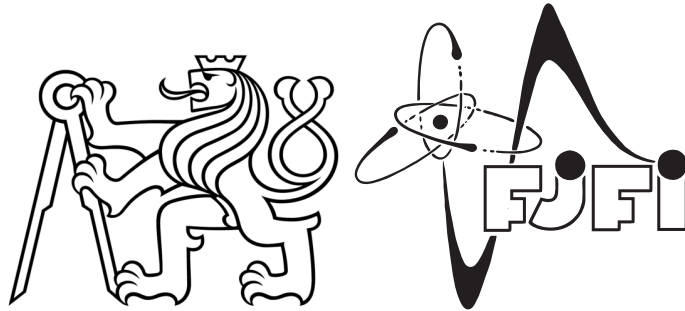


ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Katedra jaderných reaktorů
Obor: Jaderné inženýrství



Implementace metod stanovení obohacení uranových vzorků

Implementation of methods for determination of uranium samples enrichment

DIPLOMOVÁ PRÁCE

Vypracoval: Bc. Branislav Belko
Vedoucí práce: Ing. Tomáš Bílý, Ph.D.
Rok: 2022



ZADÁNÍ DIPLOMOVÉ PRÁCE

Student:	Bc. Branislav Belko
Studijní program:	Jaderné inženýrství
Specializace:	Jaderné reaktory
Název práce česky:	Implementace metod stanovení obohacení uranových vzorků
Název práce anglicky:	Implementation of methods for determination of uranium samples enrichment

Pokyny pro vypracování:

1. V návaznosti na výzkumný úkol popište využívané radiační signatury a přístrojové vybavení potřebné pro metody stanovení obohacení uranových vzorků, resp. stanovení množství ^{235}U ve vzorku pomocí gama spektrometrie a pomocí generátoru neutronů a detekce zpožděných neutronů.
2. Navrhněte a proveďte experiment ke stanovení obohacení na KJR dostupných vzorků uranových pelet a uranových vzorků využívaných pro demonstraci měření zpožděných neutronů pomocí gama spektrometrie. U stejných vzorků navrhněte a proveďte experiment využívající generátor neutronů a detekci zpožděných neutronů pro stanovení množství ^{235}U ve vzorku. Oba experimenty podrobně popište.
3. Proveďte výpočetní simulaci experimentu s generátorem neutronů a detekcí zpožděných neutronů. Porovnejte výsledky získané zkoumanými metodami s charakteristikami vzorků dodanými vedoucím práce. Výsledky diskutujte a popište zdroje nejistot použitých metod.
4. Diskutujte možnosti uplatnění obou metod ve výuce a vědecké činnosti na KJR, jejich výhody a omezení.

Doporučená literatura:

- [1] KNOLL, Glenn F. *Radiation Detection and Measurement*. 4th ed. New York: Wiley-Academy, 2010. ISBN 978-0470131480.
- [2] REILLY D., N. ENNSLIN a S. Hastings Jr. *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*. Washington D.C.: USNRC, 1991. ISBN 0-16-032724-5
- [3] TOHAMY M. et al. Passive Non-Destructive Assay based on gamma-ray spectrometry to verify UO₂ samples in the form of powder and pellet. *Annals of Nuclear Energy*. 2016, **87**, 186-191. DOI: 10.1016/j.anucene.2015.09.001. ISSN: 0306-4549.
- [4] LEE, T., H. SHIN a H. KIM. *Delayed Neutron Measurement in High Frequency Mode and Its Application to the Determination of Fissile Content in Spent Fuel Assembly*, In: 2011 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, Valencie: IEEE, 2011. DOI: 10.1109/NSSMIC.2011.6154458.

Jméno a pracoviště vedoucího práce:

Ing. Tomáš Bílý, Ph.D.
KJR FJFI ČVUT v Praze

Jméno a pracoviště konzultanta:

Ing. Ondřej Huml, Ph.D.
KJR FJFI ČVUT v Praze

Datum zadání diplomové práce:

18. 10. 2021

Datum odevzdání diplomové práce:

2. 5. 2022

Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.

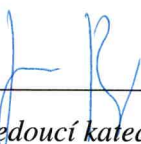
V Praze dne 18. 10. 2021

doc. Ing. Tomáš Trojek, Ph.D.



Garant studijního programu

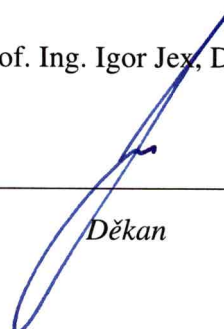
Ing. Jan Rataj, Ph.D.



Vedoucí katedry



prof. Ing. Igor Jex, DrSc.




Děkan

Prehlásenie

Prehlasujem, že som svoju diplomovú prácu vypracoval samostatne a použil som iba podklady uvedené v priloženom zozname.

V Prahe dňa 9.5.2022


.....
Bc. Branislav Belko

Podakovanie

Ďakujem svojmu školiteľovi p. Ing. Tomášovi Bílému, Ph.D. za vedenie pri tvorbe tejto diplomovej práce, za trpezlivosť a usmerňujúce konzultácie.

Bc. Branislav Belko

Název práce:

Implementace metod stanovení obohacení uranových vzorků

Autor: Bc. Branislav Belko

Studijní program: Jaderné inženýrství

Specializace: Jaderné reaktory

Druh práce: Diplomová práce

Vedoucí práce: Ing. Tomáš Bílý, Ph.D.
Katedra jadrových reaktorov
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská
České vysoké učení technické v Praze

Konzultant: Ing. Ondřej Huml, Ph.D.
Katedra jadrových reaktorov
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská
České vysoké učení technické v Praze

Abstrakt: V práci sú najprv teoreticky popísané metódy stanovenia obohatenia uránu, konkrétne ide o metódu gama spektrometrie a o metódu využívajúcu DD generátor neutrónov a detekciu oneskorených neutrónov. Následne sú opísané realizované experimenty s DD generátorom neutrónov a k nim potrebné vybavenie. Ďalej sú opisované simulácie týchto experimentov realizované pomocou výpočetného kódu Serpent2. Súčasťou práce je aj popis gama skektrometrického experimentu a HPGe detektora. Záver práce tvorí diskusia o skúmaných experimentálnych metódach.

Kľúčové slová: Obohatenie uránu, DD generátor neutrónov HPGe, Serpent2

Title:

Implementation of methods for determination of uranium samples enrichment

Abstract: This thesis firstly deals with the methods determining uranium enrichment, particularly the gamma spectrometry method and the method utilizing DD neutron generator and detection of delayed neutrons. Next, the experiments with the DD neutron generator are described as well as the necessary equipment. Then, the simulations of the experiments in Serpent2 code are described. The thesis also includes a description of the gamma spectrometric experiment and HPGe detector. Finally, the studied experimental methods are discussed.

Key words: Uranium enrichment, DD neutron generator, HPGe, Serpent2

Obsah

1 Úvod	1
2 Teoretický popis vybraných metód	2
2.1 Metóda detekcie oneskorených neutrónov s využitím generátora neutrónov	2
2.1.1 Popis metódy	3
2.2 Metóda gama spektrometrie	4
2.2.1 Gama spektrometrická metóda bez potreby etalónu	8
2.2.2 Gama spektrometrická metóda s použitím etalónu	9
3 Experimenty využívajúce metódu oneskorených neutrónov a jeho simulácie	11
3.1 Popis použitých vzoriek a experimentálneho vybavenia	11
3.1.1 Použité vzorky	11
3.1.2 Generátor neutrónov	12
3.1.3 Detektor neutrónov	13
3.1.4 Polyetylénový blok	15
3.1.5 Zariadenie RedPitaya	16
3.2 Popis experimentu zo dňa 26.11.2021	17
3.2.1 Získané dáta	17
3.3 Popis experimentu zo dňa 15.2.2022	19
3.3.1 Získané dáta	19
3.4 Popis experimentu zo dňa 11.3.2022	20
3.4.1 Získané dáta	21
3.5 Popis simulácií realizovaných experimentov	22
3.5.1 Popis geometrie a vstupných údajov	22
3.5.2 Overenie predpokladu pomeru štiepenia ^{235}U a ^{238}U	25
3.5.3 Stacionárne simulácie experimentov	26
3.6 Vyhodnotenie experimentov a stacionárnych simulácií	27
3.7 Určovanie obohatenia uránu	30
3.8 Nestacionárne simulácie experimentov	36
4 Experimenty založené na gama spektrometrickej metóde	38
4.1 HPGe detektor	38
4.2 Popis experimentu	39
4.3 LabSOCS	40
4.4 Namerané dáta a ich vyhodnotenie	44
5 Diskusia	48
6 Záver	50
Referencie	51

Zoznam obrázkov

1	Rozdelenie pauzy pre detekciu oneskorených neutrónov [3]	3
2	Vysčítaná početnosť neutrónov cez počet pulzov [3]	4
3	Podiel aktivít ^{234m}Pa a ^{238}U v čase	7
4	Gama spektrum uránovej vzorky s obohatením 4,473 % [7]	8
5	Početnosť detekovaných gama žiarení pre dve rôzne energetické rozmedzia [7]	10
6	Početnosť detekovaného gama žiarenia s energiou 185,7 [7]	10
7	Vzorka peletiek	12
8	Vzorka ES05	12
9	Schéma generátora neutrónov [10]	12
10	Výťažok neutrónov pre DD a DT reakciu [10]	13
11	Schéma proporcionálneho detektora [11]	14
12	Generátor neutrónov a detektor neutrónov [13]	15
13	Pôdorys základného bloku [14]	15
14	Umiestnenie základného polyetylénového bloku	16
15	Sčítané namerané dáta po cykloch pri meraní pozadia a vzorky ES06	18
16	Sčítané namerané dáta po cykloch pri meraní s peletkami	18
17	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	19
18	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	19
19	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	20
20	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	20
21	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	22
22	Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	22
23	Pôdorys polyetylénového bloku vo výške 12,5 cm vytvorený výpočtovým kó- dom Serpent2 pri simulácii	23
24	Bokorys polyetylénového bloku vytvorený výpočtovým kódom Serpent2 pri simulácii	24
25	Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre všetky vzorky z experimentov realizovaných roku 2021 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	28
26	Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre ampulové vzorky z experimentov realiza- ných roku 2021 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	28
27	Priemerný počet detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022 vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené po- lynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	29

28	Priemrný počet detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022 vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	29
29	Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre všetky vzorky z experimentov realizovaných roku 2022 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	30
30	Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre ampulové vzorky z experimentov realizovaných roku 2022 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky	30
31	Deklarované a stanovené hodnoty obohatenia ampulových vzoriek z experimentov realizovaných roku 2021	31
32	Deklarované a stanovené hodnoty obohatenia ampulových vzoriek z experimentov realizovaných roku 2022	31
33	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=10,97$ g/cm^3 z experimentu z roku 2021	33
34	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=11,865$ g/cm^3 z experimentu z roku 2021	33
35	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=10,97$ g/cm^3 z experimentov realizovaných roku 2022	34
36	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=11,865$ g/cm^3 z experimentov realizovaných roku 2022	34
37	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES19 z experimentu realizovaného roku 2021	35
38	Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES19 z experimentov realizovaných roku 2022	35
39	Znázornenie časových košov detektora a pulzov neutrónov na simulovanom časovom úseku	36
40	Základná schéma polovodičového detektora [11]	38
41	Typická detekčná účinnosť HPGe detektora použitého v [8]	39
42	Umiestnenie vzorky ES17 v HPGe detektore	40
43	Editor na vytváranie geometrie ampúl softvéru LabSOCS	42
44	Znázornenie umiestnenia vzorky ES17 v softvéri LabSOCS	42
45	Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie ampulových vzoriek	45
46	Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie vzorky ES17 pre variant s hustotou $10,97 g/cm^3$	46
47	Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie vzorky ES17 pre variant s hustotou $11,865 g/cm^3$	46

Zoznam tabuliek

1	Neutrónové charakteristiky izotopov ^{235}U a ^{238}U v osemskupinovom delení [2]	3
2	Charakteristiky gama liniek z rozpadu ^{235}U a ^{238}U , resp. ^{234m}Pa [6]	7
3	Obohatenie vzoriek použitých v experimentoch	11
4	Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 26.11.2021	18
5	Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 15.2.2022	20
6	Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 11.3.2022	21
7	Hmotnosti ampúl a vypočítané hustoty zmesi parafrínu a oxidu uránu	25
8	Vypočítané reakčné rýchlosti a pomery štiepenia v jednotlivých vzorkách	26
9	Vypočítané reakčné rýchlosti a N_{sim} pre geometriu experimentov z roku 2021	27
10	Vypočítané reakčné rýchlosti a N_{sim} pre geometriu experimentov z roku 2022	27
11	Pomery P_{sim} , P_{exp} a ich relatívne rozdiely pre geometriu experimentov z roku 2021	28
12	Priemerné hodnoty detekovaných oneskorených neutrónov pre geometriu experimentov z roku 2022	29
13	Pomery P_{exp} , P_{sim} a ich relatívne rozdiely pre geometriu experimentov z roku 2022	30
14	Určené obohatenia ampulových vzoriek pre experimenty z roku 2021	31
15	Určené obohatenia ampulových vzoriek pre experimenty z roku 2022	31
16	Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $10,97 \text{ g/cm}^3$ pre experiment z roku 2021	32
17	Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $11,865 \text{ g/cm}^3$ pre experiment z roku 2021	32
18	Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $10,97 \text{ g/cm}^3$ pre experimenty z roku 2022	33
19	Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $11,865 \text{ g/cm}^3$ pre experimenty z roku 2022	34
20	Vyhodnotenie simulácií pre vzorku ES19 pre experiment z roku 2021	35
21	Vyhodnotenie simulácií pre vzorku ES19 pre experimenty z roku 2022	35
22	Nameraný priemerný počet oneskorených neutrónov v časovom intervale 4 ms až 9 ms v experimentoch z roku 2022	37
23	Počet oneskorených neutrónov v časovom intervale 4 ms až 9 ms získaných pomocou nestacionárnej simulácie	37
24	Hodnoty P_{ES06}^{sim} a P_{ES06}^{exp} a ich relatívny rozdiel	37
25	Hmotnostné zlomky jednotlivých prvkov zadávané do softvéru LabSOCS	41
26	Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre ampulové vzorky	43
27	Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre vzorku ES17	43

28	Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre rôzne uvažované hmotnosti uránu vo vzorke ES06	44
29	Plochy pod píkmi energií 185,7 keV a 1001 keV za hodinu	44
30	Obohatenia ampulových vzoriek určené pomocou gama spektrometrickej metódy	45
31	Obohatenia pre rôzne varianty vzorky ES17 určené pomocou gama spektro- metrickej metódy	45
32	Obohatenia pre rôzne teoreticky uvažované hmotnosti uránu vo vzorke ES06 určené pomocou gama spektrometrickej metódy	47

Zoznam skratiek

FJFI Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

HPGe Germánium s vysokou čistotou

Zoznam symbolov a veličín

O (%) Obohatenie

N (–) Počet jadier

λ (1/s) Rozpadová konštanta

β (–) Neutrónový podiel

T (ms) Doba trvania jedného cyklu

A (1/s) Aktivita

$N(t)$ Počet jadier vo vzorke v čase

$A_{pod}(t)$ Podiel aktivít ^{234m}Pa a ^{238}U v čase

t (dni) Čas

E_γ (keV) Energia gama žiarenia

I_s ($\gamma/s - g$) Špecifická intenzita

S (–) Plocha pod píkom

I (%) Intenzita

ε (–) Detekčná účinnosť

k (–) Korekcia na zoslabenie gama žiarenia

$T_{\frac{1}{2}}$ (s) Polčas rozpadu

μ (cm^2/g) Hmotnostný zoslabovací koeficient

d (mm) Hrúbka vzorky

m_U (g) Hmotnosť uránu

U (kV) Elektrické napätie

I (μA) Prúd častíc

σ_{He} (b) Účinný prierez pre (n,p) reakciu na ^3He

V (cm^3) Objem

E_{el} (r) Veľkosť elektrického poľa

r (cm) Vzdialenosť od anódy

N_{dn} (–) Počet detekovaných oneskorených neutrónov

\bar{N}_{dn} (–) Priemerná hodnota detekovaných oneskorených neutrónov vzorky

$R_{Serpent}$ (–) Reakčná rýchlosť získaná výpočtovým kódom Serpent2
 E (eV) Energia
 $\Phi(r,E)$ (cm^{-3}) Neutrónový tok
 ρ (g/cm^3) Hustota
 R_I (–) Reakčná rýchlosť pre štípenie ^{238}U vzhľadom na jeden neutrón
 R_f^8 (–) Reakčná rýchlosť pre štípenie vo vzorke vzhľadom na jeden neutrón
 R_{II} (–) Reakčná rýchlosť pre (n,p) reakciu na 3He vzhľadom na jeden neutrón
 N_{sim} (–) Simulovaná veličina úmerná počtu detekovaných oneskorených neutrónov
 N_{det}^u (–) Úmernosť
 P_{sim} (–) Pomer simuláciou určených hodnôt úmerných počtu detekovaných oneskorených neutrónov dvoch vzoriek
 P_{exp} (–) Pomer počtu detekovaných oneskorených neutrónov dvoch vzoriek
 σ_{rel} (–) Relatívny rozdiel
 m_{235} (g) Hmotnosť ^{235}U vo vzorke
 $\sigma_{relativ}$ (%) Relatívna neistota
 w (%) Hmotnostný zlomok
 S' (1/h) Plocha pod píkom za hodinu
 P (–) Pravdepodobnosť
 Z (–) Atómové číslo

1 Úvod

Schopnosť stanoviť obohatenie uránu je dôležitá v mnohých oblastiach palivového cyklu ako je napríklad jeho výroba či transport. Z pomedzi mnohých metód sa diplomová práca zaoberá stanovovaním obohatenia v uránových vzorkách pomocou gama spektroskopickú metódu a pomocou metódy využívajúcej generátor neutrónov a detekciu oneskorených neutrónov. Obe tieto metódy sú bližšie popísané v druhej kapitole. Tým táto práca nadväzuje na bakalársku prácu ako aj na výskumnú úlohu, ktoré sa zaoberali rovnakou tematikou. Za účelom určenia obohatenia uránu boli realizované experimenty založené na týchto metódach. Celkovo bolo v experimentoch použitých sedem vzoriek, pričom šesť z nich malo rovnakú geometriu a hmotnosť uránu. Každá z použitých vzoriek mala iné obohatenie uránu. Všetky realizované experimenty prebiehali v priestoroch katedry jadrových reaktorov FJFI.

V experimentoch založených na metóde generátora neutrónov a detekcii oneskorených neutrónov bol používaný DD generátor neutrónov, ktorý bol spolu so vzorkami a detektorom neutrónov umiestnený do ožarovacej sústavy. Každá zo vzoriek bola premeraná niekoľkokrát, pričom boli použité dva rôzne spôsoby umiestňovania vzoriek do ožarovacej sústavy. Z nameraných dát bol určený počet detekovaných oneskorených neutrónov pre každú z premeriavaných vzoriek. Následne bolo z týchto hodnôt určené obohatenie uránu a to dvoma rôznymi spôsobmi. Pre vzorky s rovnakou geometriou bola použitá metóda lineárnej interpolácie, resp. lineárnej extrapolácie v prípade vzoriek s najnižším a najvyšším obohatením. Obohatenie uránu jednotlivých vzoriek bolo určované zo znalosti počtu detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch a obohatenia ostatných vzoriek. Druhý spôsob určovania obohatenia uránu vo vzorkách bol založený na simuláciách jednotlivých meraní. Tieto simulácie boli realizované pomocou výpočetného kódu Serpent2. Pomocou neho boli stanovené relatívne odozvy detektora pre jednotlivé merania, z ktorých bolo následne možné určiť obohatenie uránu vo vzorke. Taktiež boli realizované simulácie, ktoré potvrdili predpoklad pre realizáciu týchto experimentov. Boli realizované aj ukázkové simulácie, ktorých výsledkom bol celkový počet detekovaných oneskorených neutrónov. Popis a vyhodnotenie experimentov, popis potrebného vybavenia rovnako ako aj popis simulácií a ich vyhodnotení sú uvedené v tretej kapitole.

V prípade gama spektroskopických metód sú popísané dve experimentálne metódy stanovovania obohatenia uránu. Ide o metódy s využitím resp. bez využitia sady etalónov. Druhou skupinou realizovaných experimentov boli tie, ktoré boli založené na gama spektroskopickú metóde bez využitia sady etalónov. V týchto experimentoch, ktoré sú opísané v štvrtej kapitole, bola každá zo vzoriek premeraná práve raz pomocou HPGe detektora. Pomocou nameraných gama spektier, niekoľkých konštánt a detekčnej účinnosti bolo možné stanoviť obohatenie uránu vo vzorkách. Detekčná účinnosť použitého HPGe detektora bola získaná softvérom LabSOCS.

Práca je zakončená diskusiou, piatou kapitolou, v ktorej sú uvedené výhody a nevýhody metód, na ktorých boli založené realizované experimenty. Sú diskutované možnosti implementácie týchto metód do výukového procesu a do vedeckej činnosti katedry jadrových reaktorov FJFI.

2 Teoretický popis vybraných metód

V problematike určovania obohatenia uránu ide o určenie množstva ^{235}U , resp. o určenie jeho podielu v skúmanej vzorke. Jedným zo spôsobov ako obohatenie určiť, sú experimenty založené na radiačných metódach. Táto práca je zameraná na dve konkrétne metódy, a to na metódu využívajúcu detekciu oneskorených neutrónov s využitím generátora neutrónov a metódu gama spektrometrie. V prípade metódy detekcie oneskorených neutrónov ide o metódu, ktorá spočíva v ožarovaní uránových vzoriek neutrónmi. Následne sa pomocou detektorov zbierajú dáta o počte vyprodukovaných oneskorených neutrónov, z ktorých je možné následne stanoviť obohatenie uránu vo vzorke. Metóda gama spektrometrie pracuje s primárnymi charakteristikami žiarenia izotopu ^{235}U a s charakteristikami žiarenia dcérskych jadier samovoľného rozpadu izotopu ^{238}U . Dcéorskými jadrami sú označované izotopy vznikavšie pri prirodzenom rozpade materského jadra, v tomto prípade pri rozpade izotopu ^{238}U . Niektoré dcérske jadrá rovnako ako jadrá uránu podliehajú prirodzenému rozpadu, pri ktorom je produkované gama žiarenie, ktoré je detekovateľné. Z dát získaných týmto spôsobom je taktiež možné stanoviť obohatenie uránu.

Obohatenie uránu vo vzorke definuje nasledovným spôsobom

$$O = \frac{N_{235}}{N_{235} + N_{238}}, \quad (1)$$

kde N_{235} predstavuje počet jadier ^{235}U vo vzorke a N_{238} predstavuje počet jadier ^{238}U vo vzorke.

2.1 Metóda detekcie oneskorených neutrónov s využitím generátora neutrónov

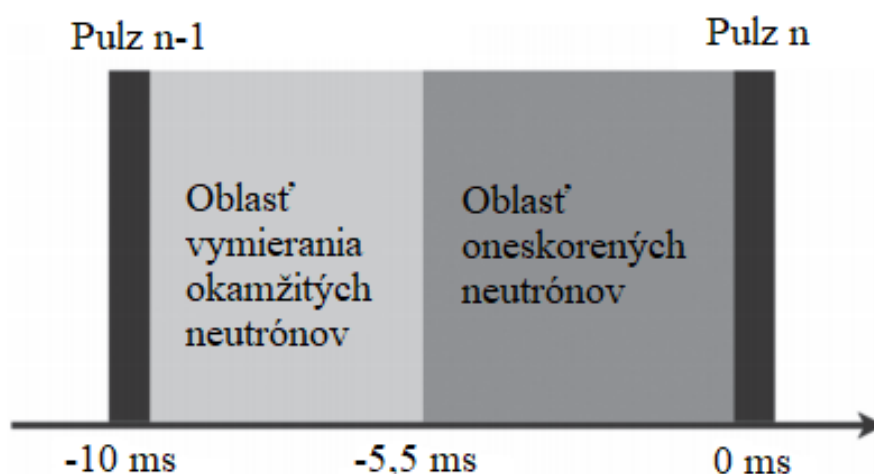
V rámci tejto metódy sa využíva generátor neutrónov za účelom štiepenia jadier uránu. Pri štiepení sa uvoľňuje energia, zväčša dochádza aj k uvoľneniu neutrónov a vznikajú štiepne produkty. Niektoré zo štiepných produktov, ako napríklad ^{87}Br , nazývame prekurzormi oneskorených neutrónov. Vznik oneskorených neutrónov je možné ilustrovať na príklade izotopu ^{87}Br . Tento izotop podlieha beta rozpadu, pričom produktom tejto premeny je ^{87}Kr . Avšak takto vzniknuté jadro ^{87}Kr sa nachádza v excitovanom stave. Jadrá ^{87}Kr následne emitujú neutrón, čím sa stabilizujú. Tieto neutróny sú však oproti neutrónom, ktoré vznikli pri primárnom štiepení jadier uránu časovo oneskorené [1]. Oneskorené neutróny majú pre oba izotopy uránu rôznu charakteristiku. Je možné ich rozdeliť do ôsmich alebo poprípade do šiestich skupín. V tabuľke [1] sú uvedené dáta rozpadovej konštanty λ a neutrónového podielu β pre izotopy ^{235}U a ^{238}U pri delení na osem skupín. Neutrónový podiel β je možné zdefinovať ako podiel oneskorených neutrónov danej skupiny k celkovému výťažku neutrónov. Dolný index 5 resp. 8 pri veličinách λ a β poukazuje na izotop ^{235}U resp. ^{238}U [2]. Dáta v tabuľke [1] sú prevzaté z knižnice JEFF 3.1.

