

核爆炸产物放射性衰变过程的研究*

沈姚崧^{1,2)} 刘成安²⁾

1) (中国工程物理研究院北京研究生部 北京 100088)

2) (北京应用物理与计算数学研究所 北京 100088)

摘要 核爆炸后产物放射性和毒性及其随时间的变化是有关安全保障和环境保护的主要问题. 利用新开发的数据库和程序对该问题进行了详细的理论研究, 给出了裂变产物的放射性活度、生物潜在危害因子和能量沉积等量的演化情况, 列出了主要放射性核的贡献, 还分析了由于诱导反应在土壤和岩石中产生的放射性同位素的变化.

关键词 放射性 裂变产物 生物潜在危害因子 能量沉积

分类号 O571.5

1 引言

核爆炸在释放巨大能量的同时也产生了上千种放射性物质, 对这些核的放射性演化过程的研究是放射性安全保障和环境保护中最重要的环节. 传统的理论研究一般采用近似的方法, 即构成几条主要的衰变链, 利用 Betaman 方法对这些链进行计算^[1]. 即使这样, 由于中子和光子截面数据库的限制, 对爆炸后的初始核密度计算还是不够精确.

为了系统精确的研究上千种放射性核的性质, 本小组利用北京应用物理和计算数学研究所在核计算经验、核数据库、计算机等方面的优势, 开发了新的计算程序(ADVBISSON). 该程序包括: 一个 265 个核的中子截面库; 一个包含全部核素的光子截面库; 一个约 500 个核的衰变数据库; 一个包含大部分裂变核的裂变产额库. 利用该程序和数据库对爆炸后产物的放射性演化过程进行了系统的、完整的计算分析.

2 理论方法

首先从普遍的中子- γ 耦合输运方程出发

$$\Omega \cdot \nabla \Phi(r, E) + \Sigma_t \Phi(r, E) = S_{\text{source}}(r, E), \quad (1)$$

式中, $\Phi(r, E)$ 为中子(或 γ) 通量, Σ_t 为中子(或 γ) 总截面, $S_{\text{source}}(r, E)$ 是源项, 即

$$S_{\text{source}} = S_f + S_s + S_q,$$

其中 S_f 为裂变源, S_s 为散射源, S_q 为外源.

从方程(1)解出中子(或 γ) 通量, 然后进行核密度(燃烧)计算, 由于各种中子反应和核本身的衰变, 所以燃烧方程应写成^[2]

$$\frac{\partial N_i(r, t)}{\partial t} = \sum_k \int dE \sigma^{k \rightarrow i}(E) N_k(r, t) \Phi(r, E, t) - \int dE \sigma_a^i(E) N_i(r, t) \Phi(r, E, t) + \sum_j f_{j \rightarrow i} \lambda_{j \rightarrow i} N_j(r, t) - \lambda_i N_i(r, t), \quad (2)$$

式中, $N_i(r, t)$ 为第 i 种核在 r 位置 t 时刻的密度, $\sigma^{k \rightarrow i}(E)$ 是能量为 E 的中子与 k 种核作用生成 i 种核的微分截面, $\sigma_a^i(E)$ 为第 i 种核吸收能量为 E 的中子截面, $f_{j \rightarrow i}$ 是第 j 种核衰变产生第 i 种核的衰变分支比, $\lambda_{j \rightarrow i}$ 为第 j 种核衰变产生第 i 种核的衰变常数, λ_i 为第 i 种核的衰变常数. 方程(2)可写成下列矩阵形式

$$\frac{dN(r, t)}{dt} = AN(r, t). \quad (3)$$

矩阵 A 包含了所有的同位素核, 它的阶数可

* 1997 - 12 - 19 收稿, 1998 - 03 - 13 收到修改稿.

* 国家自然科学基金(项目号 19677201)资助.

以大到 1 500 阶, 即有 1 500 个核. 这些核大部分是裂变产物核, 也是丰中子核, 它们很快会衰变成有较长半衰期的核. 如果仅保留半衰期大于 1 s 的核, 那么矩阵 A 的阶数就可以减少到 500~600, 这样就可以通过差分方法求解方程(3). 虽然矩阵 A 的阶数只有 500~600, 但在一般的工作站上(如 SUN 和 VAX 等)是无法进行的. 本工作是在 R10000 上完成的(其速度大约是普通 SUN 工作站的 50 倍).

