

České vysoké učení technické v Praze

Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Katedra jaderných reaktorů

Obor: Jaderné inženýrství



Studium jaderných materiálů pomocí D-T generátoru neutronů

Bakalářská práce

Vypracoval: Adam-Vladimír Dobeš

Vedoucí práce: Ing. Tomáš Bílý, Ph. D

Rok: 2023



ZADÁNÍ BAKALÁŘSKÉ PRÁCE

Student:	Adam-Vladimír Dobeš
Studijní program:	Aplikace přírodních věd
Obor:	Jaderné inženýrství
Název práce česky:	Studium jaderných materiálů pomocí DT generátoru neutronů
Název práce anglicky:	Analysis of Nuclear Materials using DT Neutron Generator
Jazyk práce:	čeština

Pokyny pro vypracování:

1. Proveďte rešerši zabývající se využitím neutronových generátorů typu DT pro studium charakteristik jaderných materiálů. Zabývejte se také použitým přístrojovým vybavením a sledovanými radiačními signaturami.
2. Seznamte se s přirozenými rozpadovými řadami U-235 a U-238 a možnostmi pasivní gama spektrometrie pro charakterizaci množství jednotlivých izotopů ve vzorku uranového materiálu. S dodaným vzorkem uranového materiálu proveďte kvalitativní gama-spektrometrické měření a identifikujte jednotlivé gama linky.
3. Následně proveďte gama spektrometrické měření vzorku po jeho ozáření DT generátorem neutronů v několika časových intervalech po ozáření.
4. Seznamte se s výpočtním kódem PHITS. S jeho využitím proveďte simulaci zjednodušeně odpovídající provedenému experimentu. Diskutujte získané výsledky.
5. Na základě provedené rešerše a získaných experimentálních zkušeností diskutujte další možnosti studia jaderných materiálů s využitím DT generátoru neutronů na KJR.

Doporučená literatura:

- [1] Marrs R. E. a kol.: Fission-product gamma-ray line pairs sensitive to fissile material and neutron energy, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Volume 592, Issue 3, 2008, Pages 463-471
- [2] Nichols A. L., Aldama D. L., Verpelli M.: Handbook of Nuclear Data for Safeguards: Database Extensions, 2008
- [3] Mozin V.: Delayed Gamma-Ray Assay for Nuclear Safeguards, disertační práce University of California, Berkeley, 2011
- [4] Beddingfield D.H., Cecil F.E.: Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Volume 417, Issues 2-3, 1998
- [5] Knoll, G. F. a kol.: Radiation Detection and Measurement. 4. ed., 2010, ISBN: 9780470131480

Jméno a pracoviště vedoucího práce:

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

Datum zadání bakalářské práce:

14.10. 2022

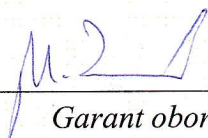
Datum odevzdání bakalářské práce:

2.8. 2023

Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.

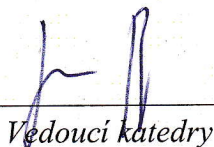
V Praze dne 14.10. 2022

doc. Ing. Martin Kropík, CSc.

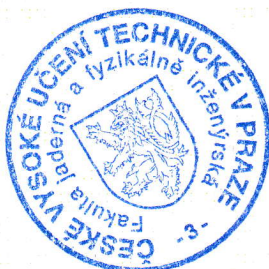


Garant oboru

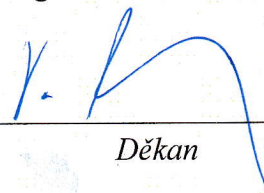
Ing. Jan Rataj, Ph.D.



Vedoucí katedry



doc. Ing. Václav Čuba, Ph.D.



Děkan

Prohlášení

Prohlašuji, že jsem svou bakalářskou práci vypracoval samostatně a použil jsem pouze podklady uvedené v příloženém seznamu.

V Praze dne 31.7.2023



.....

Adam-Vladimír Dobeš

Poděkování

Chtěl bych zde poděkovat všem blízkým osobám, kteří při mně stáli při psaní této bakalářské práce, zejména bych chtěl poděkovat vedoucímu práce Ing. Tomášovi Bílému, Ph.D. za podnětné návrhy, ochotu a trpělivost při vedení této práce.

Adam-Vladimír Dobeš

Název práce:

Studium jaderných materiálů pomocí D-T generátoru neutronů

Autor: Adam-Vladimír Dobeš

Studijní program: Aplikace přírodních věd

Obor: Jaderné inženýrství

Druh práce: Bakalářská práce

Vedoucí práce: Ing. Tomáš Bílý, Ph.D.

Katedra jaderných reaktorů, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská,
České vysoké učení technické v Praze

Konzultant: -

Abstrakt: *Bakalářská práce se zabývá studiem jaderných materiálů, konkrétně využitím D-T generátoru neutronů v jaderném průmyslu. Práce se zaměřuje na jeho aplikace k ozařování štěpných materiálů, predikci obohacení uranového materiálu pomocí D-T generátoru neutronů a seznámení s rozpadovými řadami U-235 a U-238.*

V experimentální části této práce byly pozorovány radiační signatury uranu a popsáno použité přístrojové vybavení. Byl využit D-T generátor neutronů v prostorách školního reaktoru VR-1 k ozařování zkoumaného vzorku, a následně byla provedena kvalitativní gama-spektrometrie pomocí polovodičového HPGe detektoru. Naměřená data byla porovnána s výsledky ze simulace experimentu provedené kódem PHITS. Na základě provedeného srovnání a získaných dat z měření byly vybrány štěpné produkty, které se nejlépe hodí k stanovení obohacení uranu.

Klíčová slova: D-T generátor neutronů, gama-spektrometrie, štěpné produkty, rozpadové řady, PHITS

Title:

Study of nuclear materials using a D-T neutron generator

Author: Adam-Vladimír Dobeš

Branch of study: Nuclear Engineering

Kind of Thesis: Bachelor Degree Project

Supervisor: Ing. Tomáš Bílý, Ph.D.

Department of Nuclear Reactors, Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Czech Technical University in Prague

Abstract: *The bachelor thesis deals with the study of nuclear materials, specifically the use of the D-T neutron generator in the nuclear industry. The thesis focuses on its applications to irradiation of fissile materials, prediction of enrichment of uranium material using the D-T neutron generator and introduction to the U-235 and U-238 decay series.*

In the experimental part of this work, radiation signatures of uranium were observed and the instrumentation used was described. The D-T neutron generator in the premises of the school reactor VR-1 was used to irradiate the sample under investigation, and then qualitative gamma-spectrometry was performed using a semiconductor HPGe detector. The measured data were compared with the results from the simulation of the experiment performed by the PHITS code. Based on the comparison and the data obtained from the measurements, the fission products best suited for the determination of uranium enrichment were selected.

Key words: D-T neutron generator, gamma-spectrometry, fission products, decay chains, PHITS

Obsah

Úvod	5
1 Gama-spektrometrie.....	6
1.1 Polovodičový HPGe detektor	6
2 Rozpadové řady	8
3 D-T generátor neutronů a jeho využití pro studium charakteristik jaderných materiálů ..	10
3.1 Neutrony	10
3.2 D-T generátor neutronů	12
3.3 Využití D-T generátorů neutronů pro studium charakteristik jaderných materiálů ..	13
3.3.1 Studium jaderných materiálů ozářených 14 MeV neutrony pomocí gama spektra	14
3.3.2 Studium jaderných materiálů ozářených 14 MeV neutrony pomocí detekce zpožděných neutronů	15
4 Gama spektrometrické měření uranového vzorku	17
4.1 Pasivní gama-spektrometrie uranového vzorku	17
4.2 Gama-spektrometrie ozářeného uranového vzorku 14 MeV neutrony pomocí D-T generátoru neutronů.....	19
5 Výpočetní kód PHITS.....	21
5.1 PHITS simulace	21
5.1.1 Výsledky simulace	23
5.1.2 Srovnání PHITS simulace s výsledky z experimentu provedeného 25. ledna 2023	25
6 Závěr	28
Literatura	30

Seznam zkratek a veličin

Zkratka	Význam česky, anglicky
D-T	Deuter-tritiový, deuterium-tritium
NG	Neutronový generátor, Neutron generator
FWHM	Šířka píku v polovině výšky, Full width at half maximum
HPGe	Germanium s vysokou čistotou, High purity germanium
PHITS	Kódový systém pro transport částic a těžkých iontů, Particle and heavy ion transport code system
JAEA	Japan atomic energy agency

Značka	Název, jednotka
A	Aktivita, [Bq]
E_γ	Energie fotonu, [eV]
E_n	Energie neutronu, [eV]
I_γ	Intenzita gama linky, [-]
I	Proud, [A]
m_{vzorek}	Hmotnost izotopu ve vzorku, [g]
$T_{1/2}$	Poločas rozpadu, [s]
U	Napětí, [V]
F	Standardizační metrika [-]
N	Počet obdržených signálů z detektoru

Seznam tabulek

Tab. 1: Aktiniová řada.....	9
Tab. 2: Uranová řada.....	9
Tab. 3: Data zpožděných neutronů vybraných izotopů při štěpení rychlými neutrony s energií 14 MeV.....	11
Tab. 4: Identifikované naměřené hodnoty.....	18
Tab. 5: Nalezené izotopy vzniklé interakcí Uranu s neutrony	19
Tab. 6: Výsledky simulace v čase 33 minut (3 minuty od konce ozařování).....	24
Tab. 7: Výsledky simulace v čase 38 minut (8 minut od konce ozařování).....	24
Tab. 8: Výsledky simulace v čase 48 minut (18 minut od konce ozařování).....	24
Tab. 9: Výsledky simulace v čase 63 minut (33 minut od konce ozařování).....	24
Tab. 10: Výsledky simulace v čase 93 min (63 minut od konce ozařování).....	25
Tab. 11: Výsledky simulace v čase 991,2 minut (961,2 minut od konce ozařování).....	25
Tab. 12: Maximální podíl z aktivity ze simulace u štěpných produktů nalezených v experimentální části.....	26
Tab. 13: Kritické vlastnosti nalezených 11 štěpných produktů dle ENDF/B-VIII.0, na základě kterých byly vybrány perspektivní izotopy pro stanovení obohacení.....	26

