

Neutronové záření ve výzkumných reaktorech

T. Lehečková

Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, Břehová 7, 115 19 Praha 1
tereza.leheckova@seznam.cz

Abstrakt

Cílem projektu je demonstrovat charakteristiku (vybráno měření axiálního profilu) a využití (vybrána neutronová aktivační analýza) neutronů ve výzkumných reaktorech. Projekt byl uskutečněn na reaktorech v Řeži. Částečně navazuje na práci, věnovanou měření na VR- 1.

1 Úvod

Výzkumné jaderné reaktory jsou obvykle nízkovýkonová zařízení sloužící jak pro základní a aplikovaný výzkum, tak jako vědecká podpora k technickým zkouškám či zaučování pracovníků jaderných elektráren. V současné době je jich na světě okolo 250, přímo v ČR se nacházejí tři- VR-1 na Katedře jaderných reaktorů FJFI v Tróji, dále LVR- 15 a LR- 0, oba v Centru výzkumu Řeži. Neutrony v nich jsou nejen základní sledovanou věcí při řízení, ale také záležitostí využitelnou v řadě dalších aplikací výzkumů.

2 NAA Teorie

Neutronová aktivační analýza je metoda umožňující velmi přesně stanovit kvalitativní i kvantitativní složení vzorku. Nedávno bylo uznána jako primární analytická metoda. Využívá se aktivace vzorku v poli neutronů v jaderném reaktoru nebo méně často v neutronovém generátoru či urychlovači. Na základě γ - linek od dceřiných izotopů lze určit izotopy mateřské, proměněné reakcí (n, γ), zachytit však můžeme i produkty jiných reakcí. Chceme-li znát i hmotnosti složek využijeme vztah pro indukovanou aktivitu.

$$A_i = \frac{N_a * \phi * f * \sigma_a * m_{vz} * (1 - e^{-\lambda * t_{ozarovani}}) * e^{-\lambda * t_{vymirani}}}{A}$$

kde N_a je Avogadrova konstanta, ϕ je hustota toku aktivujících částic ($s^{-1} * m^{-2}$), f je relativní izotopový výskyt aktivovaného izotopu v přírodě, σ_a je aktivační účinný průřez (m^2), m_{vz} je hmotnost stanovovaného prvku ve vzorku, A je hmotnostní atomové číslo a λ je rozpadová konstanta. V našem případě provádíme srovnávací NAA, tedy ozařujeme se vzorkem i referenční materiál jehož složení známe. Pak využíváme vztahu $m_{vzorek} = m_{etalon} * A_{vzorek} / A_{etalon}$. Tento vztah se po vykrácení stejných členů redukuje na

$$m_{vz} = \frac{\frac{S_{vz} * \lambda * t_{real_{vz}} / t_{live_{vz}}}{e^{-\lambda * t_{vymirani_{vz}}} * (1 - e^{-\lambda * t_{real_{vz}}})}}{\frac{S_e * \lambda * t_{real_e} / t_{live_e}}{e^{-\lambda * t_{vymirani_e}}} * (1 - e^{-\lambda * t_{real_e}})} * m_e$$

Kde S je plocha peaku pod danou linkou γ (získáme z programu), indexy e a vz označují etalon a vzorek. Ideální pro NAA je, jsou-li vzorky homogenní a malé, abychom získali obraz celkového složení, dále potřebujeme poměrně velký neutronový tok, a v případě rychle se rozpadajících izotopů způsob co nejrychlejší dopravy z ozařovací pozice na detektor.

3 NAA- Zázemí, metodika, výsledky

V tomto projektu byly zvoleny vzorky studované již dříve na VR- 1. Jednalo se o žraločí zuby, konkrétně nový zub, pravděpodobně patřící Žraloku Tygřímu, a fosilní zub druhu *Odontaspis Substriata* pocházející z Tercieru. Recentní zub váží 568,94 mg, fosilní 882,50 mg. Jako kalibrátory byla použita sada multielementních standardů vyvinutých dříve běžně používaná v laboratoři NAA ÚJF. Pro stanovení obsahu F byl použit jako kalibrátor standardní referenční materiál (dále SRM) SRM1486 Bone meal (Etalony (certifikované) jsou z National Institute of Standards and Technology) a referenční materiál (dále RM) FM fluorspar powder (Ústav Nerostných Surovin *Kutna Hora*). Informace k izotopům, které nejsou uvedeny v textu lze dohledat v databázi [4]. K analýze jsem vybrala prvky nějakým způsobem zajímavé z hlediska metody i výpovědní hodnoty.

