Nem 1/v-s atommagok hatáskeresztmetszetének számítása hidegneutron-nyalábos mérésekben

TDK Dolgozat

Tóth Zsófia

Energetikai mérnöki BSc 3. évfolyam, BME-GPK

Témavezetők:

Dr. Belgya Tamás főigazgató-helyettes
 MTA Energiatudományi Kutatóközpont
 Dr. Kis Dániel Péter egyetemi docens
 BME Nukleáris Technikai Intézet

2016.

Az Emberi Erőforrások Minisztériuma ÚNKP-16-1-I. kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának támogatásával készült

Tartalomjegyzék

1.	BEVEZETÉS	1
2.	REZONANCIÁK ELMÉLETI LEÍRÁSA	5
2.1.	A sugárzásos neutronbefogás hatáskeresztmetszetének elméleti leírása	5
2.2.	Az egynívós Breit-Wigner formula	6
2.3.	A soknívós Breit-Wigner formula	8
2.4.	Az 1/v-s alaktól való eltérés értelmezése	8
3.	HATÁSKERESZTMETSZET-MÉRÉSI MÓDSZEREK	11
3.1	A repülési idő módszer bemutatása	11
3.2	Az MTA-EK budapesti laboratóriumában végzett hatáskeresztmetszet mérések	13
4.	EREDMÉNYEK	18
4.1.	Korrekciós függvények meghatározása önabszorpciómentes esetben illesztéssel	18
4.2.	Korrekciós függvények meghatározása önabszorpciómentes esetben sorfejtéssel	21
4.3.	Kiszámított korrekciós függvények alkalmazási módja önabszorpció-mentes esetben	23
4.4.	Számított korrekciós függvények alkalmazási módja önabszorpciót figyelembe véve	25
5.	ÖSSZEFOGLALÁS	30
6.	KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS	32
7.	IRODALOMJEGYZÉK	33

Kivonat

A magreakciók, köztük a maghasadás valószínűségének egyik fontos jellemzője egy adott atommag hatáskeresztmetszete különböző energiákon. A termikus és alacsonyabb neutron energiákon sok esetben elmondható, hogy ez fordítottan arányos a reakcióban részt vevő neutron sebességével, ezek az úgynevezett 1/v-s atommagok. Egyes, főként a közepesen nehéz vagy nehéz atommagoknál, ahol a neutron rezonanciák sűrűsége nagy, viszont eltérések jelenhetnek meg az 1/v-s alakhoz képest, amelyet figyelmen kívül hagyva hibás eredményt kapunk a hatáskeresztmetszet számítások elvégzésekor. Emiatt a nem 1/v-s atommagok hatáskeresztmetszet adatainak pontosítása kiemelt fontosságú feladat.

A sugárzásos neutronbefogási hatáskeresztmetszetek meghatározása 1/v-s atommagok esetében a reakció gyakoriság mérésével a neutron fluxus ismerete nélkül lehetséges. Ebben az esetben a hatáskeresztmetszetet tetszőleges energián megadhatjuk az úgynevezett komparátor módszer segítségével, mindaddig, amíg a neutron nyaláb energia eloszlása a befogási hatáskeresztmetszet 1/v-s tartományban van [1]. Nem 1/v-s atommagoknál a módszer nem ad helyes eredményt ezért a számítási eljárás módosításra szorul [2].

TDK dolgozatom célja, egy olyan lehetőleg analitikus korrekciós eljárás kidolgozása, amellyel a Budapesti Kutatóreaktornál az 1/v-s feltételezéssel meghatározott neutronbefogási hatáskeresztmetszetek átszámolhatók, amennyiben a hatáskeresztmetszetük nem 1/v-s függést mutat. Ezáltal a módszer nem lesz független más un. differenciális mérésektől, amelyek megadják a hatáskeresztmetszet alakját, de alkalmas lehet azok ellenőrzésére, mint integrális adat. Először pár nem 1/v-s atommag korrekciós faktorát számítom ki az 1/v-s esethez képest elhanyagolható önabszorpció esetére, azaz vékony mintákra, majd önabszorpciótól való függést is figyelembe véve kiszámítom ezt a faktort egy jól jellemzett vastagságú mintára. Az így nyert adatok bekerülhetnek a nukleáris adatbázisokba és felhasználhatók lesznek, mint integrális viszonyítási alap.

Irodalom:

[1] T Belgya, Z Kis, and L Szentmiklósi, Nuclear Data Sheets 119 (2014) 419–421

[2] G Zerovnik, B Becker, T Belgya et al. Systematic effects on cross-section data derived from reaction rates at a cold neutron beam. NIM A 799 (2015) 29-36

fejezet Bevezetés

Rohamosan fejlődő világunkban napról napra növekszik az energiaigény, aminek kielégítését az atomenergia megfelelő ellátásbiztonsággal tudja biztosítani. Atomerőművekben 2015-ben a megtermelt villamos energia 10,9 %-át állították elő, és összesen 13 ország volt ugyanebben az évben, akik legalább energiafelhasználásuk egynegyedét ilyen módon elégítették ki. Ezek az ország közé sorolható Magyarország is, ahol a villamos energiaszükséglet 52,7 %-át nukleáris úton termelték meg [1].

Az atomerőművekben az atommagok hasadása során felszabaduló energia bonyolult folyamatok során hővé alakul, amellyel villamos energia termelhető. A hasadás szabályozott láncreakcióban történik: a maghasadásokkor keletkező neutronok további hasadásokat idéznek elő, úgy, hogy egy atommag hasadáskor keletkező neutronok közül átlagosan egy újabb hasadást idézzen elő a következő ciklusban.

A magreakciók, és ezek között a maghasadás, egyik fontos jellemző mennyisége az atommag hatáskeresztmetszete. A hatáskeresztmetszet segítségével tudjuk kifejezni a magnak egy adott reakcióban való részvételének valószínűségét. Ha szemléletesen akarjuk definiálni, akkor egy atommag hatáskeresztmetszete megegyezik azzal az ütközés irányára merőleges célfelülettel, amit az atommag helyébe képzeletben elhelyezett klasszikus és áthatolhatatlan, kiterjedt test jelent az üköző részecskére nézve. Az atommagok hatáskeresztmetszete a kis energiák tartományában a legtöbb atommag esetében a sebességtől fordítottan arányosan függ, ám számos atommagnál ehhez az úgynevezett 1/v-s alakhoz képest kisebb-nagyobb eltérést találunk.