Tab. 1: Neutrónové charakteristiky izotopov ^{235}U a ^{238}U v osemskupinovom delení [2]

Skupina	$\lambda_8(1/s)$	$\lambda_5(1/s)$	$\beta_8(-)$	$\beta_5(-)$
1.	0,012467	0,012467	0,000139	0,000218
2.	0,028292	0,028292	0,001716	0,001023
3.	0,042524	0,042524	0,000619	0,000605
4.	0,133042	0,133042	0,002260	0,001310
5.	0,292467	0,292467	0,004850	0,002200
6.	0,666488	0,666488	0,003270	0,000600
7.	1,634781	1,634781	0,002110	0,000540
8.	3,554600	3,554600	0,001536	0,000152

2.1.1 Popis metódy

Metóda je založená na ožarovaní vzorky pomocou pulzov neutrónov, ktoré sú vytvorené generátorom neutrónov a na následnej detekcii oneskorených neutrónov. Počas pulzu generátor neutrónov vytvára neutróny, ktoré vo vzorke vyvolávajú štiepnu reakciu. Po pulze nasleduje pauza, počas ktorej generátor neutrónov neprodukuje neutróny. Počas pauzy je možné detekovať okamžité a oneskorené neutróny a neutróny pochádzajúce z generátora neutrónov. Pauzu je možné rozdeliť na dve časti. V prvej časti pauzy sa nachádza oblasť, v ktorej sa okrem oneskorených neutrónov vyskytujú aj okamžité neutróny. Ich pôvod je v primárnom štiepení uránu. Taktiež sa v tejto oblasti môžu vyskytnúť neutróny, ktoré pochádzajú z generátora neutrónov. V druhej oblasti sa vyskytujú iba oneskorené neutróny. Rozdelenie pauzy jedného cyklu je možné vidieť na obrázku [1] [3].

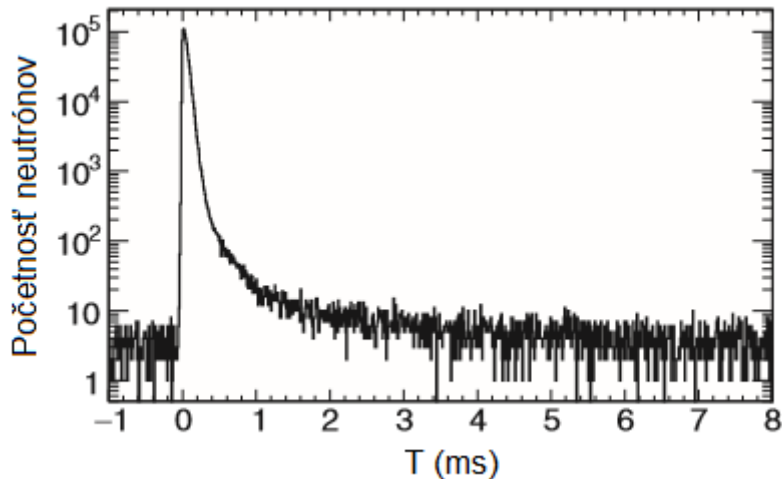


Obr. 1: Rozdelenie pauzy pre detekciu oneskorených neutrónov [3]

Takéto rozdelenie pauzy jedného cyklu generátora neutrónov, ktorej hranicou medzi oblasťami je čas 5,5 ms, bolo použité v práci [3]. V práci [1] bolo použité podobné časové rozdelenie, hranicou medzi oblasťami bol v tomto prípade čas 5 ms.

Počet neutrónov je možné sčítať cez počet cyklov. To znamená, že sa sčítajú početnosti detekovaných neutrónov v jednotlivých časových úsekoch vo všetkých cykloch. Teda vo vysčítanom cykle je uvedený súčet všetkých neutrónov, ktoré boli v danej časovej fáze každého cyklu detekované.

Vysčítaný cyklus je možné vidieť na obrázku [2]. Ide o typický priebeh detekovaných neutrónov v cykle [3].



Obr. 2: Vysčítaná početnosť neutrónov cez počet pulzov [3]

Stanovenie obohatenia uránu vo vzorke pomocou metódy oneskorených neutrónov, ktoré sú indukované generátorom neutrónov, je možné realizovať nasledovne. Medzi uránovú vzorku a generátor neutrónov sa umiestni vhodný moderačný materiál. Ten zaručí termalizáciu väčšiny neutrónov, a teda tie neutróny, ktoré prichádzajú do vzorky, nemajú v prevažnej väčšine prípadov dostatočnú energiu aby štíepili ^{238}U . V prípade, že je možné zanedbať štíepenie jadier ^{238}U , je následne možné všetky detekované oneskorené neutróny považovať za tie, ktoré prináležia štíepeniu ^{235}U . Avšak je potrebné doložiť splnenie tohoto predpokladu. Za týmto účelom je možné použiť simuláciu realizovaného experimentu, ktorá preukáže, že väčšina štíepených jadier v skúmanej vzorke boli jadrá ^{235}U . Určenie obohatenia uránu vo vzorke s neznámym obohatením je možné s použitím etalónu a simulácie experimentu.

2.2 Metóda gama spektrometrie

Táto metóda stanovenia obohatenia uránu je založená na meraní charakteristického gama žiarenia, ktoré vzniká pri prirodzenom rozpade jadier uránu, poprípade pri prirodzenom rozpade ich dcérskych jadier. V prípade izotopu ^{235}U je dosahovaná dostatočná emisia fotónov gama, preto sa môže na určovanie množstva ^{235}U vo vzorke použiť meranie tohoto charakteristického gama žiarenia. Z dôvodu nedostatočnej emisie gama žiarenia izotopu ^{238}U sa pre stanovenie jeho množstva vo vzorke využíva jeho ^{234m}Pa [4]. Izotop ^{238}U sa rozpadá alfa rozpadom s polčasom rozpadu $4,468 \cdot 10^9$ rokov. Týmto spôsobom vznikajú izotopy ^{234}Th , ktoré sa rozpadajú beta rozpadom s polčasom rozpadu 24,1 dňa. Rozpadom týchto izotopov získavame izotopy ^{234m}Pa , ktoré sa ďalej rozpadajú s polčasom rozpadu 1,17 minúty [5]. V prípade

merania charakteristického gama žiarenia ^{234m}Pa pre určenie množstva ^{238}U vo vzorke musí byť splnená podmienka ustáleného stavu. Ide o taký stav, pri ktorom je aktivita ^{238}U takmer rovnaká ako aktivita ^{234m}Pa . Aktivitu definujeme nasledovne

$$A_i(t) = \lambda_i N_i(t), \quad (2)$$

kde $A_i(t)$ označuje aktivitu i-tého izotopu v čase, λ_i je označenie pre rozpadovú konštantu tohoto izotopu a $N_i(t)$ znázorňuje množstvo jadier tohoto izotopu v skúmanom priestore. Čas potrebný pre dosiahnutie ustáleného stavu je možné určiť pomocou výpočtu nasledovnej sústavy lineárnych diferenciálnych rovníc

$$\frac{dN_U(t)}{dt} = -\lambda_U \cdot N_U, \quad (3)$$

$$\frac{dN_T(t)}{dt} = -\lambda_T \cdot N_T + \lambda_U \cdot N_U, \quad (4)$$

$$\frac{dN_P(t)}{dt} = -\lambda_P \cdot N_P + \lambda_T \cdot N_T, \quad (5)$$

kde dolný index U odkazuje na izotop ^{238}U , dolný index T odkazuje na izotop ^{234}Th a dolný index P odkazuje na izotop ^{234m}Pa . Počiatočné podmienky tejto sústavy rovníc sú dané predpokladom, že v čase $t=0$ je k dispozícii vzorka obsahujúca len urán bez akýchkoľvek dcérskeho jadier. Túto podmienku zapisujeme nasledovne

$$N_U(0) = N_U^0, \quad (6)$$

$$N_T(0) = 0, \quad (7)$$

$$N_P(0) = 0, \quad (8)$$

Uvedenú sústavu rovníc je možné riešiť pomocou metódy variácie konštánt. Týmto spôsobom je možné získať nasledovné tvary riešení daných rovníc, pričom rovnica [3](#) bola úplne vyriešená pomocou metódy integračného faktoru:

$$N_U(t) = N_U^0 \cdot e^{-\lambda_U t}, \quad (9)$$

$$N_T(t) = C_T(t) \cdot e^{-\lambda_T t}, \quad (10)$$

$$N_P(t) = C_P(t) \cdot e^{-\lambda_P t}. \quad (11)$$

Následne je rovnica [10](#) dosadená do rovnice [4](#) a rovnica [11](#) dosadená do rovnice [5](#). Tým získame

$$\frac{dC_T(t)}{dt} = e^{\lambda_T t} \lambda_U N_U(t) = N_U^0 \lambda_U e^{(\lambda_T - \lambda_U)t}, \quad (12)$$

$$\frac{dC_P(t)}{dt} = e^{\lambda_P t} \lambda_T N_T(t). \quad (13)$$

Ako je možné vidieť v rovnici [13](#), tak za účelom nájsť funkciu $C_P(t)$ je najprv nutné určiť tvar funkcie $C_T(t)$. Ten je možné určiť riešením rovnice [12](#). Týmto riešením je funkcia

$$C_T(t) = C_T^0 + N_U^0 \lambda_U \frac{e^{(\lambda_T - \lambda_U)t}}{\lambda_T - \lambda_U}. \quad (14)$$

Potom pomocou počiatkovej podmienky [7](#) je možné určiť hodnotu integračnej konštanty C_T^0 , čím získame tvar funkcie $N_T(t)$. Ten je nasledovný

$$N_T(t) = \frac{N_U^0 \lambda_U}{\lambda_T - \lambda_U} (e^{-\lambda_U t} - e^{-\lambda_T t}), \quad (15)$$

rovnakým spôsobom určíme aj tvar funkcie $C_P(t)$, čím získame tvar funkcie $N_P(t)$. Ten môžeme zapísať nasledovne

$$N_P(t) = \frac{N_U^0 \lambda_U \lambda_T}{\lambda_T - \lambda_U} \left(\frac{e^{-\lambda_P t} - e^{-\lambda_T t}}{\lambda_P - \lambda_T} + \frac{e^{-\lambda_U t} - e^{-\lambda_P t}}{\lambda_P - \lambda_U} \right). \quad (16)$$

Následne je možné z rovnice [16](#) za pomoci [9](#) a [2](#) vyjadriť podiel aktivít izotopov ^{234m}Pa a ^{238}U . Ten má po úprave nasledovný tvar

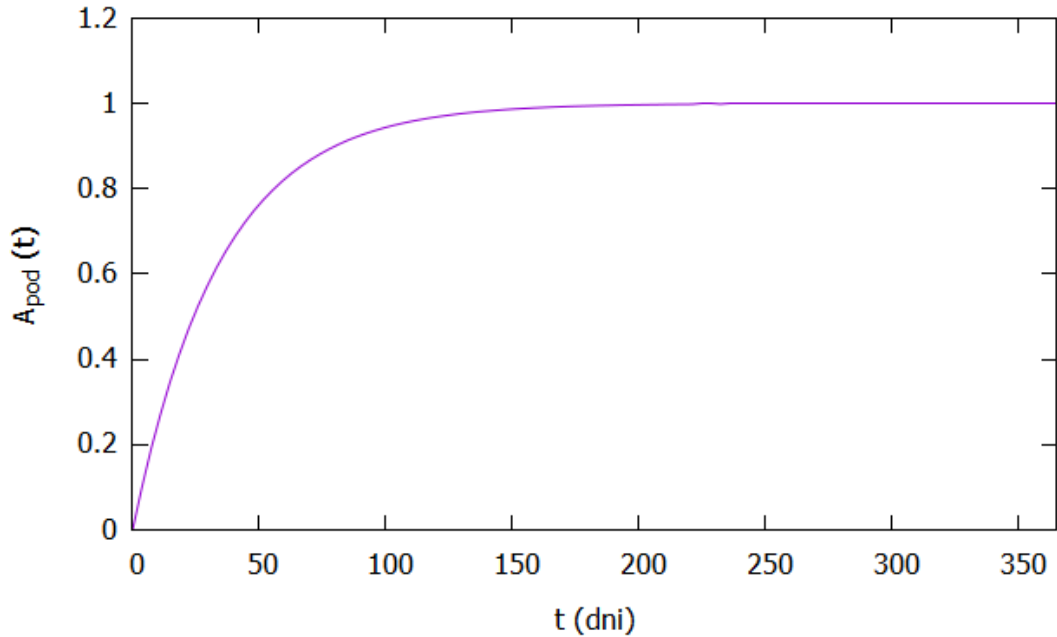
$$A_{pod} = \frac{A_P(t)}{A_U(t)} = \frac{\lambda_T \lambda_P}{\lambda_T - \lambda_U} \left(e^{(\lambda_U - \lambda_P)t} \frac{\lambda_T - \lambda_U}{(\lambda_P - \lambda_T)(\lambda_P - \lambda_U)} - \frac{e^{(\lambda_U - \lambda_T)t}}{\lambda_P - \lambda_T} + \frac{1}{\lambda_P - \lambda_U} \right) \quad (17)$$

Vzhľadom na to, že polčas rozpadu ^{238}U je značne vyšší ako sú polčasy rozpadov ^{234}Th a ^{234m}Pa sú koeficienty obidvoch exponenciál záporné. Z toho vyplýva, že táto funkcia konverguje pre čas smerujúc to nekonečna ku

$$\lim_{t \rightarrow \infty} A_{pod}(t) = \frac{\lambda_T \lambda_P}{(\lambda_T - \lambda_U)(\lambda_P - \lambda_U)} \approx 1 \quad (18)$$

Teda je dokázané, že po istom čase bude aktivita ^{238}U a aktivita ^{234m}Pa takmer rovnaká. Taktiež sa týmto ukázalo, že po dostatočne dlhom čase je rozdiel aktivít ^{238}U a ^{234m}Pa natoľko malý, že nie je potrebné nameranú aktivitu ^{234m}Pa prenasobovať korekčným faktorom za účelom určenia aktivity ^{238}U .

Na obrázku [3](#) je znázornený časový priebeh tohoto pomeru aktivít.



Obr. 3: Podiel aktivít ^{234m}Pa a ^{238}U v čase

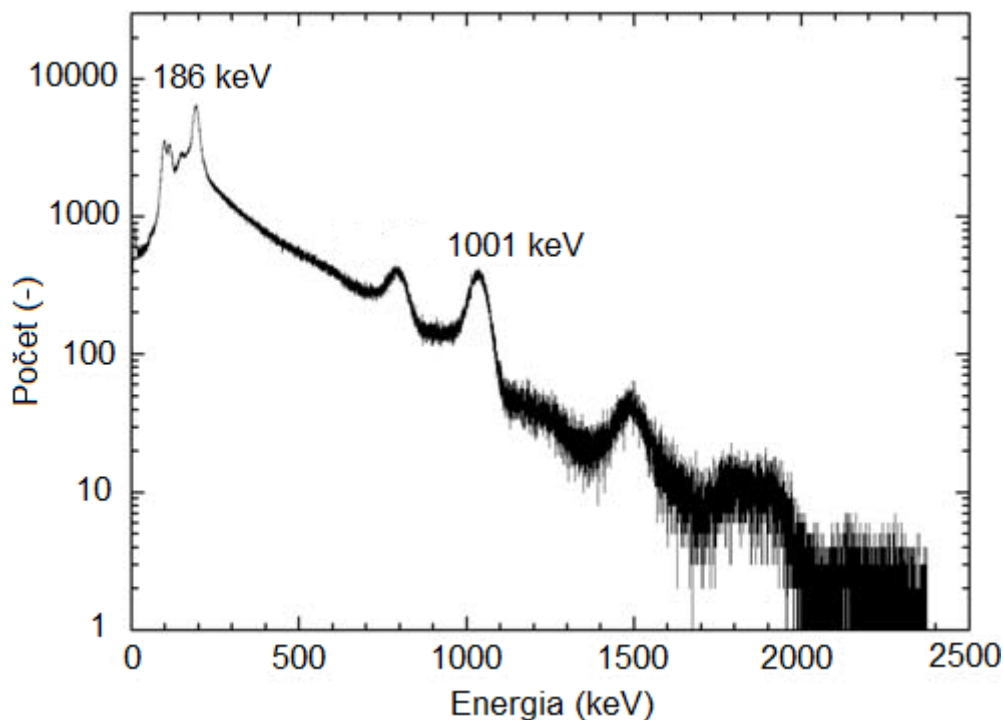
Ako je možné vidieť na tomto obrázku, po približne 150 dňoch sa pomer aktivít ustálil na hodnote približne rovnej jednej. Z toho vyplýva, že po približne 150 dňoch od narušenia rovnováhy aktivít vo vzorke, ktorá obsahuje ^{238}U dosiahne aktivita ^{234m}Pa takmer rovnakú hodnotu, a teda je možné použiť meranie charakteristického gama žiarenia. Takéto narušenie je možné dosiahnuť napríklad pri chemickom spracovaní uránovej rudy.

Najvýznamnejšie charakteristické gama linky pre izotopy ^{235}U a ^{234m}Pa a ich špecifické intenzity, ktoré sú označované ako I_s , je možné vidieť v tabuľke [2]. Špecifická intenzita predstavuje početnosť emitovaných gama žiarení vztiahnutú na gram daného izotopu.

Tab. 2: Charakteristiky gama liniek z rozpadu ^{235}U a ^{238}U , resp. ^{234m}Pa [6]

Izotop	$E_\gamma(\text{keV})$	$I_s(\gamma/s - g)$
^{235}U	143,8	$7,8 \cdot 10^3$
^{235}U	163,4	$3,7 \cdot 10^3$
^{235}U	185,7	$4,3 \cdot 10^4$
^{235}U	202,1	$8,0 \cdot 10^2$
^{235}U	205,3	$4,0 \cdot 10^3$
^{234m}Pa	742,8	7,1
^{234m}Pa	766,4	26
^{234m}Pa	786,3	4,3
^{234m}Pa	1001,0	75

Gama spektrum uránovej vzorky je znázornené na obrázku [4]. Toto energetické spektrum bolo namerané pomocou scintilačného detektora, konkrétne typom NaI(Tl) [7].



Obr. 4: Gama spektrum uránovej vzorky s obohatením 4,473 % [7]

2.2.1 Gama spektrometrická metóda bez potreby etalónu

Jedna z možností, ako stanoviť obohatenie uránu, je založená na premeraní uránovej vzorky pomocou HPGe detektora. Zo získaného gama spektra je možné určiť plochu pod píkmí energií najvýdatnejších gama liniek jednotlivých izotopov. Ako je možné vidieť v tabuľke [2] v prípade izotopu ^{235}U ide o gama linku s energiou 185,7 keV a v prípade ^{238}U , resp. $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ide o gama linku s energiou 1001,0 keV. Pomocou týchto plôch pod píkmí, detekčných účinností a intenzít gama liniek je možné určiť podiel aktivít uvedených izotopov ako

$$\frac{A_{235}}{A_{238}} = \frac{S_{235} \cdot I_{238} \cdot \varepsilon_{238}}{S_{238} \cdot I_{235} \cdot \varepsilon_{235}}, \quad (19)$$

kde S znázorňuje detekovaný počet fotónov príslušných energií, A predstavuje aktivitu, I predstavuje intenzitu príslušnej gama linky a ε je detekčná účinnosť príslušnej gama linky [8]. Dolné indexy jednotlivých veličín odkazujú na izotop ^{235}U , resp. na izotop ^{238}U . Hodnoty veličín S_{235} a S_{238} sú získavané experimentálne a hodnoty detekčných účinností gama liniek sú získavané pomocou kalibrácie detektora. Hodnoty I_{235} a I_{238} boli určené z dostupných tabuliek ako $I_{235} = 57,2\%$ a $I_{238} = 0,837\%$ [5]. Následne s pomocou definície aktivity [2] a definície obohatenia [1] je možné určiť obohatenie uránu vo vzorke nasledovne

$$O = \frac{1}{1 + \frac{A_8 \lambda_5}{A_5 \lambda_8}}, \quad (20)$$

kde λ_5 a λ_8 predstavujú rozpadové konštanty. Pomer týchto dvoch konštát bol určený ako 6,348 [5].

Existuje ďalší spôsob, ktorým je možné určiť obohatenie uránu vzorky, avšak len v prípade, ak ideá o dostatočne tenkú vzorku resp. fóliu. Táto metóda je založená na sledovaní gama

liniek izotopov ^{231}Th a ^{234}Th . Ide o dcérske jadrá oboch skúmaných izotopov uránu, konkrétne rozpadom ^{235}U vzniká ^{231}Th a rozpadom ^{238}U vzniká ^{234}Th . Tieto izotopy tória sa taktiež rozpadajú a je možné k nim priradiť gama linky, konkrétne gama linku s energiou 84,2 keV k izotopu ^{231}Th a gama linku s energiou 63,3 keV k izotopu ^{234}Th . Pomer počtu jadier ^{235}U a ^{238}U je následne možné určiť pomocou vzťahu

$$\frac{N_{235}}{N_{238}} = \frac{S_{235} \cdot k_{238} \cdot I_{238} \cdot T_{\frac{1}{2}}^{235}}{S_{238} \cdot k_{235} \cdot I_{235} \cdot T_{\frac{1}{2}}^{238}}, \quad (21)$$

kde k označuje korekciu na zoslabenie gama žiarenia vo vzorke a $T_{\frac{1}{2}}$ znázorňuje polčasy rozpadu izotopov uránu, pričom ich značenie je uvedené ako horný index. Korekciu na zoslabenie gama žiarenia vo vzorke je možné stanoviť pomocou nasledovného vzťahu

$$k = \frac{\mu \rho d}{1 - \exp(-\mu \rho d)}, \quad (22)$$

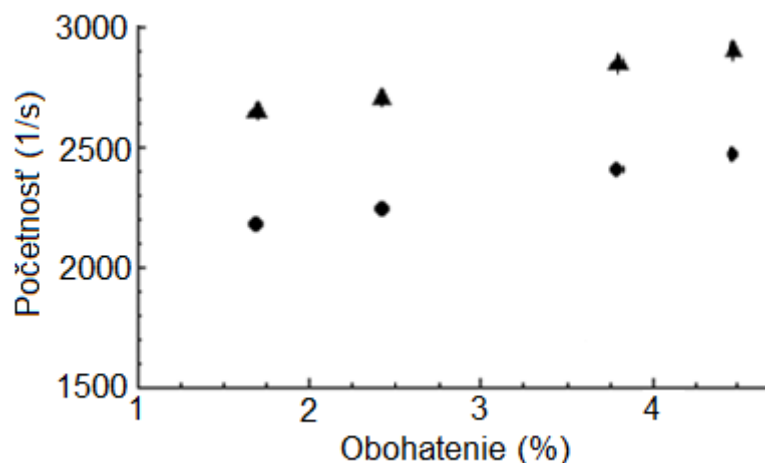
kde μ znázorňuje hmotnostný zoslabovací koeficient, ρ predstavuje hustotu vzorky a d jeho hrúbku. Značnou výhodou tohto spôsobu je fakt, že pre určenie obohatenia nie je potrebná znalosť detekčnej účinnosti, čo bolo možné uskutočniť vďaka blízkym hodnotám skúmaných gama liniek [8]. Zo znalosti pomeru počtu jadier ^{235}U a ^{238}U je možné určiť obohatenie uránu vo vzorke ako

$$O = \frac{1}{1 + \frac{N_{238}}{N_{235}}}. \quad (23)$$

2.2.2 Gama spektrometrická metóda s použitím etalónu

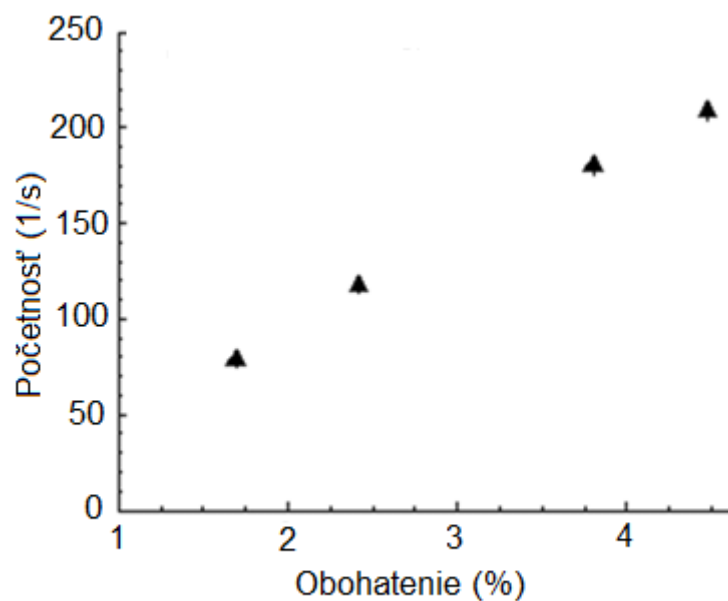
V prípade, že je k dispozícii sada etalónov s rovankou geometriou, akú má vzorka, je možné použiť nasledovný postup. Ten je založený na predpoklade, že množstvo detekovaných fotónov v istých rozmedziach energií je úmerný obohateniu uránu vo vzorke. Ukázalo sa, že v energetickom rozmedzí od 100 keV do 600 keV ako aj v energetickom rozmedzí od 100 keV do 1200 keV je pre sadu vzoriek použitých v práci [7] obohatenie úmerné početnosti detekovaného gama žiarenia. Boli použité 4 vzorky v podobe peliet, ktorých obohatenie bolo nasledovné: 1,691 %, 2,419 %, 3,799 % a 4,473 %. Pelety boli umiestnené do polyetylénových nádob. Hrúbka stien týchto nádob bola 1,5 mm. Ukázalo sa, že tienenie takouto vrstvou polyetylénu bolo zanedbateľné [7]. V rámci tejto metódy je predpokladané, že tienenie obalom vzorky ako aj samotienenie je zanedbateľné.