Zuby byly nejprve omyty a očištěny kartáčkem, uloženy i ozařovány v polyethylenových pytlíčcích a pouzdru pro dopravu vzorků do aktivní zóny ze stejného materiálu (produkty ozáření polyethylenu ruší výsledky zcela zanedbatelně, problémy mohou nastat při vysokých neutronových tocích při studiu Al). Vzorky se ozařovaly vcelku. Kromě zubů byly ozářeny i referenční materiály. Práce probíhala na reaktoru LVR- 15 při $\phi = 3,2 \cdot 10^{13}$ n/cm²/s (termální neutrony, přibližná hodnota), ve všech případech po dobu 20 s (podobná velikost vzorků, snaha o zajištění stejných podmínek, výrazně zjednodušující práci). Doprava na pozici byla uskutečněna pomocí pneumatického transportního systému. Následně bylo proměřeno γ na HPGe detektoru, vyhodnoceno v programu Genie 2000. Relativní účinnost detektoru je asi 21%, rozlišení 1,75 KeV, nakalibrováno pro správnou kompenzaci mrtvé doby do 45%. Měřilo se v vzdálenosti 20 cm od detektoru. Kvůli snaze studovat F byly nejprve měřeny zuby, fluorit a SRM kosti ihned po ozáření po dobu $T_m = 30$ s. Po té proběhla další měření, tentokrát všech vzorků a standardů s delším $T_r = T_v = 600$ s. Měřilo se také po delší dobu konkrétně 30 s fluorid a 600 s vše ostatní.

Tab.1 Výsledky pro zajímavé izotopy

	I	Ca	Sr	Cl
S-e	4005,8	922,96	4062,1	3376,2 a 3494,3
S-zR	Linka nenalezena	103610	11160	99148 a 102460
S-zF	13100	226790	13119	4534,8 a 4812,4
m-e (μg)	12,16 (MES-P-33H)	1206,7 (MES-P-22H)	306,48 (MES-P-21H)	211,34 (MES-P-21H)
m-ZR(μg)	-	135462, 19	842,01	12403,29
m-ZF(μg)	39,77	296510,68	989,81	574,93
dceřinný izotop	¹²⁸ I	⁴⁹ Ca	^{87m} Sr	³⁸ Cl
mateřský izotop	¹²⁷ I	⁴⁸ Ca	⁸⁶ Sr	³⁷ Cl
reakce	(n, γ)	(n, γ)	(n, γ)	(n, γ)
Jad. interference	-	⁴⁹ Sc (n,p)	⁸⁷ Y(n,p), ⁹⁰ Zr (n,α)	-

Mrtvá doba se pohybovala od 1% do 26% (fosilní zub). Spektrální interference neuvádím, nedá se jim sice vyhnout ale jejich vliv je minimální. Co se týče zmíněných alternativních reakcí, zřejmě měření chybou téměř nezatěžují- výskyt scandia v zubu je velmi nepravděpodobný a ⁸⁸Y má tak krátký $T_{1/2}$ (milisekundy), že máme mizivou šanci ho zachytit. Spektrální interference neuvádím, jejich vliv je minimální. Co se výsledků týče, můžeme odhadovat, že recentní žralok žil delší dobu, neboť (Sr, které substituuje Ca) poměr Ca/Sr je mnohem menší. Dále to, že Cl, jehož zdrojem je hlavně mořská voda se ze staršího zubu vytrácí (vliv fosilizace, nestabilita) obdobně je tomu s I.

Nyní se podívejme F. Ten jsem pro porovnání vypočítala pomocí RM fluoritu i SRM kosti. $T_v = 21$ s pro SRM a recentní zub, 60 s pro RM fluorit a fosilní zub $\lambda = 0,06301338$.