Az egyes atommagok hatáskeresztmetszetének pontos ismerete nagyon fontos az atomerőművek tervezése, működtetése és leszerelése esetén is. A nem 1/v-s

atommagok esetén a fentebb említett eltérések nagy változást eredményezhetnek a reaktort érintő számítások során, így napjainkban a hatáskeresztmetszet függvényalakjának pontosítása nagyon fontos feladat. Sok az eltérés a hatáskeresztmetszet adatbázisokban fellelhető mérési eredmények kiértékelése között is. Az okok megértése és a legvalószínűbb eredmény meghatározás szintén nagy jelentőséggel bír. Érdekességképp megjegyezhető, hogy a nukleáris energiatermelés szempontjából egyik legfontosabb elem, az U-235 atommagjára sem található kellő mennyiségű mérési adat kis energiák tartományán, ahhoz képest, hogy a legtöbb üzemelő atomreaktor üzemanyagáról van szó.



1. ábra Az U-235 sugárzásos neutronbefogási hatáskeresztmetszetének mért értékei a termikus energia (0,025 eV) körül az EXFOR adatbázisból [2]

A hatáskeresztmetszet adatok között kétfélét különböztethetünk meg: az un. integrálist és differenciálist. Differenciálisadatok mérésénél felbontást kapunk a hatáskeresztmetszetre az energia vagy a szög függvényében. Ha mindkettőt differenciálisan mérjük, kettős differenciális hatáskeresztmetszetről beszélünk Az integrális méréseket általában a differenciális mérések ellenőrzésére használják. Ekkor energia szerint intervallumokban határozzák meg a hatáskeresztmetszetet. Ilyen mérés például az összes atomreaktorban végzett mérés is. Akkor beszélünk a két mérési típus adatának egyezéséről, ha az integrális eredményt megfelelő integrálást követően megkapjuk a differenciális adatokból.

Budapesten az Energiatudományi Kutatóközpontban un. hideg neutronokkal mérnek befogási hatáskeresztmetszeteket különböző anyagoknál. Ezt a komparátor módszerrel (ld. 3.2.) végzik. Mivel a hidegneutron nyaláb energia eloszlása egy olyan véges energiatartományban különbözik nullától, amelyben a hatáskeresztmetszet és a neutron fluxus számottevően változhat, a mérési módszer integrális mérésnek számít [3]. (Megjegyzés: az energiaintervallum még a differenciális módszer esetében is véges, de itt olyan kicsire az választják az energia- vagy szögintervallumot, ha tudják, ahol a változás már analitikusan követhetően kicsi.)

TDK dolgozatom célja, egy olyan korrekciós eljárás kidolgozása, amellyel a Budapesti Kutatóreaktornál az 1/v-s feltételezéssel meghatározott neutronbefogási hatáskeresztmetszetek átszámolhatók, amennyiben a hatáskeresztmetszetük nem 1/vs függést mutat. Ekkor azonban a korrekció eredménye függ attól, amit más kutatócsoportok pl. gyorsítóval keltett pulzált neutron nyaláb alkalmazásával az repülési idő módszerrel mértek.

fejezet Rezonanciák elméleti leírása

2.1. A sugárzásos neutronbefogás hatáskeresztmetszetének elméleti leírása

Az atommagok neutron befogási hatáskeresztmetszetének legegyszerűbb leírását a Breit-Wigner formulák adják meg [4]. A befogási hatáskeresztmetszet energiafüggését alacsony energián intuitíve, azaz ösztönös megérzésre alapozva, úgy érthetjük meg, hogy minél több időt tölt el a neutron az atommag közelében annál valószínűbb, hogy befogódjon Az eltöltött idő fordítottan arányos a neutron sebességével. Ez azt jelenti, hogy $\sigma_1 * v_1 = \sigma_2 * v_2$, vagyis tetszőleges sebességen a hatáskeresztmetszet kifejezhető például a $v_0 = 2200$ m/s ($k = 8,61733 \times 10^{-5}$ eV/K, T = 293,15 K, $E_0 = kT = 25,26$ meV) ún. termikus sebességű neutron befogási hatáskeresztmetszetével a következőképpen:

$$\sigma = \frac{\sigma_0 * v_0}{v} = \frac{\sigma_0 * \sqrt{E_0}}{\sqrt{E}}.$$
(1)

Megjegyzendő, hogy a 293 K fokra termalizálódott, un. Maxwell eloszlású neutronok átlagos energiája $3/2E_0 = 37,9$ meV, átlagos sebessége pedig $2/\sqrt{\pi} v_0 = 2922$ m/s [5].

Kvantummechanikai tárgyalásban az 1/v–s függés a behatolási tényező formájában lép be az *s*, azaz *l* = 0 és a nagyobb pályamomentumú neutronok befogásánál [6]. Nagysága pedig a neutron hullámhosszától és a bennmaradási valószínűségétől függ. Ez utóbbi rendkívül széles határok között mozog, és rezonancia esetében nagy értéket vehet fel.

2.2. Az egynívós Breit-Wigner formula

A Wigner féle R-mátrix elméletből [7] a nem diagonális mátrixelemek elhagyásával az alacsony energiás, l = 0 sugárzásos neutronbefogás hatáskeresztmetszetére a következő formula érvényes [8]:

$$\sigma_{n,\gamma}^{l=0} = \frac{\pi}{k^2} * g_J * \frac{\Gamma(E)_{n,r}\Gamma_{\gamma,r}}{(E-E_r)^2 + \frac{1}{4}\Gamma_r^2}; \ \Gamma_{\gamma,r} = \text{állandó.}$$
(2)

ahol *k* a neutron hullámszáma, *g*_J pedig a spin statisztikai faktor, az *E* a tömegközéppontbeli neutronenergia, amit egy *A* tömegszámú atommaggal történő kölcsönhatás esetén az $E = E_{lab} * A/(A + 1)$ összefüggés határoz meg [8]:

$$g_j = \frac{2J+1}{(2i+1)*(2I+1)'} \tag{3}$$

ahol *I* az atommag kezdeti állapotának spinje, *i* a gerjesztő részecske (neutron) spinje és *J* az összetett atommag vagy másképpen az *r* rezonancia spinje. $\Gamma(E)_{n,r}$ a neutron energiától függő rezonancia szélessége [8],

$$\Gamma_{n,r}(E) = \Gamma_{n,r}(E_r) * \sqrt{\frac{E}{E_r}}$$
(4)

míg a $\Gamma_{\gamma,r}$ a gamma-bomlás szélessége, amely alacsony energián állandó. Végül Γ_r a teljes szélesség, amely a sugárzásos befogásnál a következő összeg [8]:

$$\Gamma_{\gamma} = \Gamma_{nr}(E) + \Gamma_{n,\gamma} \,. \tag{5}$$

Amennyiben egyéb kimenő csatorna is jelen van, például hasadás, akkor az összeg kiegészül a hasadásra jellemző $\Gamma(E)_{n,f}$ szélességgel.

A neutron k hullámszáma fordítottan arányos a λ redukált hullámhosszal, továbbá a neutron alacsony energiáinál [9]:

$$\frac{1}{k^2} = \frac{(\hbar c)^2}{2m_n c^2 E} \,, \tag{6}$$

ahol $m_n c^2$ a neutron tömege energiában (eV) kifejezve, c pedig a fénysebesség. Így a (2) képlet a következőképpen alakul:

$$\sigma_{n,\gamma}^{l=0} = \frac{\pi}{k^2} * g_J * \frac{\Gamma(E)_{n,r} \Gamma_{\gamma,r}}{(E-E_r)^2 + \frac{1}{4} \Gamma_r^2} = \frac{\pi * (\hbar c)^2}{\sqrt{E * E_r} * 2m_n c^2} * g_J * \frac{\Gamma(E_r)_{n,r} \Gamma_{\gamma,r}}{(E-E_r)^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_{n,r}(E_r) * \sqrt{\left(\frac{E}{E_r}\right)} + \Gamma_{\gamma,r})^2} (7)$$

Egy speciális határeset: $E \ll E_r$; $\Gamma_{n,r}(E_r) \ll E_r \wedge \Gamma_{\gamma,r} \ll E_r$

$$\sigma_{n,\gamma}^{l=0} = \frac{\pi * (\hbar c)^2}{\sqrt{E * E_r} * 2m_n c^2} * g_J * \frac{\Gamma(E_r)_{n,r} \Gamma_{\gamma,r}}{E_r^2}$$
(8)

Vagyis a gerjesztési energiához képest távoli és keskeny rezonancia 1/v függést mutat, ilyen tagok összege is 1/v-s. Így tehát az elmélet szerinti képletek visszaadják az ösztönös megérzésen alapuló várakozást.

Egy másik fontos összefüggés, amikor a gerjesztő energia egybeesik a rezonancia energiával:

$$\sigma_{n,\gamma}^{l=0} = \frac{\pi * (\hbar c)^2}{E_r * 2 * m_n c^2} * g_J * \frac{\Gamma(E_r)_{n,r} \Gamma_{\gamma,r}}{\frac{1}{4} (\Gamma_{n,r}(E_r) + \Gamma_{\gamma,r})^2}$$
(9)

ekkor megkaphatjuk a rezonancia amplitúdóját barn egységben (1 barn = 10⁻²⁴ cm²), amely egyes estekben igen nagy értéket vehet fel.

2.3. A soknívós Breit-Wigner formula

Több rezonancia esetén az alábbi összegképlettel kaphatjuk meg az *s*-hullámra vonatkozó (*l*=0) neutronbefogásra vonatkozó hatáskeresztmetszetet [6]:

$$\sigma_{n,\gamma}^{l=0} = \frac{\pi}{k^2} \sum_J \sum_{r=1}^{NR_J} g_J \frac{\Gamma(E)_{n,r} \Gamma_{\gamma,r}}{(E-E_r)^2 + \frac{1}{4} \Gamma_r^2},$$
(10)

ahol *NR*^{*j*} a *J* spinű rezonanciák számát adja meg.

2.4. Az 1/v-s alaktól való eltérés értelmezése

Az atommagok kisenergiás hatáskeresztmetszete nem mindig követi az 1/v-s függést. Ebben az esetben az 1/v-től való eltérést úgy vehetjük például figyelembe, hogy a soknívós Breit-Wigner képlet (10) által az $E_0(v_0)$ energiánál megadott $\sigma(v_0) = \sigma_0$ hatáskeresztmetszet értékét felhasználva a $\sigma(v)$ -t leosztjuk a $\sigma_0 * v_0/v$ függvénnyel. Az így kapott F(v) függvény jellemzi az eltérést:

$$F(v) = \sigma(v) / (\sigma_0 * \frac{v_0}{v}).$$
⁽¹¹⁾

Általában igaz hogy az első egy-két rezonancia az, amelyik felelős az eltérésért. A számításaink során Cd-113-nál elegendő volt az elsőt megfigyelnünk. A gyakorlatban ezt úgy is megvalósíthatjuk, hogy az ENDF adatbázisból vesszük a kompilált hatáskeresztmetszetek¹ pontokban megadott értékeit, amelyeket elosztjuk a σ_0/v_0 értékkel. A kapott értékekre az energia függvényében első-, másod- vagy esetleg harmadfokú polinomot illesztünk. Az illesztést a legkisebb négyzetek módszere

¹ Az eddigi mérési sorozatok eredményei alapján összeállított hatáskeresztmetszet-könyvtár.

alapján végeztem. Ennek szemléltetésére alább közlöm a Cd-113 értékeire történő lineáris, másodfokú, illetve harmadfokú polinomok ábrázolását egy diagramban.