Pomocou detektora NaI(Tl) je namerané gama spektrum, kde namerané početnosti gama žiarenia sú rozdelené do dvoch skupín. Ako je možné vidieť na obrázku [5] s rastúcim obohatením v rozmedzí od 1,691 % do 4,473 % úmerne rastú aj hodnoty početností detekovaného gama žiarenia [7].



Obr. 5: Početnosť detekovaných gama žiarení pre dve rôzne energetické rozmedzia [7]

Na obrázku [5] je početnosť fotónov v energetickom rozmedzí od 100 keV do 600 keV znázornená krúžkom a početnosť fotónov v energetickom rozmedzí od 100 keV do 1200 keV je znázornená trojholníkom. Ako je možné vidieť, s rastúcom obohatením vzorky rastie aj početnosť fotónov v oboch rozmedziach. Podobný rastúci trend je pre rovankú sadu vzoriek možné pozorovať aj pri početnosti gama žiarenia s energiou 185,7 keV. Ten je znázornený na obrázku [6].



Obr. 6: Početnosť detekovaného gama žiarenia s energiou 185,7 [7]

Použitie tejto metódy pre vyššie obohatenia ako 4,473 %, poprípade nižšie ako 1,691 % nemusí viesť ku skutočnej hodnote. K tomu by bolo potrebné overenie predpokladu rastúcich početností so zvyšujúcim sa obohatením v potrebných intervaloch obohatenia. Takéto overenie by bolo možné realizovať za pomoci série etalónov v danom rozmedzí obohatení.

3 Experimenty využívajúce metódu oneskorených neutrónov a jeho simulácie

Účelom vykonaných experimentov bolo určovanie obohatenia uránu vo vzorkách pomocou metódy oneskorených neutrónov. To bolo realizované z dát o počte získaných oneskorených neutrónov a následne realizovaných simulácií týchto experimentov pomocou výpočtového kódu Serpent2. Tieto experimenty sa uskutočnili dňa 26.11.2021, 15.2.2022 a 11.3.2022 v priestoroch katedry jadrových rektorov FJFI.

3.1 Popis použitých vzoriek a experimentálneho vybavenia

Počas týchto experimentov bol používaný polyetylénový blok, do ktorého bol vložený generátor neutrónov, detektor neutrónov a vzorka. Detektor neutrónov bol napojený na analyzátor EMK-310. Ten spolu s generátorom neutrónov boli napojené na zariadenie RedPitaya, ktoré slúžilo k časovému triedeniu detekovaných impulzov.

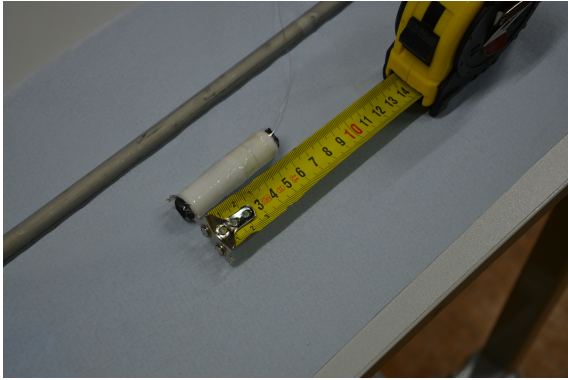
3.1.1 Použité vzorky

Počas všetkých experimentov bolo použitých 7 rôznych vzoriek s rôznym obohatením. Išlo o 6 ampúl, ktoré obsahovali oxid uránu v parafíne a vzorka dvoch peletiek v jednom obale. Obohatenie uránu, celkovú hmotnosť uránu a typ oxidu uránu jednotlivých vzoriek je zapísané v tabuľke [3](#).

Tab. 3: Obohatenie vzoriek použitých v experimentoch

Vzorka	$O(\%)$	$m_u(g)$	Typ oxidu
ES06	4,42	1,50	UO_3
ES05	3,58	1,50	UO_2
ES04	3,02	1,50	UO_2
ES03	1,32	1,50	UO_3
ES17	3,78	11,25	UO_2
ES19	0,39	1,50	U_3O_8
V4	0,72	1,50	UO_3

V tabuľke [3](#) sú peletky označené ako ES17. Ampule boli vyrobené z polyetylénu. Ich výška bola 60 mm, priemer 17,1 mm, hrúbka stien 1 mm a horné veko týchto ampúl malo výšku 11 mm. V súčasnosti nie je možné zistiť z akého materiálu je veko vyrobené bez toho, aby nedošlo k otvoreniu ampule. Niektoré ampule vykazovali známky chyby naplnenia, čo sa prejavovalo vzduchovými bublinami. Použitá vzorka peletiek bola zostavená z dvoch jednotlivých peletiek, ktoré boli umiestnené v jednom obalovom súbore. Tento súbor bol vyrobený na 3D tlačiarňi z polyaktidu [9](#). Ide o peletky s výškou 10,7 mm a priemerom 8 mm. Samotný obalový súbor mal výšku 60 mm. Na oboch podstavách valcového obalu je nalepený 3 mm hrubý gumový materiál. Vzorku peletiek, resp. ampuly je možné vidieť na obrázku [7](#) resp. [8](#).



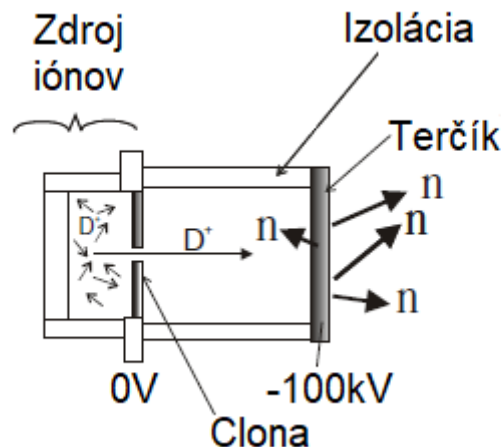
Obr. 7: Vzorka peletiek



Obr. 8: Vzorka ES05

3.1.2 Generátor neutrónov

Ako zdroj neutrónov bol v týchto experimentoch použitý DD generátor neutrónov. Nami použitý generátor neutrónov možno popísať ako lineárny urýchlovač častíc, ktorý urýchľujú ióny deutéria voči nehybnému terču. V tomto terči sa taktiež nachádzajú atómy deutéria. Schému takéhoto zariadenia je možné vidieť na obrázku 9.

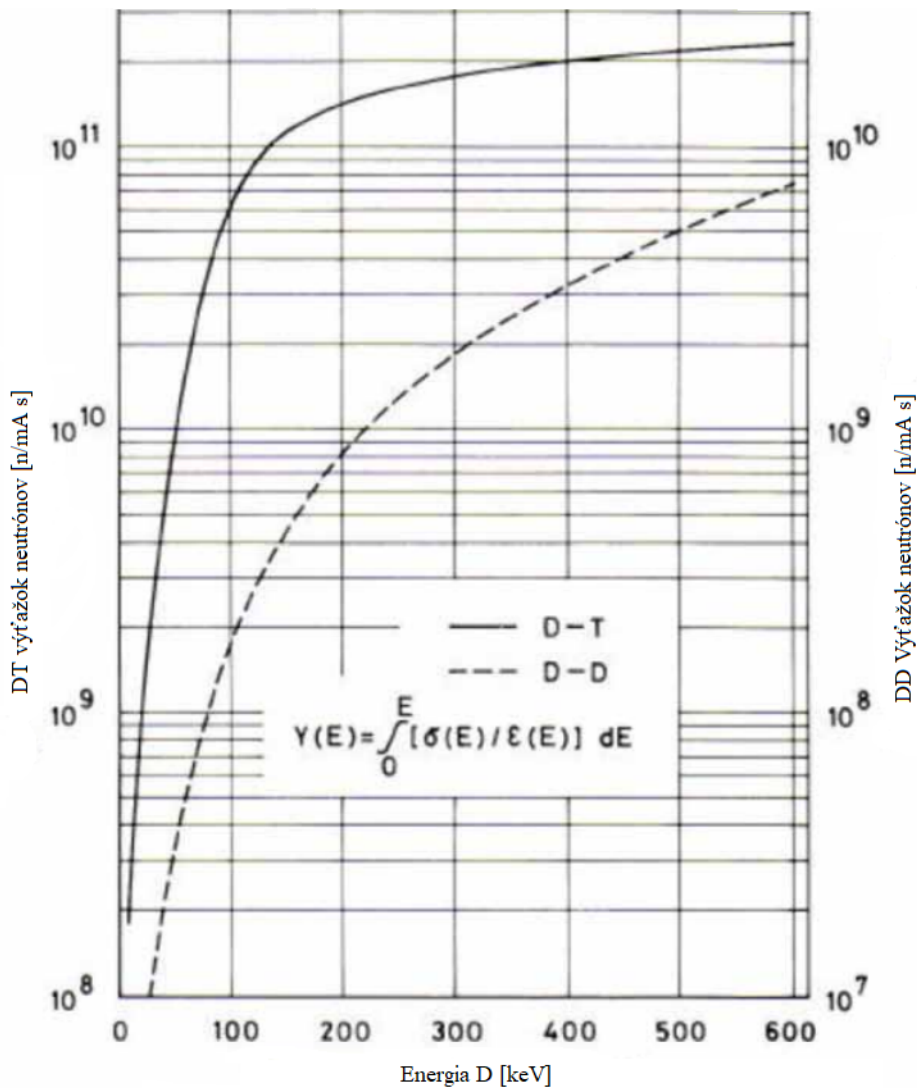


Obr. 9: Schéma generátora neutrónov [10]

Pri kolízii urýchľovaného a terčového jadra deutéria dochádza k reakcii, ktorej produktami sú aj neutróny. Z faktu, že produkcia neutrónov je založená na reakcii dvoch jadier deutéria, pochádza označenie "DD" generátor neutrónov. Takúto reakciu je možné zapísať nasledovne



pričom uvoľnená energia 3,29 MeV sa rozdelí medzi produkty tejto reakcie. Zo zákona zachovania energie, zákona zachovania hybnosti, so zanedbaním kinetickej energie urýchľovaných izotopov duetéria a s predpokladom nehybného terčového jadra je možné určiť energiu takto vzniknutých neutrónov. Produkované neutróny získavajú energiu približne 2,45 MeV. Výťažok neutrónov je určovaný kinetickou energiou nalietajúceho deutéria. Tá je určovaná pomocou nastavenia urýchľovacieho napätia v zariadení. Výťažky neutrónov pre DD a DT generátory v závislosti na energii deutéria je možné vidieť na obrázku [10] [10].

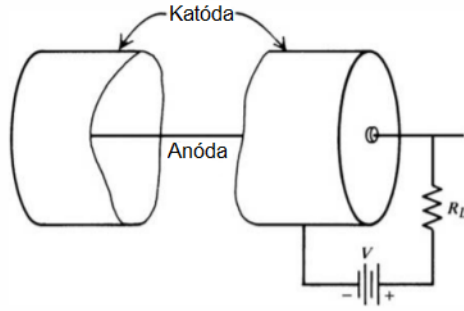


Obr. 10: Výťažok neutrónov pre DD a DT reakciu [10]

Konkrétne bol v realizovaných experimentoch použitý generátor neutrónov Thermo P-385. Ten pracoval v pulznom režime s frekvenciou 100 Hz. Jeden ožarovací cyklus trval 10 ms, pričom generátor produkoval neutróny po dobu 1 ms. Merania s každou vzorkou boli realizované po dobu 300 sekúnd. Teda celkovo bolo vytvorených 30 000 cyklov. Na generátore neutrónov bolo vždy nastavené napätie $U=130$ kV a prúd $I=70$ μ A. Toto zariadenie je možné vidieť na obrázku [12], pričom ide o väčší z dvoch valcov.

3.1.3 Detektor neutrónov

Na detekciu neutrónov bol použitý proporcionálny detektor. Proporcionálny detektor je znázornený na schéme [11].



Obr. 11: Schéma proporcionálneho detektora [11]

Ako je možné vidieť na schéme [11], detektor sa skladá z katódy ohraničujúcej objem detektora a anódy. Tá vedie stredom objemu detektora v podobe tenkého elektrického vodiča. Priestor medzi anódou a katódou je vyplnený plynom, konkrétne ide o ${}^3\text{He}$. Tepelné neutróny reagujú s ${}^3\text{He}$ nasledovne



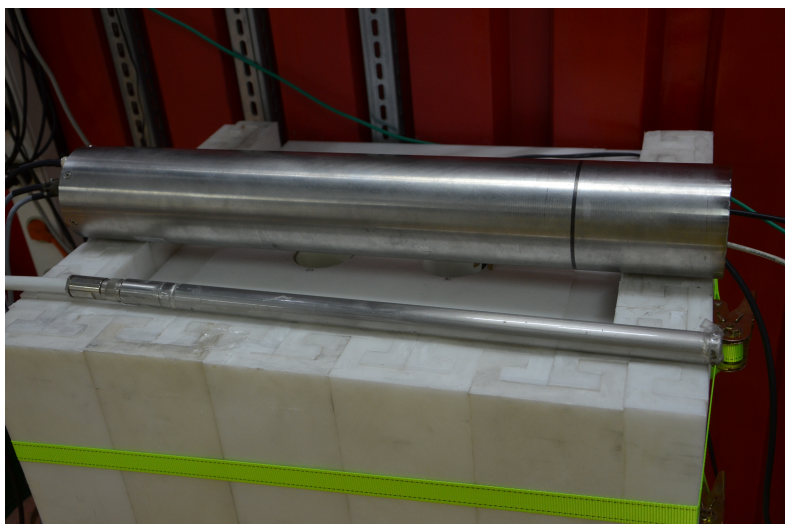
pričom sa pri tejto reakcii uvoľní energia 0,764 MeV. Účinný prierez pre reakciu ${}^3\text{He}$ s tepelnými neutrónmi je $\sigma_{He} = 5330$ b. Tento účinný prierez klesá s rastúcou energiou neutrónov podľa zákona $1/v$. Počas týchto reakcií sú uvoľňované aj elektróny, ktoré na rozdiel od ${}^3\text{H}$ a ${}^1\text{p}$ sú prirodzene priťahované anódou. Vďaka vysokému napätiu v detektore dochádza v dostatočnej blízkosti od anódy k takému urýchleniu elektrónov, že pri kolíziách s ${}^3\text{He}$ dochádza k sekundárnej ionizácii. Veľkosť elektrického poľa je daná funkciou

$$E_{el}(r) = \frac{V}{r \cdot \ln\left(\frac{r_A}{r_{det}}\right)}, \quad (26)$$

kde V predstavuje napätie na detektore, r reprezentuje vzdialenosť od anódy a r_A resp. r_{det} je polomer samotnej anódy resp. polomer celého detektora. Z rovnice [26] vyplýva, že s rastúcou vzdialenosťou od anódy rýchlo klesá elektrické pole. To je dôvodom preto, aby k sekundárnej ionizácii dochádzalo iba v okolí anódy. Takto vzniknuté elektróny sú taktiež urýchľované elektrickým poľom a môžu spôsobiť ďalšiu ionizáciu. V takom prípade hovoríme o Townsendovej lavíne [11].

Konkrétne bol v realizovaných experimentoch používaný proporcionálny detektor DEX-TRAY 65NH45. Aktívna časť tohto detektora mala výšku 47 cm. Tento detektor je možné vidieť na obrázku [12], pričom ide o menší z dvoch valcov.

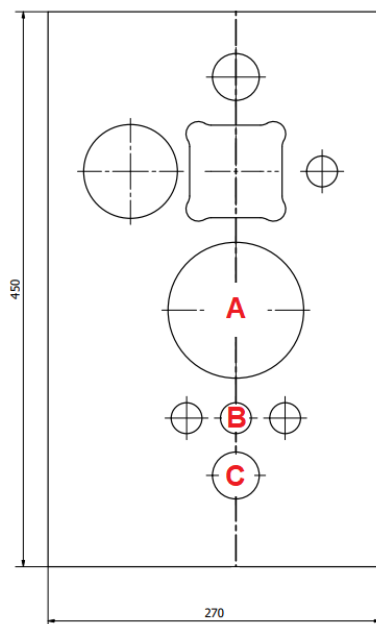
Detektor neutrónov bol pripojený pomocou 7 metrového koaxiálneho kábla k analyzátoru EMK-310. Tento analyzátor je konštruovaný modulárne. Súčasťou zariadenia je zosilovač signálu NDA310 určený pre proporcionálne detektory neutrónov. Maximálne množstvo pulzov, ktoré je tento zosilňovač schopný prijať, je 210 000 za sekundu. Táto hodnota je pre naše potreby dostatočná, keďže počet impulzov za sekundu je počas experimentu rádovo na úrovni desiatok tisíc [12].



Obr. 12: Generátor neutrónov a detektor neutrónov [13]

3.1.4 Polyetylénový blok

Vo všetkých experimentoch boli premeriavané vzorky, detektor a generátor neutrónov umiestené do kanálov polyetylénového bloku. Ide o 1 meter vysoký kváder, ktorý obsahuje niekoľko vertikálnych kanálov. Pôdorys je znázornený na obrázku [13]. Uvedené veľkosti hrán sú v milimetroch.



Obr. 13: Pôdorys základného bloku [14]

Na tomto obrázku sú červenými písmena A,B,C vyznačené tri kanály. Všetky kanály okrem centrálne kanála, označeného ako A, prechádzajú celým telesom boxu, zatiaľčo centrálny kanál je hlboký 60 cm. Do kanála A bol umiestňovaný generátor neutrónov, do kanála B boli umiestňované vzorky a do kanála C boli bol umiestňovaný detektor. Vzorka a detektor boli

vždy umiestňované do takej výšky, aby ich stredy boli vo výške produkcie neutrónov. Ide o 12,5 cm nad dnom centrálneho kanála. Materiál bloku, polyetylén, bol vybraný kvôli svojej schopnosti termalizácie neutrónov. To je dané tým, že molekula polyetylénu, $(C_2H_4)_n$, kde n predstavuje prirodzené číslo, je zložená z jadier uhlíka a vodíka. V oboch prípadoch ide o ľahké jadrá, ktoré sú všeobecne vhodné na moderáciu neutrónov.

Tento polyetylénový blok, ďalej označovaný aj ako základný blok, bol sprava obklopený prídavným súvislým polyetylénovým blokom s hrúbkou 5 cm a výškou 1 m. Zľava základného bloku sa nachádzal ďalší polyetylénový blok, taktiež s výškou 1 m. Tieto bloky boli po celej svojej výške obklopené 1mm vrstvou olova. Bola tam umiestnená za účelom tienenia gama žiarenia, ktoré vzniká pri vykonávaných experimentoch. Za oloveným tienením bola umiestnená 5 cm hrubá a 1 m vysoká vrstva bórovaného polyetylénu. Celá experimentálna sústava je vyobrazená na fotografii [14](#).



Obr. 14: Umiestnenie základného polyetylénového bloku

3.1.5 Zariadenie RedPitaya

Za účelom časového triedenia signálov z detekčnej sústavy bolo používané zariadenie RedPitaya STEMLab 125-14 [15](#). Je to malý počítač s programovateľným poľom. Toto zariadenie má 2 analógové vstupy a výstupy a 16 digitálnych vstupov a výstupov. Používané boli digitálne vstupy a výstupy. Zariadenie využíva 3 čítače. Jeden z nich je používaný ako interné hodiny. Ďalší je napojený na generátor neutrónov a posledný je napojený na detekčnú sústavu, konkrétne na analyzátor EMK-310. Vzdialenosť medzi EMK-310 a zariadením je niekoľko metrov, zatiaľčo vzdialenosť od generátora neutrónov je výrazne menšia. Čítač napojený na generátor neutrónov získava informáciu o vytvorení pulzu neutrónov a čítač napojený na EMK-310 získava informácie o počte detekovaných neutrónov v čase. Do týchto čítačov sú posielané napäťové pulzy o veľkosti +5 V. Pred vstupom do zariadenia musia byť tieto napä-

tové signály zredukované, a to na veľkosť +3V. Prvým signálom vstupujúcim do zariadenia, je signál z generátora neutrónov o vytvorení prvého pulzu neutrónov. Následne sú prijímané signály z EMK-310 rozdeľované pomocou hodín do konkrétnych časových košov, ktorých je 1000. Po ukončení cyklu generátora neutrónov je vyprodukovaný ďalší pulz neutrónov, a teda aj napäťový pulz smerujúci do zariadenia. Akonáhle čítač registruje takýto pulz, tak je čítač hodín vynulovaný a nové pulzy prichádzajúce z EMK-310 sú znovu opäť zapisované do 1000 časových košov. Po zapísaní nastaveného počtu cyklov v prípade nami realizovaných experimentov išlo o 1000 alebo 500 cyklov, je vytvorený a externe uložený súbor. Vytvorenie tohoto súboru vynuluje všetky realizované zápisy v zariadení.

V niektorých meraniach sa vyskytol problém so zápisom na konci cyklu. Po vysčítaní všetkých nameraných cyklov pre niektoré vzorky sa na konci cyklov vyskytovali abnormálne vysoké hodnoty. V niektorých prípadoch tieto hodnoty boli niekoľkonásobne vyššie ako celkový súčet nameraných oneskorených neutrónov bez tejto hodnoty. Tento jav bol pozorovaný najmä po dlhšej a takmer nepretržitej prevádzke zariadenia. Z tohoto dôvodu je vo všetkých meraniach vysčítavanie cyklov realizované do 9,5 ms.