Tab. 2 Výsledky pro F

	S	m, podle SRM (μg)	m, podle RM (μg)
SRM	6844,5	798,114	
RM	22013		33959,2
ZR	33001	3848,28	4360,31

Alternativní reakce $^{23}\text{Na} (n, \alpha)$ zde je zanedbatelná, nicméně nepřesnost je, jak vidíme i z rozdílných výsledků značná, F má velmi nízký účinný průřez pro srážku s neutronem a případný produkt má krátký $T_{1/2}$. Přesto se však podařilo F (na rozdíl od měření na VR- 1) detekovat a velmi přibližně určit i jeho množství. Musíme však tato čísla brát s rezervou. U fosilního zubu automat plochu peaku vyhodnotil špatně, proto není uvedena podle ručního výpočtu z ÚJF by měla být reálná hmotnost F v zubu přibližně **16061 μg** (Z RF fluorit). U chybného vyhodnocení vycházela jen asi čtvrtinová hmotnost. Ve všech případech jsou výsledky zaokrouhleny na dvě desetinná čísla (odhadnutá nepřesnost, geometrické nastavení vzhledem k velikosti zubů ji ještě zvýší).

4 Relativní rozložení hustoty neutronů- teorie

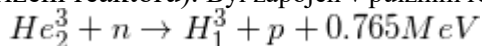
Detekce neutronů je obecně nesnadnou záležitostí. Jedná se o nepřímo ionizující záření, navíc bez odezvy na elektromagnetické pole, detekce je tedy možná pouze nepřímo, běžně pomocí reakcí produkující γ . Detektor je tedy složen z konvektoru, kde vzniká nabitá částice a detektoru těchto částic. Používají se aktivační detektory (nevýhodou je nemožnost okamžitého odečtu-musí se proměřit na γ spektrometru, nemají také spektrometrické vlastnosti, výhodou jsou malé rozměry), dále štěpné komory (založeno na štěpné reakci) nebo plynové (založeno na přímé interakci neutronu s plynem) např. He, B, Li a další.

Rozdělení detektorů je obecně více. Problémem může být zatížení mrtvou dobou (rozdíl mezi časem, kdy do detektoru vnikne jedna částice a dobou kdy je schopen registrovat další. Mrtvá doba může být kumulativní, nebo nekumulativní.

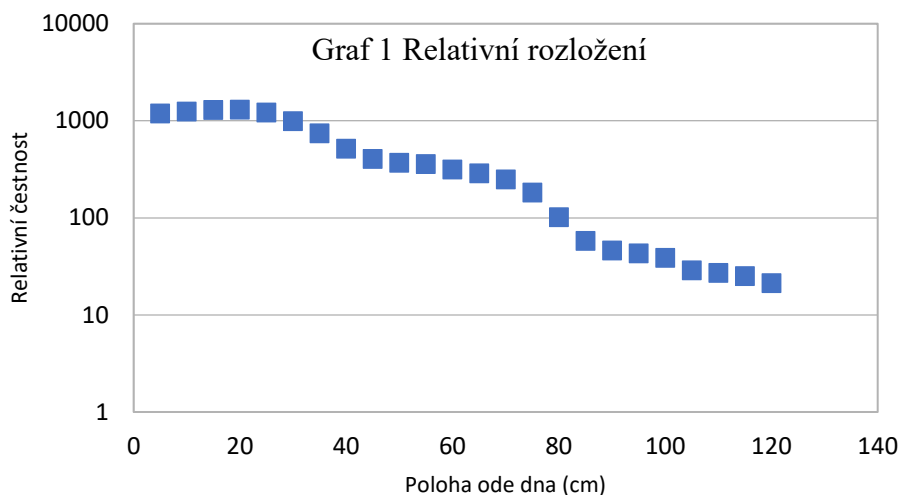
Rozložení hustoty neutronů po výšce reaktoru je velmi důležitým parametrem z hlediska řízení a bezpečnosti reaktoru. Obecně jej lze měřit v moderátoru i v palivu, přičemž v druhém případě se projevují některé zajímavé efekty (reflektorové peaky apod.). Poznamenejme ještě že v našem případě půjde o relativní rozložení-tedy hlavně o tvar křivky. Abychom získali rozložení absolutní, museli bychom vypočítat efektivitu detektoru, což je poměrně komplikovaný počín, obvykle prováděný v systému MCNP.