利用某一时刻的核密度, 可以计算出该时刻的放射性活度、潜在生物危害因子(BHP)、 β 能量沉积和 γ 能量沉积等量^[1]. 其中, 放射性活度可表示为

$$R(t) = \int \sum_k \lambda_k N_k(r, t) dV, \quad (4)$$

潜在生物危害因子(BHP)可表示为

$$B(t) = \int \sum_k \epsilon_k \lambda_k N_k(r, t) dV, \quad (5)$$

(4)、(5)式中的积分是对整个区域而言. (5)式的 BHP 值的物理含义是, 在某时刻和一定功率下, 某个放射性核的量需用多少立方米的标准空气进行稀释后, 才对人构不成危害.

其中, ϵ_k 是第 k 种核的 BHP 权重因子, 它等于 MPC 值的倒数, MPC 为人体能够承受某个放射性核素在空气中的最大容许浓度^[3].

β 能量沉积和 γ 能量沉积分别表示为

$$E_\beta(t) = \int \sum_k E_{\beta,k} \lambda_k N_k(r, t) dV, \quad (6)$$

$$E_\gamma(t) = \int \sum_k E_{\gamma,k} \lambda_k N_k(r, t) dV, \quad (7)$$

式中, $E_{\beta,k}$ 、 $E_{\gamma,k}$ 分别为第 k 种核的 β 衰变和 γ 衰变的平均衰变能量. 以上各式的求和都是相对系统内所有放射性核素而言.

3 数值结果和分析

本小组建立了如图 1 所示的球形结构的模型, 中心采用高压压缩的 ^{233}U (密度为 37.5 g/cm^3), 周围是 ^{238}U 的反射层, 最外层是铝包层, 土壤和岩石的成分主要是 Mg_2SiO_4 (60%) 和 Ca_2SiO_4 (40%). 图中模型第 4 和第 5 层都是土壤和岩石层, 区别是其厚度不同, 目的是考查爆炸核心附近的土壤和岩石层与其它区域的土壤和岩石层在中子诱导反应下所引起的差别.

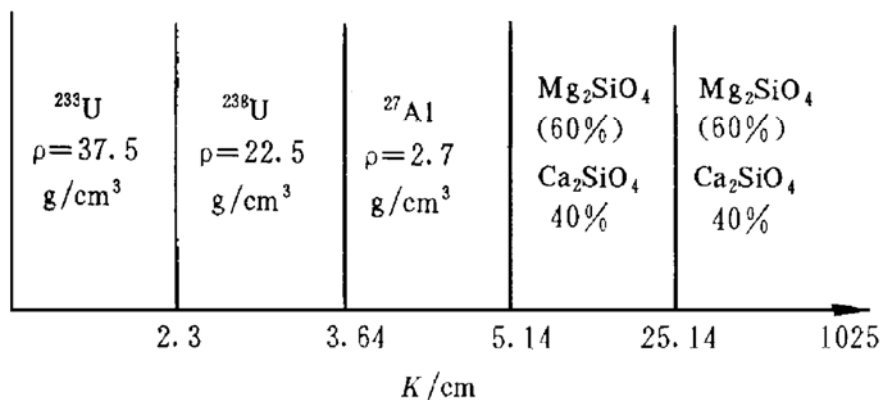


图 1 球形结构计算模型示意图

由于爆炸当量和放射性活度的关系基本上是线性增长, 计算时把当量控制在 2 000 吨 TNT. 计算表明, ^{233}U 、 ^{238}U 的裂变产物多达 500 余种, 半衰期大于 1 s. 为了考查爆炸后的放射性影响, 把时间分成 7 个时期: 极短期($<1 \text{ min}$)、短期($1 \text{ min} \sim 1 \text{ h}$)、中短期($1 \text{ h} \sim 1 \text{ d}$)、中期($1 \text{ d} \sim 1 \text{ m}$)、中长期($1 \text{ m} \sim$

1 a)、长期($1 \sim 100 \text{ a}$)和极长期($>100 \text{ a}$). 虽然裂变产物很多, 但大部分核对放射性的贡献很小, 这主要是因为这些核的裂变产额太低或半衰期太短, 很快就衰变了. 表给出了主要的几十种裂变产物, 这些裂变产物对放射性活度、生物潜在危害因子和能量沉积的贡献都超过了 1%. 从表可以看到, 随着时间

推移,放射性核的数目越来越少,而且超荷数(每个核的中子数减去质子数)也越来越

少.十年后,放射性核的数目已经很少,能产生明显效果的核只有几种.