2. ábra A Cd-113 korrekciós függvényének meghatározása elsőfokú, másodfokú, illetve harmadfokú polinom illesztésével

Illesztés fokszáma	Kapott korrekciós függvény	Determinációs együttható (R ²)	
Elsőfokú	$0,758 + 5,51 * 10^{-8}v$	0,988707	
	$0,7618 + 3,75 * 10^{-8}v^2$		
Másodfokú		0,999904	
	$+2,43 * 10^{15}v^4$		
	$0,7613 + 4,06v^2 + 1,32$		
Harmadfokú		0,999999	
	$*10^{-15}v^{4} + 8,98 * 10^{-23}v^{6}$		

1. táblázat A Cd-113 különböző illesztésekkel kapott korrekciós függvényei és az illesztések determinációs együtthatói

Látható a diagramból, valamint a kiszámított illesztési adatokból is megállapítható, hogy a másodfokú és a harmadfokú illesztés között elhanyagolhatóan kicsi a különbség, így a számításaimban az illesztéseket mindig az energia második hatványáig fogom elvégezni.

A fent elmondottakat analitikusan is követhetjük, amennyiben a korrekciós függvény v_0 körül sorba fejthető. Ekkor a Breit-Wigner formulából kiindulva, azt elosztva az (1)es egyenlet alapján $\frac{\sigma_0 * \sqrt{E_0}}{\sqrt{E}}$ – vel, adódik az 1/v-s alaktól való eltérés aránya, majd azt sorba fejtve a termikus neutronok átlagenergiája körül megkaphatjuk a korrekciós függvényt is az energia függvényében. Amennyiben ezt a sebesség függvényében szeretnénk kifejezni, úgy, az $E_{neutron} = \frac{1}{2}m_{neutron}c^2\frac{v_{neutron}^2}{c^2}$ képlettel ezt könnyen megtehetjük.

Számításainkat érdemes mind illesztéssel, mind Taylor-sorfejtéssel elvégezni, hogy lássuk a két számítási mód közötti hasonlóságot. A korrekciós függvény kiszámítása után szükséges a pontosságának ellenőrzése is, amely történhet más mérések eredményeinek összehasonlításával. Azonban ez már nem képezi a TDK dolgozatom részét, viszont a jövőben mindenképpen fontos része lesz a munkámnak.

3. fejezet Hatáskeresztmetszet-mérési módszerek

3.1 A repülési idő módszer bemutatása

Az MTA-EK laboratóriumában a neutronspektrumot repülési idő módszerrel ('timeof-flight' néven és TOF rövidítéssel ismert angol nyelven) mérik meg [10]. A mérés elve igen egyszerű, a fizika alapvető képleteit használja csak fel, ám megvalósítása sokkal bonyolultabb ennél. A módszernek a lényege, hogy neutron energiáját két pont közötti repülési idejének mérésével végzik el. A két pont közötti távolság ismert, a mérés elvégzése után a repülési idő is, így ezek segítségével kiszámítható a neutron sebessége, amelyből már megkapjuk a neutron kinetikus energiáját is.

A kinetikus energia így határozható meg az alábbi képletből:

$$E[MeV] = \frac{1}{2} * m_{neutron}[kg] * v^2 \left[\frac{m^2}{ns^2}\right] = \frac{1}{2} * 1,67 * 10^{-27} kg * \left(\frac{L[m]}{t[ns]}\right)^2 = \left(\frac{72,3*L[m]}{t[ns]}\right)^2 (12)$$

A képletből kiszámítható az energiamérés relatív pontossága, ha a neutrondetektor véges kiterjedéséből adódó hosszmérés bizonytalanságát is átszámítjuk időbizonytalanságra [8]:

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 * \frac{\Delta t}{t} \tag{13}$$

Ebből látható, hogy az időmérés pontossága kétszeresen jelenik meg az energiamérés relatív hibájában. Pár méteres repülési táv választása esetén MeV-es tartományban

történő megfelelő pontosságú energiaméréshez 10⁻¹⁰-10⁻⁹ s pontosságú időmérés szükséges. Azonban termikus energián elegendő a mikro szekundumos pontosság is.

A gyakorlatban általában a repülési idő mérésénél a neutron keletkezése és elnyelődése között eltelt időt mérjük. Ezt megtehetjük úgy, hogy a neutronnal együtt keletkezett részecskét detektáljuk vagy pedig úgy, hogy a neutronokat nagyon rövid ideig, un. pulzált üzemben hozzuk létre. Mindkét esetben elegendően pontosan tudjuk mérni az eltelt időt, így a neutron energiáját kellő pontossággal tudjuk mérni.

Az energiamérés pontosságát adott (rögzített) időmérési pontosság mellett a távolság növelésével javíthatjuk. Ezzel ellentétben, a távolság növelésével a nyaláb intenzitása csökken, ami viszont növeli az energiamérés hibáját. Ez a két feltétel két ellentétes hatást hoz létre, így legtöbbször a repülési távolság növelése és az ésszerű mérési idő között egy kompromisszumot kell létrehozni.

A budapesti PGAA-NIPS berendezésnél egy egyszerű nyalábszaggatós berendezés van, amellyel repülési idő módszerrel megmérték a neutronok térbeli sebességeloszlását. A berendezés fő részei egy neutronvezető, egy nyalábszaggató-tárcsa – úgynevezett chopper -, egy mintatartó, egy detektor, valamint sugárvédelmi célú elemek. Ennek vázlatos képe a 3. ábrán látható.



3. ábra A PGAA nyalábszaggatóval megvalósított repülési idő spektrométer vázlatos rajza

3.2 Az MTA-EK budapesti laboratóriumában végzett hatáskeresztmetszet mérések

A budapesti kutatóközpontban úgynevezett prompt-gamma aktivációs analízis (PGAA) segítségével képesek befogási hatáskeresztmetszeteket mérni [11]. Ezzel a technikával roncsolásmentesen lehet tetszőleges halmazállapotú mintát vizsgálni. A módszer a sugárzásos neutronbefogáson alapul, a mintát besugározzák neutronokkal, amelyben lévő atommagok a neutronok egy részét elnyelik és erősen gerjesztett állapotba kerülnek. A legerjesztődés során keletkező un. prompt-gamma sugárzást a neutronnyalábra merőlegesen elhelyezett HPGE (nagy tisztaságú germánium) γ -detektorral mérik. A minta atommagjai által kibocsátott prompt-gamma sugarak energiája jellemző az őt kibocsátó atommagra, míg az intenzitása a kibocsátó izotóp mennyiségére. Ebből meghatározható, hogy milyen elemekből áll a minta. A prompt-gamma aktivációs analízist a PGAA-NIPS berendezéssel képesek megvalósítani. Ehhez a neutronforrást a Budapesti Kutatóreaktor biztosítja, ami egy 10 MW termikus teljesítményű, könnyűvíz moderátorú és hűtésű, 20%-os dúsítású urán üzemanyaggal

működtetett reaktor. A legnagyobb mért neutronfluxus a fluxuscsapdában 2,5*10¹⁴ neutron/cm²s, és körülbelül 10¹⁴ neutron/cm²s a gyorsneutron-fluxus a gyorsító csatornában [12]. Az eredeti neutronfluxus a reaktor falának közelében a mérések során 3*10⁹ neutron/cm²s-nak adódódott [13].

