

通用级联衰变动力学简化计算

高正明¹, 何彬¹, 赵娟², 裴永泉³, 左广霞¹

(1. 第二炮兵工程学院 102 室, 陕西 西安 710025; 2. 荆楚理工学院 电子信息工程学院, 湖北 荆门 448000;
3. 96411 部队, 陕西 宝鸡 721013)

摘要:级联衰变动力学方程是描述放射性同位素衰变规律的基本方程之一, 衰变过程的复杂性和衰变子体的多样性, 使级联衰变动力学计算十分复杂。本工作分 3 种情况给出通用级联衰变动力学解析解表达式, 用矩阵函数对其进行形式简化, 使级联衰变动力学计算简单明了, 便于应用; 对级联衰变公式进行简单讨论, 并利用该公式求解了²³⁹Pu 级联衰变中各级子体的原子数及²³⁹Pu 的衰变热功率。

关键词:级联衰变; 矩阵函数; 衰变热功率

中图分类号: O571.3

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2009)12-1077-04

Simplified Calculation of Dynamic Decay Cascade in Common Use

GAO Zheng-ming¹, HE Bin¹, ZHAO Juan², PEI Yong-quan³, ZUO Guang-xia¹

(1. 102nd Staffroom, Second Artillery Engineering Institute, Xi'an 710025, China;
2. School of Electronics and Information Engineering, Jingchu College of Science and Technology,
Jingmen 448000, China; 3. 96411th Force of PLA, Baoji 721013, China)

Abstract: Decay cascade equations describing the decay ways of radioactive isotopes are very complex due to the complexity of decay ways and variety of daughters. This work solved the decay dynamic functions and gave the simplified analytical answer equations in three forms by means of function matrix. The decay dynamic functions were simplified and can be easily used in application. Finally, nuclei number of every grade daughters of ²³⁹Pu was given and the decay heating power of ²³⁹Pu was also calculated.

Key words: decay cascade; matrix function; decay heating power

天然放射性核素形成 3 个放射系, 每个系均由一半衰期最长的核素开始, 经过一系列放射性衰变, 最后达到一稳定核素。同时, 绝大部分人工合成核素也存在放射性现象。科学研究中当需应用衰变规律时, 如测量地质年代, 推断古生物、古文物存在的年代等情况时, 需求解级

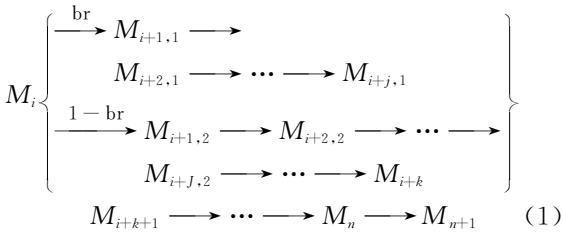
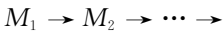
联衰变动力学的精确解。文献[1]给出初始时刻从母体开始、子体不存在情况下的级联衰变公式, 文献[2]推导了初始时刻子体存在时两次级联衰变的公式。曲德成等^[3]根据图论编制了级联衰变动力学计算软件。在实际应用中, 由于计算工具的不足, 通过网络、文献等途径获取

原始数据进行个别同位素母体级联计算仍是普遍的研究方式。

本工作推导级联衰变动力学解析解一般公式,分3种情况考虑级联衰变规律:1)初始时刻子体存在;2)级联衰变过程中存在衰变分支;3)衰变分支具有相同的末态同位素。根据实际情况累加以上结果即可得到通用级联衰变动力学计算公式。本工作采用矩阵函数形式描述级联衰变动力学公式,以简化计算。

1 通用级联衰变动力学解析计算

实际研究过程中,子体个数可根据需要选择相应技术方法进行测量或反推计算^[2],同时放射性核素衰变过程中往往存在衰变分支,此时,研究核素级联衰变规律需考虑相应情况。设有级联衰变:



其中: M_{n+1} 为稳定核素; br 为分支比。

$t = 0$ 时,母体和各级子体的原子数为 N_{p0} ($p = 1, 2, \dots, n$),母体设为1代。为方便计算,将子体代数相同的以衰变类型按 α, β 顺序排列。 t 时刻各核素原子数为 $N_p(t)$,各级衰变常量为 λ_p ,则根据衰变规律,有:

$$\begin{cases} dN_1/dt = -\lambda_1 N_1 \\ dN_2/dt = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \vdots \\ dN_i/dt = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \\ dN_{i+1,1}/dt = \text{br}\lambda_i N_i - \lambda_{i+1,1} N_{i+1,1} \\ \vdots \\ dN_m/dt = \lambda_{i+j} N_{i+j} + \lambda_{i+k} N_{i+k} - \lambda_p N_p \\ \vdots \end{cases} \quad (2)$$

已知条件: $t = 0, N_{p0}$ ($p = 1, 2, \dots, n$)。式(2)是一阶线性非齐次方程组^[4]。以下根据初始条件,分3种情况求其解析解表达式。

1.1 有初始值时的级联解析解

从核素 M_1 到 M_i 是有初始值的直接级联方程,根据线性非齐次方程的解法,分层直接求

得各级子体的解:

$$\begin{cases} N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \\ N_2 = \lambda_1 N_{10} \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right) + N_{20} e^{-\lambda_2 t} \\ N_3 = \lambda_1 \lambda_2 N_{10} (h_{31} e^{-\lambda_1 t} + h_{32} e^{-\lambda_2 t} + h_{33} e^{-\lambda_3 t}) + \\ \quad \lambda_2 N_{20} \left(\frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_2 - \lambda_3} \right) + N_{30} e^{-\lambda_3 t} \\ \vdots \\ N_i = \lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_{i-1} N_{10} (h_{i1} e^{-\lambda_1 t} + h_{i2} e^{-\lambda_2 t} + \dots + \\ \quad h_{ii} e^{-\lambda_i t} + \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{i-2} N_{20} (h'_{i2} e^{-\lambda_2 t} + \\ \quad h'_{i3} e^{-\lambda_3 t} + \dots + h'_{i,i-1} e^{-\lambda_{i-1} t}) + N_{i0} e^{-\lambda_i t} \end{cases} \quad (3)$$

由式(3)可知,当初始时子体个数不为零时, t 时刻某子体 M_i 核素原子数为前 i 代母体级联衰变成该代子体的原子数目之和。记 D_{ji} 为前第 j 级由母体 i 衰变到该子体的原子数,则若令:

$$D_{ji}(t) = \begin{cases} N_{j0} e^{-\lambda_j t} & j = i \\ \lambda_j \lambda_{j+1} \dots \lambda_{i-1} N_{j0} (h_{i-j,1} e^{-\lambda_j t} + \\ \quad h_{i-j,2} e^{-\lambda_{j+1} t} + \dots + h_{i-j,i-j} e^{-\lambda_{i-1} t}) & j < i \end{cases} \quad (4)$$

式中: $h_{i-j,k} = 1/[(\lambda_{i-j} - \lambda_{i-j+k}) \dots (\lambda_{i-j+k-1} - \lambda_{i-j+k})(\lambda_{i-j+k+1} - \lambda_{i-j+k}) \dots (\lambda_{i-j} - \lambda_{i-j+k})]$ ($k = 1, 2, \dots, i-j$)。矩阵 D 为上三角阵,是关于时间 t 的函数矩阵,其矩阵对角线元素 D_{ii} 为第 i 代子体经 t 时刻自身衰变后的原子数,且矩阵 D 的第 i 列矩阵元素之和为 t 时刻该子体的原子数。每一母体核素衰变时对应的矩阵 H 为 $i-j$ 阶二维下三角阵。根据函数矩阵 D 的定义,第 i 级子体在 t 时刻的原子数为:

$$N_i = D_{1i} + D_{2i} + \dots + D_{ii} = \sum_{j=1}^i D_{ji} \quad (5)$$

1.2 有衰变分支时的级联解析解

天然放射性核素形成的3个放射系中,一般只有1个近100%的分支比,如²³⁴U;部分同位素同时存在较大的 α, β^- 衰变几率,如²¹⁸Po;这一类放射性同位素中,有几个同位素两种衰变的几率近似,如²¹²Bi。因此,在衰变动力学研究中,需考虑存在衰变分支时的情况。为不失一般性,以常见的两分支为例,如式(1)中核素 M_i 衰变时以 br 和 $1-\text{br}$ 的几率进行两种方式衰变。记 M_{i+p} 为有衰变分支时1代的第 $i+p$ 级子体,显然,各衰变分支部分元素个数不一定相

等。式(1)中的衰变分支部分相应的解析解为:

$$\begin{cases} N_{i+1,a} = br \sum_{j=1}^i D_{j,i+1} + N_{i+1,a0} e^{-\lambda_{i+1,a}t} \\ N_{i+1,b} = (1-br) \sum_{j=1}^i D_{j,i+1} + N_{i+1,b0} e^{-\lambda_{i+1,b}t} \\ \vdots \\ N_{i+j,a} = br \sum_{j=1}^i D_{i+j,j} + \sum_{j=i+1}^{i+j} D'_{j,j} \\ N_{i+k,b} = (1-br) \sum_{j=1}^i DI'_{i+k,j} + \sum_{j=i+1}^{i+k} D''_{k,j} \end{cases} \quad (6)$$

式中: $N_{i+1,a0}$ 为第*i*+1代分支*a*的子体初始核素数目; D' 、 D'' 等分别表示分支内部级联衰变矩阵函数。

函数矩阵 **D** 需针对当前分支重新改写,分支部分对应的矩阵元素列以代的顺序对应该分支子体核素,如两路分支时,分别记作 **DI**、**DI'**等,根据定义 **DI** 和 **DI'**形式相同,其大小为:

$$DI_{i+j,ka}(t) = \lambda_k \lambda_{k+1} \cdots \lambda_{i+j-1} N_{k0} (h_{i+j-k,1} e^{-\lambda_k t} + h_{i+j-k,2} e^{-\lambda_{k+1} t} + \cdots + h_{i+j-k,i+j-k} e^{-\lambda_{i+j-k} t}) \quad k = 1, 2, \dots, i \quad (7)$$

其中:**DI**_{*i+j,ka*}表示由母体*k*衰变到第*i*+*J*代分支*a*的子体时的核素数,矩阵**H**的形式不变。

1.3 衰变分支有共同末代子体时的级联衰变

放射性衰变过程中,常出现衰变分支具有相同的末代子体 M_{i+k+1} ,若子体存在级联衰变,则可计算*t*时刻此部分的核素数为:

$$\begin{aligned} N_{i+k+1} &= br \sum_{j=1}^i DI_{j,i+k+1} + \sum_{j=i+1}^{i+j} D'_{j,i+k+1} + (1-br) \cdot \\ &\quad \sum_{j=1}^i DI'_{j,i+k+1} + \sum_{j=i+1}^{i+k} DI''_{j,i+k+1} + N_{i+k+1,0} e^{\lambda_{i+k+1}t} \\ &\quad \vdots \\ N_{i+n} &= br \sum_{j=1}^i DI_{j,i+n} + \sum_{j=i+1}^{i+j} D'_{j,i+n} + (1-br) \cdot \\ &\quad \sum_{j=1}^i DI'_{j,i+n} + \sum_{j=i+1}^{i+k} DI''_{j,i+n} + \sum_{j=i+k}^{i+n} DII_{j,i+n} \end{aligned} \quad (8)$$