表 核爆炸后不同时期内核心的放射性裂变产物对放射性活度、生物潜在危害因子(BHP)和能量沉积的贡献超过 1%的所有放射性同位素核

时间	放射性	BHP	$\beta+\gamma$ 能量沉积
≤ 1 min	^{85}Se , $^{86\sim 89}\text{Br}$, $^{89\sim 93}\text{Kr}$	^{85}Se , $^{86\sim 89}\text{Br}$, $^{89\sim 93}\text{Kr}$	^{85}Se , $^{86\sim 89}\text{Br}$, $^{89\sim 93}\text{Kr}$
	$^{90\sim 95}\text{Rb}$, $^{93\sim 95}\text{Sr}$, $^{96,97}\text{Y}$	$^{90\sim 95}\text{Rb}$, $^{94,95}\text{Sr}$, ^{97}Y	$^{90\sim 95}\text{Rb}$, $^{93\sim 95}\text{Sr}$, $^{96,97}\text{Y}$
	^{98}Zr , $^{99\sim 101}\text{Nb}$, ^{103}Mo	^{98}Zr , ^{101}Nb , ^{103}Mo	^{98}Zr , $^{99,101}\text{Nb}$, ^{103}Mo
	^{103}Tc , $^{130,131}\text{Sn}$, ^{133}Sb	^{103}Tc , ^{131}Sn , ^{133}Sb	$^{130,131}\text{Sn}$, ^{133}Sb , ^{135}Te
	^{135}Te , $^{136\sim 139}\text{I}$, ^{137}Xe	^{135}Te , $^{136\sim 138}\text{I}$, ^{137}Xe	$^{136,138,139}\text{I}$, ^{137}Xe
	$^{139\sim 142}\text{Xe}$, $^{140\sim 143}\text{Cs}$	$^{139\sim 142}\text{Xe}$, $^{140\sim 143}\text{Cs}$	$^{139\sim 142}\text{Xe}$, $^{140\sim 143}\text{Cs}$
	$^{141,143}\text{Ba}$, ^{144}La	$^{141\sim 143}\text{Ba}$, ^{144}La	$^{141,143}\text{Ba}$, ^{144}La
	$^{145,147,148}\text{Ce}$	$^{145,147,148}\text{Ce}$	$^{145,147}\text{Ce}$
1 min~1 h	^{84}Se , $^{84,85}\text{Br}$, $^{87\sim 89}\text{Kr}$	$^{83,84}\text{Se}$, $^{84,85,87}\text{Br}$	$^{84\sim 87}\text{Br}$, $^{87\sim 89}\text{Kr}$
	$^{88\sim 91}\text{Rb}$, $^{91\sim 94}\text{Sr}$, $^{91\sim 96}\text{Y}$	$^{87\sim 89}\text{Kr}$, $^{88\sim 91}\text{Rb}$, $^{91\sim 94}\text{Y}$	$^{88\sim 91}\text{Rb}$, $^{93,94}\text{Sr}$, $^{94\sim 96}\text{Y}$
	$^{97,98}\text{Zr}$, $^{97\sim 99}\text{Nb}$	$^{91,92,94}\text{Sr}$, $^{97,98,101}\text{Nb}$	$^{98,99,101}\text{Nb}$, ^{101}Mo
	$^{101\sim 102}\text{Mo}$, $^{101\sim 104}\text{Tc}$	$^{97,98}\text{Zr}$, ^{102}Mo , $^{101\sim 104}\text{Tc}$	$^{101,102,104}\text{Tc}$, $^{127,131}\text{Sn}$
	$^{127\sim 131}\text{Sn}$, $^{130,131,133}\text{Sb}$	$^{127\sim 129}\text{Sn}$, $^{128\sim 133}\text{Sb}$	$^{128\sim 133}\text{Sb}$, $^{131,133}\text{Te}$
	$^{131,133}\text{Te}$, $^{133,135}\text{I}$	$^{131,133}\text{Te}$, $^{133,135,136}\text{I}$	$^{135,136}\text{I}$, $^{137,138}\text{Xe}$
	$^{137\sim 138}\text{Xe}$, $^{138\sim 140}\text{Cs}$	$^{137,138}\text{Xe}$, $^{138\sim 140}\text{Cs}$	$^{138\sim 140}\text{Cs}$, $^{139,142}\text{Ba}$