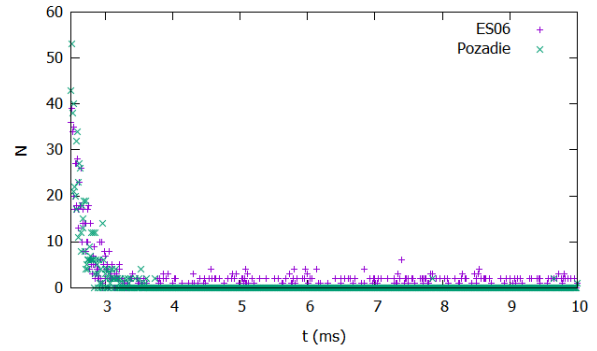
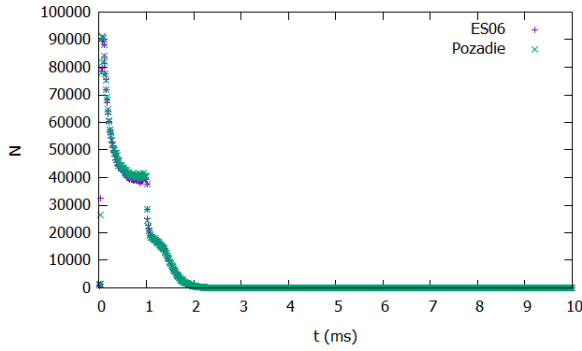
Zariadenie pracujúce na analógových vstupoch, ktoré by mohlo priniesť presnejšie merania, je práve v softvérovom vývoji na katedre jadrových reaktorov FJFI.

3.2 Popis experimentu zo dňa 26.11.2021

Počas experimentu zo dňa 26.11.2021 boli ampulové vzorky a vzorka peletiek premerané práve raz. Najskôr bolo premerané pozadie, potom sa pokračovalo premeriavaním uránových vzoriek. Spôsob umiestňovania ampúl do kanála počas tohoto experimentu bol nasledovný. Premeriavaná ampula bola umiestnená na hornú podstavu prázdnej ampuly, ktorá bola priviazaná na lanku. Následne boli obe ampuly spustené do kanála do správnej výšky. Pri výmene vzoriek bola prázdna ampula spolu so vzorkou vyňatá z kanála. Následne po odobraní vzorky bola na vrch prázdnej ampuly umiestnená nová vzorka. Potom bola prázdna ampula spolu s novou vzorkou spúšťaná do kanála. V prípade umiestnenia peletiek nebola použitá prázdna ampula. Táto vzorka bola priviazaná o lanko a spustená do kanála do správnej výšky.

3.2.1 Získané dáta

Pre všetky merania boli dáta vysčítané po cykloch. Na obrázkoch [I5](#) a [I6](#) sú znázornené dáta sčítané po cykloch pre pozadie a pre vzorku peliet.



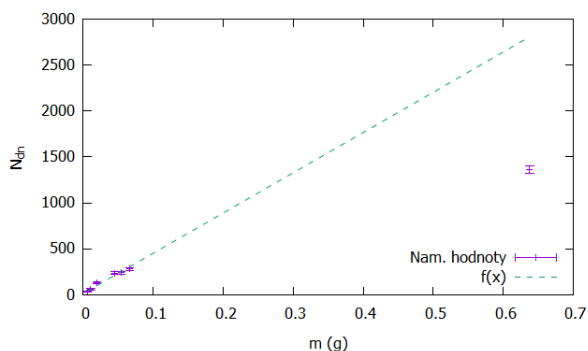
Obr. 15: Sčítané namerané dáta po cykloch pri meraní pozadia a vzorky ES06 Obr. 16: Sčítané namerané dáta po cykloch pri meraní s peletkami

Ako je možné vidieť na obrázku [16], v časovom intervale vysčítaných dát po pulzoch od 4 ms do 9,5 ms sa nevyskytujú neutróny z generátora neutrónov. Taktiež je možné vidieť, že okamžité neutróny vymreli niekedy medzi treťou a štvrtou ms. Preto uvažujeme, že v tomto časovom intervale dochádzalo len k detekciám oneskorených neutrónov a pozadia. V časovom intervale od 4 ms do 9,5 ms v prípade merania pozadia boli zaznamenané 2 detekcie. Hodnoty počtu detekovaných oneskorených neutrónov z meraní jednotlivých vzoriek po odčítaní pozadia, označované ako N_{dn} a ich neistoty sú uvedené v tabuľke [4].

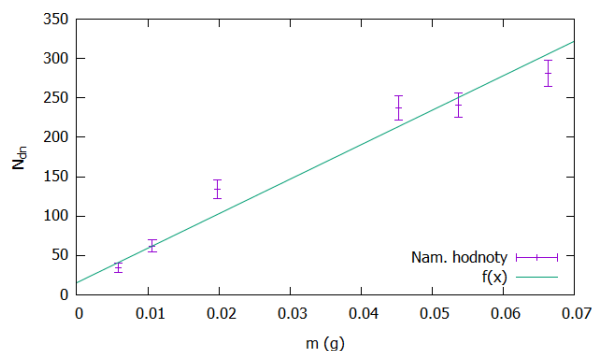
Tab. 4: Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 26.11.2021

Vzorka	$N_{dn}(-)$
ES17	1364 ± 37
ES06	281 ± 17
ES05	241 ± 16
ES04	237 ± 15
ES03	134 ± 12
V4	62 ± 8
ES19	34 ± 6

Na obrázkoch [17] a [18] sú dáta z tohoto experimentu vyobrazené v grafe, ktorý vyjadruje počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo vzorke. Dáta ampulových vzoriek boli preložené funkciou $f(x)=Ax+B$. Týmto preložením bola pomocou softvéru Gnuplot [16] určená hodnota parametrov A a B ako $A=4377,30\pm 397,00$ a $B=15,44\pm 10,10$. Ako je možné vidieť na obrázku [18], v prípade vzorky ES17 sa nameraná hodnota výrazne vychýľuje od funkcie $f(x)$. Tento jav je spôsobený výrazne vyšším samotienením vo vzorke ES17.



Obr. 17: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



Obr. 18: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

3.3 Popis experimentu zo dňa 15.2.2022

Počas experimentu, ktorý bol realizovaný dňa 15.2.2022, boli všetky ampulové vzorky premerané dvakrát. Vzorka peletiek bola premeraná trikrát. Pri meraní pozadia bola do kanála umiestnená prázdna ampula. Na konci druhej série bolo meranie so vzorkou peletiek opakované. Postup umiestňovania vzoriek do kanála bol oproti spôsobu v experimente zo dňa 26.11.2021 zmenený z dôvodu možnosti priestorového vychýlenia vzoriek. Vzorky boli pomocou lepiacej pásky pripevňované k ocelevej tyči do vhodnej výšky. Následne bola oceľová tyč vložená do ožarovacieho kanála tak, aby sa vzorka nachádzala v jednej rovine spolu s generátorom neutrónov a detektorom. V prípade merania vzorky ES05 v druhej sérii nedošlo k automatickému ukončeniu merania po 5 minútach, a preto bolo meranie ukončené manuálne pomocou núdzového tlačítka. V prípade tohoto merania boli získané abnormálne vysoké hodnoty nameraných oneskorených neutrónov. Zistilo sa, že v dvoch časových intervaloch vysčítaných dát po 500 cykloch došlo k zápisu abnormálne vysokého čísla. Išlo sa o hodnotu 46, ktorá bola nameraná v časovom intervale 8,86 ms vysčítané cez 2000-ci až 2500-ci cyklus a o hodnotu 63, ktorá bola nameraná v časovom intervale 9,01 ms vysčítané cez 2500-ci až 3000-ci cyklus. Tieto dve hodnoty boli vylúčené zo spracovania dát. Dôvodom je fakt, že najčastejšia nameraná hodnota, vyskytujúca sa v cca 99 % prípadov, pre konkrétne časové intervaly po 0,01 ms vo vysčítaných 500 cykloch je 0. Druhou najčastejšou hodnotou, vyskytujúca sa v cca 0,5 % prípadov, je hodnota 2. Ostatné hodnoty sa vyskytujú menej často. Hodnota 1 sa vyskytuje v cca 0,2 % prípadov. Preto je vysoko nepravdepodobné, že v prípade hodnôt 46 a 63 ide o oneskorené neutróny.

3.3.1 Získané dáta

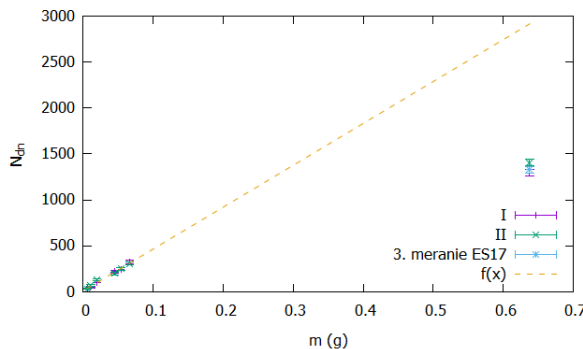
Namerané dáta boli vysčítavané po cykloch od 4 ms do 9,5 ms. Tento časový interval považujeme za interval, kde sa nachádzali iba oneskorené neutróny. Pri meraní pozadia prvej série bolo registrovaných 6 neutrónov. Počas merania pozadia druhej série bolo detekovaných 9 neutrónov. Hodnoty počtu detekovaných oneskorených neutrónov z meraní jednotlivých

vzoriek po odčítaní pozadia, označované ako N_{dn} a ich neistoty sú uvedené v tabuľke 5. Hodnoty N_{dn}^I poukazujú na prvú sériu meraní a hodnoty N_{dn}^{II} poukazujú na druhú sériu meraní.

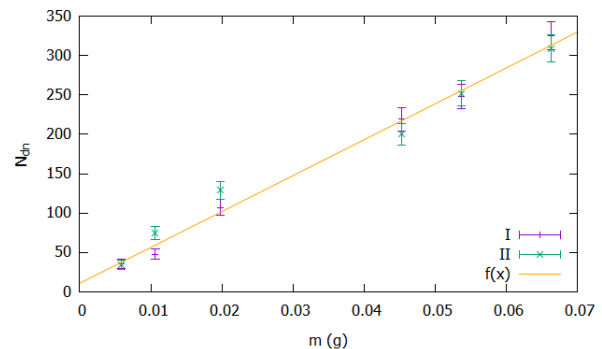
Tab. 5: Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 15.2.2022

Vzorka	$N_{dn}^I(-)$	$N_{dn}^{II}(-)$	3. meranie ES17
ES17	1293 ± 36	1406 ± 37	1329 ± 36
ES06	325 ± 18	309 ± 18	-
ES05	248 ± 16	252 ± 16	-
ES04	219 ± 15	200 ± 14	-
ES03	107 ± 10	129 ± 11	-
V4	48 ± 7	75 ± 9	-
ES19	36 ± 6	34 ± 6	-

Na obrázkoch 19 a 20 sú dáta uvedené v tabuľke 5 vyobrazené v grafe, ktorý vyjadruje počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v premeriavanej vzorke. Rímske číslice I a II v týchto dvoch obrázkoch odkazujú na 1. a 2. sériu meraní. Dáta ampulových vzoriek boli opäť preložené funkciu $f(x)=Ax+B$. Týmto preložením bola pomocou softvéru Gnuplot [16] určená hodnota parametrov A a B ako $A=4554,05\pm 188,10$ a $B=10,88\pm 4,77$. Ako je možné vidieť na obrázku 20, v prípade vzorky ES17 sa nameraná hodnota výrazne vychýľuje od funkcie $f(x)$. Tento jav je spôsobený výrazne vyšším samotienením vo vzorke ES17.



Obr. 19: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



Obr. 20: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

3.4 Popis experimentu zo dňa 11.3.2022

Posledný experiment bol realizovaný 11.3.2022. Počas tohoto experimentu boli všetky vzorky premerané dvakrát okrem vzorky ES06, ktorá bola premeraná trikrát. Merania prebiehali v sérii, pričom najprv bolo namerané pozadie. Následne boli premeriavané vzorky, a

to v tomto poradí: ES06, ES05, ES04, ES03, ES19, V4, ES17. Spôsob umiestňovania vzoriek do ožarovacieho kanála bol totožný ako v experimente zo dňa 15.2.2022. Počas experimentu bol z nebalosti umiestnený tepelný zdroj na zariadenie RedPitaya. Tento zdroj tepla bol odstránený počas mernia druhej série, konkrétne medzi vzorkami ES04 a ES03. Dáta z meraní prvej série a dáta z meraní druhej série pre vzorky ES06, ES05 a ES04 sú zatažené systematickou chybou. V prípade merania so vzorkou ES19 v druhej sérii boli, rovnako ako v prípade vzorky ES05 v druhej sérii z experimentu zo dňa 15.2.2022, detekované abnormálne vysoké hodnoty nameraných oneskorených neutrónov. Rovnako ako v prípade ES05 z 15.2.2022, najčastejšie nameraná hodnota za 500 cyklov v časovom úseku veľkosti 0,01 ms to bola 0, a to v cca 99,9 % prípadov. Hodnota 1 a 2 sa vyskytovala v cca 0,03 % prípadov. Celkovo bolo zo spracovania dát vylúčených 6 hodnôt, a to konkrétne: 46,15,36,36,22,13.

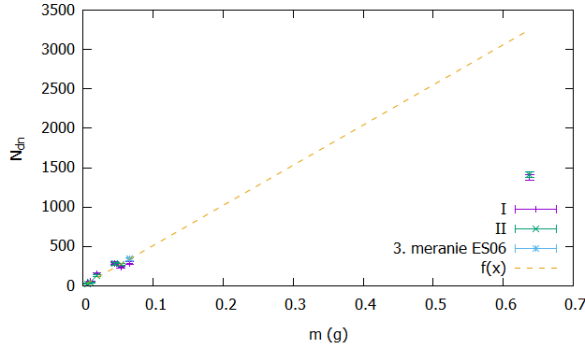
3.4.1 Získané dáta

Tak ako v predchádzajúcich experimentoch boli dáta vysčítavané po cykloch od 4 ms do 9,5 ms, teda v časovom intervale, v ktorom očakávame iba oneskorené neutróny. Počet detekcií v tomto intervale pri meraní pozadia bol v prvej sérii 1 a v druhej sérii 5 detekcií. Hodnoty počtu detekovaných oneskorených neutrónov z meraní jednotlivých vzoriek po odčítaní pozadia označované ako N_{dn} a ich neistoty sú uvedené v tabuľke 6. Hodnoty N_{dn}^I poukazujú na prvú sériu meraní a hodnoty N_{dn}^{II} poukazujú na druhú sériu meraní.

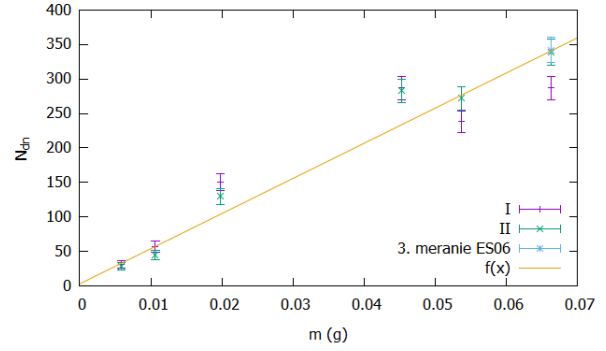
Tab. 6: Počet detekovaných oneskorených neutrónov pre jednotlivé premerané vzorky z 11.3.2022

Vzorka	$N_{dn}^I(-)$	$N_{dn}^{II}(-)$	3. meranie ES06
ES17	1377 ± 37	1412 ± 38	-
ES06	287 ± 17	339 ± 18	342 ± 18
ES05	238 ± 15	272 ± 16	-
ES04	287 ± 17	283 ± 17	-
ES03	151 ± 12	130 ± 11	-
V4	57 ± 8	45 ± 7	-
ES19	31 ± 6	28 ± 5	-

Dáta z tohoto experimentu sú znázornené na grafoch 19 a 20. Tieto grafy vyjadrujú počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo vzorke. Rímske číslice I a II v týchto dvoch obrázkoch odkazujú na 1. a 2. sériu meraní. Dáta ampulových vzoriek boli opäť preložené funkciou $f(x)=Ax+B$. Týmto preložením bola pomocou softvéru Gnuplot 16 určená hodnota parametrov A a B ako $A=5094,83\pm 330,60$ a $B=2,98\pm 8,24$. Ako je možné vidieť na obrázku 22, v prípade vzorky ES17 sa nameraná hodnota výrazne vychyľuje od funkcie $f(x)$. Tento jav je spôsobený výrazne vyšším samotienením vo vzorke ES17.



Obr. 21: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



Obr. 22: Počet detekovaných oneskorených neutrónov vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

3.5 Popis simulácií realizovaných experimentov

Simulácie týchto experimentov boli realizované v stochastickom výpočetnom kóde Serpent2, pričom konkrétne bola použitá verzia 2.1.32 [17]. Tento výpočetný kód, ktorý je založený na metóde Monte Carlo, je schopný počítat transport neutrónov aj v prípade externých zdrojov neutrónov. Za tie považujeme také zdroje, ktoré nie sú súčasťou jadrového reaktora. Teda ako v našom prípade, je schopný realizovať simuláciu s DD generátorom neutrónov umiestnenom v experimentálnej zostave mimo jadrového reaktora.

Simulácie nami realizovaných experimentov je možné realizovať dvoma rôznymi spôsobmi. Jedným z nich je rozdeliť experiment na dva samostatné stacionárne výpočty. Druhým spôsobom je realizovať simuláciu experimentu ako jeden časovo závislý výpočet. V rámci tejto práce boli realizované výpočty oboma možnými spôsobmi. Taktiež boli vykonané simulácie pre overenie predpokladu, že vo vzorke dochádza primárne ku štiepeniu izotopu ^{235}U .

Vo všetkých realizovaných simuláciách boli výstupom z výpočetného kódu Serpent2 reakčné rýchlosti. Tie sú výpočetným kódom Serpent2 vyhodnocované nasledovným spôsobom

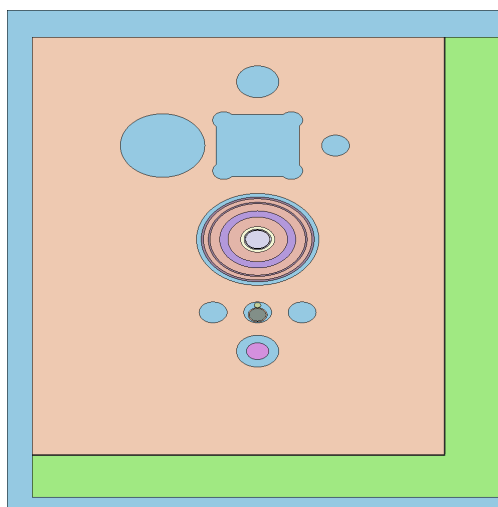
$$R_{Serpent} = \frac{1}{V} \int_V \int_{E_{i+1}}^{E_i} f(r, E) \Phi(r, E) d^3r dE, \quad (27)$$

kde r predstavuje polohový vektor, E energiu, i resp. $i+1$ je indexovanie jednotlivých energetických skupín, $\Phi(r, E)$ je funkciou neutrónového toku a $f(r, E)$ je funkciou účinného prierezu. Objem je v tomto výpočte automaticky nastavovaný ako rovný 1, ak nie je zadane inak. Teda pojem reakčná rýchlosť je v tomto prípade skreslený, keďže výsledkom je celkový počet intekcií v zadanom priestore. V karte detektora bola funkcia účinného prierezu zadávaná ako makroskopický účinný prierez vo všetkých realizovaných simuláciách [18].

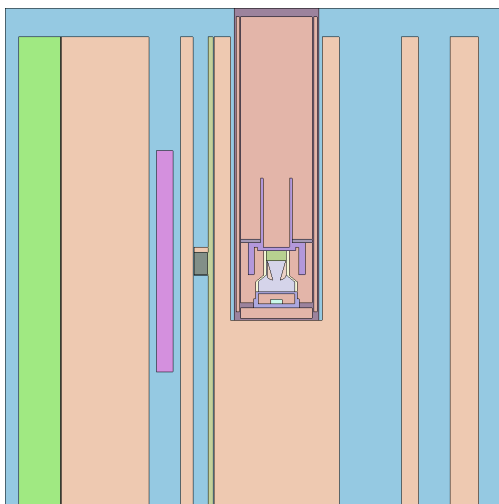
3.5.1 Popis geometrie a vstupných údajov

Opísaný polyetylénový blok v podkapitole 3.1.4. bol simulovaný nasledovne. Z dostupných informácií o rozmeroch kanálov bol vytvorený model polyetylénového bloku. Taktiež

bol simulovaný prídavný blok polyetylénu a olovené tienenie. Bola simulovaná aj vrstva bórovaného polyetylénu, ktorá sa nachádzala pred základným a prídavným blokom. Z ľavej časti tam, kde základný blok susedí s nepoužívaným blokom polyetylénu, bola simulovaná 5cm vrstva polyetylénu rovnako ako aj bórovaný polyetylén, ktorý sa nachádza pred ňou. Hustota polyetylénu bola nastavená ako 1 g/cm^3 a hustota bórovaného polyetylénu bola nastavená ako $0,935 \text{ g/cm}^3$ [13]. V materiálovej karte polyetylénu bola použitá funkcia moder, ktorá zohľadňuje rozptyl tepelných neutrónov [18]. Popis generátora neutrónov bol k dispozícii pre výpočetný kód MCNP. Pomocou tohoto vstupu bola vytvorená geometria a materiálový popis generátora neutrónov pre Serpent2 [19]. V prípade detektora neutrónov došlo k zanedbaniu jeho kovového obalu, kabeláže a vnútorných komponentov. Detektor bol simulovaný iba ako valec vyplnený héliom. Hustota hélia bola stanovená na hodnotu $\rho_{He}=0,00024749 \text{ g/cm}^3$. Táto hodnota bola určená pomocou stavovej rovnice pre ideálny plyn. Neznámy tlak hélia v detektore bol odhadnutý na 2 bary. V okolí experimentálnej aparatury bola simulovaná prítomnosť vzduchu. Jeho hustota bola $\rho_v=0,001225 \text{ g/cm}^3$, čo zodpovedá hustote vzduchu pri atmosférickom tlaku. Zloženie vzduchu bolo simulované ako 79 % dusík a 21 % kyslík. Boli vytvorené dve rôzne geometrie pre simulácie, pretože umiestňovanie vzoriek sa líšilo v experimentoch z roku 2022 a v experimente 26.11.2021. Počas experimentov v roku 2022 bola použitá tyč z nehrdzavejúcej ocele. Tá bola simulovaná ako valec s výškou 1 m a polomerom 0,3 cm, kde materiálom bola zmes uhlíka s podielom 0,035 %, chrómu s podielom 18,5 %, železa s podielom 72,215 % a niklu s podielom 9,25 %. Hustota nehrdzavejúcej ocele bola nastavená ako 8 g/cm^3 [20]. Pre realizované simulácie boli použité jadrové dáta z knižníc ENDF VIII.0. Obrázky [23] a [24] boli vyhotovené výpočetným kódom Serpent2 a ukazujú simulovanú geometriu. Na obrázku [23] je možné vidieť pôdorys vo výške 12,5 cm od dna centrálného kanála základného polyetylénového bloku. Na obrázku [24] je možné vidieť bokorys pozdĺž "ypsilonovej osi" základného polyetylénového bloku (pozri obrázok [13]). V oboch prípadoch išlo o simuláciu jednej z ampulových vzoriek v experimente, ktorý bol vykonaný v roku 2022. Na oboch obrázkoch sú farby jednotlivých materiálov volené náhodne.



Obr. 23: Pôdorys polyetylénového bloku vo výške 12,5 cm vytvorený výpočetným kódom Serpent2 pri simulácii



Obr. 24: Bokorys polyetylénového bloku vytvorený výpočelným kódom Serpent2 pri simulácii

Na obrázkoch [23](#) a [24](#) je možné vidieť komponenty generátora neutrónov v centrálnom kanáli. V kanále pod ním je možné vidieť tyč z nehrdzavejúcej ocele, krotá je znázornená olivovou farbou a ampulovú vzorku. Zmes uránu a parafínu vo vzorke je znázornená šedou farbou. V kanáli pod kanálom som vzorkou je možné vidieť héliový detektor znázornený ružovou farbou. Vzduch je na týchto obrázkoch znázornený belasou farbou, polyetylén telovou farbou a bórovaný polyetylén má zelenú farbu.

Ak nie je uvedené inak, zdroj neutrónov bol umiestnený 12,5 cm nad dno centrálneho kanála základného polyetylénového bloku a jeho energia bola nastavená na hodnotu 2,45 MeV. Tento zdroj bol definovaný ako bod a jeho priestorové rozdelenie bolo izotropné. Vo väčšine výpočtov, ak nie je uvedené inak, bola určovaná reakčná rýchlosť štiepenia v ožarovanej vzorke vzhľadom na jeden simulovaný neutrón. To je dosiahnuté nasledovným nastavením set srate 1.