Az analízis során a reaktorból a hidegneutron-vezetőben érkező neutronnyalábot a mérőhely előtt elhelyezett diafragmával kettéválasztják. A felső nyaláb megy a PGAA detektorhoz, az alsó nyaláb áthalad a PGAA mintakamra alsó felében és a NIPS berendezésbe halad tovább. A minta besugárzása után megjelenő prompt-gamma sugarakból következtethetnek a minta összetételére, illetve a mért reakciógyakoriság segítségével tudják hatáskeresztmetszeteket meghatározni is. A prompt-gamma sugárzás mért csúcsaiból területillesztéssel meghatározott $R_{X_{\gamma}}$ reakciógyakoriság az alábbi képlet segítségével írható le elméletileg [14]:

$$R_{X_{\gamma}} = P_{X_{\gamma}} \int_{V} dr^{3} \varepsilon (E_{\gamma}, \boldsymbol{r}) n_{X}(\boldsymbol{r}) g(E_{\gamma}, \boldsymbol{r}) \int_{0}^{\infty} dv \int_{\Omega} d\boldsymbol{\Omega} * \sigma_{X}(v) \phi(v, \boldsymbol{\Omega}, \boldsymbol{r}, t), \quad (14)$$

ahol $P_{X_{\gamma}}$ a neutront befogott összetett atommag adott E_{γ} energiájú gammasugárzásának kibocsátási valószínűsége, $\varepsilon(E_{\gamma}, \mathbf{r})$ a detektor hatásfoka a \mathbf{r} helyen, t a mérés ideje, V a minta térfogata, $\mathbf{\Omega}$ repülési irányhoz tartozó egységvektor, $n_X(\mathbf{r})$ az \mathbf{r} körüli egységtérfogatban található X típusú atomok száma, $\sigma_X(v)$ az X atommag neutronbefogási hatáskeresztmetszete, $\phi(v, \mathbf{\Omega}, \mathbf{r}, t)$ a vektorfluxus, $d\Omega$ a differenciálisan kis térszög $\mathbf{\Omega}$ körül és $g(E_{\gamma}, \mathbf{r})$ a gamma és neutron abszorpció mértéke a mintában.

A neutron sűrűség minta nélküli képét az 4. ábrán mutatom be a PGAA-NIPS mérőhely esetére. A neutron sűrűség eloszlását repülési idő módszerrel mérték meg [10]. Az x, y helykoordináták (0,7 mm egységben) a csaknem párhuzamos neutron nyaláb irányára merőleges síkban elhelyezett sokszálas (hely érzékeny) neutrondetektorral mért síkbeli helyet adják meg, míg a z koordináta a repülési idő

20 μs egységben mérve (ld. 4 ábra). A megadott fázistér-elemben észlelt neutronok számát a színskála adja meg a TOF mérés alapján.



4. ábra A kutatóreaktor PGAA-NIPS neutronnyalábjának képe

Analitikus megoldást adni a (14) egyenletre igen nehéz, így gyakorlatban általában Monte Carlo szimulációkat használnak a kiszámítására, ám a következő pár feltételezéssel elkerülhetjük, hogy a neutron transzport egyenletet a minta belsejében ne kelljen megoldanunk:

- a minta hatáskeresztmetszetét 1/*v*-snek tekintjük, így a következő összefüggés írható fel: $\sigma(v) = \sigma(v_0) \frac{v_0}{v}$,
- homogén mintát feltételezünk, így az atomsűrűség független a helytől,
- a fluxus időben állandó,
- a gamma és neutron szórása a mintának elhanyagolható, azaz g=1,
- a detektálás hatásfokának változása nagyon kicsiny a mintában, azaz független a helytől.

Ezen feltételezésekkel az előző egyenletünk a következőre egyszerűsödik:

$$R_{X_{\gamma}} = P_{X_{\gamma}} \varepsilon \left(E_{\gamma} \right) n_X \sigma_X(v_0) v_0 \frac{1}{v} \int_V d\mathbf{r}^3 \int_{\Omega} d\Omega \int_0^\infty dv N(v, \mathbf{\Omega}, \mathbf{r})$$
(15)

A képletben található hármas integrál megadja a neutronok számát (*N*) a *V* térfogatú mintánkban. Ha felhasználjuk, hogy $\sigma_{X_{\gamma}} = P_{X_{\gamma}}\sigma_X(v_0)$ és, hogy $\phi_0 = \frac{v_0N}{V}$, akkor tovább egyszerűsödik a kifejezésünk:

$$R_{X_{\gamma}} = \varepsilon(E_{\gamma}, \boldsymbol{r}) n_X \sigma_{X_{\gamma}} \phi_0.$$
(16)

Ez az összefüggés egy nagyon vékony, homogén mintára érvényes. Ha alacsony hatáskeresztmetszetet feltételezünk, és a minta egy ismeretlen X elem és egy ismert C komparátor homogén keveréke, akkor az előző egyenletünket felírva a komparátor elemre, majd elosztva az X-re felírt egyenlettel, megkaphatjuk az X elem $\sigma_{X_{\gamma}}$ parciális gammakeltési hatáskeresztmetszetét [14]:

$$\sigma_{X_{\gamma}} = \sigma_{C_{\gamma}} \frac{R_{X_{\gamma}}}{R_{X_{\gamma}}} \frac{n_{C}}{n_{X}} \frac{\varepsilon(E_{C\gamma})}{\varepsilon(E_{X\gamma})} \frac{f(E_{C\gamma})}{f(E_{X\gamma})}.$$
(17)

A *C* index mindenhol a komparátor atommagra utal, $f(E_{\gamma})$ pedig a neutron és a gamma abszorpciót figyelembe vevő korrekciós faktor. A (17) egyenlet legnagyobb erlőnye, hogy nem tartalmazza az általában nehezen mérhető fluxust. Minden olyan eljárást, ahol a (17)-es képletet használják, komparátor módszernek nevezzük (a komparátor kifejezés helyett nukleáris adatok mérésénél gyakran a monitor szót használják és ekkor monitoros mérésnek mondjuk). A Budapesti Kutatóreaktorban is a különböző anyagok hatáskeresztmetszetének kiszámítására ezt a módszert alkalmazták. A mérőhely 3D-s modelljét az 5. ábra mutatja be.