	$^{139,142}\text{Ba}$, $^{141\sim 143}\text{La}$	$^{139,142}\text{Ba}$, $^{141\sim 143}\text{La}$	$^{141\sim 143}\text{La}$, ^{145}Ce
$^{145,146}\text{Ce}$, $^{145\sim 148}\text{Pr}$	$^{145,146}\text{Ce}$, $^{145\sim 148}\text{Pr}$	$^{145,147,148}\text{Pr}$	
1 h~1 d	^{83}Br , $^{83,87,88}\text{Kr}$, ^{88}Rb	^{83}Br , ^{112}Pd , ^{112}Ag	$^{87,88}\text{Kr}$, ^{88}Rb , $^{97,98}\text{Nb}$
	$^{89,91,92}\text{Sr}$, $^{91\sim 93}\text{Y}$, ^{97}Zr	$^{121,127,128}\text{Sn}$, $^{127\sim 129}\text{Sb}$	^{127}Sn , $^{127\sim 130}\text{Sb}$
	$^{97,98}\text{Nb}$, ^{99}Mo , ^{99}Tc	^{131}Te , ^{135}Xe , ^{138}Cs	$^{129,131}\text{Te}$, $^{131\sim 135}\text{I}$
	^{105}Rh , ^{127}Sn , $^{127\sim 129}\text{Sb}$	^{139}Ba , $^{141,142}\text{La}$	$^{133,135}\text{Xe}$, ^{138}Cs
	$^{129,131}\text{Te}$, $^{131,133,135}\text{I}$	$^{144,145}\text{Pr}$, ^{151}Pm	$^{139,140}\text{Ba}$, $^{140\sim 142}\text{La}$
	$^{133,135}\text{Xe}$, ^{138}Cs , $^{139,140}\text{Ba}$		$^{143,144}\text{Ce}$, $^{143,145}\text{Pr}$
	$^{140\sim 142}\text{La}$, $^{141,143}\text{Ce}$		^{147}Nd , $^{149,151}\text{Pm}$
	$^{143\sim 145}\text{Pr}$, ^{147}Nd , ^{149}Pm		
1 d~1 m	^{89}Sr , ^{91}Y , ^{95}Zr , ^{95}Nb	^{106}Rh , ^{112}Pd , ^{112}Ag	$^{95,97}\text{Nb}$, ^{103}Ru , ^{127}Sb
	^{99}Mo , ^{99}Tc , ^{103}Ru , ^{103}Rh	^{123}Sn , ^{127}Sb , ^{131}Te	$^{131\sim 133}\text{I}$, ^{133}Xe , ^{140}Ba
	^{127}Sn , $^{131,133}\text{I}$, ^{133}Xe	^{137}Ba , ^{144}Pr , ^{151}Pm	^{140}La , $^{141,143,144}\text{Ce}$
	^{140}Ba , ^{140}La , $^{141,143,144}\text{Ce}$	^{156}Eu	$^{143,144}\text{Pr}$, ^{147}Nd , ^{149}Pm
$^{143,144}\text{Pr}$, ^{147}Nd , ^{149}Pm			
1 m~1 a	^{85}Kr , $^{89,90}\text{Sr}$, $^{90,91}\text{Y}$	^{106}Rh , ^{123}Sn , ^{137}Ba	^{85}Kr , ^{95}Nb , ^{103}Ru
	^{95}Zr , ^{95}Nb , $^{103,106}\text{Ru}$	^{144}Pr	^{137}Cs , ^{140}La , $^{141,144}\text{Ce}$
	$^{103,106}\text{Rh}$, ^{137}Cs , ^{137}Ba		^{144}Pr , ^{147}Pm
	$^{141,144}\text{Ce}$, ^{144}Pr , ^{147}Pm		
1~100 a	^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{137}Cs	^{137}Ba	^{85}Kr , $^{125,126}\text{Sb}$, ^{137}Cs
	^{137}Ba , ^{147}Pm , ^{151}Sm		^{144}Ce , ^{144}Pr , ^{147}Pm
100 a \leq	^{79}Se , ^{126}Sn , ^{126}Sb	^{79}Se , ^{126}Sn , ^{126}Sb	^{79}Se , ^{126}Sn , ^{126}Sb

