序没有考虑散裂过程,散裂过程产生的多为短寿命放射性核素,所以短时间的冷却范围内,给出的结果有数量级的差别.

5 结论

利用LCS理论模型RAL结合CBURN给出的计算结果可见,照射240h后, γ 射线的辐射强度为 $4.8 \times 10^{14}/\text{s}$,但冷却32h后强度就降为 $3.5 \times 10^{13}/\text{s}$,可见质子束照射铀靶产生的短寿命放射性核素很多,衰变很快.

SHIELD程序给出铀靶照射240h,冷却32h γ 射线辐射强度为 $2.4 \times 10^{13}/\text{s}$,系统学方法CYF+ReacNetwork程序计算的结果为 $2.87 \times 10^{13}/\text{s}$,与LCS理论模型RAL结合CBURN给出的计算结果相差不大.

3种计算方法给出的铀靶中 γ 射线辐射强度的结果,在照射240h,冷却32h这一点上符合得都不错,虽然是基于理论模型,给出的都是估计值,但是在目前缺乏数据的情况下对工程的设计具有一定的参考意义.

作者感谢中国原子能科学研究所的唐洪庆老师、刘萍老师对本项工作给予的指导和帮助.

参考文献(References)

- 1 CUI Bao-Qun. Investigation of Radioactive ray Production and Relative Techniques. Doctor Paper, China Institute of Atomic Energy, 2004 (in Chinese)
(崔保群. 放射性核束的产生及相关物理与技术问题研究. 博士论文, 中国原子能科学研究所, 2004)
- 2 ZHANG Yan et al. Atomic Energy Science and Technology, 1998, **32**(1): 38—42 (in Chinese)
(张焱等. 原子能科学技术, 1998, **32**(1): 38—42)
- 3 YAN Fang et al. Atomic Energy Science and Technology in press (in Chinese)
(闫芳等. ISOL靶-源中一些靶材料的放射性活度研究. 原子能科学技术, 待发表)

4 <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>

5 <http://www.fluka.org/>

6 Sobolevsky N. SHIELD User's Manual Version 1996. hadr.0. Russia: Institute for Nuclear Research of Russian Academy of Science, 1998

7 Arthur C. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1988, **39**: 1—156

8 SHU Neng-Chuan. The Astrophysical Reaction Rates for $^{18}\text{F}(\text{p}, \alpha)^{15}\text{O}$ 和 $^{18}\text{F}(\text{p}, \gamma)^{19}\text{Ne}$ and Reaction Network. Doctor Paper, China Institute of Atomic Energy, 2003 (in Chinese)

(舒能川. $^{18}\text{F}(\text{p}, \alpha)^{15}\text{O}$ 和 $^{18}\text{F}(\text{p}, \gamma)^{19}\text{Ne}$ 的天体核反应率和核反应网络方程. 博士论文, 中国原子能科学研究所, 2003)

- 9 LU Xi-Ting. Atomic Nuclear Physics. Beijing: Atomic Energy Press, 2001 (in Chinese)
(卢希庭. 原子核物理. 北京: 原子能出版社, 2001)
- 10 <http://www.srim.org/>
- 11 YU Hong-Wei. Investigation of Middle Energy Fission Nuclear Reaction Calculation Method. Doctor Paper, China Institute of Atomic Energy, 2004 (in Chinese)
(于宏伟. 中能裂变核反应计算方法研究核²³⁸U中能中子和质子诱发核反应数据研究. 博士论文, 中国原子能科学研究院, 2004)

Investigation of Radioactivity of Uranium Target in Target-Source of ISOL^{*}

YAN Fang^{1,1)} CUI Bao-Qun¹ SHU Neng-Chuan¹ LIU Ting-Jin¹ WU Hai-Cheng¹ FAN Sheng^{1,2}

¹ (China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

² (Applied Radiation Institute, Shanghai University, Shanghai 201800, China)

Abstract The variety of radioactivity and gamma intensity with time in uranium target of ISOL target-source system under irradiation by 100MeV, 200 μ A high intensity proton beams has been calculated by using three methods, and the results will provide some dosimetric reference for the design, exchange and disposal of target.

Key words ISOL, target material, γ ray intensity

Received 12 September 2006

^{*} Supported by NSFC (10405035) and Nuclear Physics Dept. Director Fund of CIAE

1) E-mail: yf991@mails.ciae.ac.cn