Seznam obrázků

Obr. 1: HPGe detektor na Katedře jaderných reaktorů	7
Obr. 2: Schéma D-T generátoru	12
Obr. 3: Iontový zdroj	13
Obr. 4: Výtěžek U-238 a U-235 neutrony s energií 14-16 MeV	14
Obr. 5: Poměry intenzit záření štěpných produktů vhodných pro identifikaci štěpného materiálu	15
Obr. 6: Graf normalizovaného signálu zpožděných neutronů v závislosti na čase během ozařování (a) a po ozařování (b)	16
Obr. 7: Simulované a naměřené hodnoty F během (a) a po ozařování (b) pro různé hodnoty obohacení	16
Obr. 8: Gama spektrum neozářeného vzorku ES17 s logaritmickým měřítkem na ose y	18
Obr. 9: Poměry četností v závislosti na energii gama linky	20
Obr. 10: D-T generátor neutronů MP320 použitý v experimentu	20
Obr. 11: Koncept propojení výpočtů PHITS a DCHAIN	22
Obr. 12: Geometrie ES17 v kódu	22
Obr. 13: Prostorová geometrie simulace: buňka 1-uranový material, buňka 2-povrchová fólie, buňka 3-vnější prostor (vzduch)	23
Obr. 14: Závislost aktivity vybraných izotopů na čase ve vzorku podle kódu DCHAIN	27

Úvod

Bakalářská práce se zabývá studiem jaderných materiálů, konkrétně aplikací D-T generátoru neutronů za účelem zjištění charakteristik jaderných materiálů s využitím polovodičového detektoru a sledováním radiačních signatur. Dále se bakalářská práce zabývá jednotlivými rozpadovými řadami U-238 a U-235, gama zářením doprovázejícím rozpad uranu a jeho dceřiných produktů. Znalost těchto řad pomůže k identifikaci a rozlišení nuklidů, které byly detekovány pasivní či aktivní metodou.

Schopnost rozlišovat mezi různými štěpnými produkty je velmi důležitá v jaderném průmyslu. Například v obohacovacích závodech nebo k ověření obohacení jaderného paliva. Metody zjištění těchto podílů se dělí na destruktivní, jako je například radiochemická neutronová aktivační analýza, kdy je na malou separovanou část vzorku aplikován hmotnostní spektrometr, a nedestruktivní. V této bakalářské práci jsou konkrétně zmiňovány dvě nedestruktivní metody: pozorování gama spektra a detekce zpožděných neutronů ve vzorku po ozáření neutrony s energií 14 MeV. Štěpný vzorek je v obou metodách ozařován neutronovým zdrojem, kterým je D-T generátor neutronů, a následně je v různých časových intervalech měřeno fotonové či neutronové spektrum od jednotlivých produktů radioaktivních přeměn nebo vzniklé neutronovou interakcí.

Bakalářská práce je rozdělena na rešeršní a praktickou část. Rešeršní část obsahuje body zmíněné výše a v praktické části byl proveden experiment v prostorách školního reaktoru VR-1. V experimentu je provedena kvalitativní gama-spektrometrie neozářeného a následně i D-T generátorem ozářeného uranového vzorku pomocí HPGe detektoru. Po ozáření jsou sledována jednotlivá gama spektra v různých časových intervalech po různou dobu. A nakonec z informací získaných v rešeršní části byly identifikovány jednotlivé gama linky.

Dále byl použit výpočetní program PHITS, pomocí kterého byla vytvořena simulace odpovídající experimentu s D-T generátorem. Po spuštění programu byl vytvořen kódem DCHAIN soubor s daty izotopů vystupujících v rámci celkové aktivity během simulace. Data vytvořená tímto kódem byla porovnána s daty z měření a byly vybrány izotopy, které by mohly být brány v úvahu k stanovení obohacení uranového materiálu.

Na základě získaných informací v rešeršní a praktické části je v závěru diskutováno využití D-T generátoru a možnost použití detekovaných izotopů v praktické části k určení obohacení jaderného materiálu na Katedře jaderných reaktorů FJFI v Praze.

1 Gama-spektrometrie

Radioaktivní materiály mají specifické rozpadové řady s různými poločasy rozpadu a charakteristickými energiemi doprovázeného gama záření. Gama-spektrometrie je metoda, která se používá k měření aktivity materiálu, k určení některých jeho prvků a případně i jejich množství. Jejím úkolem je stanovit energii a intenzitu detekovaného záření a na základě toho rozlišit, z jakého radionuklidu pochází registrované záření a tím zjistit i složení radioaktivních částic ve zkoumaném vzorku. [1]

Emitované a následně detekované záření z radionuklidů může být záření gama. Gama záření má nejkratší vlnovou délku z celého elektromagnetického spektra. Je vyzařováno, absorbováno nebo transportováno pouze ve formě kvant (fotonů). Energie fotonu je dána rovnicí:

$$E = h\nu$$

Kde h je Planckova konstanta a ν je frekvence záření. Kvanty gama záření jsou emitovány při přechodu jádra do základního stavu z excitovaných stavů, které vznikají buď při rozpadu alfa nebo beta, nebo při jaderných reakcích. [2]

V minulosti byly pro gama-spektrometrii nejvíce využívány scintilační detektory, zejména ty anorganické, jako je NaI(Tl). Výhoda těchto detektorů spočívá v několika bodech: (1) Cenová dostupnost, (2) rozměry a s tím související praktičnost, (3) není potřeba žádného chlazení a (4) mají vysokou detekční účinnost. Pokud však při měření vyžadujeme vysoké energetické rozlišení, volíme polovodičové detektory, například HPGe.[1] V praktické části bakalářské práce byl použit právě HPGe detektor, a proto bude popsán v následující podkapitole.

1.1 Polovodičový HPGe detektor

HPGe detektory (high-purity germanium detectors) jsou ultračisté germaniové polovodičové detektory, sloužící k detekci gama a rentgenových paprsků. Koncentrace nečistot v těchto ultračistých detektorech je menší než 10^{16} atomů/m³ [17]. Germaniové detektory na základě svých polovodičových vlastností potřebují malou energii na vytvoření páru elektron-díra. HPGe detektory mají oproti scintilačním detektorům menší FWHM (full width at half maximum), což znamená větší rozlišení jednotlivých peaků a tím pádem jsou často aplikovány k identifikaci nuklidů. [12] [7]

Nevýhodou tohoto detektoru je, že během provozu při pokojové teplotě převažuje termální excitace, která způsobuje silný šum, a proto musí být detektor ochlazován. Navíc oproti scintilačním detektorům má HPGe detektor menší účinnost. [7]

Ionizující záření vstupuje do detektoru a interaguje s polovodičovým materiálem. Vysokoenergetický foton ionizuje polovodič a produkuje pár elektron-díra. Konstanta úměrnosti závisí na energii potřebné pro vytvoření páru elektron – díra. Polovodičová dioda je v závěrném směru, takže v obvodu neprochází proud. Při ionizaci jsou elektrony vysokým napětím odvedeny a obvodem prochází proud, který se projeví jako impulz s amplitudou odpovídající energii ionizačního kvanta. [6]



Obr. 1: HPGe detektor na Katedře jaderných reaktorů

2 Rozpadové řady

Nuklid, který se vlivem jaderných reakcí stává nestabilním a následně podléhá radioaktivnímu rozpadu, kdy se rozpadá na jiný nuklid, se označuje jako radionuklid. Tento proces radioaktivní přeměny probíhá tak dlouho, dokud se finální produkt nestane stabilním. Série těchto radioaktivních přeměn se nazývá Rozpadová řada. Celý proces přeměn je přitom doprovázen ionizujícím zářením, které vzniká samotnými přeměnami jader. [11]

Celkem existují čtyři (transuranové) přirozené rozpadové řady:

- Thoriová – typu $4n$
- Neptuniová – typu $4n+1$
- Uranová – typu $4n+2$
- Aktiniová – typu $4n+3$

Typem rozpadové řady se myslí číselná kombinace přirozeného čísla, charakterizující nukleonové číslo radionuklidů vyskytujících v řadě.

Tato bakalářská práce se výhradně zaměřuje na poslední dvě zmíněné řady, tedy Uranovou a Aktiniovou. Hlavním důvodem je, že tyto řady jsou vlastně rozpadové řady izotopu uranu, U-238 v Uranové řadě a U-235 v Aktiniové řadě. V praktické části práce bude zkoumáno gama spektrum neozářeného a následně ozářeného vzorku uranu. Znalost Uranové a Aktiniové řady je zejména důležitá pro možnost stanovení obohacení jaderného materiálu pomocí gama spektrometrie neozářeného vzorku.

Vypsané energie gama linek v tab. 1 a 2 jsou ty s intenzitou alespoň nad 10 %. Pokud u některých izotopů nebyla nalezena žádná gama linka s hodnotou větší než 10 %, byla vybrána ta s největší intenzitou.