值得注意的是, 由于核爆炸不能使²³³U 和²³⁸U 全部裂变完, 所以会有相当一部分的²³³U 以及²³³U 的(n, 2n)反应生成²³²U 和²³⁸U 以及²³⁸U 吸收中子后生成²³⁹Np、²³⁹Pu 等锕系同位素核. 这些核对放射性(生物潜在危害因子, 能量沉积)的贡献一般都很小, 但是当时

间超过 10 年时, 它们对放射性(生物潜在危害因子, 能量沉积)的贡献就不可忽略, 特别是²³³U(半衰期长达 1.616×10^5 a), 在 1 000 年以后它的贡献是最主要的, 而裂变产物的贡献则变得次要了.

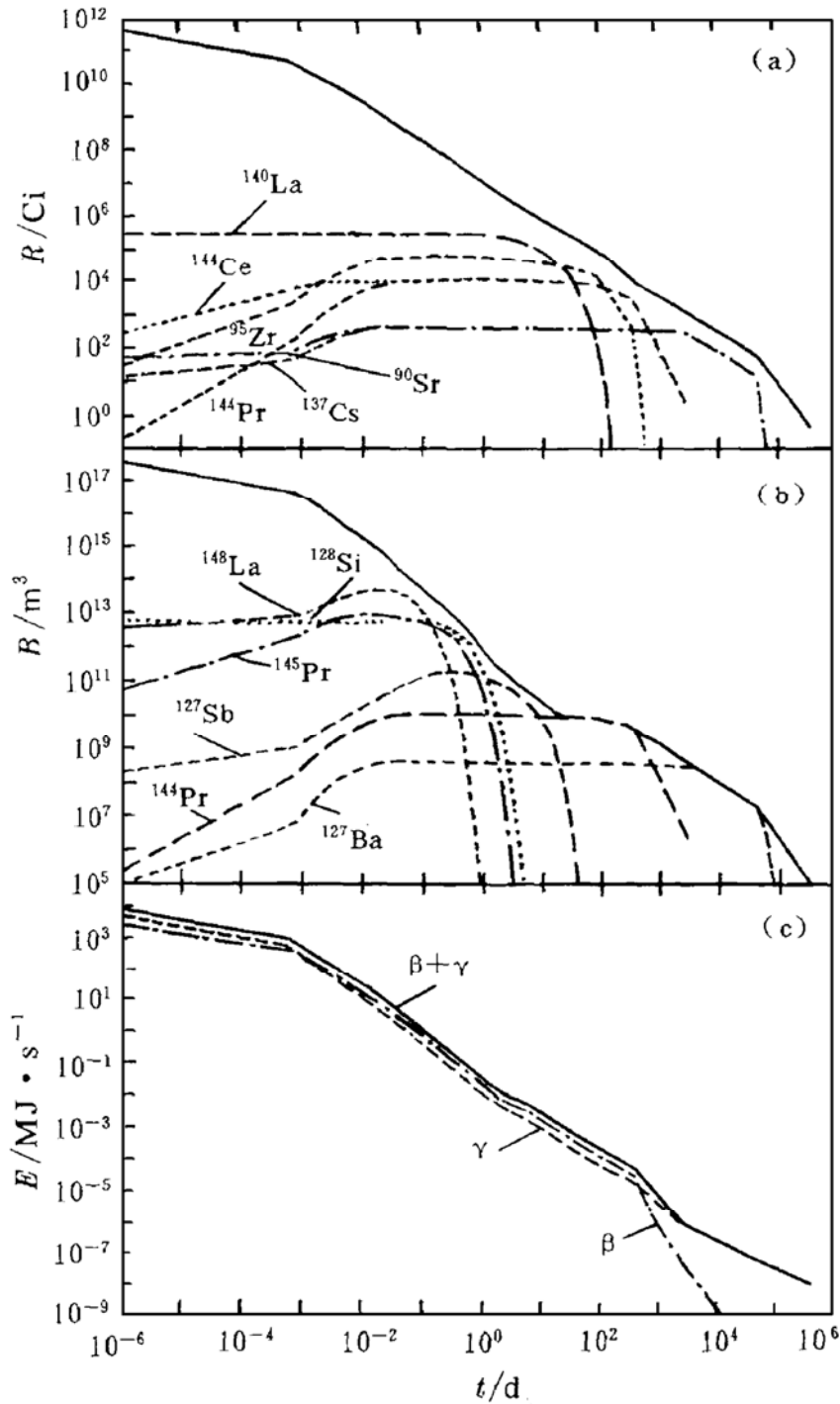


图 2 当量为 2 000 吨 TNT 的核材料爆炸后核心裂变产物的放射性活度、生物潜在危害因子、能量沉积随时间的演化 (a) 10 年内六个主要放射性核(一些时刻内超过总放射性的 20%)的贡献, (b) 100 年内六个同位素核(一些时刻内超过总的 BHP 值的 20%)的贡献, (c) 能量沉积 E .