5. ábra A PGAA-NIPS berendezés 3D-s modell képe [15]

4. fejezet Eredmények

4.1. Korrekciós függvények meghatározása önabszorpciómentes esetben illesztéssel

Néhány atommag esetére illesztéssel meghatároztunk korrekciós függvényeket, amelyek segítségével leírható az 1/v-s alaktól való eltérésük. Ezek az atommagok az Ar-38, a Co-59, a Rh-103, a Cd-113, a Sm-154, a Gd-155, a Gd-157, az Er-167, a Lu-175, a Lu-176, a Ta-181, a Am-241 voltak. A korrekciós függvények meghatározásakor az 1/v-s alaktól számított eltérést ábrázoltuk az energia függvényében a kis energiák tartományában, 10-5 eV-tól 0,05 eV-ig körülbelül 80-90 pontban. A kapott pontokra görbét illesztettünk, majd ezen görbe egyenletének meghatározásával megkaptuk az eltérést leíró függvényeket. Ezek közül az Ar-38, Sm-154 és a Co-59 esetében az elsőfokú, másodfokú, illetve harmadfokú illesztett görbékre nem illeszkedtek jól a pontok, így itt ilyen módszerrel nem lehetett a korrekciós függvényt meghatározni. A másik kilenc esetben az energia függvényében egyenesnek vagy másodfokú parabolának adódtak az illesztett korrekciós függvények. A felsorolt elemek közül számításaimat az Am-241-gyel és a Cd-113-mal folytattam tovább, mivel azokra megfelelő mennyiségű adat állt rendelkezésre, amiket fel tudtam dolgozni. E két atommagra bemutatom az 1/v-s alaktól való eltérését az energia függvényében kis energiákon, valamint alább megadom pontokra illesztett görbéket és azok egyenletét.



6. ábra A Cd-113 hatáskeresztmetszetének 1/v-s alaktól való eltérése a neutron energiájának függvényében, valamint az ábrázolt pontokra illesztett görbe és egyenlete



7. ábra Az Am-241 hatáskeresztmetszetének 1/v-s alaktól való eltérése a neutron energiájának függvényében, valamint az ábrázolt pontokra illesztett görbe és egyenlete

Az illesztéssel kapott korrekciós függvények ekkor még energia szerint vannak megadva. Ám a későbbiekben a nem *1/v*-s atommagokra vonatkozó számításoknál szükséges, hogy a sebesség függvényében írjuk fel az *F* korrekciós faktorunkat. Ezt úgy tudjuk megtenni, ha az illesztéssel kapott függvénybe az energia helyére az alábbi behelyettesítést alkalmazzuk:

$$E_{neutron} = \frac{1}{2} m_{neutron} v_{neutron}^2$$
(18)

Fontos, hogy az energia estünkben eV mértékegységben szerepel a korrekciós függvényben, így a mozgási az $\frac{1}{2}m_{neutron}$ szorzatot eV * s²/m² mértékegységben kell behelyettesítenünk (így $\frac{1}{2}m_{neutron} = 5,21 * 10^{-9}$ eV * s²/m²). A korrekciós függvény a két atommag esetében:

$$F(v)_{Cd-113} = 0.76 + 3.75 * 10^{-8} * v^2 + 2.44 * 10^{-15} v^4$$
⁽¹⁹⁾

$$F(v)_{Am-241} = 1,06 - 1,47 * 10^{-8} * v^2 + 5,42 * 10^{-16} v^4,$$
⁽²⁰⁾

ahol a sebességet m/s-ban kell behelyettesíteni a képletekbe.

A meghatározott korrekciós függvényeket ezek után a budapesti kutatóreaktorban mért neutronspektrummal kell összeintegrálni, így a kapott korrekciós függvényekkel a korábban 1/*v*-s feltételezéssel számított hatáskeresztmetszetek pontosíthatók, így a valósághoz jobban közelítő eredmények kaphatók.

4.2. Korrekciós függvények meghatározása önabszorpciómentes esetben sorfejtéssel

A korrekciós függvény meghatározása nem csak már meglévő adatokra történő görbe illesztésével lehetséges, hanem a Breit-Wigner formulából kiindulva sorfejtéssel is. Először a Breit-Wigner formulát el kell osztanunk az (1)-es képletben szereplő $\frac{\sigma_0 * \sqrt{E_0}}{\sqrt{E}}$ kifejezéssel, hogy megkapjuk a korrekciós függvény alakját. Ezt az összefüggést kell Taylor-sorba fejtetnünk a termikus pont körül (E=0,0253 eV), a neutronenergia függvényében. Az ehhez szükséges felhasznált adatokat a Cd-113-ra alább közlöm:

E _R	0,179 eV
g_j	1,5
Γ_n	0,00032 eV
Γ _r	0,1135 eV

2. táblázat A Taylor-sorfejtéshez felhasznált adatok Cd-113 esetén [16]