5 Relativní rozložení hustoty neutronů- zázemí, metodika, výsledky

Použitý detektor byl plynový- heliový. Tyto detektory patří mezi aktivní (potřebují vlastní napájení), diferenciální (informace má diferenciální charakter, registrují okamžité změny a lze je užívat pro řízení reaktoru). Byl zapojen v pulzním režimu (počet pulzů úměrný počtu dopadajících částic). Využívá reakce



Odezvu má hlavně v termální oblasti neutronů (účinný průřez $5330 \cdot 10^{-28}$ barn, klesá úměrně $1/v$), zaznamenanou také v epitermální oblasti. Měřili jsme na reaktoru LR- 0, v referenční zóně (EROS1 As Y 2017, obohacení 3,3%). Detektor byl zaveden do kanálu, spuštěného v reaktoru. Výkon byl poměrně nízký (řádově mezi E2-E4), nestálý. Parametry nastavení zde neuvádím (nejsou přímou součástí úlohy a není na ně prostor, v případně zájmu jsou k dispozici u mne, nebo u pracovníku CV Řež zmíněných v poděkování.), důležité však je, že díky jistým technickým potížím musela být diskriminace γ výrazně vyšší než by bylo ideální. Data byla získávána ze čtyř projektů po výšce reaktoru (dvakrát ze dna nahoru a zpět). Začínalo se 5 cm nade dnem, končilo se 120 cm nad ním. Detektor byl posunován po 5 cm, v každé pozici byla data sbírána 1-2 minuty, (aby se předešlo vlivu případných fluktuací apod.). Získaná data byla vydělena daty z kanálu MK, aby se neutralizoval vliv nestálého výkonu. Celkový průměr dat ze všech měření vypadá takto



Výsledek vcelku odpovídá očekávání, je však třeba okomentovat několik věcí. První se týká, zde poměrně značného vlivu mrtvé doby, na níž nebyla provedena korekce. Očekáváme, že po ní by se poměr hlavního peaku k reflektorovému „peaku“ (nelze nazývat takto, neboť se technický jedná jen o velmi pomalý, konkávní pokles, ne lokální maximum) výrazně zvětšil, neboť zde bylo zahlcení neutrony výrazně vyšší, maximum by tedy bylo výraznější (dle porovnání s podobným měřením z dřívějšíka by mohl být dokonce rozděleno na dva peaky s drobným poklesem mezi nimi, to ale nemáme šanci zaznamenat jak kvůli mrtvé době, tak kvůli malému množství bodů v grafu, vidíme jen pomalejší nárůst). I šířka peaku by se (vzhledem ke zkušenostem na VR-1, patrně zvětšila).

Další poznámkou je, že poloha je uvedena tam, kde detektor končí, samotná detekční část je však umístěna téměř o 4,5 cm výše- nemůžeme tedy získat informace z úplného dna. Poslední důležitou poznámkou je to, že druhý peak, který v grafu vidíme je poněkud plošší a širší, než bychom čekali a než se objevoval na grafech z každého samostatného měření, to je způsobeno zprůměrováním hodnot, neboť v jednotlivých grafech nebylo lokální maximum vždy na přesně stejném místě a v přesně stejném poměru k okolí (vliv nepřesností, fluktuací a jednoho drobného pádu o 0,5 cm dolů v jednom z měření a možná také drobného poklesu hladiny moderátoru v během měření).

6 Poděkování

Chtěla bych touto cestou poděkovat pracovníkům ÚJF a ÚJV / CV Řež za jejich čas a cenné rady. Jmenovitě děkuji pánům Ing. Janu Kameníkovi, Ph.D, Prof. Ing. Janu Kučerovi Cs.C, Ing. Jiřímu Mizerovi, Ph.D., Ing. Michalu Košťálovi, Ph.D., Ing. Vlastimilu Juříčkovi a Ing. Jáně Milčákovi, Ph.D. Dále děkuji KJR FJFI za rychlé zapůjčení heliového detektoru.

Reference

- [1] K. Matějka a kol., Experimentální úlohy na školním reaktoru VR-1, Vydavatelství ČVUT, Praha 2005
- [2] J. Frýbort, L. Heralťová, M. Štefánik, Úvod do reaktorové fyziky, Vydavatelství ČVUT, Praha 2013
- [3] National institute of standards and technology (<https://www.nist.gov/>)
- [4] Table of isotopes, decay data search (<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>)
- [5] M. Košťál, M. Švadleková, P. Baroň, V. Rypar, J. Milčák, Determining the axial power profile of partly flooded fuel in a compact core assembled in reactor LR-0, Annals of nuclear energy, 4/2016