图 2 给出了当量为 2 000 吨 TNT 的核材料爆炸后核心放射性活度(R)、生物潜在危害因子(B)和能量沉积(E)随时间的演化。

图中的实线表示一个所有核的总的趋势，可以看到在双对数坐标下，随着时间的推移， R 、 B 和 E 线性下降。核心的放射性很强，即

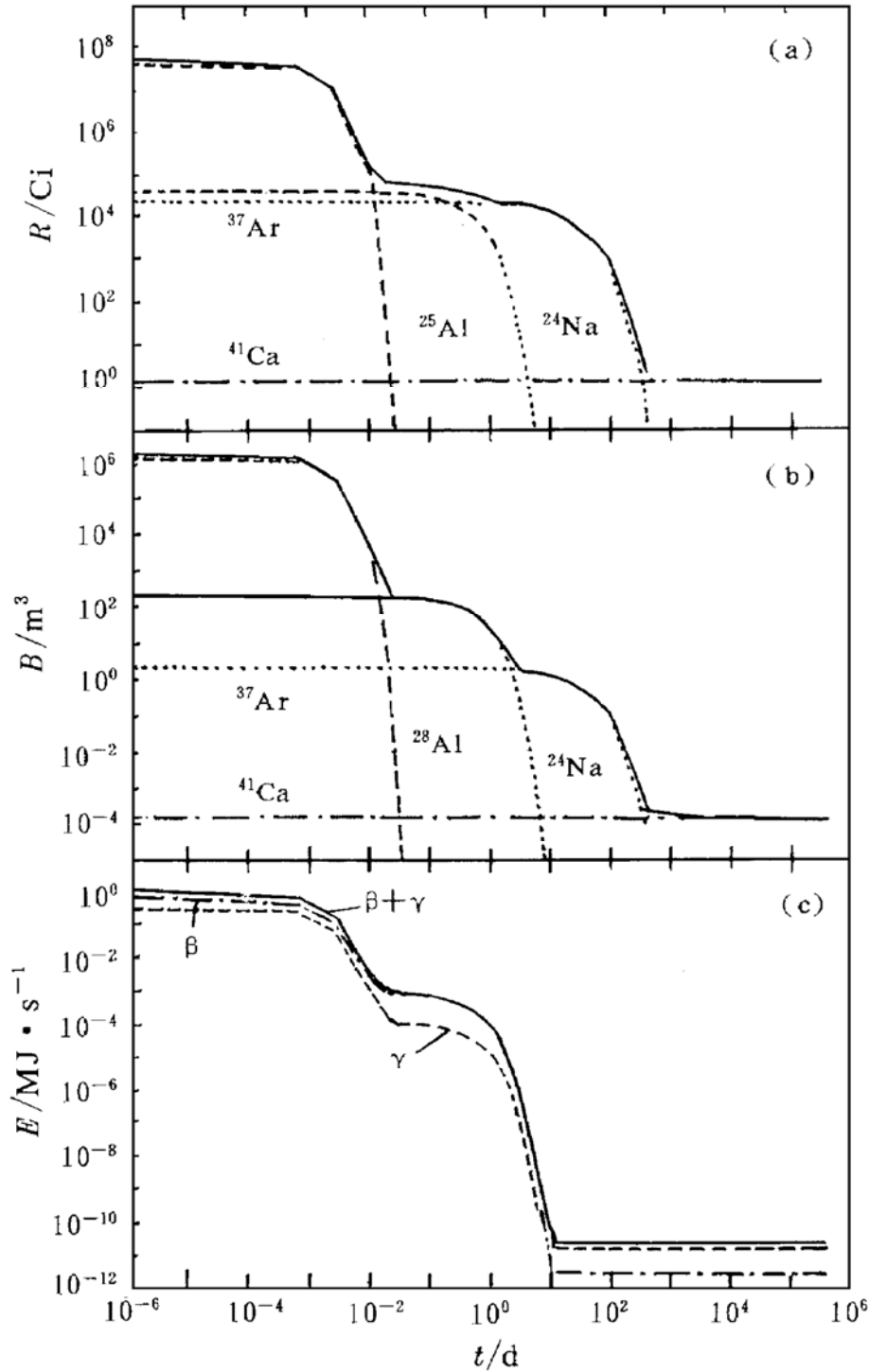


图 3 当量为 2 000 吨 TNT 的核材料爆炸后中子诱导反应在土壤和岩石中产生的放射性活度、生物潜在危害因子、能量沉积随时间的演化

使在 100 年以后还有约 80 Ci(大于 1 Ci 便属于高放射性)，相对应的 BHP 因子有 5×10^7 m^3 空气。人们感兴趣的范围一般是几天到几年，图(a)给出了六个在此时间范围内对放射

性贡献超过 20 % 的同位素核，不同于极短期和短期，在这个时间范围内个别核作用越来越突出。图(b)给出了几小时到几十年范围内对 BHP 值贡献超过 20 % 的同位素核，可以