Tab. 1: Aktiniová řada [13]

Izotop	Přeměna	Poločas rozpadu	E_γ [keV]
U-235	α	7,04E+8 let	185,722 143,768
Th-231	β^-	25,52 h	25,510
Pa-231	α	3,28E+4 let	27,360
Ac-227	β^- α	21,77 let	15,200
Th-227	α	18,68 d	236,000
Fr-223	β^-	22,00 m	50,200
At-219	α	56,00 s	-
Bi-215	β^-	7,70 m	293,740
Po-215	α	1,78 ms	438,800
Pb-211	β^-	36,1 m	404,840
Bi-211	α β^-	2,14 m	351,000
Po-211	α	0,52 s	569,702
Tl-207	β^-	4,77 m	897,700
Pb-207	Stabilní	-	-

Tab. 2: Uranová řada [13]

Izotop	Přeměna	Poločas rozpadu	E_γ [keV]
U-238	α	4,47E+9 let	113,500 49,550
Th-234	β^-	24,10 let	63,290
Pa-234 mPa-234	β^-	6,70 h 1,16 m	2072,200 1001,300
U-234	α	2,46E+5 let	53,200
Th-230	α	7,54E+4 let	67,670
Ra-226	α	1600,00 let	186,210
Rn-222	α	3,82 d	510,000
Po-218	α	3,01 m	836,000
Pb-214	β^-	26,80 m	351,900 295,170
Bi-214	β^- α	19,90 m	609,318 1,765 1,120
Po-214	α	164,30 μ s	799,700
Tl-210	β^-	1,30 m	799,700 298,000 1,316 1,210 1,070
Pb-210	β^-	22,20 let	46,539
Bi-210	β^-	5,01 d	304,896
Po-210	α	138,38 d	803,060
Hg-206	β^-	8,32 m	304,800
Tl-206	β^-	4,20 m	803,060
Pb-206	Stabilní	-	-

3 D-T generátor neutronů a jeho využití pro studium charakteristik jaderných materiálů

Zdroje neutronů, jako jsou D-T generátory neutronů, jsou nezbytnou součástí řady experimentů ve fyzice, biologii a chemii [3]. Mnoho výzkumů a metod, jako je neutronová aktivační analýza, obohacování uranu nebo produkce izotopů neutronovým zachycením, může používat právě tyto generátory, proto jsou podnětem této práce.

Tato kapitola se nejprve bude zabývat samotnými neutrony a jejich interakcemi s jádry atomů. Dále autor rozebere pojem zpožděných neutronů a jejich klasifikaci. Hlavním bodem této kapitoly bude samotný D-T generátor, jeho popis, koncepce, princip a jeho použití v této bakalářské práci.

3.1 Neutrony

Neutron je subatomární částice, která nemá elektrický náboj, a tedy nijak neinteraguje elektrickým polem s elektrony nebo s protony. V důsledku toho je pro něj mnohem snazší proniknout atomovým obalem a přímo interagovat pouze s atomovým jádrem. Neutron interaguje s jádrem následujícími interakcemi:

Pružný rozptyl (n, n) – V tomto procesu neutron zasáhne jádro a ponechá ho v nevzbuzeném stavu. Při tomto procesu se zachovává celková hybnost soustavy.

Nepružný rozptyl (n, n') – Tento proces je téměř identický k pružnému rozptylu až na to, že se jádro po srážce bude nacházet v excitovaném stavu.

Radiační záchyt (n, γ) – Neutron je při tomto procesu absorbován jádrem a následně je z jádra vyzařeno jedno či více gama kvant.

Emise nabitě částice (n, p), (n, α) – V důsledku absorpce neutronu, jádro emituje nabitou částici jako je proton nebo alfa částice.

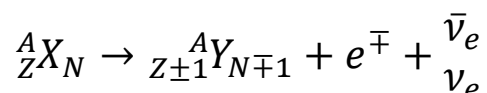
Štěpení (n, f) – Neutron dokáže interagovat s určitými izotopy, tak že jádro při absorpci neutronu přejde do vzbuzeného stavu, které se svou nestabilitou rozpadá na většinou dva menší odštěpky – štěpné produkty, za doprovodu uvolnění volných neutronů a energie. [8]

Neutrony můžeme dělit podle kinetické energie na [18]:

- Ultrachladné: $<10^{-6}$ eV
- Chladné: 10^{-6} eV – 0,001 eV
- Tepelné: 0,001 eV – 0,5 eV
- Rezonanční: 0,5 eV – 1 keV
- Rychlé: 1 keV – 20 MeV
- Ultrarychlé: >20 MeV

Neutrony uvolněné při štěpných reakcích dělíme podle času, kdy byly z procesu štěpení emitovány na okamžité (promptní) a zpožděné.

Většina neutronů vytvořených po štěpné reakci jsou okamžité neutrony (asi 99 %), které jsou obecně vyzářeny hned (cca. 10^{-14} s po štěpení). Zbylé desetiny procent představují zpožděné neutrony, které jsou uvolněny poměrně dlouho po štěpení [8]. Původ zpožděných neutronů vychází z následku záření beta. Beta záření je izobarická přeměna jádra dána vztahem:



Například štěpný produkt Br-87 se s poločasem rozpadu asi 54,5 se rozpadne na Kr-87, který v excitovaném stavu ihned uvolní nejméně vázaný neutron s energií asi 0,3 MeV. Proto se udává, že je neutron emitován s poločasem rozpadu Br-87. Nuklidy typu Br-87, které uvolňují zpožděné neutrony se nazývají prekurzory [8]. Prekurzory jsou rozděleny do 6 až 8 skupin, podle charakteristického poločasu rozpadu.

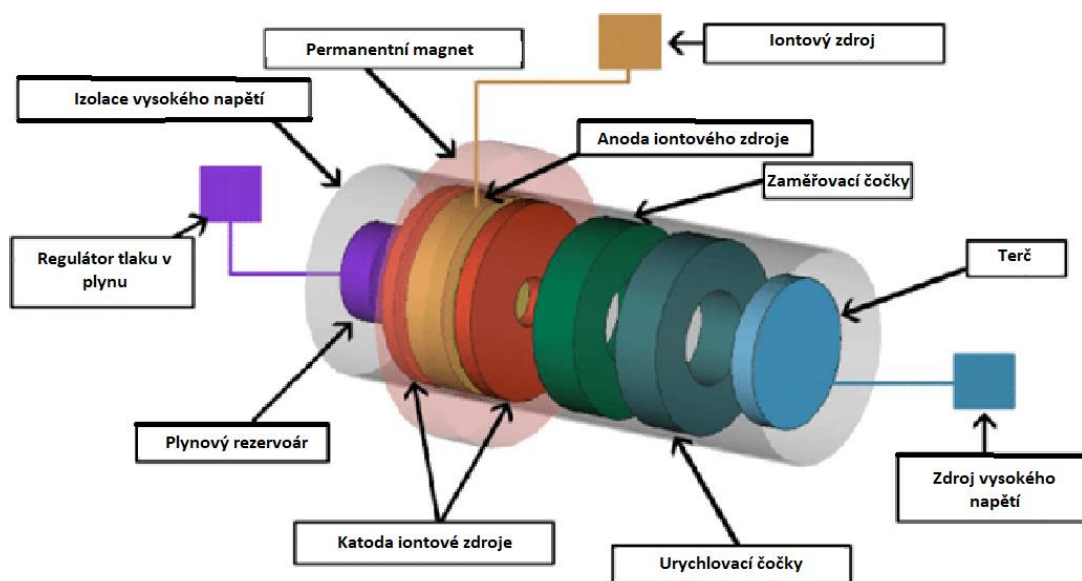
Tab. 3: Data zpožděných neutronů vybraných izotopů při štěpení rychlými neutrony s energií 14 MeV [9]

Skupina	Poločas rozpadu prekursorů [s]				Relativní abundance [-]			
	U-235	U-238	Pu-239	Pu-241	U-235	U-238	Pu-239	Pu-241
1	55,6	55,6	55,6	55,6	0,034	0,008	0,029	0,016
2	24,5	24,5	24,5	24,5	0,150	0,104	0,225	0,175
3	16,3	16,3	16,3	16,3	0,099	0,038	0,095	0,055
4	5,21	5,21	5,21	5,21	0,200	0,137	0,149	0,170
5	2,37	2,37	2,37	2,37	0,312	0,294	0,351	0,280
6	1,04	1,04	1,04	1,04	0,093	0,198	0,037	0,166
7	0,424	0,424	0,424	0,424	0,087	0,128	0,097	0,113
8	0,195	0,195	0,195	0,195	0,025	0,093	0,017	0,025

3.2 D-T generátor neutronů

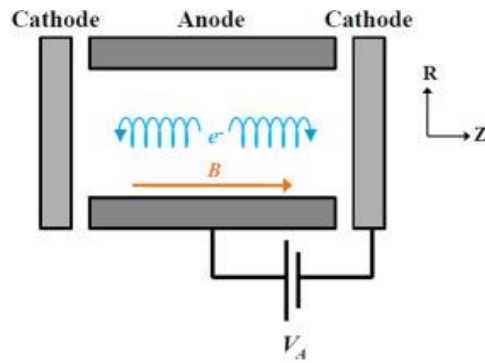
D-T generátory neutronů slouží k tvorbě vysokoenergetických neutronů a představují levnější alternativu k jaderným zařízením určeným k produkci neutronů. Mají výhodu ve velikosti a snadné praktické použitelnosti. Jako neutronové zdroje můžeme používat radionuklidy podléhající spontánnímu štěpení, například Cf-252, nebo neutrony z promptního štěpení U-235. Tyto zdroje jsou vynikajícím nástrojem, ale jejich průměrná energie neutronů se pohybuje kolem 2 MeV, což omezuje jejich použití při vyšších energiích. Z tohoto důvodu je D-T neutronový generátor běžným zdrojem rychlých neutronů (14,1 MeV) pro různé účely [10]. Další výhodou D-T generátorů jsou nižší nároky na zajištění radiální ochrany při provozu a skladování oproti radionuklidovým zdrojům. D-T generátory lze rozdělit na otevřené a uzavřené. V uzavřených generátorech jsou všechny části zařízení pro tvorbu neutronů uvnitř vakuového pouzdra. Ve srovnání s otevřenými generátory jsou obvykle menší a nepotřebují k provozu vakuové pumpy nebo zdroje plynu. Právě výměna plynu a udržování vakua v otevřeném generátoru snižuje jeho životnost. V uzavřených generátorech je životnost závislá především na životnosti terčíku.