Ampulové vzorky boli simulované ako valec zo zmesi parafínu a oxidu uránu, ktorý bol umiestnený vo valci z polyetylénu. Hrúbka stien a spodnej podstavy ampuly bola simulovaná s hrúbkou 1 mm a veko ampúl bolo simulované ako 1,1 cm vysoký valec z polyetylénu. Neboli simulované žiadne bublinky vzduchu ani chyby plnenia ampúl. Zo znalosti celkovej hmotnosti každej z ampúl, hustoty polyetylénu a rozmerov ampúl bola určená hmotnosť zmesi parafínu a oxidu uránu. Zo znalosti tejto hmotnosti a hmotnosti uránu bolo možné určiť podiel jednotlivých vzoriek. Parafín je definovaný ako zmes alkánov, ktorých molekula má chemický vzorec C_nH_{2n+2} pričom n je prirodzené číslo. Pri určovaní podielov jednotlivých izotopov bolo uvažované, že v parafíne je dvojnásobne viac atómov vodíka ako atómov uhlíka. Taktiež bolo možné určiť hustotu zmesi. Hmotnosti vzoriek ako aj vypočítané hustoty sú uvedené v tabuľke [7](#).

Tab. 7: Hmotnosti ampúl a vypočítané hustoty zmesi parafínu a oxidu uránu

Vzorka	$m(g)$	$\rho_{zmes}(g/cm^3)$
ES06	10,270	0,592
ES05	9,770	0,534
ES04	9,910	0,550
ES03	11,240	0,705
V4	10,330	0,599
ES19	10,210	0,585

Peletky boli simulované podľa ich fyzického popisu uvedeného v podkapitole 3.1.1, pričom bola uvažovaná 1mm medzera medzi nimi. Guma na podstavách valcového obalu simulovaná nebola. Materiál obalu simulovaný bol, pričom jeho hustota je $1,27 g/cm^3$ [21]. Zo znalosti hmotnosti uránu a objemu peletiek bola určená ich hustota na hodnotu $11,865 g/cm^3$. Tá hodnota je značne vzdialená od bežne prijímanej hodnoty $10,97 g/cm^3$ [22]. Táto odchýlka mohla byť spôsobená napríklad nepresným meraním geometrických parametrov. To, vzhľadom na nepriehľadnosť obalu, v ktorom sú vzorky peletky umiestnené, nemožno overiť bez jeho porušenia.

3.5.2 Overenie predpokladu pomeru štiepenia ^{235}U a ^{238}U

Pre realizáciu nami vykonaných experimentov bol uvažovaný predpoklad, že väčšina štiepení ku ktorým dochádza vo vzorke je na jadrách ^{235}U . Aby bolo dokázané splnenie tohoto predpokladu, boli vykonané simulácie, v ktorých sa skúmalo množstvo štiepení na jadrách ^{235}U a na jadrách ^{238}U . Tieto simulácie boli vytvorené pre všetky experimentálne vzorky v geometrii experimentov z roku 2022. Výsledkom týchto simulácií boli reakčné rýchlosti pre štiepenie v celej vzorke a reakčné rýchlosti pre štiepenie na izotope ^{238}U . Reakčné rýchlosti pre štiepenie v celej vzorke boli určené tak, že materiál vzorky obsahoval všetky svoje komponenty a boli zadané hustoty uvedené v tabuľke [7]. Tieto reakčné rýchlosti sú označené ako R_I . Pre určenie reakčných rýchlostí pre štiepenie na izotope ^{238}U bol zo vzorky vyňatý izotop ^{235}U a boli určené hmotnosti a hustoty vzoriek bez izotopu ^{235}U . Následne boli stanovené podiely jednotlivých komponent zmesi. Hmotnosti zmesí a ani podiely jednotlivých komponent sa po odobraní izotopu ^{235}U výrazne nezmenili. Takto získane reakčné rýchlosti sú značené ako R_f^8 .

Počet simulovaných častíc bol pre všetky prípady $7,5 \cdot 10^7$. Tieto simulácie boli v prípade vzorky ES17 realizované pre oba varianty hustoty uvedené v predchádzajúcej podkapitole. Výsledné reakčné rýchlosti pre štiepenie na jadrách ^{235}U a ^{238}U sú aj s neistotami uvedené v tabuľke [8]. V tejto tabuľke sú uvedené výsledky simulácií pre vzorku ES17 ako pre hustotu $10,97 g/cm^3$ označované ako ES17A, tak aj pre hustotu $11,865 g/cm^3$ označovaná ako ES17B.

Tab. 8: Vypočítané reakčné rýchlosti a pomery štiepenia v jednotlivých vzorkách

Vzorka	$R_I(-)$	$R_f^s(-)$	$\frac{R_I - R_f^s}{R_I}(\%)$
ES17A	$464 \cdot 10^{-6} \pm 4 \cdot 10^{-6}$	$121 \cdot 10^{-7} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$97,383 \pm 0,047$
ES17B	$464 \cdot 10^{-6} \pm 4 \cdot 10^{-6}$	$133 \cdot 10^{-7} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$97,163 \pm 0,053$
ES06	$1250 \cdot 10^{-7} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$1316 \cdot 10^{-9} \pm 7 \cdot 10^{-9}$	$98,947 \pm 0,006$
ES05	$1014 \cdot 10^{-7} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	$1338 \cdot 10^{-9} \pm 7 \cdot 10^{-9}$	$98,680 \pm 0,007$
ES04	$882 \cdot 10^{-7} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$1346 \cdot 10^{-9} \pm 6 \cdot 10^{-9}$	$98,474 \pm 0,008$
ES03	$383 \cdot 10^{-8} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	$1322 \cdot 10^{-9} \pm 5 \cdot 10^{-9}$	$96,549 \pm 0,016$
V4	$2154 \cdot 10^{-8} \pm 5 \cdot 10^{-8}$	$1349 \cdot 10^{-9} \pm 6 \cdot 10^{-9}$	$93,740 \pm 0,030$
ES19	$1115 \cdot 10^{-8} \pm 3 \cdot 10^{-8}$	$1345 \cdot 10^{-9} \pm 6 \cdot 10^{-9}$	$87,936 \pm 0,062$

Ako je možné vidieť v tabuľke [8] vo väčšine vzoriek dochádza ku štiepeniu na jadrách ^{235}U vo viac ako v 95 % prípadov. Jedinými výnimkami sú vzorky V4 a ES19, ktoré majú nízke obohatenie uránu. Taktiež je možné vidieť, že s obohatením rastie aj podiel štiepení na ^{235}U , čo je však očakávateľný jav.

3.5.3 Stacionárne simulácie experimentov

Simulácia experimentov stacionárnym spôsobom bola rozdelená na dva časovo nezávislé výpočty. V prvom z nich bol bodový izotropný zdroj neutrónov umiestnený do generátora neutrónov, konkrétne 12,5 cm nad dnom centrálného kanála. Energia týchto neutrónov zodpovedala energii neutrónov vznikavších pri DD reakcii, a teda 2,45 MeV. Aj v tomto výpočte bola pomocou nastavenia set srate 1 určovaná reakčná rýchlosť pre štiepenie vo vzorke vzhľadom na jeden simulovaný neutrón. Počet simulovaných častíc bol vždy na hodnote 50 000 000.

V druhom výpočte bol do študovaných vzoriek umiestnený objemový zdroj neutrónov s energiou oneskorených neutrónov, konkrétne 0,49358 MeV [13], pričom bola určovaná reakčná rýchlosť (n,p) reakcie na ^3He v detektore. Počet simulovaných častíc bol vždy na hodnote 2 500 000. Táto reakčná rýchlosť je označovaná ako R_{II} . Pre súčin týchto dvoch reakčných rýchlostí, označovaného ako N_{sim} platí nasledovné

$$N_{sim} = R_I \cdot R_{II} \approx N_{det}^u, \quad (28)$$

kde R_I označuje získanú reakčnú rýchlosť pre štiepenie vo vzorke, R_{II} predstavuje získanú reakčnú rýchlosť pre (n,p) reakciu na ^3He v detektore a N_{det}^u je úmernosť. Táto hodnota je úmerná počtu detekovaných neutrónov na jeden neutrón, ktorý bol vyprodukovaný v generátore neutrónov [13]. Teda podiel N_{sim} pre dve rôzne vzorky by mal byť v ideálnom prípade rovnaký ako podiel experimentálne nameraných oneskorených neutrónov týchto vzoriek. Tento ideálny stav nemožno docieľiť vzhľadom na niestotu, ktorú do výpočtu vniesli rôzne zanedbania pri vytváraní geometrie experimentu ako aj neistoty vnesené stochastickou metódou. V tabuľke [9] sú uvedené hodnoty R_I , R_{II} , ich neistoty a N_{sim} pre experiment z 26.11.2021. V týchto tabuľkách sú uvedené výsledky simulácií pre vzorku ES17 ako pre hustotu $10,97 \text{ g/cm}^3$ označovanú ako ES17A, tak aj pre hustotu $11,865 \text{ g/cm}^3$ označovanú ako

ES17B.

Tab. 9: Vypočítané reakčné rýchlosti a N_{sim} pre geometriu experimentov z roku 2021

Vzorka	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
ES17A	$524 \cdot 10^{-6} \pm 2 \cdot 10^{-6}$	1069 ± 3	$561 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$
ES17B	$498 \cdot 10^{-6} \pm 2 \cdot 10^{-6}$	1072 ± 3	$534 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$
ES06	$1366 \cdot 10^{-7} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	1081 ± 3	$1477 \cdot 10^{-4} \pm 6 \cdot 10^{-4}$
ES05	$1113 \cdot 10^{-7} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	1078 ± 3	$1200 \cdot 10^{-4} \pm 5 \cdot 10^{-4}$
ES04	$960 \cdot 10^{-7} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	1084 ± 3	$1041 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-4}$
ES03	$417 \cdot 10^{-7} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	1091 ± 3	$455 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$
V4	$2342 \cdot 10^{-8} \pm 6 \cdot 10^{-8}$	1086 ± 3	$2544 \cdot 10^{-5} \pm 9 \cdot 10^{-5}$
ES19	$1214 \cdot 10^{-8} \pm 3 \cdot 10^{-8}$	1089 ± 3	$1321 \cdot 10^{-5} \pm 5 \cdot 10^{-5}$

V tabuľke [10](#) sú uvedené hodnoty R_I , R_{II} , ich neistoty a N_{sim} pre experimenty z roku 2022.

Tab. 10: Vypočítané reakčné rýchlosti a N_{sim} pre geometriu experimentov z roku 2022

Vzorka	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
ES17A	$467 \cdot 10^{-6} \pm 2 \cdot 10^{-6}$	1061 ± 3	$495 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$
ES17B	$465 \cdot 10^{-6} \pm 2 \cdot 10^{-6}$	1063 ± 3	$494 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$
ES06	$1247 \cdot 10^{-7} \pm 7 \cdot 10^{-7}$	1081 ± 3	$1348 \cdot 10^{-4} \pm 8 \cdot 10^{-4}$
ES05	$1019 \cdot 10^{-7} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	1076 ± 3	$1097 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-4}$
ES04	$880 \cdot 10^{-7} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	1075 ± 3	$945 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-4}$
ES03	$383 \cdot 10^{-7} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	1087 ± 3	$417 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$
V4	$2143 \cdot 10^{-8} \pm 5 \cdot 10^{-8}$	1076 ± 3	$2307 \cdot 10^{-5} \pm 8 \cdot 10^{-5}$
ES19	$1113 \cdot 10^{-8} \pm 3 \cdot 10^{-8}$	1077 ± 3	$1199 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-5}$

3.6 Vyhodnotenie experimentov a stacionárnych simulácií

Vychádzajúc z rovnice [28](#) pomer experimentálne získaných počtov detekovaných oneskorených neutrónov pre dve konkrétne vzorky a pomer simuláciami získaných N_{sim} pre tieto vzorky by mal byť rovnaký. Preto boli určené pomery priemerných nameraných oneskorených neutrónov \bar{N}_{dn} jednotlivých vzoriek voči vzorke V4 značené ako P_{exp} . Taktiež boli stanovené aj pomery N_{sim} jednotlivých vzoriek voči vzorke V4 značené ako P_{sim} . Boli stanovené relatívne rozdiely, a to pomocou vzorca

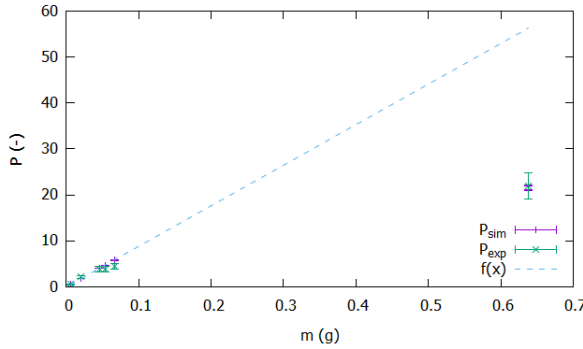
$$\sigma_{rel} = \frac{P_{exp} - P_{sim}}{P_{exp}}, \quad (29)$$

Pre vyhodnotenie experimentu z roku 2021 a jeho simulácií boli s pomocou tabuliek [9](#) a [4](#) stanovované pomery P_{exp} a P_{sim} . Tie sú uvedené v tabuľke [11](#). V tejto tabuľke platí tradičné značenie pre varianty vzorky ES17, a teda ako ES17A je označovaný variant s hustotou $10,97 \text{ g/cm}^3$ a ES17B je označovaný variant s hustotou $11,865 \text{ g/cm}^3$.

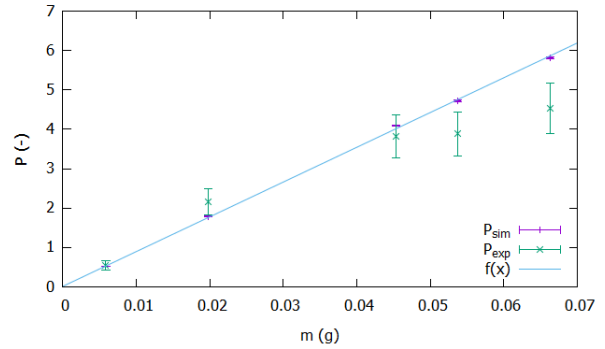
Tab. 11: Pomery P_{sim} , P_{exp} a ich relatívne rozdiely pre geometriu experimentov z roku 2021

Vzorka	$N_{dn}(-)$	$P_{sim}(-)$	$P_{exp}(-)$	$\sigma_{rel}(-)$
ES17A	1364 ± 37	$20,982 \pm 0,094$	$22,000 \pm 2,857$	$0,046 \pm 0,124$
ES17B	1364 ± 37	$22,030 \pm 0,099$	$22,000 \pm 2,857$	$-0,001 \pm 0,130$
ES06	281 ± 17	$5,804 \pm 0,021$	$4,532 \pm 0,636$	$-0,281 \pm 0,180$
ES05	241 ± 16	$4,716 \pm 0,029$	$3,887 \pm 0,554$	$-0,213 \pm 0,173$
ES04	237 ± 15	$4,092 \pm 0,023$	$3,823 \pm 0,545$	$-0,07 \pm 0,153$
ES03	134 ± 12	$1,787 \pm 0,018$	$2,161 \pm 0,332$	$0,173 \pm 0,127$
ES19	34 ± 6	$0,519 \pm 0,004$	$0,548 \pm 0,117$	$0,053 \pm 0,202$

Dáta uvedené v tabuľke [11] sú vyobrazené na obrázkoch [25] a [26]. Dáta ampulových vzoriek boli pomocou softvéru Gnuplot [16] preložené funkciou polynómu prvého stupňa, $f(x)=A \cdot x+B$. Preložením boli určené koeficienty A a B ako $A=88,212 \pm 0,748$ a $B=0,015 \pm 0,012$.



Obr. 25: Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre všetky vzorky z experimentov realizovaných roku 2021 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



Obr. 26: Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre ampulové vzorky z experimentov realizovaných roku 2021 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

Ako je možné vidieť v tabuľke [11] pri vzorkách ES04, ES17 a ES19 je dosahovaný relatívny rozdiel menší ako 10 %. Značne vyššie hodnoty je možné pozorovať v prípade vzoriek ES06 a ES05, kde je relatívny rozdiel vyšší ako 20 %. Vzhľadom na spôsob umiestňovania vzoriek do ožarovacieho kanálu polyetylénového boxu počas experimentov, by mali byť počty detekovaných oneskorených neutrónov v experimente z roku 2021 vyššie ako počty detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022. To je spôsobené prítomnosťou tyče z nehrdzavejúcej ocele v experimentoch v roku 2022, ktorá do istej miery absorbovala neutróny smerujúce na ožarovanú vzorku. Tento jav je možné pozorovať aj v simuláciách realizovaných experimentov, pozri tabuľky [9] a [10]. Pri porovnaní počtov detekovaných oneskorených neutrónov v experimente z 26.11.2021 a priemerného počtu detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022, pozri tabuľky [4] a [12], je možné pozorovať, že pre vzorku ES06 došlo k rapidnému nárastu oproti hodnote z 26.11.2021, zatiaľčo pri ostatných vzorkách je rast menší alebo došlo ku poklesu. Samotný nárast bol pozorovaný pre vzorky ES05 a ES04.

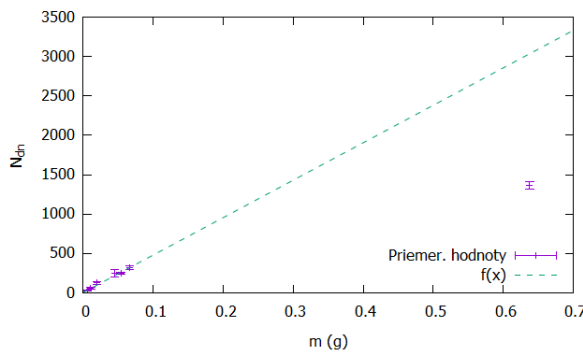
Z toho vyplýva podozrenie, že počas merania s niektorými vzorkami mohlo dôjsť ku chybe pri umiestňovaní vzoriek do správnej výšky. Samozrejme môže ísť o štatistickú chybu spôsobenú nízkym počtom meraní. Ďalším dôležitým faktom, ktorý nemožno opomenúť je vysoká absolútna odchýlka relatívneho rozdielu.

Za účelom porovnania výsledkov experimentov z roku 2022 a výsledkov simulácií boli stanovené priemerné hodnoty detekovaných oneskorených neutrónov pre geometriu experimentov z roku 2022. Tieto priemerné hodnoty sú uvedené ako \bar{N}_{dn} v tabuľke [12](#).

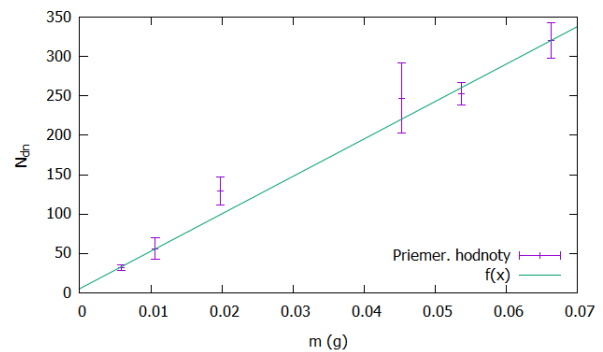
Tab. 12: Priemerné hodnoty detekovaných oneskorených neutrónov pre geometriu experimentov z roku 2022

Vzorka	$\bar{N}_{dn}(-)$
ES17	1363,40±51,24
ES06	320,40±22,80
ES05	252,50±14,27
ES04	247,25±44,31
ES03	129,25±17,97
V4	56,25±13,50
ES19	32,25±3,50

Hodnoty uvedené v tabuľke [12](#) sú graficky znázornené na obrázkoch [27](#) a [28](#). Dáta ampuľových vzoriek boli v softvéri Gnuplot [16](#) preložené funkciou $f(x)=A \cdot x+B$. Koefficienty A a B boli preložením stanovené ako $A=4750,1 \pm 221,6$ a $B=5,3 \pm 3,4$.



Obr. 27: Priemerný počet detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022 vzhľadom na hmotnosť ^{235}U vo všetkých vzorkách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



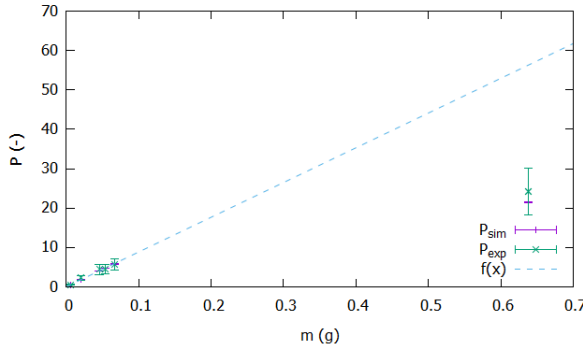
Obr. 28: Priemerný počet detekovaných oneskorených neutrónov v experimentoch z roku 2022 vzhľadom na hmotnosť ^{235}U v ampulách preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

Z hodnôt uvedených v tabuľkách [10](#) a [12](#) boli stanovené pomery P_{exp} , P_{sim} a ich relatívne rozdiely. Tieto hodnoty sú uvedené v tabuľke [13](#) a graficky znázornené na obrázkoch [29](#) a [30](#).

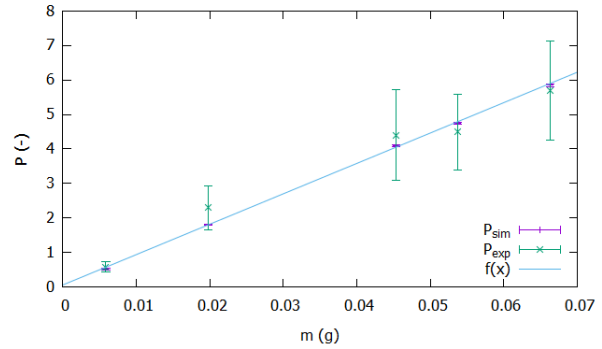
Tab. 13: Pomery P_{exp} , P_{sim} a ich relatívne rozdiely pre geometriu experimentov z roku 2022

Vzorka	$\bar{N}_{dn}(-)$	$P_{sim}(-)$	$P_{exp}(-)$	$\sigma_{rel}(-)$
ES17A	$1363,40 \pm 51,24$	$21,420 \pm 0,096$	$24,238 \pm 5,888$	$0,116 \pm 0,215$
ES17B	$1363,40 \pm 51,24$	$21,464 \pm 0,094$	$24,238 \pm 5,888$	$0,114 \pm 0,215$
ES06	$320,40 \pm 22,80$	$5,845 \pm 0,041$	$5,696 \pm 1,426$	$-0,026 \pm 0,257$
ES05	$252,50 \pm 14,27$	$4,755 \pm 0,025$	$4,489 \pm 1,107$	$-0,059 \pm 0,261$
ES04	$247,25 \pm 44,31$	$4,098 \pm 0,022$	$4,396 \pm 1,317$	$0,068 \pm 0,279$
ES03	$129,25 \pm 17,97$	$1,806 \pm 0,010$	$2,298 \pm 0,637$	$0,214 \pm 0,218$
ES19	$32,25 \pm 3,50$	$0,520 \pm 0,003$	$0,573 \pm 0,151$	$0,094 \pm 0,239$

Dáta pre ampulové vzorky boli pomocou softvéru Gnuplot [16] preložené funkciou polynómu prvého stupňa, $f(x)=A \cdot x+B$. Preložením boli určené koeficienty A a B ako $A=88,13 \pm 0,65$ a $B=0,06 \pm 0,02$.



Obr. 29: Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre všetky vzorky z experimentov realizovaných roku 2022 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky



Obr. 30: Stanovené pomery P_{exp} a P_{sim} pre ampulové vzorky z experimentov realizovaných roku 2022 preložené polynómom prvého stupňa pre ampulové vzorky

Ako je možné vidieť v tabulke [13] najvyššia odchýlka pomerov sa nachádza pri vzorke ES03, pričom jej hodnota je 21,4 %. Pri niektorých vzorkách, ako napríklad pri ES06, ES05 a ES04, bola dosiahnutá pozoruhodná zhoda, pričom relatívny rozdiel sa pohyboval medzi dvoma až troma percentami. Je nutné však podotknúť, že absolútna chyba relatívnej odchýlky je rovnako ako v prípade experimentov z roku 2021 vysoká.