看到，同位素核的曲线在某些时刻很接近总曲线(实线)，特别是 ^{144}Pr 和 $^{137}\text{Ba}^*$ ，在一段时期内与总曲线几乎重合，这说明 10 天后 BHP 值主要是这两个核的贡献。从图(c)可见，开始时以 γ 能量沉积为主，几分钟后， β 能量沉积超过了 γ 能量沉积，这种状态一直可保持几个月， γ 能量沉积重新占主导地位，这时几乎可以忽略 β 能量沉积。

核爆炸后产生的中子会诱导周围土壤和岩石的核反应。计算中发现，这些反应可以产生 150 种左右的物质，但是与核心的放射性不同，在土壤和岩石中对放射性活度、生

物潜在危害因子和能量沉积的贡献仅来自 4 个同位素核，其它核的贡献是微不足道的。图 3 中的曲线很明显地说明了这一结论，开始几分钟是 ^{28}Al ，随后几小时是 ^{24}Na ，而几天到一年内的影响来自 ^{37}Ar ，一年后只有 ^{41}Ca 的贡献了。图(a)显示在一年后放射性活度可以降到 1 Ci 的水平。图(b)中 BHP 已降到可以忽略的程度。值得注意的是， ^{37}Ar 是以气体形式存在，可能会从土壤和岩石的空隙中渗漏出来且到空气中。图(c)给出了能量沉积，可以知道 10 天内的能量沉积主要是 β 能量沉积，10 天后的则是 γ 能量沉积。