D-T generátor se skládá ze tří částí: Iontový zdroj, akcelerační systém a terčík.



Obr. 2: Schéma D-T generátoru [19] (přeloženo)

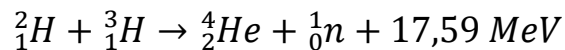
V iontovém zdroji ionty deuteria potřebné v generátoru se získávají ionizací plynu, který je dopouštěn z plynového zásobníku do prostoru mezi dvěma katodami a válcové anodě uvnitř magnetického pole, které nutí elektron kmitat mezi elektrodami.



Obr. 3: Iontový zdroj [14]

Iontový akcelerační systém se skládá z několika elektrod. Výstupní katoda je většinou uzemněná, a ionty, kterým se podaří projít otvorem v katodě, pokračují do urychlovacího systému. Ionty jsou zde následně urychlovány vysokým napětím na několika elektrodách, které také slouží jako elektročočka, usměřující proud iontů do tenkého paprsku mířícího na terč. V akceleračním systému je menší tlak než v iontovém zdroji, aby v plynu nevznikal výboj. Snížením tlaku se zvýší střední volná dráha nárazů molekul/atomů.

Terč je složen z kovu, který má malou vodíkovou difuzivitu, typicky stříbro, měď nebo molybden. Na něm je tenká vrstva kovu nasyceného tritiem, který má naopak vysokou vodíkovou difuzivitu. Typicky jsou používány kovové hydridy, jako jsou titan, skandium nebo zirkonium. Na terč nalétávají ionty deuteria a zasahují tenkou vrstvu, která po reakci uvolňuje neutrony s energií 14 MeV.



3.3 Využití D-T generátorů neutronů pro studium charakteristik jaderných materiálů

Pro účely jako je například zjištění obohacení uranového vzorku se běžně používá pasivní gama-spektrometrie. Avšak tuto metodu můžou spojovat problémy detekce záření gama linek z U-235 v oblastech 186 keV a Pu-239 v oblastech 413 keV. Tyto nízké gama linky se mohou zeslabit ve stínění nebo se mohou překrývat s gama linkou jiných izotopů, např. Ra-226. Ve většině případů se s těmito problémy dá vypořádat, ale v případě, kdy geometrie může být složitá se musí použít alternativní přístup. Proto se zkoumají jiné metody, například metoda, kdy se vzorek ozáří neutrony. Taková metoda se nazývá Neutronová aktivační analýza (NAA)

Neutronová aktivační analýza je kvalitativní a kvantitativní metoda, která stanovuje zastoupení prvků v jaderném materiálu na základě charakteristického záření vzniklých radionuklidů přímým nebo nepřímým neutronovým ozařováním. NAA se dále dělí na

instrumentální NAA, nedestruktivní metodu, nebo na RNAA, destruktivní metodu, kdy je zkoumaný materiál chemicky rozložen [1].

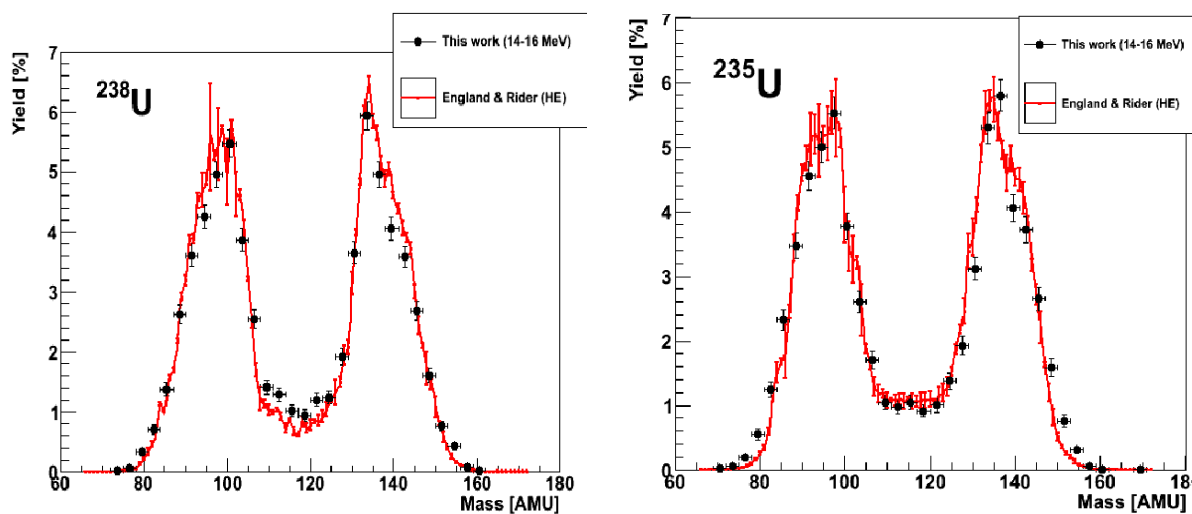
Níže se popisují dvě metody neutronové analýzy za použití D-T generátorů, a to ozářením jaderného materiálu neutrony z D-T generátoru a následným zkoumáním spektra gama záření nebo detekcí zpožděných neutronů.

3.3.1 Studium jaderných materiálů ozářených 14 MeV neutrony pomocí gama spektra

Jedná se o metodu, kdy je vzorek ozářen neutronovým zdrojem, který disponuje vysokoenergetickým spektrem neutronů (např. D-T generátorem neutronů). Po odebrání zdroje je sledováno jeho gama spektrum pomocí čtyř HPGe detektorů, které jsou umístěny v různých vzdálenostech od vzorku, a které měří v různých časových intervalech dostatečně dlouhých pro statistickou přesnost [4]. Rozlišujeme izotopy U-235, U-238 a Pu-239. Jednotlivým gama linkám přiřazujeme izotopy, které jsou zároveň štěpnými produkty. Pro identifikaci materiálu porovnáváme poměr intenzity vybraných gama linek přiřazených k daným štěpným produktům s teoretickými hodnotami. U vybraných gama linek musí být splněno několik kritérií podle [4]:

- Dobře rozlišitelné, s dostatečnou intenzitou gama linky
- Vybrané gama linky dávané do poměru byly brány blízko sebe, aby odpadla korekce stínění
- Gama linky s dostatečně velkou energií, aby odpadla korekce pozadí

Samotný výběr izotopů, které vystupují v těchto poměrech se provádí pomocí výtěžků ze štěpení neutrony s energií 14 MeV. Každý zmiňovaný štěpný izotop má různé výtěžky a tohoto faktu tato metoda využívá podle [5]



Obr. 4: Výtěžek U-238 a U-235 neutrony s energií 14-16 MeV [15]

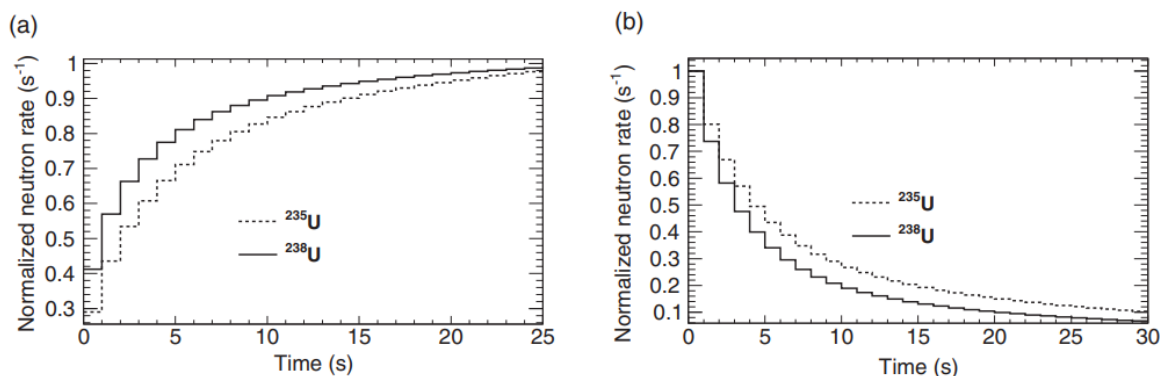
Celá oblast výtěžku je rozdělena na tři oblasti. Oblast I a II jsou oblasti, kde výtěžek jednoho štěpného izotopu převyšuje druhý a naopak. Izotopy v oblasti III jsou izobary, kde se výtěžek obou izotopů podstatně neodlišuje. Do čitatele v poměru intenzit se tak dosazují izotopy z oblasti I a do jmenovatele izotopy z oblasti II a III. Výsledná tabulka vybraných poměrů gama linek od štěpných produktů, která může být využita k identifikaci jaderného materiálu, může vypadat následovně podle [4]:

Energy band (keV)	Time bin					
	5–8 m	18–33 m	1–1.5 h	2.5–3.5 h	5–7 h	10–14 h
520–560					$\frac{^{91}\text{Sr}(556)}{^{133}\text{I}(530)}$	$\frac{^{91}\text{Sr}(556)}{^{133}\text{I}(530)}$
970–1140	$\frac{^{89}\text{Rb}(1032)}{^{132}\text{Sb}(974)}$	$\frac{^{89}\text{Rb}(1032)}{^{138}\text{Cs}(1010)}$ $^{101}\text{Mo}(1013)$	$\frac{^{89}\text{Rb}(1032)}{^{138}\text{Cs}(1010)}$	$\frac{^{91}\text{Sr}(1024)}{^{138}\text{Cs}(1010)}$ $^{134}\text{I}(1073)$	$\frac{^{91}\text{Sr}(1024)}{^{135}\text{I}(1039)}$ $^{135}\text{I}(1132)$	$\frac{^{91}\text{Sr}(1024)}{^{135}\text{I}(1039)}$ $^{135}\text{I}(1132)$
1250–1390				$\frac{^{92}\text{Sr}(1384)}{^{135}\text{I}(1260)}$	$\frac{^{92}\text{Sr}(1384)}{^{135}\text{I}(1260)}$	$\frac{^{92}\text{Sr}(1384)}{^{135}\text{I}(1260)}$
1670–1770		$^{138}\text{Xe}(1768)$ $^{104}\text{Tc}(1677)$				
2190–2220		$\frac{^{89}\text{Rb}(2196)}{^{138}\text{Cs}(2218)}$	$\frac{^{89}\text{Rb}(2196)}{^{88}\text{Kr}(2196)}$ $^{138}\text{Cs}(2218)$			
2390–2400			$\frac{^{88}\text{Kr}(2392)}{^{142}\text{La}(2398)}$	$\frac{^{88}\text{Kr}(2392)}{^{142}\text{La}(2398)}$	$\frac{^{88}\text{Kr}(2392)}{^{142}\text{La}(2398)}$	
2540–2560				$\frac{^{87}\text{Kr}(2555)}{^{142}\text{La}(2543)}$		

Obr. 5: Poměry intenzit záření štěpných produktů vhodných pro identifikaci štěpného materiálu [4]

3.3.2 Studium jaderných materiálů ozářených 14 MeV neutrony pomocí detekce zpožděných neutronů

Tak jako v předešlé metodě je uranový materiál ozářen D-T generátorem neutronů za účelem vyvolání štěpných reakcí ve vzorku. Během štěpení se uvolňují rychlé a zpožděné neutrony, přičemž většina neutronů uvolněných z reakce jsou rychlé, které vymizí v řádu milisekund. Proto měření probíhá v cyklech a samotné měření začíná až po několika sekundách, kdy je příspěvek rychlých neutronů do celkové produkce neutronů minimální. K detekci zpožděných neutronů mohou být použity plynové detektory, například ^3He , jak je tomu v [16]. Zpožděné neutrony jsou detekovány a rozděleny do 6-8 skupin, viz tab. 4. Různé izotopy mají různou produkci zpožděných neutronů, která klesá s postupem času měření, tato vlastnost je klíčová při determinaci složení jaderného materiálu. Samotná detekce signálu je rozdělena do dvou měření: během ozařování, kdy signál z neutronů roste, a v době po ozařování, kdy signál z neutronů klesá.

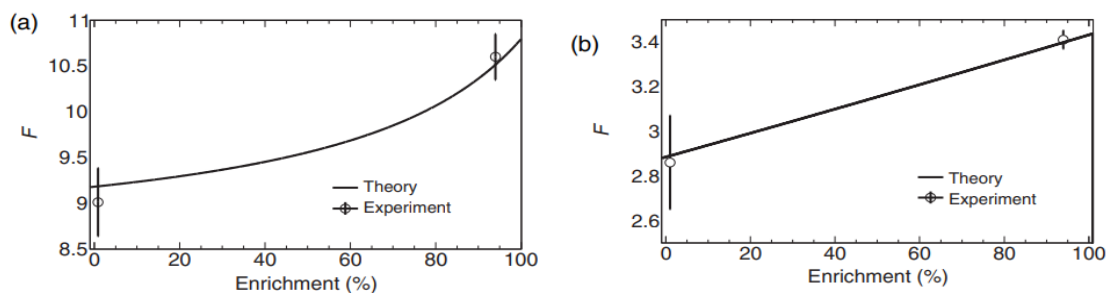


Obr. 6: Graf normalizovaného signálu zpožděných neutronů v závislosti na čase během ozařování (a) a po ozařování (b) [16]

Jednotlivé data signálů zpožděných neutronů od jednotlivých izotopů ve vzorku v různých časových intervalech jsou dány do poměru a porovnány s teoretickými hodnotami vypočítaných výpočetními metodami (např. Monte Carlo), kde jsou upřesněny parametry vzorku a ozařování.

$$F = N_1/N_2$$

Kde F je standardizační metrika a $N_{1,2}$ je celkový počet signálů v intervalech $T_{1,2}$. Hodnoty F jsou pro dané obohacení vzorku v daných časových intervalech, během a po ozařování dány jednoznačně. Výsledné srovnání s teoreticky získanými hodnotami s daty z měření může vypadat následovně podle [16].



Obr. 7: Simulované a naměřené hodnoty F během (a) a po ozařování (b) pro různé hodnoty obohacení [16]

4 Gama spektrometrické měření uranového vzorku

Dne 25. ledna 2023 byl proveden experiment v prostorách školního reaktoru VR-1 s uranovým vzorkem ES17. Vzorek ES17 tvořily dvě palivové pelety ve formě UO_2 s obohacením 3,78 % a rozměry jedné pelety: průměr 8 mm, výška 10,7 mm (tj. 2 pelety: 11,25 g U, 0,425 g U-235). Experiment se skládal ze dvou částí: gama-spektrometrie přirozené radioaktivity uranového vzorku (pasivní metoda) a gama-spektrometrie uranového vzorku ozářeného neutrony z D-T generátoru. Cílem bylo ověřit měřitelnost linek gama záření ze štěpných produktů izotopů uranu, které by v navazujících pracích mohly být využity pro ověření obohacení vzorku.

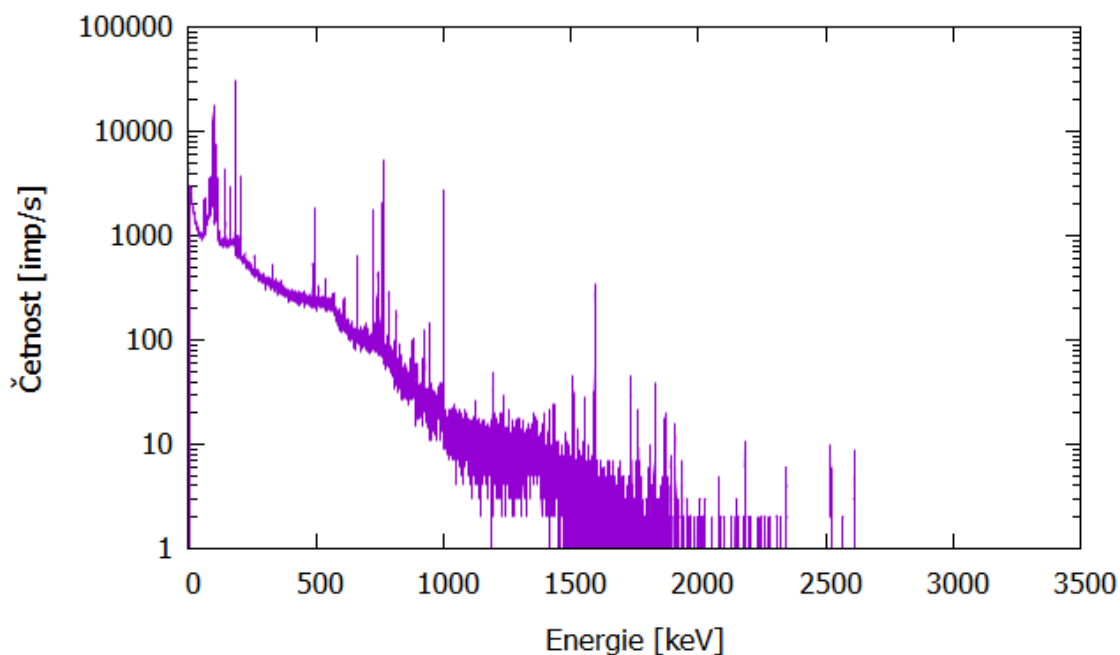
Z Katedry jaderných reaktorů byl použit HPGe detektor Canberra GC4018 (obr. 1). Tento model je schopný zaznamenávat energie od 40 keV až do 10 MeV s vysokým rozlišením.

4.1 Pasivní gama-spektrometrie uranového vzorku

Do HPGe detektoru byl vložen neozářený uranový vzorek ES17, a po dobu 4312,3 s byla prováděna kvalitativní pasivní gama-spektrometrie. Hlavním úkolem v této části experimentu bylo identifikovat gama linky z přirozených rozpadových řad U-235 a U-238. Díky naměřeným hodnotám a znalostem rozpadových řad U-235 a U-238 zmíněných výše v kapitole 2, bylo možné jednotlivé gama linky přiřadit k izotopům, které je způsobují.