A sorfejtést másodrendig végezzük el. Az így kapott bonyolult összefüggésbe helyettesítve a rendelkezésre álló adatokat, megkapjuk a korrekciós függvény közelítő alakját az energia függvényében eV mértékegységben. Ezután az összefüggést át kell írni úgy, hogy a változója a neutron sebessége legyen, ugyanúgy, mint az előző esetben, mivel a további számításokat csak ilyen alakkal tudjuk könnyebben elvégezni. A konstans tag változatlan marad, mivel az nem függ sem a neutron energiájától, sem a sebességétől, míg az első- és másodfokú tagban az energia változó helyett be kell vezetnünk a sebességet, mint változót, úgy, mint az illesztéses esetben. Ezáltal a sebesség függvényében kapunk egy negyedfokú összefüggést, amit össze kell hasonlíthatunk az illesztéssel kapott korrekciós függvénnyel. A Cd-113-ra kiszámított *F*(*E*), illetve *F*(*v*) korrekciós függvény Taylor-sorfejtéssel:

$$F(E) = 96,28E^2 + 6,308E + 0,79$$
⁽²¹⁾

$$F(v) = 2,61 * 10^{-15}v^4 + 3,29 * 10^{-8}v^2 + 0,79$$
⁽²²⁾

Látható, hogy a (19) és (21), illesztéssel és a Taylor-sorral kapott korrekciós függvény között van egy kis eltérés. Ez magyarázható azzal, hogy míg az illesztésnél a kompilált adatokat használtam, amely az összes rezonancia hatását figyelembe veszi, addig a Taylor-sorba helyettesítésnél a Breit-Wigner formula szerint csak az első rezonanciát vettem figyelembe, továbbá az illesztésnél a nagyszámú alacsony energiás adatnak a súlyozása sokkal nagyobb, mint a nagyobb energiáké és így ez is hozzájárulhat az eltéréshez. Ezeknek a pontosabb megértése további vizsgálatot igényel.

Az illesztéssel és a Taylor-sorfejtéssel kapott korrekciós függvényeket a következő diagramban ábrázolom.

Látható, hogy az eltérések ellenére közel ugyanazokat a függvényeket kaptuk meg, így a számításaim helyesnek bizonyulnak.



8. ábra A Cd-113 illesztéssel, illetve sorfejtéssel kapott korrekciós függvényeinek összehasonlítása

4.3. Kiszámított korrekciós függvények alkalmazási módja önabszorpciómentes esetben

A kiszámított F(v) korrekciós függvények a 2. fejezetben leírtak alapján képlettel így definiálhatók:

$$F(v) = \frac{\sigma_{\chi}(v)}{\left(\sigma_{0}\frac{v_{0}}{v}\right)} = \frac{\sigma_{\chi}(E)}{\left(\sigma_{0}\sqrt{\frac{E_{0}}{E}}\right)}.$$
(23)

Az F(v) függvény segítségével nem 1/v-s atommagok esetére a reakciógyakoriság a (14)-es képlet átalakításával az alábbiak szerint számolható:

$$R_{X_{\gamma}} = \frac{P_{X_{\gamma}}\varepsilon(E_{\gamma})n_X}{V} \int_V dr^3 \int_{\Omega} d\Omega \int_0^\infty d\mathbf{v} * F_x(\mathbf{v})N(\mathbf{v}, \Omega, \mathbf{r}).$$
(24)

Ahhoz, hogy minden esetben könnyen megkapjuk az $R_{X_{\gamma}}$ -t, az

$$I = \int_{V} dr^{3} \int_{\Omega} d\mathbf{\Omega} \int_{0}^{\infty} d\mathbf{v} * F_{x}(v) N(v, \mathbf{\Omega}, \mathbf{r})$$
(25)

integrált érdemes meghatároznunk az illesztéssel és sorfejtéssel számolt korrekciós függvényekkel is.

Ezt numerikus integrálással oldottam meg. A számított adatokat a 3-as táblázat tartalmazza.

Megnevezés	<i>F(v)</i> korrekciós függvény	Az I integrál értéke
F(v)=1 esetén kapott érték (1/v-s atommagokra)	1	124,06
Cd-113/illesztéssel kapott értékek	$0,76 + 3,75 * 10^{-8} * v^{2}$ $+2,44 * 10^{-15}v^{4}$	107,81
Cd-113/Taylor-sorfejtéssel kapott értékek	$0,79 + 3,29 * 10^{-8}v^2 + 2,61 * 10^{-15}v^4$	110,43
Am-241/illesztéssel kapott értékek	$1,06 - 1,47 * 10^{-8} * v^{2}$ $+5,42 * 10^{-16} v^{4}$	128,75

3. táblázat A különböző esetekben kapott integrálértékek önabszorpciómentes esetben

Az integrál értékei mellett érdemes még meghatározni az $I / \int_0^\infty dv N(v)$ hányadost, azaz a normált integrál értékét is. Ez azért fontos, mert míg az integrál értéke még függ a neutronok számától, a hányados értéke, már egy ettől független, a függvény alakját jellemző érték. Az eredményeket a 4-es táblázat tartalmazza.

Megnevezés	Az I/ $\int_0^\infty dv N(v)$ hányados értéke
Cd-113/illesztéssel kapott értékek	0,869
Cd-113/Taylor-sorfejtéssel kapott értékek	0,890
Am-241/illesztéssel kapott értékek	1,030

4. táblázat Az integrálok hányadosai a három különböző esetben önabszorpciót elhanyagolva

4.4. Számított korrekciós függvények alkalmazási módja önabszorpciót figyelembe véve

A fentebb felírt képletek $R_{X_{\gamma}}$ -ra, illetve az ezekből számított adatok mindaddig igazak, amíg a mintánk végtelen vékonynak tekinthető, azaz amíg mintánkban az önabszorpciót elhanyagolhatjuk. Ám, ha már a mintának nem elhanyagolható a vastagsága, figyelembe kell vennünk az önabszorpció miatti változásokat is Ebben az esetben a (24)-es képletet ki kell egészíteni az önabszorpciót kifejező taggal:

$$R_{X_{\gamma}} = \frac{P_{X_{\gamma}}\varepsilon(E_{\gamma})n_X}{V} \int_V dr^3 \int_{\Omega} d\Omega \int_0^\infty dv * F_x(v)N(v,\Omega,r)e^{-F_X(v)\sigma_0\frac{v_0}{v}n_xAr_x}$$
(26)

ahol r_x a minta vastagsága. Az erre az esetre vonatkozó

$$I=\int_{V} dr^{3} \int_{\Omega} d\Omega \int_{0}^{\infty} dv * F_{x}(v) N(v, \Omega, r) e^{-F_{X}(v)\sigma_{0}\frac{v_{0}}{v}n_{x}Ar_{x}}$$
(27)

integrál értékét mindhárom korrekciós függvénnyel számolva meghatároztam. A mérések alapján az Am-241 esetében 0,07 mm, a Cd-113-nál 0,03 mm mintavastagságot feltételeztem. Az eredményeket az 5. táblázatban találhatók.