3.7 Určovanie obohatenia uránu

Predpokladajme, že obohatenie skúmaných vzoriek by bolo neznáme, avšak boli by dostupné všetky ostatné parametre vzoriek uvedené v tejto práci. Pri určovaní obohatenia uránu ampulových vzoriek je možné využiť fakt, že tieto vzorky majú rovnakú geometriu. Na obrázkoch [18] a [28] je možné vidieť priamo úmerný rast počtu detekovaných oneskorených neutrónov pri rastúcej hmotnosti ^{235}U . Pri určovaní obohatenia sa predpokladalo, že sú k dispozícii všetky namerané hodnoty, resp. priemerné namerané hodnoty a obohatenia všetkých ampulových vzoriek okrem vzorky, ktorej je určované obohatenie uránu. Namerané hodnoty, resp.

priemerné namerané hodnoty, boli okrem hodnoty pre neznámu vzorku prekladané funkciou $f(x)=A \cdot x+B$. Prekladanie dát funkciou $f(x)$ bolo realizované pomocou softvéru Gnuplot [16]. Následne bola zo znalosti tejto funkcie a nameranej hodnoty, resp. priemernej nameranej hodnoty neznámej vzorky určená hmotnosť ^{235}U vo vzorke. Zo znalosti, že v každej z ampulových vzoriek je 1,5 gramu uránu, bolo určené obohatenie aj s odchýlkami. Týmto spôsobom boli určované obohatenia ampulových vzoriek, ktoré sú aj s parametrami funkcie $f(x)$ uvedené v tabulkách [14] a [15].

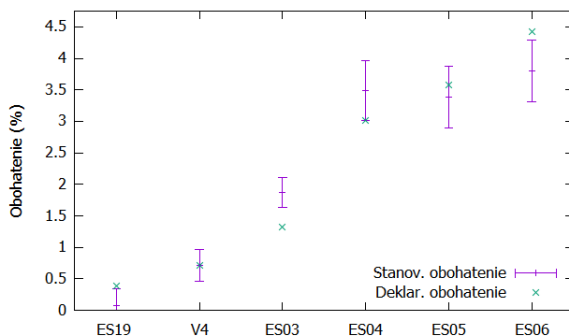
Tab. 14: Určené obohatenia ampulových vzoriek pre experimenty z roku 2021

Vzorka	A	B	$m_{235}(g)$	$O(\%)$	$\sigma_{rel}(-)$
ES06	$4723,9 \pm 506,3$	$11,8 \pm 10,5$	$0,0570 \pm 0,0074$	$3,80 \pm 0,49$	$0,140 \pm 0,112$
ES05	$4470,8 \pm 524,1$	$14,7 \pm 11,7$	$0,0506 \pm 0,0074$	$3,38 \pm 0,49$	$0,057 \pm 0,137$
ES04	$4219,4 \pm 444,7$	$16,3 \pm 10,4$	$0,0523 \pm 0,0071$	$3,49 \pm 0,47$	$-0,155 \pm 0,156$
ES03	$4349,6 \pm 283,6$	$11,8 \pm 7,4$	$0,0281 \pm 0,0037$	$1,87 \pm 0,24$	$-0,419 \pm 0,184$
V4	$4376,3 \pm 470,2$	$15,5 \pm 13,5$	$0,0106 \pm 0,0037$	$0,71 \pm 0,25$	$0,016 \pm 0,347$
ES19	$4070,8 \pm 474,2$	$29,7 \pm 16,1$	$0,0011 \pm 0,0042$	$0,07 \pm 0,28$	$0,818 \pm 0,719$

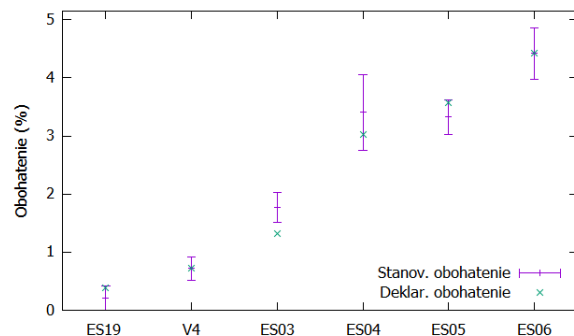
Tab. 15: Určené obohatenia ampulových vzoriek pre experimenty z roku 2022

Vzorka	A	B	$m_{235}(g)$	$O(\%)$	$\sigma_{rel}(-)$
ES06	$4748,7 \pm 316,1$	$5,3 \pm 4,6$	$0,0663 \pm 0,0066$	$4,42 \pm 0,44$	$-0,001 \pm 0,099$
ES05	$4968,7 \pm 338,8$	$4,0 \pm 4,2$	$0,0500 \pm 0,0045$	$3,33 \pm 0,30$	$0,069 \pm 0,085$
ES04	$4722,3 \pm 245,9$	$5,5 \pm 4,1$	$0,0512 \pm 0,0098$	$3,41 \pm 0,65$	$-0,130 \pm 0,216$
ES03	$4698,7 \pm 106,3$	$4,9 \pm 1,8$	$0,0265 \pm 0,0039$	$1,77 \pm 0,26$	$-0,337 \pm 0,196$
V4	$4750,1 \pm 255,8$	$5,3 \pm 4,4$	$0,0107 \pm 0,0030$	$0,72 \pm 0,20$	$0,007 \pm 0,282$
ES19	$4496,4 \pm 340,8$	$18,2 \pm 13,6$	$0,0031 \pm 0,0031$	$0,21 \pm 0,21$	$0,466 \pm 0,537$

Hodnoty uvedené v tabulkách [14] a [15] sú vyobrazené na grafoch [31] a [32].



Obr. 31: Deklarované a stanovené hodnoty obohatenia ampulových vzoriek z experimentov realizovaných roku 2021



Obr. 32: Deklarované a stanovené hodnoty obohatenia ampulových vzoriek z experimentov realizovaných roku 2022

Vzhľadom na odlišnú geometriu ampulových vzoriek a vplyv samotienenia, ktoré je možné pozorovať na grafoch [17], [19] a [21] je potrebné použiť iný spôsob určenia obohatenia uránu. Z predpokladu, že P_{exp} a P_{sim} by sa mali v ideálnom prípade rovnať, je možné odvodiť, aké N_{sim}^{ES17} je potrebné získať zo simulácie. Jeho tvar je

$$N_{sim}^{ES17} = \frac{1}{6} \sum_{i=1}^6 \frac{N_{sim}^i \cdot N_{dn}^{ES17}}{N_{dn}^i}, \quad (30)$$

kde i predstavuje index poukazujúci na ostatné vzorky. Boli určené hodnoty N_{sim}^{ES17} pre oba varianty experimentu. V prípade variantu z roku 2022 je potrebné simuláciou experimentu dosiahnuť $N_{sim}^{ES17} = 0,532 \pm 0,024$ a v prípade variantu z roku 2021 je potrebné simuláciou experimentu dosiahnuť $N_{sim}^{ES17} = 0,591 \pm 0,025$.

Následne bolo spustených niekoľko simulácií s rôznym obohatením uránu vo vzorke ES17, až pokým iteratívnym procesom boli získané hodnoty blízke požadovanému N_{sim}^{ES17} . Je nutné podotknúť, že pri menení obohatenia sa hodnota R_{II} takmer nemení, zatialčo hodnota R_I je na zmenu obohatenia citlivá. V prípade experimentu z roku 2021 bolo realizovaných 5 simulácií s rôznym obohatením uránu vo vzorke ES17 pre oba varianty hustoty. odnoty parametrov R_I , R_{II} a N_{sim} sú pre oba varianty hustoty uvedené v tabuľkách [16] a [17].

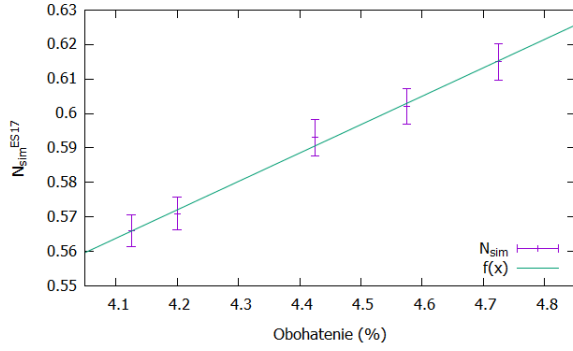
Tab. 16: Vyhodnotenie simulácii pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $10,97 \text{ g/cm}^3$ pre experiment z roku 2021

$O(\%)$	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
4,13	$5,28 \cdot 10^{-4} \pm 3,96 \cdot 10^{-6}$	$1071,99 \pm 2,85$	$0,566 \pm 0,005$
4,20	$5,33 \cdot 10^{-4} \pm 4,10 \cdot 10^{-6}$	$1071,18 \pm 2,84$	$0,571 \pm 0,005$
4,43	$5,54 \cdot 10^{-4} \pm 4,60 \cdot 10^{-6}$	$1071,29 \pm 2,87$	$0,593 \pm 0,005$
4,58	$5,63 \cdot 10^{-4} \pm 4,59 \cdot 10^{-6}$	$1069,01 \pm 2,84$	$0,602 \pm 0,005$
4,73	$5,75 \cdot 10^{-4} \pm 4,64 \cdot 10^{-6}$	$1069,33 \pm 2,92$	$0,615 \pm 0,005$

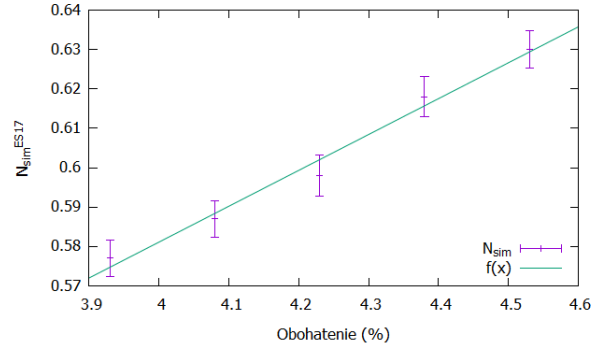
Tab. 17: Vyhodnotenie simulácii pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $11,865 \text{ g/cm}^3$ pre experiment z roku 2021

$O(\%)$	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
3,93	$5,41 \cdot 10^{-4} \pm 4,09 \cdot 10^{-4}$	$1066,52 \pm 2,87$	$0,577 \pm 0,005$
4,08	$5,51 \cdot 10^{-4} \pm 4,02 \cdot 10^{-4}$	$1065,48 \pm 2,82$	$0,587 \pm 0,005$
4,23	$5,61 \cdot 10^{-4} \pm 4,62 \cdot 10^{-4}$	$1065,24 \pm 2,71$	$0,598 \pm 0,005$
4,38	$5,79 \cdot 10^{-4} \pm 4,54 \cdot 10^{-4}$	$1067,16 \pm 2,84$	$0,618 \pm 0,005$
4,53	$5,91 \cdot 10^{-4} \pm 4,23 \cdot 10^{-4}$	$1065,71 \pm 2,72$	$0,630 \pm 0,005$

Údaje z tabuliek [18] a [19] boli vyobrazené do grafov [33] a [34]. Tieto dáta boli následne preložené funkciou $f(x) = A \cdot x + B$.



Obr. 33: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ z experimentu z roku 2021



Obr. 34: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ z experimentu z roku 2021

V prípade variantu ES17 s hustotou $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ boli preložením stanovené parametre funkcie $f(x)$. Ich hodnoty sú $A=0,082\pm 0,003$ a $B=0,226\pm 0,014$. V prípade variantu ES17 s hustotou $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ boli taktiež preložením stanovené parametre funkcie $f(x)$. Ich hodnoty sú $A=0,091\pm 0,006$ a $B=0,217\pm 0,026$. Následne bolo v oboch prípadoch odvodené obohatenie pre funkčnú hodnotu $N_{sim}^{ES17}=0,591\pm 0,025$. Týmto postupom bolo určené obohatenie vzorky ES17, pre variantu s hustotou $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ na hodnotu $O=4,43\pm 0,38 \%$ a pre variantu s hustotou $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ na hodnotu $O=4,11\pm 0,49 \%$.

V prípade experimentov z roku 2022 bolo taktiež realizovaných 5 simulácií s rôznym obohatením uránu vo vzorke ES17 pre oba varianty hustoty. Hodnoty parametrov R_I , R_{II} a N_{sim} sú pre oba varianty hustoty ucedené v tabuľkách [18](#) a [19](#).

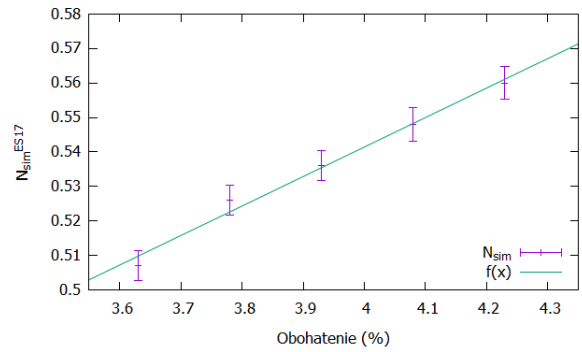
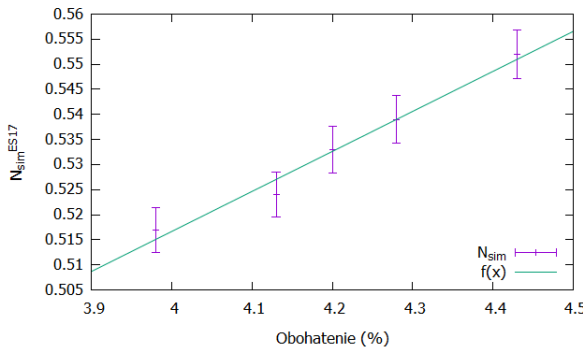
Tab. 18: Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $10,97 \text{ g/cm}^3$ pre experimenty z roku 2022

$O(\%)$	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
4,43	$5,20\cdot 10^{-4}\pm 4,35\cdot 10^{-6}$	$1061,86\pm 2,91$	$0,552\pm 0,005$
4,28	$5,07\cdot 10^{-4}\pm 4,33\cdot 10^{-6}$	$1063,25\pm 2,73$	$0,539\pm 0,005$
4,20	$5,00\cdot 10^{-4}\pm 4,15\cdot 10^{-6}$	$1064,93\pm 2,73$	$0,533\pm 0,005$
4,13	$4,93\cdot 10^{-4}\pm 3,94\cdot 10^{-6}$	$1062,58\pm 2,78$	$0,524\pm 0,004$
3,98	$4,84\cdot 10^{-4}\pm 4,02\cdot 10^{-6}$	$1066,70\pm 2,79$	$0,517\pm 0,004$

Tab. 19: Vyhodnotenie simulácií pre rôzne obohatenie uránu vo vzorke ES17 s variantom hustoty $11,865 \text{ g/cm}^3$ pre experimenty z roku 2022

$O(\%)$	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
4,23	$5,27 \cdot 10^{-4} \pm 4,21 \cdot 10^{-4}$	$1063,38 \pm 2,82$	$0,560 \pm 0,005$
4,08	$5,17 \cdot 10^{-4} \pm 4,38 \cdot 10^{-4}$	$1060,31 \pm 2,82$	$0,548 \pm 0,005$
3,93	$5,04 \cdot 10^{-4} \pm 3,91 \cdot 10^{-4}$	$1064,99 \pm 2,67$	$0,536 \pm 0,004$
3,78	$4,92 \cdot 10^{-4} \pm 3,94 \cdot 10^{-4}$	$1068,06 \pm 2,72$	$0,526 \pm 0,004$
3,63	$4,78 \cdot 10^{-4} \pm 3,93 \cdot 10^{-4}$	$1060,15 \pm 2,98$	$0,507 \pm 0,004$

Údaje z tabuliek 18 a 19 boli vyobrazené do grafov 35 a 36. Tieto dáta boli taktiež preložené funkciou $f(x)=A \cdot x+B$.



Obr. 35: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ z experimentov realizovaných roku 2022

Obr. 36: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES17 s variantom hustoty $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ z experimentov realizovaných roku 2022

V prípade variantu ES17A, teda variant s hustotou $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ boli preložením stanovené parametre funkcie $f(x)$, a to ako $A=0,086 \pm 0,006$ a $B=0,199 \pm 0,023$. V prípade variantu ES17B, teda variant s hustotou $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ boli preložením stanovené parametre funkcie $f(x)$ ako $A=0,086 \pm 0,006$ a $B=0,199 \pm 0,023$. Následne bolo v oboch prípadoch odvodené obohatenie pre funkčnú hodnotu $N_{sim}^{ES17}=0,532 \pm 0,024$. Týmto postupom bolo určené obohatenie vzorky ES17, pre variant s hustotou $\rho=10,97 \text{ g/cm}^3$ na hodnotu $O=4,19 \pm 0,65 \%$ a pre variant s hustotou $\rho=11,865 \text{ g/cm}^3$ na hodnotu $O=3,89 \pm 0,53 \%$.

Ako je možné vidieť v tabuľkách 14 a 15 v prípade vzorky ES19 je dosahovaná vysoká odchýlka určenia obohatenia. Preto bolo obohatenie vzorky ES19 určené pomocou vyššie opísanej metódy, ktorou je určené obohatenie vzorky ES17. Pomocou vzorca

$$N_{sim}^{ES19} = \frac{1}{5} \sum_{i=1}^5 \frac{N_{sim}^i \cdot N_{dn}^{ES19}}{N_{dn}^i}, \quad (31)$$

boli stanovené hodnoty N_{sim}^{ES19} , ktoré je potrebné dosiahnuť pomocou simulácií. Pre prípad experimentu z roku 2021 ide o hodnotu $N_{sim}^{ES19}=0,0150 \pm 0,0013$ a v prípade experimentov z roku 2022 ide o hodnotu $N_{sim}^{ES19}=0,0127 \pm 0,0011$. V tabuľkách 20 a 21 sú uvedené vyhodnotenia simulácií pre rôzne obohatenia.

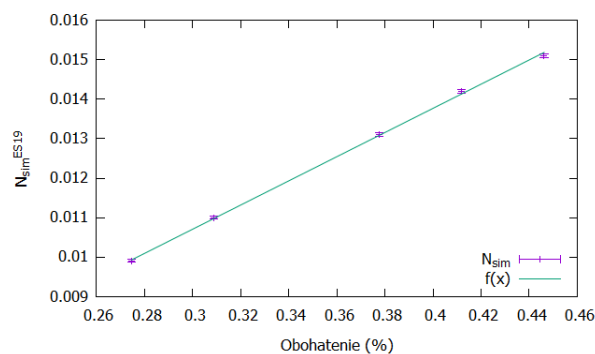
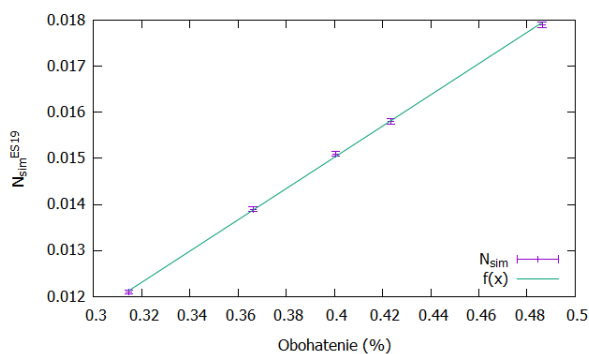
Tab. 20: Vyhodnotenie simulácií pre vzorku ES19 pre experiment z roku 2021

$O(\%)$	$R_I(-)$	$R_{II}(-)$	$N_{sim}(-)$
0,412	$1,66 \cdot 10^{-5} \pm 3,76 \cdot 10^{-8}$	$1087,64 \pm 2,74$	$1,80 \cdot 10^{-2} \pm 6,12 \cdot 10^{-5}$
0,446	$1,46 \cdot 10^{-5} \pm 3,35 \cdot 10^{-8}$	$1087,66 \pm 3,01$	$1,59 \cdot 10^{-2} \pm 5,72 \cdot 10^{-5}$
0,378	$1,39 \cdot 10^{-5} \pm 3,39 \cdot 10^{-8}$	$1086,39 \pm 2,59$	$1,51 \cdot 10^{-2} \pm 5,15 \cdot 10^{-5}$
0,310	$1,29 \cdot 10^{-5} \pm 2,93 \cdot 10^{-8}$	$1083,19 \pm 3,01$	$1,39 \cdot 10^{-2} \pm 5,01 \cdot 10^{-5}$
0,275	$1,13 \cdot 10^{-5} \pm 2,65 \cdot 10^{-8}$	$1085,49 \pm 2,97$	$1,22 \cdot 10^{-2} \pm 4,42 \cdot 10^{-5}$

Tab. 21: Vyhodnotenie simulácií pre vzorku ES19 pre experimenty z roku 2022

$O(\%)$	R_I	R_{II}	N_{sim}
0,412	$1,41 \cdot 10^{-5} \pm 3,19 \cdot 10^{-8}$	$1075,52 \pm 2,91$	$1,51 \cdot 10^{-2} \pm 5,35 \cdot 10^{-5}$
0,446	$1,31 \cdot 10^{-5} \pm 3,11 \cdot 10^{-8}$	$1082,37 \pm 2,86$	$1,42 \cdot 10^{-2} \pm 5,04 \cdot 10^{-5}$
0,378	$1,22 \cdot 10^{-5} \pm 2,90 \cdot 10^{-8}$	$1077,46 \pm 2,61$	$1,31 \cdot 10^{-2} \pm 4,46 \cdot 10^{-5}$
0,310	$1,02 \cdot 10^{-5} \pm 2,27 \cdot 10^{-8}$	$1078,08 \pm 3,06$	$1,10 \cdot 10^{-2} \pm 3,95 \cdot 10^{-5}$
0,275	$9,20 \cdot 10^{-6} \pm 2,14 \cdot 10^{-8}$	$1076,98 \pm 2,84$	$9,91 \cdot 10^{-3} \pm 3,48 \cdot 10^{-5}$

Tieto dáta boli preložené funkciou $f(x)=A \cdot x+B$. V prípade experimentu z roku 2021 boli hodnoty parametrov A a B určené ako $A=0,0339 \pm 0,0015$ a $B=0,0004 \pm 0,0002$. V prípade experimentu z roku 2022 boli hodnoty parametrov A a B určené ako $A=0,0306 \pm 0,0015$ a $B=0,0004 \pm 0,0001$. Dáta z tabuliek a preložené funkciou $f(x)$ sú znázornené na obrázkoch [37](#) a [38](#).



Obr. 37: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES19 z experimentu realizovaného roku 2021

Obr. 38: Hodnoty N_{sim} pre rôzne obohatenie vzorky ES19 z experimentov realizovaných roku 2022

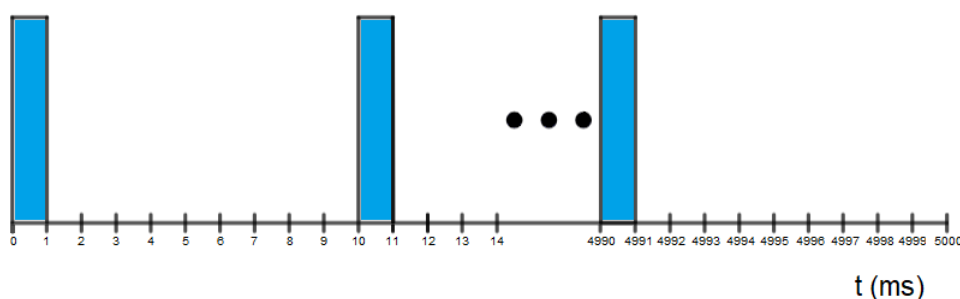
Pomocou týchto funkcií bolo stanovené obohatenie vzorky ES19 pre oba varianty experimentov. V prípade experimentu z roku 2021 bolo obohatenie uránu určené na hodnotu $O=0,401 \pm 0,037$ % a v prípade experimentov z roku 2022 bolo obohatenie uránu určené na hodnotu $O=0,365 \pm 0,035$ %.

3.8 Nestacionárne simulácie experimentov

Alternatívne bol otestovaný variant časovo závislých simulácií pre všetky vzorky v geometrii experimentu z roku 2022. Tieto simulácie boli v prípade vzorky ES17 vykonané oba varianty hustoty, teda pre hustotu $10,97 \text{ g/cm}^3$, ktorá je značená ako ES17A a pre hustotu $11,865 \text{ g/cm}^3$, značená ako ES17B.