Data z detektoru byla zpracována softwarem Genie a vynesena do grafu (obr. 8) s logaritmickou osou y. Na základě stanovených hodnot byly v tabulce přiřazeny izotopy, které emitují dané gama záření (tab. 3). Pro identifikaci gama linek byl použit software JANIS, který využíval data z knihovny ENDF/B-VIII.0. Lze pozorovat, že největší četností je dosahováno v prvních 6000 kanálech, což po energetické kalibraci odpovídá hodnotám zhruba do 1100 keV. Energetická kalibrace:

$$-0,3259 \text{ keV} + 0,1832 \text{ keV} * (\text{číslo kanálu})$$



Obr. 8: Gama spektrum neozářeného vzorku ES17 s logaritmickým měřítkem na ose y

Tab. 4: Identifikované naměřené hodnoty

Energie [keV]	Plocha peaku bez pozadí [-]	Nuklid
63,13	6378	Th-234
81,09	1683	Fr-223
84,06	11826	Th-231
109,12	13374	U-235
114,50	21496	U-238
143,68	21326	U-235
163,27	12867	U-235
185,64	181699	U-235
205,22	18483	U-235
497,05	11580	Bi-214
537,27	1175	Fr-223 Th-227
569,41	768	Po-211
610,24	760	Bi-214
724,18	13797	Th-227 Fr-223
766,49	47760	Th-227 mPa-234
1000,99	24693	mPa-234

Velké množství významných hodnot nebylo rozpoznáno v oblasti 92,52 keV – 112,67 keV. Této oblasti přisuzují x-zářeni uranu, kdy dochází k excitaci elektronů v elektronovém obalu.

4.2 Gama-spektrometrie ozářeného uranového vzorku 14 MeV neutrony pomocí D-T generátoru neutronů

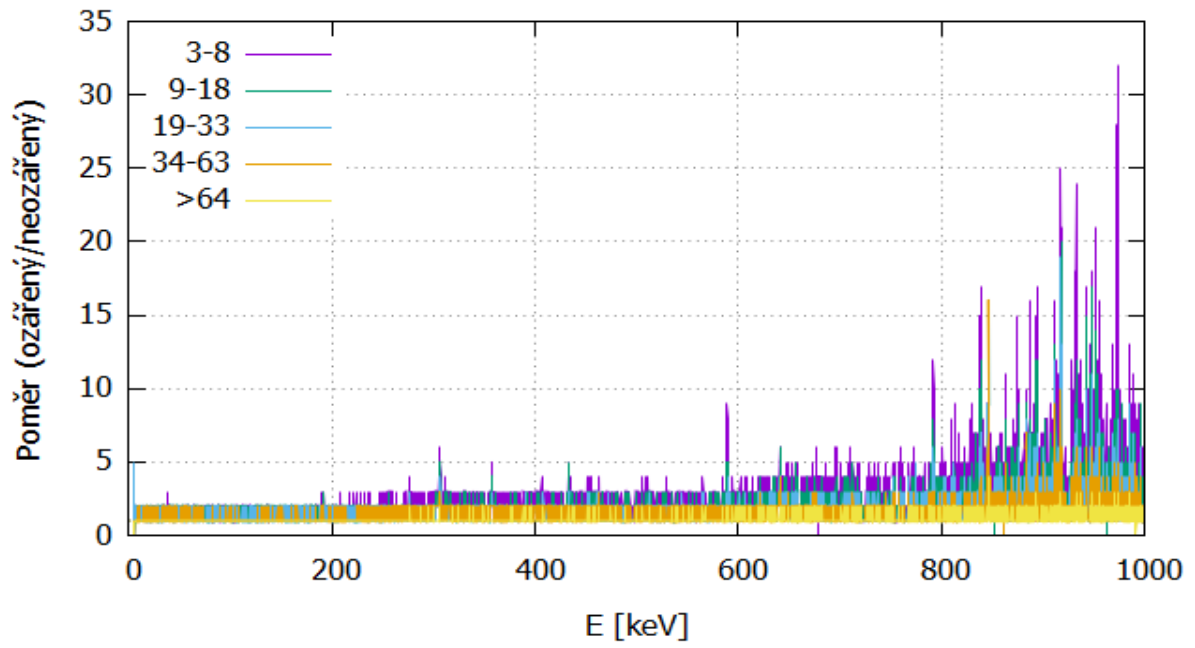
Po provedení pasivní gama-spektrometrie vzorku a získání potřebných hodnot byl vzorek ES17 ozářen D-T generátorem neutronů MP320 od společnosti Thermo Scientific v prostorách pod školním reaktorem VR-1 (v kobce pod manipulační nádobou H02). Vzorek byl nalepen na tělo trubice generátoru v jeho terčové rovině, která se nacházela přibližně 50 cm od stěn nádoby viz obr.10. D-T generátor byl nastaven do kontinuálního provozu s proudem 70 μA a s napětím 80 kV. Vzorek byl ozářen po dobu 30 minut, poté byl opět přenesen do místnosti s HPGe detektorem. Po době přenosu a následné extrakci trvající cca 3 minuty bylo provedeno další gama-spektrometrické měření. Tentokrát bylo měření provedeno v různých časových intervalech od ukončení ozáření:

1. 3 až 8 minut
2. 9 až 18 minut
3. 19 až 33 minut
4. 34 až 63 minut
5. 64 minut až ráno dalšího dne (16,02 hodiny)

V této části experimentu byly hledány dostatečně výrazné gama linky, které se nezobrazují v gama spektru neozářeného vzorku, a tudíž jsou produktem izotopů, které vznikly interakcí neutronů s jádry. Proto byla jednotlivá data z šesti měření srovnána a gama linky vzniklé produkcí interakcí neutronů s jádry uranu byly přiřazeny náležitým izotopům. Na obr. 9 je naznačeno, jak byly gama linky hledány. Spektra z měření z ozáření vzorku byla normalizována a následně byla dána do poměru s normalizovanými daty z neozářeného měření. Normalizací hodnot se zde myslí vydělení původních hodnot získaných z detektoru celkovou dobou, po kterou byla tato data sbírána. Pro energie vyšší než 800 keV bylo již těžší rozeznat tyto gama linky, kvůli jejich malé intenzitě a tím pádem většímu pravděpodobnostnímu charakteru. Hodnota poměrů značně fluktovala, proto pro tyto energie byly hodnoty odečítány přímo z dat detektoru (tab. 5). Hodnoty 306,5 keV a 352,4 keV se mi nepodařilo identifikovat.

Tab. 5: Nalezené izotopy vzniklé interakcí Uranu s neutrony

Energie [keV]	Nuklid	Poločas rozpadu	Plocha peaku bez pozadí v daném měření				
			3-8	9-18	19-33	34-63	>64
434,5	Xe-138	14,1 minuty	394	489	374		
590,4	Sr-93	7,4 minuty	638	581			
641,6	Mo-103	1,1 minuty	235				
793,5	Sb-130	39,5 minuty	240	350	355	172	
918,74	Y-94	18,7 minuty	277	560	436		
974,4	Sb-132	4,2 minuty	497	840			
1009,6	Cs-138	32,2 minuty	108	212	280	570	
1031,9	Rb-89	15,2 minuty	310	503	467		
1072,6	I-134	52,6 minuty		59		234	937
1737,9	Tc-104	18,3 minuty	59	109		69	
2195,2	Kr-88	2,8 hodiny	59	68	41	57	200



Obr. 9: Poměry četností v závislosti na energii gama linky



Obr. 10: D-T generátor neutronů MP320 použitý v experimentu

5 Výpočetní kód PHITS

Výpočetní program PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) je software, který byl vyvinut JAEA (Japan Atomic Energy Agency), pro simulaci transportu částic a těžkých iontů s využitím metody Monte Carlo. Program je používán v oblastech radiační fyziky s širokým spektrem aplikací v oblastech jaderné fyziky, lékařské fyziky nebo radiační terapie.

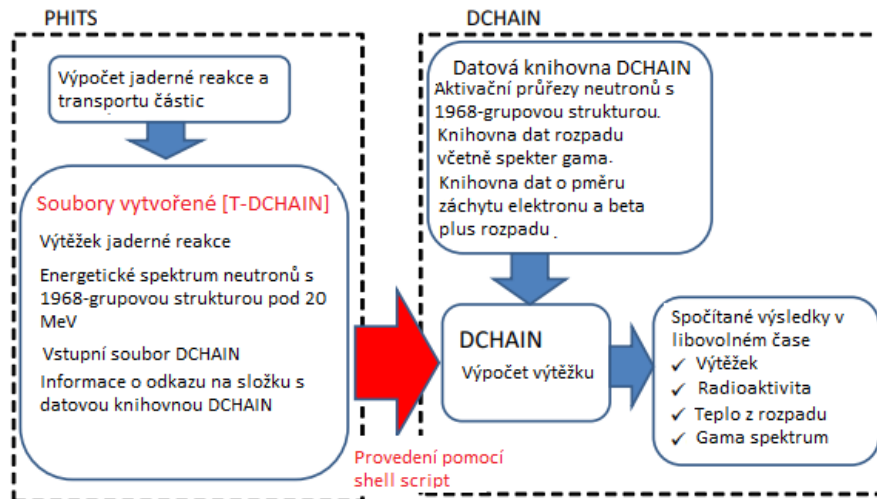
Klíčovou vlastností PHITS je schopnost počítat komplexní geometrie a materiály, dovolující zkoumat simulace reálných procesů, se kterými se setkáváme v praxi. Program nabízí výpočty pomocí jaderných a atomových databází, které umožňují přesné modelování interakcí částic s hmotou, včetně jaderných reakcí, elektromagnetických interakcí a procesů ukládání energie. Kromě výpočtů je program schopen také grafické vizualizace, což usnadňuje nastavení parametrů simulace, definici geometrie a vizualizaci výsledků. Program též poskytuje různé nástroje pro analýzu výstupu simulace a generování podrobných zpráv.

Hlavní snahou této práce bylo ověřit, že je možné v kódu PHITS simulovat podobné experimenty provedeným v rámci této práce a ověřit, že štěpné produkty nalezené v experimentální části práce byly identifikovány i výpočetně.