其中:**DII**为针对合路部分级联衰变的矩阵,**DII**可按式(4)进行计算,矩阵中其它元素充零。

1.4 通用级联衰变动力学

将式(5)~(8)相加即得通用级联衰变动力学计算公式。实际应用中只需根据实际级联衰

变情况组合3种情况,分别计算系数矩阵**H**和核素数矩阵**D**,然后根据式(5)累加当前行即是当前核素在*t*时刻的数目。

2 实用级联衰变动力学计算

级联衰变动力学解析解有很强的规律性,只需根据前面所述进行计算,然后累加即可完成计算。但在实际应用中,该工作仍十分复杂。工程实际需求中往往不需如此精确,在给定条件及计算目标并保证一定精度的条件下,可进行进一步的简化。如各代子体核素数目为零,或假定级联衰变达到平衡状态等。

2.1 初始时刻各级子体核素数为零

即 $N_{10} \neq 0, N_{i0} = 0 (i > 2)$, 则有:

$$\begin{cases} N_i = \lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{i-1} N_{10} (h_{i1} e^{-\lambda_1 t} + h_{i2} e^{-\lambda_2 t} + \cdots + h_{ii} e^{-\lambda_i t}) \\ h_{ij} = 1 / [(\lambda_1 - \lambda_j) \cdots (\lambda_{j-1} - \lambda_j) \cdot (\lambda_{j+1} - \lambda_j) \cdots (\lambda_i - \lambda_j)] \end{cases} \quad (9)$$

该情况最为普遍,是常用的理想状态级联衰变理论计算公式。

2.2 特殊情况

对两次级联衰变,随 λ_1 和 λ_2 不同,存在久期平衡、暂时平衡与不平衡,详情参见文献[1]。

3 级联衰变动力学公式的应用

^{239}Pu 级联衰变终点是稳定核素 ^{207}Pb ^[6], 计算 ^{239}Pu 热功率可作如下简化:1) 忽略小于1%的分支比,且衰变分支部分的衰变热较小,故可忽略不计;2) 忽略半衰期小于1s的核素,其衰变热累加给其衰变子体。实际计算时, ^{239}Pu 有11代子体,即为12次级联计算。该级联衰变在初始时刻只存在 ^{239}Pu , $N_{10} = 2.3504 \times 10^{24} = e^{52.1166}$ 。

3.1 ^{239}Pu 的级联衰变矩阵函数

经简化后, ^{239}Pu 级联衰变链为单线12级衰变链,为典型初始时刻母体存在、子体不存在的级联衰变链,其衰变矩阵由式(9)定义,其中:

$$\begin{cases} D_{1,1} = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \\ D_{1,2} = \lambda_1 N_{10} \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right) \\ D_{1,3} = \lambda_1 \lambda_2 N_{10} (h_{31} e^{-\lambda_1 t} + h_{32} e^{-\lambda_2 t} + h_{33} e^{-\lambda_3 t}) \\ \vdots \\ D_{1,12} = \lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{i-1} N_{10} (h_{i1} e^{-\lambda_1 t} + h_{i2} e^{-\lambda_2 t} + \cdots + h_{i12} e^{-\lambda_{12} t}) \end{cases} \quad (10)$$

系数 h_{ij} 为:

$$\begin{cases} h_{i1} = \frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)\cdots(\lambda_i - \lambda_1)} \\ h_{i2} = \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)\cdots(\lambda_i - \lambda_2)} \\ \vdots \\ h_{ij} = \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_j)\cdots(\lambda_{k-1} - \lambda_j)(\lambda_{j+1} - \lambda_j)\cdots(\lambda_i - \lambda_j)} \end{cases} \quad (11)$$

将式(10)、(11)代入式(5)即可计算各级子体的原子数。

3.2 ^{239}Pu 的各级子体原子数计算

根据通用级联衰变动力学计算,得到 ^{239}Pu 衰变子体原子数(图1)。百年内 ^{239}Pu 的衰变热功率示于图2。由图1可知:1)百年内 ^{239}Pu 原子数变化不大;2)除2代子体外,其余各代子体原子数均较少;3)就衰变热功率、质量百分比等而言,只需考虑第1次出现的长寿命子体及其之前的子体,其后的子体数目可忽略不计。图2表明, ^{239}Pu 衰变分支热功率整体变化不大,该值主要取决于1代衰变热,由于 ^{235}U 的长寿命,2代及其以后各代子体衰变热可忽略。这一结果已在文献[7]中得到证实。