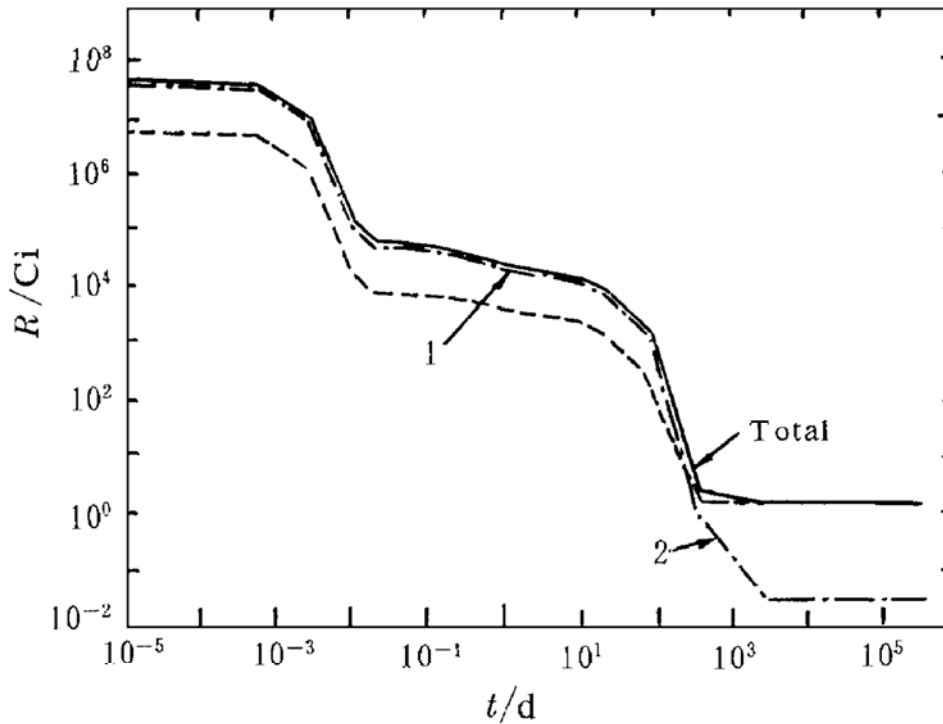


图 4 靠近核心附近的土壤和岩石层与外层的土壤和岩石层放射性的比较

图 4 比较了靠近核心的土壤与岩石层和外面的土壤与岩石层分别对放射性的贡献。图中单点划线(1)表示靠近核心的土壤和岩石层，双点划线(2)表示外面的土壤和岩石层。可以发现，在几百天内，土壤和岩石的诱发放射性来自于靠近核心的很薄的区域，然后这个区域内的放射性很快下降，几百天后放射性的贡献主要是以外面的土壤和岩石

为主。这是因为靠近核心的土壤和岩石层在高中子通量下生成了大量的 ^{28}Al 和 ^{24}Na ，但这些核很快就衰变完了，最后的贡献均来自于 ^{41}Ca 。

4 结 论

对放射性同位素核的研究主要受到各种数据和计算条件的限制。利用新开发的数据

库和程序，在计算条件保证的前提下对核爆炸产物的放射性随时间的演化进行了系统、精确的研究，得到了许多有用的结果。这些数据对核爆炸后的场地管理、环境保护以及核爆炸在国民经济中的应用等均提供了重要的参考依据。

参 考 文 献

- 1 Sung T Y, Vogelsang W F. UMFDM-170, 1976
- 2 杜书华. 输运问题的计算机模拟. 长沙: 湖南科学技术出版社, 1989, 第二章
- 3 莫 H J. 辐射安全教程. 北京: 原子能出版社, 1979, 157~169

Study on Decay Process of Radioactive Products after Nuclear Explosion

Shen Yaosong^{1,2)} Liu Chengan²⁾

- 1) (*Beijing Department of Graduate Students, China Academy of Engineering Physics, Beijing 100088*)
- 2) (*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088*)

Abstract The evolution of radioactivity and poisonousness of the products after nuclear explosion is very important for safety and environmental protection. The detailed study of the evolution of radioactivity of fission products, biological hazard potential, energy deposition and so on was performed by using the new data base and code. The contributions of the main radioactive nuclei and the evolution of radioisotopes in soil and rock are also discussed.

Key Words radioactivity fission products biological hazard potential energy deposition