Vzhľadom na vysokú výpočetnú náročnosť neboli s týmito vzorkami simulované celé merania. Pre overenie využiteľnosti tejto metódy bolo simulovaných iba prvých 5 sekúnd merania. Tento výpočet trval v prípade vzorky ES06 približne 10 hodín s využitím 32 výpočetných jadier. Výpočet so vzorkou ES17 trval približne 18 hodín s využitím 32 výpočetných jadier. Dosahované relatívne neistoty sú uvedené v tabuľke 23 ako $\sigma_{relativ}$. Oba výpočty v stacionárnych simuláciách zvyčajne trvali dohromady približne 2 hodiny pri využití 12 výpočetných jadier. Dosahovaná relatívna neistota bola v oboch výpočtoch menej ako 1%. Pre dosiahnutie podobných relatívnych neistôt v nestacionárnej simulácii experimentov by bolo potrebné výrazne zvýšiť výpočetný čas alebo výkon. Miera tohoto navýšenia závisí od jednotlivých vzoriek.

Najprv bola vytvorená časová karta pre detektor. V nej bol časový interval rozdelený na 5000 košov, a teda jeden koš predstavuje 1 ms. V zdroji neutrónov boli produkované neutróny po dobu 1 ms a to každých 10 ms, teda ide o 500 pulzov. Po každom pulze nasledovala 9ms pauza. Na obrázku 39 sú na časovej osi znázornené jednotlivé detektory a formou modrých stĺpcov sú vyznačené časy, kedy dochádzalo k produkcii neutrónov.



Obr. 39: Znázornenie časových košov detektora a pulzov neutrónov na simulovanom časovom úseku

Dôležitým parametrom, ktorý bolo potrebné nastaviť, bola produkcia oneskorených neutrónov. Tá bola nastavená ako set delnu 1. Výpočet bol realizovaný v geometrii experimentov z roku 2022. Celkový počet simulovaných častíc bol $1,5 \cdot 10^9$. Ako je možné vidieť na obrázku 39, výstupom simulácie bolo 5000 zápisov detektora, pričom každý zo zápisov reprezentoval detekované neutróny v časovom intervale jednej ms. Ide teda o 500 cyklov generátora neutrónov. Z každého cyklu boli vyseparované časové intervaly od štvrtej po ôsmy ms vrátane. Priemerný počet oneskorených detekovaných neutrónov v tomto časovom intervale získaných v experimentoch z roku 2022 je uvedený v tabuľke 22.

Neutróny detekované v týchto časových intervaloch boli považované za oneskorené neutróny. V prípade vzoriek ES19, V4 a ES03 boli dosahované relatívne neistoty vyššie ako 20

Tab. 22: Nameraný priemerný počet oneskorených neutrónov v časovom intervale 4 ms až 9 ms v experimentoch z roku 2022

Vzorka	$N_{dn} (-)$
ES17	1237,20±35,17
ES06	290,80±17,05
ES05	226,00±15,03
ES04	218,25±14,77
ES03	116,00±10,77
V4	51,75±7,19
ES19	27,75±5,27

%, čo možno považovať za nedôveryhodný výsledok [23]. V tabulke sú uvedené počty detekovaných oneskorených neutrónov a aj ich relatívna neistota značená ako $\sigma_{relativ}$. Vzorka označená ako ES17A predstavuje vzorku ES17 s hustotou $10,97 \text{ g/cm}^3$ a ES17B vzorku ES17 s hustotou $11,865 \text{ g/cm}^3$.

Tab. 23: Počet oneskorených neutrónov v časovom intervale 4 ms až 9 ms získaných pomocou nestacionárnej simulácie

Vzorka	$N_{dn}(-)$	$\sigma_{relativ}(\%)$
ES17A	158±13	7,96
ES17B	156±12	8,01
ES06	41±6	15,62
ES05	34±6	17,15
ES04	26±5	19,61
ES03	10±3	31,62
V4	10±3	31,62
ES19	6±2	40,82

Pre vyhodnotenie simulácií boli stanovené pomery počtu oneskorených neutrónov pre vzorky ES17, ES06, ES05 a ES04. Pomer bol vždy určovaný voči počtu oneskorených neutrónov vzorky ES06. Tieto pomery, P_{ES06}^{sim} pre simuláciu a P_{ES06}^{exp} pre experimenty aj s ich relatívnym rozdielom sú uvedené v tabulke [24].

Tab. 24: Hodnoty P_{ES06}^{sim} a P_{ES06}^{exp} a ich relatívny rozdiel

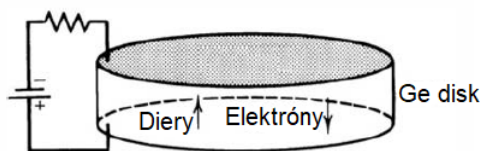
Vzorka	$P_{ES06}^{sim}(-)$	$P_{ES06}^{exp}(-)$	$\sigma_{rel} (-)$
ES17A	3,854±0,675	4,254±0,277	0,094±0,159
ES17B	3,805±0,668	4,254±0,277	0,106±0,157
ES05	0,829±0,192	0,777±0,069	-0,067±0,248
ES04	0,634±0,159	0,751±0,067	0,155±0,213

4 Experimenty založené na gama spektrometrickej metóde

Rovnako ako v prípade metódy oneskorených neutrónov boli realizované experimenty založené na gama spektrometrickej metóde, ktorá je popísaná v druhej kapitole. Opäť bolo účelom stanovenie obohatenia uránu vo vzorkách. Boli použité rovnaké vzorky ako v experimentoch založených na metóde oneskorených neutrónov. Tieto vzorky sú bližšie popísané v kapitole 3.1.1. Experimenty s týmito vzorkami boli realizované v priestoroch laboratória katedry jadrových reaktorov FJFI v priebehu januára a februára roku 2022. Pre všetky vzorky platí, že v čase merania bola nastolená rovnováha aktivít medzi izotopmi ^{234m}Pa a ^{238}U .

4.1 HPGe detektor

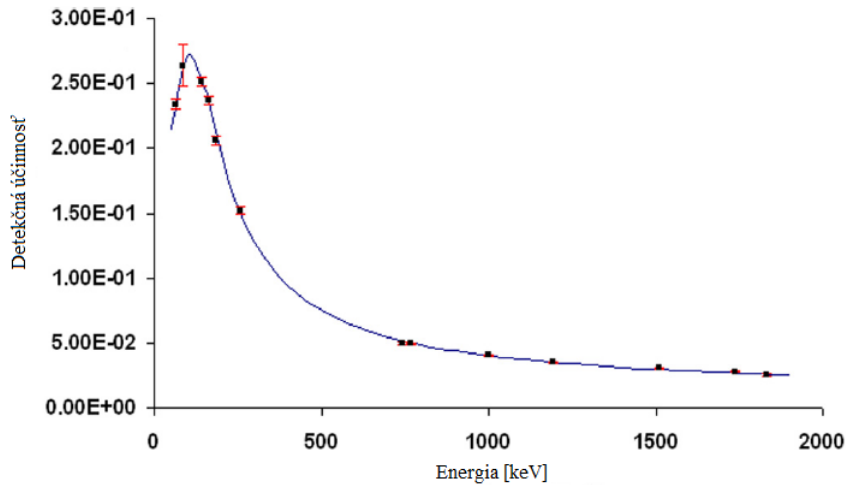
Za účelom naberania gamaspektra vzoriek uránu bol použitý HPGe detektor. Označenie HPGe pochádza z anglického termínu high purity germanium. Teda sa ide o detektory, ktorých kryštály sa vyznačujú vysokou čistotou germánia. V týchto detektoroch nečistoty v germánii dosahujú úroveň 10^{10} atómov na centimeter kubický. Tento detektor radíme medzi polovodičové detektory, ktoré sú všeobecne považované za vhodné pre meranie gama žiarenia. Prakticky sa ES06á o kryštalické diódy zapojené do elektrického obvodu v závernom smere. Po interakcii atómov kryštalickej mriežky s fotónom môžu valenčné elektróny získať dostatočnú energiu na to, aby prekonalí zakázané pásmo. Takéto elektróny sa dostávajú do vodivostného pásma. Tým vzniká pár elektrón-diera. Dieru reprezentuje atóm, ión s pozitívnym nábojom, z ktorého unikol valenčný elektrón. Táto dvojica sa následne pohybuje v elektrickom poli, ktoré je privedené na kryštál. Schématicky je tento jav znázornený na obrázku 40.



Obr. 40: Základná schéma polovodičového detektora [11]

Jednou z výhod HPGe detektorov je vysoká kvalita energetického rozlíšenia. Ich nevýhodou je nutnosť chladenia počas prevádzky. Pokiaľ detektor nie je v prevádzke, chladenie nie je potrebné. Za týmto účelom je možné použiť tekutý dusík. V takom prípade je teplota počas prevádzky na úrovni 77K. Tekutý dusík je skladovaný v špeciálnej dvojstennej nádobe, pričom medzi týmito stenami je vákuum. Takúto nádobu označujeme ako Dewarovu nádobu. Chladenie nami používaného HPGe detektoru bolo realizované týmto spôsobom, pričom Dewarova nádoba bola umiestnená pod detektorom. Ďalším možným spôsobom chladenia sú napríklad mechanické alebo elektrické chladiče [11].

Ako je možné vidieť vo vzorci [19], resp. [20] pre stanovenie obohatenia uránu je nutné poznať detekčnú účinnosť použitého detektora. Tú je možné stanoviť pomocou účinnostnej kalibrácie detektora. Niektoré moderné detekčné systémy majú k dispozícii softvér, ktorý je schopný na základe geometrie experimentu, popisu detektora a popisu zloženia vzorky vypočítať priebeh detekčnej účinnosti. Typický priebeh detekčnej účinnosti je znázornený na obrázku 41.

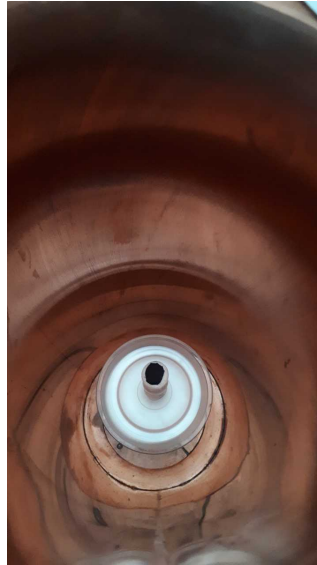


Obr. 41: Typická detekčná účinnosť HPGe detektora použitého v [8]

Ako je možné vidieť na obrázku [41], detekčná účinnosť dosahuje vysokých hodnôt pre energiu 185 keV, ktorá je pre naše meranie dôležitá, keďže ide o gama žiarenie produkované samovoľným rozpadom izotopu ^{235}U . Druhou dôležitou hodnotou energie gama žiarenia pre naše meranie je energia 1001 keV. Gama žiarenie tejto energie je produkované samovoľným rozpadom izotopu ^{234m}Pa , čo je dcérske jadro izotopu ^{238}U . V prípade tejo energie dosahuje detekčná účinnosť značne nižšie hodnôt.

4.2 Popis experimentu

V období januára a februára 2022 bolo realizovaných celkovo 7 meraní, pričom s každou vzorkou bolo meranie realizované práve raz. Všetky vzorky boli vertikálne umiestnené na polyetylénový disk s hrúbkou 3 mm svojou podstavou. Následne bol polyetylénový disk so vzorkou umiestnený na HPGe detektor. Na obrázku je možné vidieť vzorku ES17 umiestnenú na polyetylénovom disku v HPGe detektore.



Obr. 42: Umiestnenie vzorky ES17 v HPGe detektore

Prvou premeriavanou vzorkou bola ampula ES19, pričom meranie trvalo viac než 44 hodín. Dĺžka merania bola volená tak, aby bolo zaručené, že relatívna neistota určovania plochy pod energetickým píkom bola na uspokojivej úrovni. Relatívna neistota určenia plochy pod píkom oboch energií bola na úrovni 0,1 %. Tým sa zistilo, že nie je nutné realizovať takto dlhé merania. Preto niektoré ďalšie merania boli realizované kratšie. Napríklad sa išlo o meranie so vzorkou ES04, ktoré trvalo približne 20,5 hodiny. Mŕtva doba dosiahnutá pri tomto meraní bola na úrovni 0,85 %. Stanovená relatívna neistota určovania plochy pod píkom bola pre energiu 185 keV na úrovni 0,0 % a pre energiu 1001 keV na úrovni 0,2 %. V prípade ak bola relatívna neistota určovania plochy pod píkom energie 185 keV na úrovni 0,0 %, tak bola táto neistota konzervatívne odhadnutá na hodnotu 0,05 %. Namerané gama spektrá boli analyzované pomocou softvéru GENIE2000, ktorým bola vo všetkých prípadoch určená plocha pod potrebnými energetickými píkmami.

4.3 LabSOCS

Určovanie obohatenia uránu v skúmaných vzorkách bolo realizované pomocou vzorca [19], resp. [20]. Ako je možné vidieť v rovnici [19] na určenie potrebného podielu aktivít je potrebné poznať detekčnú účinnosť HPGe detektora pre energie 185,7 keV a 1001 keV. Tá bola získaná pomocou softvéru LabSOCS, ktorý je súčasťou softvéru GENIE2000. Detekčná účinnosť je stanovená na základe predpočítaných šablón vzoriek a charakterizácie detektora, ktorá je vypočítaná pomocou Monte Carlo kódu MCNP a metód založených na sledovaní gama žiarenia [24]. Táto charakterizácia bola do softvéru dodaná spoločnosťou CANBERRA. Určenie detekčnej účinnosti bolo realizované pomocou tohoto softvéru, pretože v našom prípade nebolo možné určiť závislosť detekčnej účinnosti pomocou meraní s etalónmi. Dôvodom je fakt, že etalóny dostupné na katedre jadrových reaktorov FJFI nemajú vhodnú geometriu. Tieto etalóny sú v podobe rádionuklidu umiestneného do diskovej geometrie, čo nezodpovedá geometrii nami používaných vzoriek.

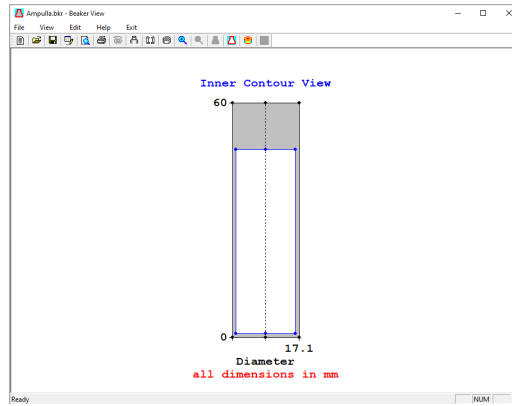
Pre výpočet priebehu detekčnej účinnosti pre konkrétne meranie bolo potrebné softvéru

LabSOCS zadať geometriu a chemický popis vzorky a ďalších absorbátorov. Ako prvé bolo potrebné pridať do knižnice materiálov chemický popis nami používaných materiálov. Ide o chemický popis jednotlivých vzoriek, teda popis zmesi oxidu uránu a parafínu pre všetky premerané vzorky ampúl. Materiál ampúl, polyetylén, už bol súčasťou knižnice materiálov. V prípade vzorky ES17 bolo nutné okrem popisu oxidu uránu zadať aj chemický popis obalu vzorky. Tento popis sa udával ako hmotnostné zlomky jednotlivých chemických prvkov vo vzorke a taktiež bolo potrebné zadať hustotu tejto zmesi. Predpokladalo sa, že urán je v parafíne rozptýlený homogénne. Vzduchové bubliny a dutiny v ampuly boli zanedbané, predpokladalo sa teda, že zmes parafínu a uránu vyplňa ampulu homogénne. Hustoty jednotlivých zmesí sú uvedené v tabuľke 7. V prípade vzorky ES17 boli zadané obidva varianty hustoty. Ide o výpočtami určenú hodnotu $11,865 \text{ g/cm}^3$ a bežne prijímanú hodnotu $10,97 \text{ g/cm}^3$. Materiál polyetylénu ani gumy už boli súčasťou knižnice materiálov. V tabuľke 25 sú uvedené zadané hmotnostné zlomky označované ako w_i pre jednotlivé prvky v percentách. Tieto hodnoty boli vypočítané na základe informácií o geometrii vzoriek a informácií z tabuľky 3. V tejto tabuľke je uvedený aj spôsob zápisu polyaktidového obalu vzorky ES17 ako PLA 21.

Tab. 25: Hmotnostné zlomky jednotlivých prvkov zadávané do softvéru LabSOCS

Vzorka	w_U (%)	w_O (%)	w_C (%)	w_H (%)
ES06	44,24	8,94	40,13	6,69
ES05	32,71	4,40	53,91	8,98
ES04	31,74	4,27	54,85	9,14
ES03	24,77	5,00	60,20	10,03
V4	29,15	5,88	55,69	9,28
ES19	29,84	5,35	55,55	9,26
ES17	88,10	11,90	0,00	0,00
PLA	0,00	45,07	50,70	4,23

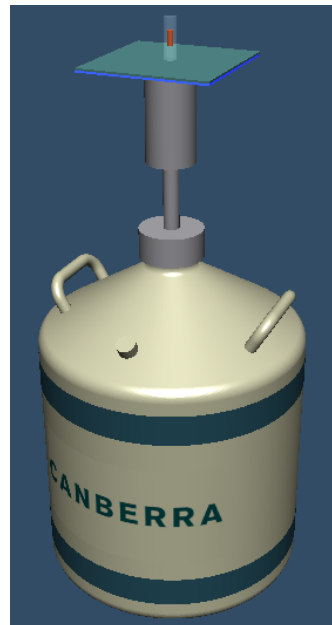
Následne bolo potrebné vytvoriť geometriu ampuly k čomu slúžil jeden z editorov. V tomto editore je nutné zadať vonkajší aj vnútorný geometrický popis ampuly. Taktiež je pri zadávaní geometrie ampuly potrebné zadať aj jej materiál. Editor priebežne vyobrazuje vytváranú geometriu. Na obrázku 43 je možné vidieť geometriu ampúl vytvorenú v tomto editore.



Obr. 43: Editor na vytváranie geometrie ampúl softvéru LabSOCS

Posledným krokom pri vytváraní geometrie ampúl a obalu peletiek bola kontrola geometrie, ktorú softvér LabSOCS umožňuje. Následne bola ampula, resp. obal vzorky ES17, umiestnený na absorbátor, ktorý bol umiestnený na HPGe detektore. Týmto absorbátorom bol polyetylénový disk modelovaný ako hranol s hrúbkou 3 mm. V prípade vzorky ES17 boli vytvorené 4 rôzne modely. Išlo jednak o modely, ktoré obsahovali gumovú vrstvu na spodku vzorky ES17 pre oba varianty hustoty a za druhé o modely, v ktorých táto vrstva uvedená nebola. Boli uvažované dve rôzne hustoty UO_2 . Išlo o obecnú prijímanú hustotu $\rho=10,97g/cm^3$ [22] a o vypočítanú hustotu $\rho=11,865g/cm^3$ (pozri podkapitolu 3.5.1.).

V prípade variantov, v ktorých gumová vrstva bola uvažovaná, bol medzi obal vzorky a polyetylénový absorbátor umiestnený ďalší absorbátor v podobe hranola z gumeného materiálu s výškou 3 mm. Materiál gumeného absorbátora už bol súčasťou knižnice materiálov. Celé rozloženie pre vzorky ES17 s oboma absorbátormi je znázornené na obrázku [44].



Obr. 44: Znázornenie umiestnenia vzorky ES17 v softvéru LabSOCS

Následne sa v softvéru GENIE2000 spustila sekvenca, ktorá pomocou vytvoreného modelu stanovila priebeh detekčnej účinnosti pre konkrétne merania. Nepodarilo sa získať hodnoty

detekčných účinností pre konkrétne energie 185,7 keV a 1001 keV. Boli získané hodnoty pre energie 185 keV a 1000 keV. Tieto hodnoty sú uvedené v tabuľke 26 ako ε_{185} pre energiu 185 keV a ε_{1000} pre energiu 1000 keV.

Tab. 26: Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre ampulové vzorky

Vzorka	ε_{185} (-)	ε_{1000} (-)
ES06	0,04610±0,00461	0,01591±0,00064
ES05	0,04650±0,00465	0,01599±0,00064
ES04	0,04640±0,00464	0,01597±0,00064
ES03	0,04541±0,00454	0,01574±0,00063
V4	0,04609±0,00461	0,01590±0,00064
ES19	0,04618±0,00462	0,01592±0,00064

Pre všetky štyri uvažované varianty vzorky ES17 boli určené detekčné účinnosti, ktoré sú uvedené v tabuľke 27, kde variant I označuje variant s gumovou vrstvou a variant II označuje variant bez gumovej vrstvy.

Tab. 27: Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre vzorku ES17

Variant	$\rho(g/cm^3)$	$\varepsilon_{185}(-)$	$\varepsilon_{1000}(-)$
I	10,97	0,00208±0,00021	0,00580±0,00023
I	11,865	0,00193±0,00019	0,00560±0,00022
II	10,97	0,00248±0,00025	0,00657±0,00026
II	11,865	0,00230±0,00023	0,00635±0,00025

Určenie detekčných účinností HPGe detektora pre merania s ampulami bolo možné len vďaka tomu, že bola známa hustota zmesi oxidu uránu a parafínu vo vzorkách a taktiež ich hmotnostný pomer vo vzorke.

Predpokladajme, že by bola známa geometria vzorky, materiál ampule a jej celková hmotnosť. Neznámym by bol podiel parafínu a uránu vo vzorke, a teda by nebolo možné správne určiť hmotnostný zlomok uránu vo vzorke. To by malo za následok potrebu odhadnúť hmotnosť uránu vo vzorke, aby bolo možné stanoviť detekčnú účinnosť detektora pomocou softvéru LabSOCS. Pre demonštráciu, že v prípade nesprávneho odhadu, by došlo k nesprávnemu určeniu detekčnej účinnosti a teda aj obohatenia, boli v tomto softvéri určené detekčné účinnosti pre dve hypotetické hmotnosti uránu vo vzorke ES06. Išlo o hmotnosť 2,25 gramu a 3 gramy, pričom pôvodná hmotnosť uránu vo vzorke je 1,5 gramu (pozri tabuľku 3). Vypočítané detekčné účinnosti pre rôzne uvažované hmotnosti uránu vo vzorke ES06 sú uvedené v tabuľke 28.

Tab. 28: Detekčná účinnosť HPGe detektora získaná pomocou softvéru LabSOCS pre rôzne uvažované hmotnosti uránu vo vzorke ES06

$m(g)$	$\varepsilon_{185}(-)$	$\varepsilon_{1000}(-)$
1,50	$0,04610 \pm 0,00461$	$0,01591 \pm 0,00064$
2,25	$0,04133 \pm 0,00413$	$0,01591 \pm 0,00064$
3,00	$0,03735 \pm 0,00461$	$0,01590 \pm 0,00064$

Ako je možné v tabuľke 28 vidieť, hodnota detekčnej účinnosti ε_{1000} sa pri zvyšujúcej sa hmotnosti uránu takmer nemení. Avšak hodnota detekčnej účinnosti ε_{185} sa výrazne znižuje, čo by viedlo k nesprávnemu určeniu obohatenia uránu vo vzorke, pozri podkapitolu 4.4.

4.4 Namerané dáta a ich vyhodnotenie

Získané plochy pod píkom energie 185,7 keV charakterizujúcej aktivitu ^{235}U a plochy pod píkom energie 1001 keV charakterizujúcej aktivitu ^{238}U boli podelené dobou trvania merania v hodinách. Získané hodnoty plôch za čas pre oba izotopy sú uvedené v tabuľke 29, značené ako S_5 pre izotop ^{235}U , resp. ako S_8 pre izotop ^{238}U .