5.1 PHITS simulace

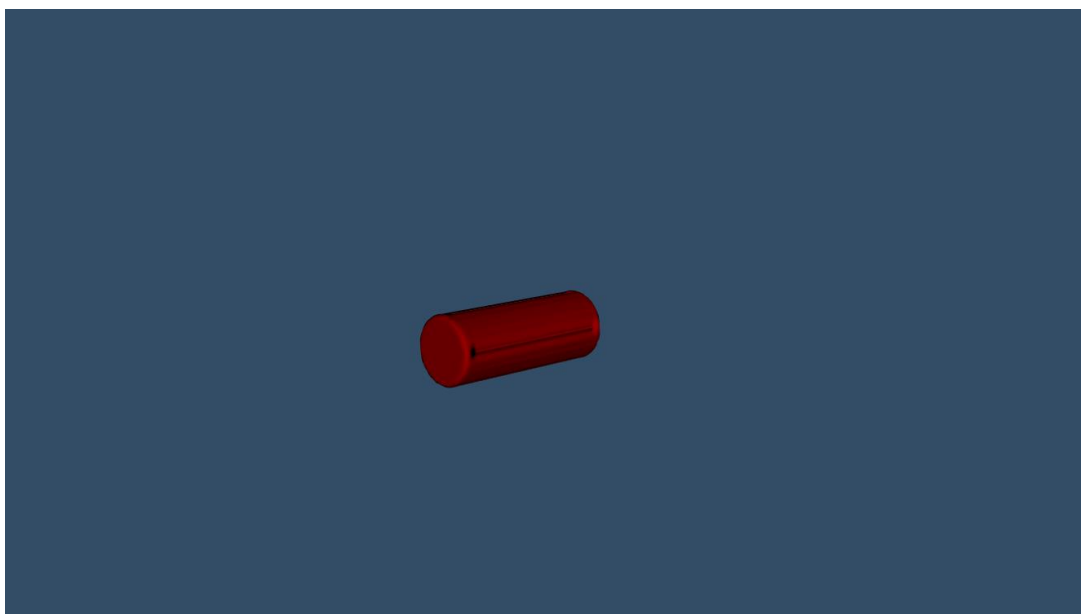
Vstupní soubor PHITS se skládá ze 3 hlavních částí: Geometrie, Zdroje (Source) a Tally. Geometrie udává prostorové rozložení simulace (materiál, buňky, povrch, parametry). Zdroj definuje produkci částic, jejich energii a typ. V sekci Tally se zadávají jednotlivé pozorované veličiny.

Samotný výpočet simulace má dva kroky. V prvním kroku se v kódu PHITS vypočítají energetická spektra neutronů pod 20 MeV s 1968-grupovou energetickou strukturou, výtěžek jaderné reakce od neutronů s energií nad 20 MeV a nakonec se vytvoří vstupní soubor kódu DCHAIN. Ve výpočtu DCHAIN se energetická spektra neutronů násobí účinným průřezem obsaženým v knihovně DCHAIN. Poté jsou tyto výsledky přidány k těm, které byly spočítány přímo kódem PHITS. DCHAIN potom vyhodnotí celkovou aktivitu, štěpné produkty, uvolněné teplo z rozpadu a energetické spektrum gama při ozařování a době chlazení. [20]

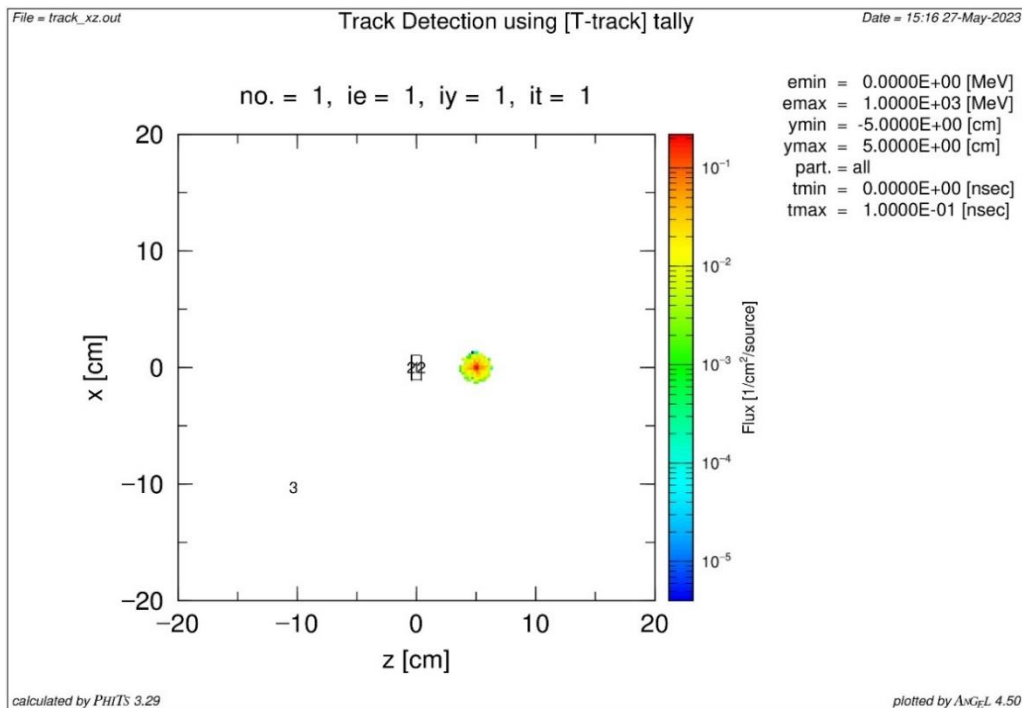


Obr. 11: Koncept propojení výpočtů PHITS a DCHAIN [20] (přeloženo)

Zdrojem v této simulaci je bodový izotropní zdroj neutronů, který produkuje izotropně neutrony s energií 14,1 MeV. Ve vzdálenosti 5 cm na ose z se nachází válec UO_2 (složení stejné jako ES17), který je navíc obalený tenkou fólií. Celkem má válec poloměr 0,45 cm a výšku 2,34 cm. V sekci Tally bylo zvoleno T-DCHAIN. Nevýhodou simulace pro naše srovnání s provedeným experimentem v této práci je, že poskytuje bodové informace z výtěžku v daném čase, a ne jako detektor v reálném experimentu, který poskytoval integrální data výtěžku vzorku ES17. Navíc v simulaci byly zanedbány odrazy neutronů od okolního prostředí (stěny a podlaha kobky pod H02). Důsledek rozdílu je ten, že v měření mohla být část štěpení U-235 ve vzorku způsobena neutrony termalizovanými o stěny či podlahu kobky. Po spuštění kódu nám program nabídne několik textových souborů. Nejdůležitější je soubor z kódu DCHAIN, ve kterém jsou právě provedeny veškeré výpočty a data z výtěžku ze simulovaného experimentu.



Obr. 12: Geometrie ES17 v kódu



Obr. 13: Prostorová geometrie simulace: buňka 1-uranový materiál, buňka 2-povrchová fólie, buňka 3-vnější prostor (vzduch)

5.1.1 Výsledky simulace

První výpočet v simulaci proběhl 33 minut od začátku ozařování (30 minut doba ozařování + 3 minuty doba transportu vzorku, dle původního experimentu). Další výpočet proběhl po 5 minutách (čas 38 minut), dále po 48 minutách, 63 minutách, 93 minutách, 991,2 minutách. Kód vygeneroval všechny zastoupené nuklidy vzniklé během daného měření a z nich vypsal 10 nuklidů s největší aktivitou a s příslušným podílem z celkové aktivity v jednotlivých časových úsecích, normované emisí zdroje s intenzitou $1e+08$. Z nich dále byly vybrány pouze štěpné produkty nebo produkty neutronových interakcí s jádrem (n, p), (n, 2n), (n, γ), (n, α). Tyto výsledky byly přepsány do tabulek níže.

Tab. 6: Výsledky simulace v čase 33 minut (3 minuty od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
Cs-139	3,3228E+02	0,22
Xe-138	3,0100E+02	0,20
Xe-137	2,9690E+02	0,20
Y-95	2,7535E+02	0,18
Te-133	2,4582E+02	0,16
Sr-93	2,2963E+02	0,15
Tc-105	2,2851E+02	0,15

Tab. 7: Výsledky simulace v čase 38 minut (8 minut od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
Xe-138	2,3534E+02	0,16
Cs-139	2,2962E+02	0,16
Te-133	2,0386E+02	0,14
Y-95	1,9674E+02	0,13
Te-134	1,9513E+02	0,13
Ba-141	1,8091E+02	0,12
Y-94	1,6884E+02	0,11

Tab. 8: Výsledky simulace v čase 48 minut (18 minut od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
Te-134	1,6534E+02	0,11
Cs-138	1,4448E+02	0,10
Xe-138	1,4386E+02	0,10
Te-133	1,2540E+02	0,09
Ba-141	1,2379E+02	0,09
Y-94	1,1675E+02	0,08
Tc-104	1,1562E+02	0,08

Tab. 9: Výsledky simulace v čase 63 minut (33 minut od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
Cs-138	1,3254E+02	0,09
Te-134	1,2895E+02	0,09
I-134	9,9954E+01	0,07
Ba-139	7,8051E+01	0,05
Te-131	7,6315E+01	0,05

Tab. 10: Výsledky simulace v čase 93 min (63 minut od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
I-134	9,9960E+01	0,07
Cs-138	8,6579E+01	0,06
Te-134	7,8444E+01	0,05
Ba-139	6,3755E+01	0,04
Te-131	5,3545E+01	0,04

Tab. 11: Výsledky simulace v čase 991,2 minut (961,2 minut od konce ozařování)

Nuklid	Aktivita [Bq]	Podíl z celkové aktivity [%]
U-237	1,3404E+01	0,01
Xe-135	8,2957E+00	0,01
I-133	5,5630E+00	0,00
I-135	5,2123E+00	0,00

5.1.2 Srovnání PHITS simulace s výsledky z experimentu provedeného 25. ledna 2023

Celkem bylo nalezeno a rozpoznáno v kódu PHITS všech 11 štěpných produktů uranu shodných s nalezenými nuklidy pomocí experimentální metody. Do tab. 12 byly vyneseny tyto štěpné produkty, kde jednotlivým izotopům byl přiřazen maximální podíl z celkové aktivity – tedy největší hodnota podílu z aktivity ze všech provedených šesti simulací provedených kódem DCHAIN pro daný izotop. Drtivou většinu z celkové aktivity ze simulace představuje U-238 a U-235, což se dalo předpokládat vzhledem k počátečnímu množství, době ozařování a době pozorování. Tím, že náš vzorek nebyl čerstvě vyroben a ihned podroben k provedení měření nebyly korektně vypočteny hodnoty z přirozeného rozpadu uranu oproti simulaci, kdy se předpokládalo, že použitý vzorek se při začátku výpočtu skládal pouze z U-235 a U-238 .