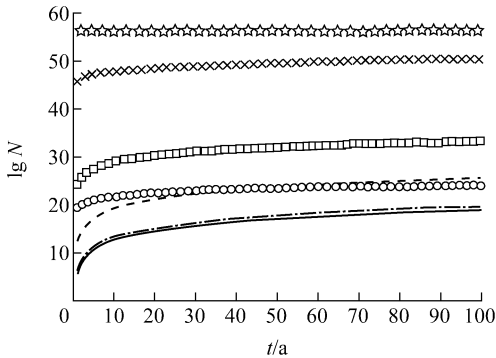


图1 ^{239}Pu 衰变子体原子数变化趋势

Fig.1 Varying trend of atomic number for daughters of ^{239}Pu

☆—— ^{239}Pu ; ×—— ^{235}U ; ○—— ^{231}Th ; □—— ^{231}Pa ;
虚线—— ^{227}Ac ; 点划线—— ^{227}Th ; 实线—— ^{223}Ra

4 结论

采用矩阵函数改写的级联衰变公式易于理解和计算,可广泛应用于各种需要考虑级联衰变的情况中,从而提高计算精度。以 ^{239}Pu 级联衰变为例,分析了 ^{239}Pu 各级子体原子数的变化

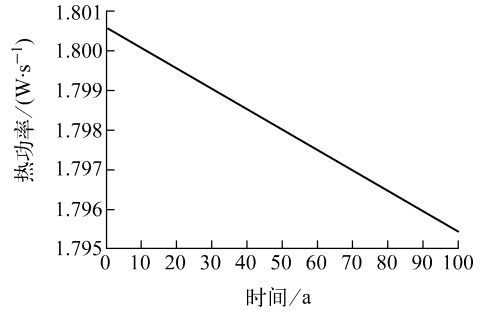


图2 ^{239}Pu 衰变热功率

Fig.2 Decay heat power of ^{239}Pu

规律及 ^{239}Pu 热功率变化情况,结果合理。

参考文献:

- [1] 王炎森,史福庭. 原子核物理学[M]. 北京:原子能出版社,1998:364-378.
- [2] 刘广山,黄奕普,李静,等. 不平衡铀系和钍系核素的 Gamma 谱测定[J]. 海洋学报,2003,25(5):65-75.
LIU Guangshan, HUANG Yipu, LI Jing, et al. Measurement of nuclides of uranium and thorium series of disequilibrium using gamma spectroscopy[J]. Acta Oceanologica Sinica, 2003, 25(5): 65-75(in Chinese).
- [3] 曲德成,常永福. 多分支递交衰变递归算法[J]. 原子能科学技术,2004,38(1):1-3.
QU Decheng, CHANG Yongfu. A recursive algorithm of multi-branches decay chains[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2004, 38(1): 1-3(in Chinese).
- [4] 同济大学数学教研室. 高等数学:下册[M]. 2版. 北京:高等教育出版社,1982:319-336.
- [5] STEVE F, VALERY A F, OLEG F P, et al. Fissile materials and weapon design[J]. Science and Global Security, 1990, 1: 225-302.
- [6] 基础科学数据中心及共享服务网. 理化基础数据库:核素图 NCART[DB/OL]. [2008-10-20]. <http://159.226.2.40/nuclear/index.asp>.
- [7] 肖刚,朱文凯. 钚-239 复合体温度场数值仿真[J]. 兵工学报,2005,26(1):140-142.
XIAO Gang, ZHU Wenkai. Numerical simulation for three dimensional temperature fields of composite body with plutonium-239 [J]. Acta Armamentor, 2005, 26(1): 140-142 (in Chinese).