Tab. 29: Plochy pod píkmami energií 185,7 keV a 1001 keV za hodinu

Vzorka	S'_5 (1/h)	S'_8 (1/h)
ES17	178195 ± 178	24054 ± 72
ES06	580519 ± 290	10711 ± 11
ES05	496753 ± 248	12282 ± 25
ES04	328029 ± 164	9429 ± 19
ES03	134390 ± 67	6809 ± 14
V4	101630 ± 102	12162 ± 24
Es19	57476 ± 57	15107 ± 15

Následne boli hodnoty z tabuľky 29 dosadené do vzorcov 19 a 20. Zo znalosti detekčných účinností, ktoré sú pre všetky premerané vzorky uvedené v tabuľke 26 bolo určené obohatenie vzoriek. Tieto obohatenia sú uvedené v tabuľke 30, kde sú označené ako $O_{urč}$, zatiaľčo deklarované obohatenie je označované ako O . Relatívny rozdiel medzi týmito dvoma hodnotami je taktiež uvedený v tabuľke 30 a je označovaný ako σ_{rel} . Tento rozdiel bol určovaný pomocou nasledovného vzťahu

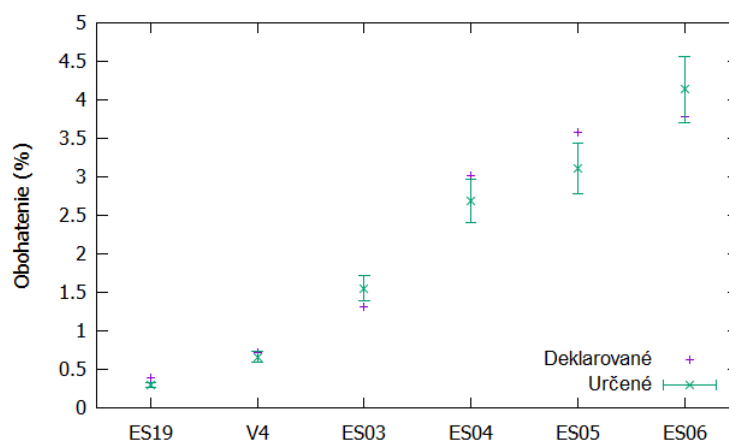
$$\sigma_{rel} = \frac{O - O_{urč}}{O}, \quad (32)$$

V tejto tabuľke sú uvedené aj vypočítané podiely aktivít označené ako A_8/A_5 , ktoré boli určené pomocou vzorca 19.

Tab. 30: Obohatenia ampulových vzoriek určené pomocou gama spektrometrickej metódy

Vzorka	A_8/A_5 (-)	$O_{urč}$ (%)	O (%)	σ_γ (-)
ES06	$3,65 \pm 0,40$	$4,13 \pm 0,43$	4,42	$0,06 \pm 0,10$
ES05	$4,91 \pm 0,53$	$3,11 \pm 0,33$	3,58	$0,13 \pm 0,09$
ES04	$5,71 \pm 0,62$	$2,69 \pm 0,28$	3,02	$0,11 \pm 0,09$
ES03	$9,99 \pm 1,09$	$1,55 \pm 0,17$	1,32	$-0,18 \pm 0,13$
V4	$23,71 \pm 2,58$	$0,66 \pm 0,07$	0,72	$0,08 \pm 0,10$
ES19	$52,10 \pm 5,66$	$0,30 \pm 0,03$	0,39	$0,23 \pm 0,08$

Na obrázku 45 sú graficky znázornené deklarované a určené obohatenia pre ampulové vzorky.



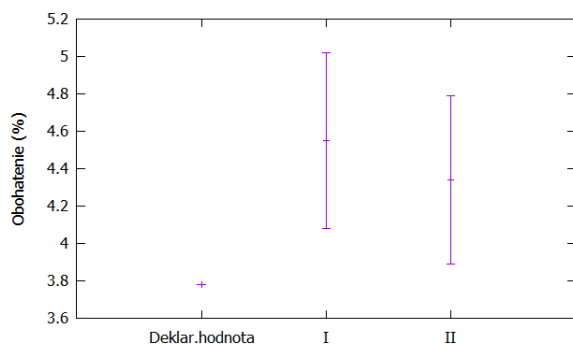
Obr. 45: Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie ampulových vzoriek

V prípade vzorky ES17 bolo určené obohatenie pre obidve uvažované hustoty, pozri sekciu 3.6. Taktiež boli stanovené obohatenia pre obidva použité prístupy pri získavaní detekčných účinností, a teda pre variant, v ktorej bola uvažovaná gumová vrstva na spodnej časti vzorky ES17 a pre variant, v ktorom táto vrstva uvažovaná nebola. Vypočítané obohatenia sú uvedené v tabuľke 31, kde variant I označuje variant s gumovou vrstvou a variant II označuje variant bez gumovej vrstvy.

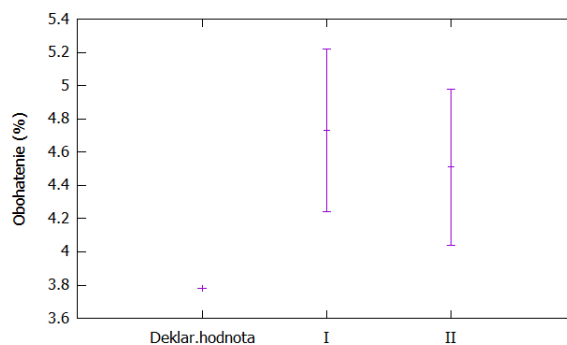
Tab. 31: Obohatenia pre rôzne varianty vzorky ES17 určené pomocou gama spektrometrickej metódy

Variant	$\rho(g/cm^3)$	A_8/A_5 (-)	$O_{urč}$ (%)	O (%)	σ_γ (-)
I	10,97	$3,30 \pm 0,36$	$4,55 \pm 0,47$	3,78	$-0,20 \pm 0,12$
I	11,865	$3,17 \pm 0,35$	$4,73 \pm 0,49$	3,78	$-0,25 \pm 0,13$
II	10,97	$3,47 \pm 0,38$	$4,34 \pm 0,45$	3,78	$-0,15 \pm 0,12$
II	11,865	$3,33 \pm 0,36$	$4,51 \pm 0,47$	3,78	$-0,19 \pm 0,12$

Na obrázkoch 46 a 47 sú graficky znázornené deklarované a určené obohatenia pre vzorku ES17.



Obr. 46: Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie vzorky ES17 pre variant s hustotou $10,97 \text{ g/cm}^3$



Obr. 47: Deklarované a pomocou gama spektrometrickej metódy určené obohatenie vzorky ES17 pre variant s hustotou $11,865 \text{ g/cm}^3$

Ako je možné vidieť v tabuľke 31 alebo na obrázkoch 46 a 47, v prípade že nie je uvažovaná gumená vrstva na spodku vzorky ES17 sú určené obohatenia vyššie ako v opačnom prípade. To je spôsobené znížením detekčnej účinnosti ε_{185} v tomto variante. Ku zníženiu dochádza, pretože nízkoenergetické fotóny sú v absorbátore, v tomto prípade ide o materiály gummy, pohlcované vo väčšej miere ako fotóny vysokých energií. Pravdepodobnosť absorpcie fotónov je možné zhruba aproximovať funkciou

$$P = C \frac{Z^n}{E_\gamma^{3,5}}, \quad (33)$$

kde C predstavuje konštantu, Z je atómové číslo a $E_\gamma^{3,5}$ reprezentuje energiu fotónov. Hodnota parametru n sa pohybuje medzi 4 až 5 11. Ako je možné vidieť v rovnici 33 fotóny s nízkou energiou majú väčšiu pravdepodobnosť, že budú v materiály absorbované ako fotóny s vysokou energiou.

Taktiež je možné pozorovať nárast stanovenej hodnoty obohatenia pri zvyšovaní hustoty uránu vo vzorke. Tento jav je spôsobený samotienením vzorky. Pri zvyšovaní množstva ťažkých jadier častejšie dochádza k absorpcii nízkoenergetických fotónov. Tým sa znižuje detekčná účinnosť pre nízke energie fotónov, ako je možné vidieť v tabuľke 27. Z vzorca 19, resp. 20 vyplýva, že znižovaním detekčnej účinnosti ε_{185} sa zvyšuje obohatenie uránu vo vzorke.

Na záver bola stanovená hodnota obohatenia pre vzorku ES06 za predpokladu, že hmotnosť uránu vo vzorke bola neznáma, ale ostatné parametre vzorky boli známe. Za týmto účelom boli stanovené hodnoty detekčnej účinnosti pre hmotnosť uránu 2,25 gramu a hmotnosť 3 gramy. Použité detekčné účinnosti pre tento výpočet sú uvedené v tabuľke 28. Určené hodnoty obohatenia sú uvedené v tabuľke 32.

Tab. 32: Obohatenia pre rôzne teoreticky uvažované hmotnosti uránu vo vzorke ES06 určené pomocou gama spektrometrickej metódy

$m_U(g)$	$A_8/A_5 (-)$	$O_{urc} (%)$	$O(%)$	$\sigma_\gamma(-)$
1,50	$3,65 \pm 0,40$	$4,13 \pm 0,43$	4,42	$0,06 \pm 0,10$
2,25	$3,28 \pm 0,36$	$4,59 \pm 0,48$	4,42	$-0,04 \pm 0,11$
3,00	$2,96 \pm 0,39$	$5,05 \pm 0,63$	4,42	$-0,14 \pm 0,14$

Ako je možné vidieť v tabuľke 32, so zvyšujúcou sa odhadovanou hmotnosťou uránu vo vzorke narastá určované obohatenie vzorky. Tento jav je opäť spôsobený uvažovaným samotienním pri výpočete detekčnej účinnosti, teda dochádza ku zvýšenej absorpcie nízkoenergetických fotónov na samotných jadrách uránu. Pre 3 odhadované hmotnosti uránu vo vzorke v intervale hmotností uránu od 1,5 gramu do 3 gramov stanovené obohatenie lineárne rástlo v intervale od $4,13 \pm 0,43$ do $5,05 \pm 0,63$. Je možné predpokladať, že pri znižovaní odhadovanej hmotnosti uránu vo vzorke by určené obohatenie klesalo lineárne.

5 Diskusia

V rámci tejto práce bolo realizovaných niekoľko experimentov, ktoré boli založené buď na metóde detekcie oneskorených neutrónov a DD generátore neutrónov v pulznom režime, alebo na metóde gama spektrometrie. V prípade prvej z uvedených metód bolo k realizácii meraní potrebné zaobstarať špeciálne upravený polyetylénový blok, detektor neutrónov, zariadenie RedPitaya s potrebným softvérom a DD generátor neutrónov, ktorý je schopný emitovať neutróny v pulznom režime. Taktiež bolo potrebné použiť materiál na tienenie ako olovo alebo bórovany polyetylén. Išlo teda o niekoľko rozličných komponentov, ktoré je pred realizovaním experimentu potrebné získať. Výhodou je však možnosť vytvorenia mobilnej stanice pre určovanie obohatenia uránu. Vzhľadom na fakt, že metóda je založená na ožarovaní vzorky neutrónmi a následnej detekcii neutrónov, je potrebné, aby súčasťou premeriavanej vzorky nebol parazitický materiál t.j. taký, ktorý by sa vyznačoval vysokou mierou absorpcie neutrónov. Geometria a veľkosť vzoriek, ktoré je možné pomocou tejto metódy preskúmať, je daná veľkosťou ožarovacieho kanálu polyetylénového bloku. Počas meraní musela byť prítomná obsluha, pričom aspoň jeden jej člen musel mať oprávnenie na manipuláciu s DD generátorom neutrónov. Jednotlivé merania možno považovať za rýchle, keďže trvajú 5 minút. Počas meraní je potrebné dohliadať, aby neboli menené podmienky experimentu. Príkladom môže byť externý tepelný zdroj v blízkosti zariadenia RedPitaya, ktorý teoreticky môže ovplyvniť experiment. Počas meraní môže dochádzať k fluktuácii počtu vytvorených neutrónov v jednotlivých pulzoch generátora neutrónov. Pri spracovaní dát je vhodné skontrolovať, či nedošlo k výrazným fluktuáciám počas prevádzky generátora neutrónov, ktoré by mohli ovplyvniť meranie. V prípade dostupnosti sady vhodných etalónov je možné pomerne rýchlo stanoviť obohatenie uránu vo vzorkách. Ak nie je dostupná sada vhodných etalónov, je možné určiť obohatenie pomocou simulácií realizovaných meraní s dostupnou sadou etalónov a vzorkou uránu s neznámym obohatením. Relatívnu odchýlku určeného obohatenia uránu vo vzorke je možné znižovať zväčšením počtu meraní každej zo vzoriek.

Druhou experimentálnou metódou je gama spektrometria. V prípade tejto metódy je na realizácii experimentu potrebný len HPGe detektor, tienenie, systém chladenia detektora a počítač s vhodným softvérom na prácu s nameranými dátami, poprípade s možnosťou využitia softvéru LabSOCS. Veľkosť a geometria vzoriek, ktoré by bolo možné použiť je daná tienením detektora a veľkosťou germániového kryštálu. Teoreticky by bolo možné realizovať meranie bez tienenia, avšak v takomto prípade by bolo nutné určiť vplyv prirodzeného pozadia. Ďalším obmedzením je materiálové zloženie vzorky. Obal uránovej vzorky by nemal obsahovať komponent, ktorý vo výraznej miere absorbuje fotóny. Vo všeobecnosti hovoríme o materiáloch z izotopov s vysokým protónovým číslom. V prípade, že vzorka takýto komponent obsahuje, odporuča sa, aby medzi detektorom a samotným uránom vo vzorke bola čo najtenšia vrstva tohoto materiálu. Po umiestnení vzorky na HPGe detektor nie je naďalej potrebná obsluha až do momentu ukončenia merania. Nami realizované merania trvali niekoľko hodín až dní. Nakoľko neboli realizované krátke merania, nemožno určiť akých odchýliek by sa pri nich dosiahlo. Odchýlky určenia obohatenia uránu touto metódou sú dané odchýlkami stanovenia detekčnej účinnosti HPGe detektora a odchýlkou stanovenia plochy pod jednotlivými píkami, pričom táto odchýlka závisí od doby merania.

V rámci výuky na katedre jadrových reaktorov by bolo možné vytvoriť laboratórne úlohy využívajúce nami používanú sadu vzoriek pre tieto dve metódy. V prípade metódy oneskorených neutrónov a DD generátora neutrónov už existuje laboratórna úloha, v ktorej sa pomocou detekcie oneskorených neutrónov určuje hmotnosť štiepneho materiálu vo vzorke. Avšak v rámci tejto laboratórnej úlohy sú vo vzorkách saturované prekurzory oneskorených neutrónov pomocou ožarovania v reaktore VR-1 [25]. Bolo by možné rozšíriť túto laboratórnu úlohu aj o nami používanú metódu s DD generátorom neutrónov. Študenti by následne mali možnosť porovnať získané výsledky oboma metódami. V prípade gama spektrometrickej metódy by študentom boli sprístupnené namerané gama spektrá uránových vzoriek. Ich úlohou by bolo zistiť, ktoré gama linky sú najvhodnejšie pre stanovenie obohatenia uránu a následne pomocou vzorcov [19] a [20] obohatenie stanoviť. Pri vyššom počte študentov by pravdepodobne bolo nepraktické, aby každý samostatne získal detekčnú účinnosť HPGe detektora. Z toho dôvodu by bolo možné študentom poskytnúť nami získané detekčné účinnosti.

Vzhľadom na fakt, že katedra jadrových reaktorov má k dispozícii všetko potrebné experimentálne vybavenie pre metódu detekcie oneskorených neutrónov a DD generátora neutrónov, je možné pokračovať vo vedeckej činnosti v tejto oblasti. V súčasnosti sa na katedre jadrových reaktorov pracuje na novom zariadení RedPitaya, ktoré by mohlo priniesť presnejšie výsledky experimentov. V rámci tejto činnosti by bolo možné skúmať vplyv teploty zariadení RedPitaya na jeho činnosť. Taktiež by bolo možné realizovať väčšie množstvo meraní s nami používanou sadou vzoriek, čím by bolo možné znížiť dosahované odchýlky. Ďalšou možnosťou je realizovať merania s ďalšími vzorkami vyšších obohatení alebo rôznych geometrií, na rozšírenie znalostí a možností aplikácie tejto metódy.

6 Záver

Cieľom tejto práce bolo preskúmať možnosti stanovenia obohatenia uránu v dostupných vzorkách pomocou dvoch vybraných metód. Šesť zo siedmich použitých vzoriek malo rovnakú geometriu a každá zo vzoriek mala rôzne obohatenie uránu. Na stanovenie obohatenia uránu v týchto vzorkách bola použitá metóda detekcie oneskorených neutrónov s využitím DD generátora neutrónov a metóda gama spektrometrie. Teoretický popis týchto metód ako aj potrebné radiačné signatúry sú uvedené v druhej kapitole.

V nasledujúcej tretej kapitole sú opísané realizované experimenty, ktoré boli založené na metóde oneskorených neutrónov. Taktiež sa tam nachádza popis používaného experimentálneho vybavenia. V tejto kapitole boli taktiež opísané simulácie realizovaných experimentov pomocou výpočetného kódu *Serpent2*. Experimenty boli simulované dvoma rôznymi spôsobmi a to stacionárne a nestacionárne. Ďalej boli realizované simulácie určujúce pomer štiepenia ^{235}U vo vzorke. Určenie obohatenia uránu vo vzorke bolo realizované buď pomocou preloženia nameraných dát polynómom prvého stupňa alebo pomocou stacionárnych simulácií. Prekladáním nameraných dát polynómom prvého stupňa boli nami určené obohatenia vo vzorkách vo väčšine prípadov určené s odchýlkou približne 0,6 % alebo menej od deklarovanej hodnoty obohatenia. Výnimkou bola vzorka s najnižším deklarovaným obohatením, pri ktorej bola dosahovaná relatívna odchýlka určenia obohatenia uránu vyššia ako 100 %. V tomto prípade rovnako ako v prípade vzorky s rozdielnou geometriou bolo potrebné využiť stacionárne simulácie pre určenie obohatenia uránu. Pomocou tohoto spôsobu bolo pre vzorku s najnižším obohatením určené obohatenie s odchýlkou nižšou ako 0,03 % od deklarovanej hodnoty obohatenia. V tomto prípade bola relatívna odchýlka určenia obohatenia uránu na úrovni približne 10 %. Pre vzorky s rozdielnou geometriou bolo obohatenie stanovené s absolútnou odchýlkou nie väčšou ako 0,5 % od deklarovaného obohatenia. V prípade nestacionárnych simulácií experimentov išlo o výpočetne náročnejšie simulácie. Žiaľ, nepodarilo sa vo všetkých vzorkách dosiahnuť dostatočne nízku relatívnu odchýlku počtu detekovaných oneskorených neutrónov. Vzorky, pre ktoré sa to podarilo, boli konfrontované s nameranými dátami, pričom najvyšší relatívny rozdiel bol na úrovni $15,5 \pm 21,3$ %. Najnižší dosiahnutý relatívny rozdiel bol na úrovni $-6,7 \pm 24,8$ %.

Obsahom štvrtej kapitoly je popis realizovaných experimentov, ktoré boli založené na gama spektrometrickej metóde. Súčasťou tejto kapitoly je aj popis používaného HPGe detektora ako aj popis práce s softvérom *LabSOCS*, ktorým boli získané detekčné účinnosti. Stanovené obohatenia týmito meraniami boli s odchýlkou od deklarovaného obohatenia menšou ako 0,5 % pre všetky vzorky, pričom relatívna odchýlka jednotlivých určení obohatenia bola na úrovni približne 10 %.

Práca je zakončená diskusiou o výhodách a nevýhodách týchto metód. Súčasťou diskusie je aj návrh implementácie týchto metód do výuky a návrhy na ďalšiu vedeckú činnosť.

Referencie

1. LEE, Tae Hoon; SHIN, Hee Sung; KIM, Ho Dong. Delayed neutron measurement in high frequency mode and its application to the determination of fissile content in spent fuel assembly. *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*. 2011. ISBN 9781467301183. ISSN 10957863. Dostupné z DOI: [10.1109/NSSMIC.2011.6154458](https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2011.6154458).
2. NICHOLS, A. L.; ALDAMA, D. L.; VERPELLI, M. HANDBOOK OF NUCLEAR DATA FOR SAFEGUARDS. 2007. ISBN 978-80-01-05904-3.
3. NATTRESS, J.; OGREN, K.; FOSTER, A.; MEDDEB, A.; OUNAIES, Z.; JOVANOVIC, I. Discriminating Uranium Isotopes Using the Time-Emission Profiles of Long-Lived Delayed Neutrons. *Physical Review Applied*. 2018. ISSN 23317019. Dostupné z DOI: [10.1103/PhysRevApplied.10.024049](https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.024049).
4. T.C. KASPAR C.A. Lavender, M.W. Dibert. Evaluation of Uranium-235 Measurement Techniques, PNNL-26490. 2017.
5. CHU, S.Y.F.; EKSTRÖM, L.P.; FIRESTONE, R.B. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search, cit. [7. 5. 2022]*. 1997. Dostupné tiež z: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
6. REILLY, D.; SMITH, Hastings A.; ENSSLIN, N.; KREINER, S. Passive nondestructive assay of nuclear materials. 1991. ISBN 0160327245.
7. PARK, Se-Hwan; EOM, Sung-Ho; SHIN, Hee-Sung; KIM, Ho Dong; PARK, June-Sic. Experimental comparison of uranium enrichment measurement methods. *Journal of the Korean Physical Society*. 2012, s. 523–528. ISSN 0374-4884. Dostupné z DOI: [10.3938/jkps.61.523](https://doi.org/10.3938/jkps.61.523).
8. TOHAMY, Mona; EL-GHANY, S.; EL-MINYAWI, S.M.; HASSAN, M.; EL-HAKIM, Elham; EL-MONGY, Sayed; COMSAN, M.N.H. Passive Non-Destructive Assay based on gamma-ray spectrometry to verify UO₂ samples in the form of powder and pellet. *Annals of Nuclear Energy*. 2016, roč. 87, s. 186–191. Dostupné z DOI: [10.1016/j.anucene.2015.09.001](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2015.09.001).
9. BOHUSLAV, Tomáš. Využití materiálů vhodných pro třírozměrný tisk v aplikacích v jaderných reaktorech nulového výkonu, Bakalářská práce, KJR FJFI ČVUT v Praze. 2017.
10. IAEA. *NEUTRON GENERATORS FOR ANALYTICAL PURPOSES, IAEA Radiation Technology Reports Series No. 1*. 2012.
11. KNOLL, Glenn F. *Radiation Detection and Measurement*. 4. vyd. 2010. ISBN 978-0470131480.
12. KORLOS, A.; KOS, J. *Analýzátor TEMA EMK 310*. 2009.
13. BELKO, Branislav. Experimentální metody pro stanovení obohacení uranu, Bakalářská práce, KJR FJFI ČVUT v Praze. 2020.
14. KOKTA, M. Technický výkres polyetylenového bloku. 2020.

15. REDPITAYA. *STEMlab 125-14 cit. [7. 5. 2022]*. 2021. Dostupné tiež z: <https://redpitaya.readthedocs.io/en/latest/developerGuide/hardware/125-14/top.html>.
16. WILLIAMS, Thomas; COLIN KELLEY, et al. *Gnuplot 5.2: an interactive plotting program*. 2017. Dostupné tiež z: <http://gnuplot.sourceforge.net/>.
17. LEPPÄNEN, J.; PUSA, M.; VIITANEN, T.; VALTAVIRTA, V.; KALTIAISENAHO, T. The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013, *Ann. Nucl. Energy*, 82. 2015.
18. LEPPÄNEN, J. Serpent – a Continuous-energy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code, User's Manual. 2015.
19. BELKO, Branislav. Studium radiačných metód pro stanovení obohacení uranu, Výzkumný úkol, KJR FJFI ČVUT v Praze. 2021.
20. AALCO. *Stainless Steel 1.4301 (304) Bar and Section cit. [7. 5. 2022]*. 2020. Dostupné tiež z: https://www.aalco.co.uk/datasheets/Stainless-Steel-14301-304-Bar-and-Section_34.ashx.
21. SHADY FARAH, et al. Physical and mechanical properties of PLA, and their functions in widespread applications — A comprehensive review. *Advanced Drug Delivery Reviews*. 2016. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.addr.2016.06.012>.
22. CARBAJO, J. J.; POPOV, S.G.; IVANOV, V.K.; YODER, G.L. Thermophysical Properties of MOX and UO₂ Fuels Including the Effects of Irradiation. 2001. Dostupné z DOI: [10.2172/777671](https://doi.org/10.2172/777671).
23. HUSSEIN, E. Monte Carlo Particle Transport with the MCNP Code, kapitola 11. 1997.
24. CANBERRA INDUSTRIES, Inc. Model S574 LabSOCS Calibration Software. 2017.
25. ING. JAN RATAJ, Ph.D.; ING. ONDŘEJ HUML, Ph.D.; ING. LUBOMÍR SKLENKA, Ph.D. doc. *Experimentální neutronová a reaktorová fyzika - Laboratorní cvičení*. 2016. ISBN 978-80-01-05904-3.