Megnevezés	Mintavastagság	I integrál értéke	Az $I / \int_0^\infty dv N(v)$ hányados értéke
Cd-			
113/illesztéssel	0,03 mm	28,35	0,991
kapott értékek			
Cd-113/Taylor-			
sorfejtéssel	0,03 mm	28,44	0,994
kapott értékek			
Am-			
241/illesztéssel	0,07 mm	12,317	1,005
kapott értékek			

5. táblázat Az integrálok értékei a három különböző esetben az önabszorpciót figyelembe véve

Összefoglalásképp három különböző esetben mutatom be a három korrekciós függvénnyel kiszámított (27) integrálokat (9-12. ábrák).



9. ábra A keresett integrálok argumentumai a Cd-113 illesztéssel kapott korrekciós függvényét felhasználva



10. ábraA keresett integrálok argumentumai a Cd-113 Taylor-sorfejtéssel kapott korrekciós függvényét felhasználva



11. ábraA keresett integrálok argumentumai az Am-241 illesztéssel kapott korrekciós függvényét felhasználva



12. ábra A Cd-113 illesztéssel, illetve Taylor-sorfejtéssel kiszámított korrekciós függvényeivel kijött integrálok argumentumainak összehasonlítása

Az elvégzett számítások legnagyobb előnye és haszna, hogy elég megadnunk a teljes F(v) függvény integrálja helyett, a v^2 és a v^4 normált integrálok értékét, amelyek segítségével megadható a teljes F(v) függvény normált integrálja. Továbbá az illesztéses eljárással más atommagokra is meghatározhatók a v^2 és a v^4 együtthatói és így kiszámítható a korrekciós F(v) függvény normált integrálja is.

5. fejezet Összefoglalás

A TDK dolgozatomban igyekeztem minél pontosabban megvizsgálni a nem 1/v-s atommagok hatáskeresztmetszetének energia, illetve neutronsebességtől való függését. Az 1/v-s atommagokkal történő összehasonlításomban nyilvánvalóvá vált, hogy szükséges valamilyen korrekció alkalmazása a nem 1/v-s atommagokkal történő számítások során, mivel e nélkül nagy hibák jelenhetnek meg az eredményekben.

Az eltérések figyelembe vételére ideális egy F(v) korrekciós függvényt definiálnunk, amely a kérdéses nem 1/v-s atommag és az 1/v-s atommagok neutronsebesség-függő hatáskeresztmetszetének hányadosát írja le.

Az F(v) korrekciós függvény kiszámítását többféleképpen is elvégeztem: illesztéssel, valamint Taylor-sorfejtéssel a termikus pont ($v_{neutron} = 2200$ m/s) körül. Az eredményekből látható volt, hogy nincs jelentős eltérés a két különbözőképpen kiszámított függvény között. Az így kapott F(v) korrekciós függvények segítségével, numerikus integrálással, kiszámítottam a reakciógyakoriságot leíró képletben a korrekciós függvényt is tartalmazó integrált. Ezt kétféleképpen végeztem ezt el: az első esetben egy végtelen vékony mintát feltételezve, az önabszorpció elhanyagolásával, a második esetben egy kiterjedt, ám még mindig vékonynak mondható (0,03 mm-es) mintára az önabszorpció figyelembe vételével. Sokkal kisebb különbségek jelentek meg az illesztéssel, illetve a Taylor-sorfejtéssel kapott korrekciós függvényekkel kiszámított numerikus integrálok eredményei között mind az önabszorpciómentes és az önabszorpciót figyelembe vevő esetben.

A jövőben célom a korrekciós függvények pontosítása, illetve a számításaim elvégzése MCNP program segítségével is, aminek köszönhetően remélhetőleg sokkal pontosabb, és a valóságot még jobban leíró eredményeket fogok kapni.

6. fejezet Köszönetnyilvánítás

Szeretnék köszönetet mondani témavezetőmnek, Dr. Belgya Tamásnak és konzulensemnek, Dr. Kis Dániel Péternek a sok segítségért, amivel hozzájárultak a TDK dolgozatom elkészítéséhez! Emellett köszönet illeti az MTA Energiatudományi Kutatóközpontját és BME Nukleáris Technika Intézetét a támogatásért, amit a munkám készítése során nyújtottak!

7. fejezet Irodalomjegyzék

[1] Internet forrás: <u>http://www.nei.org/Knowledge-Center/Nuclear-Statistics/World-Statistics</u>

[2] Internet forrás: https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm

[3] G. Zerovnik et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics A 799, p. 29-36 (2015)

[4] J. Wigner, L. Eisenbud, Higher angular momenta and long range resonance interaction (1947)

[5] Zs. Révay, T. Belgya, Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis (szerk: G. Molnár, Kluwer Academic Press, 2004)

[6] F. H. Fröhner, Evaluation and Analysis of Nuclear Resonance Data, OECD JEFF Report 18 (2000)

[7] J. M. Blatt, V. F. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics (John Wiley & Sons, New York, 1952)

[8] Z. Seres, Z. Zámori, Neutronfizika (szerk. Kiss Dezső és Quittner Pál, Akadémiai Kiadó, Budapest, 1971

[9] Internetes forrás: <u>http://www.tankonyvtar.hu/hu/tartalom/tamop412A/2011-</u> 0064 50 bevezetes a transzportelmeletbe/ar01s11.html

[10] T. Belgya et al., Nuclear Data Sheets 119., p. 419-421 (2014)

[11] Internetes forrás: http://www.iki.kfki.hu/nuclear/research/chopper_hu.shtml

[12] Internetes forrás: http://www.kfki.hu/brr/indexen.htm

[13] L. Rosta, Appl. Phys. A 74 [Suppl.], S52–S54 (2002)

[14] T. Belgya et al., JRC Scientific and Technical reports EUR LA-NA-23883-EN-C p. 21-26 (2010)

[15] Internetes forrás: http://www.iki.kfki.hu/nuclear/instruments/pgaa_hu.shtml

[16] P. Schillebeeckx et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics and in Research B 300, p. 11-29 (2013)