Tab. 12: Maximální podíl z aktivity ze simulace u štěpných produktů nalezených v experimentální části

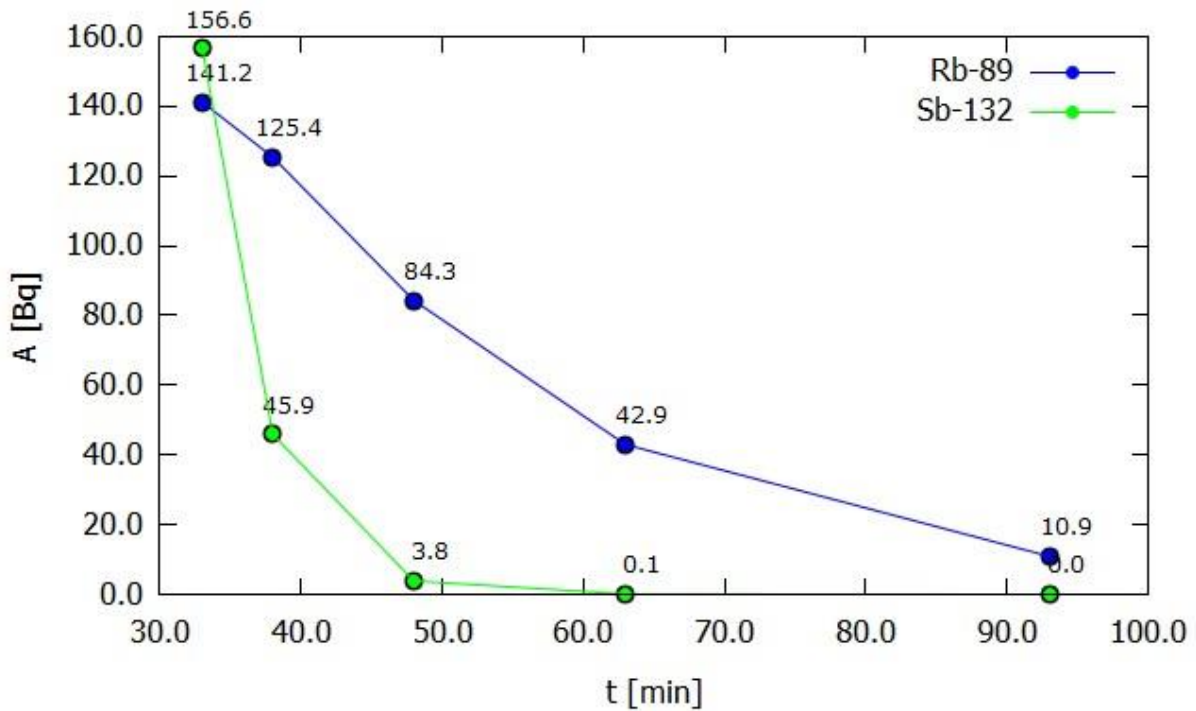
Experimentálně nalezené štěpné produkty	Simulace
	Maximální podíl z celkové aktivity
Y-94	0,11 %
Xe-138	0,20 %
Sr-93	0,15 %
Mo-103	0,03 %
Sb-130	0,03 %
Sb-132	0,10 %
Cs-138	0,10 %
Rb-89	0,09 %
I-134	0,07 %
Tc-104	0,08 %
Kr-88	0,01 %

Následně byl vykreslen graf vybraných štěpných produktů v závislosti aktivity na čase, které by mohly být perspektivní pro určování obohacování uranu. Tedy, mají dostatečnou aktivitu, vhodný poločas rozpadu, vhodnou energii gama záření s vysokou intenzitou a zároveň mají různé výtěžky pro uran 235 a 238.

Na základě těchto kritérií byly vybrány dva štěpné produkty: Rb-89 a Sb-132. Výtěžky obou izotopů jsou uvedeny v tab. 13 a jejich hodnoty byly převzaty z knihovny ENDF/B-VIII.0. Navíc, obě linky jsou dobře rozlišitelné v praktické části práce (viz tab. 5).

Tab. 13: Kritické vlastnosti nalezených 11 štěpných produktů dle ENDF/B-VIII.0, na základě, kterých byly vybrány perspektivní izotopy pro stanovení obohacení

Štěpné produkty	Výtěžek [-]		Poločas rozpadu	E_{γ} [keV]	Intenzita [%]
	U-235	U-238			
Xe-138	0,0316	0,0453	14,1 minuty	434,5	20,3
Sr-93	0,0489	0,0450	7,4 minuty	590,4	32,0
Mo-103	0,0310	0,460	1,1 minuty	641,6	2,2
Sb-130	0,0159	0,0156	39,5 minuty	793,5	100,0
Y-94	0,0510	0,0470	18,7 minuty	918,74	56,0
Sb-132	0,0061	0,0130	4,2 minuty	974,4	99,0
Cs-138	0,0433	0,0484	32,2 minuty	1009,6	29,8
Rb-89	0,0410	0,0290	15,2 minuty	1031,9	62,9
I-134	0,0519	0,0637	52,6 minuty	1072,6	14,9
Tc-104	0,0250	0,0400	18,3 minuty	1737,9	1,9
Kr-88	0,0330	0,0220	2,8 hodiny	2195,2	13,2



Obr. 14: Závislost aktivity vybraných izotopů na čase ve vzorku podle kódu DCHAIN

V kapitole 3.3.1 je rozebrána metoda analýzy gama spektra za účelem zjištění obohacení jaderného materiálu. V této metodě se používají poměry gama linek, v čitateli se objevují izotopy z oblasti I a ve jmenovateli izotopy z oblasti II a III uranového výtěžku ze štěpení 14 MeV neutrony. Rb-89 patří do oblasti I a Sb-132 patří do oblasti II, tento jeden poměr, pak může sloužit jako určovací nástroj pro stanovení obohacení jaderného materiálu. A co víc, tento poměr se také objevuje v práci [4].

6 Závěr

Na začátku teoretické části je popsána gama-spektrometrie, jejím principem, využitím a detekčním zařízením, které tato metoda používá. V případě této práce to byl HPGe detektor, u kterého autor popisoval jeho základní princip, vlastnosti a srovnání se scintilačními detektory. Dále se práce zabývala Uranovou a Aktiniovou rozpadovou řadou, jejichž znalost je důležitá pro rozlišení štěpných produktů od produktů přirozeného rozpadu. Důležitým prvkem práce byla rešeršní část o studiu a využití D-T generátorů neutronů pro stanovení charakteristik jaderného materiálu. Před dosažením tohoto bodu v kapitole se autor zabýval samotnými neutrony, jejich interakcí s jádry, jejich klasifikací podle kinetické energie a času vzniku po štěpné reakci. Následně byl popsán koncept D-T generátoru, jeho pracovní schéma, výhody a využití k stanovení charakteristik jaderného materiálu.

Poslední zmiňovaná část popisovala dva různé přístupy. První přístup spočíval v ozařování zkoumaného jaderného materiálu a následném sledování jeho gama spektra ze štěpných produktů, z čehož bylo možné stanovit celkové obohacení jaderného materiálu. Tato práce [4] posloužila jako základ pro pozdější měření v praktické části a její výsledky fungovaly jako kontrolní prvky. Druhý přístup využíval spektra zpožděných neutronů na základě práce [16].

Praktická část bakalářské práce byla rozdělena na dvě části: pasivní gama-spektrometrie a gama-spektrometrie zkoumaného vzorku po ozáření 14 MeV neutrony. V první části byl neozařený uranový vzorek ES17 vložen do HPGe detektoru, kde proběhlo gama-spektrometrické měření. Ze získaných dat byly jednotlivé gama linky identifikovány a přiřazeny k příslušným izotopům z rozpadových řad. Největší gama linky patřili U-235, konkrétně linka 185,64 keV, U-238 s peakem v 114,5 keV a metastabilní mPa-234 se silným peakem v 766,5 keV. V druhé části byl uranový vzorek ES17 po dobu 30 minut ozářen D-T generátorem neutronů a následně byl opět vložen do HPGe detektoru, kde proběhlo další gama-spektrometrické měření. V této části experimentu byly hledány štěpné produkty vzniklé ozářením uranového vzorku neutrony. Celkem bylo nalezeno 11 gama linek příslušejících k různým štěpným produktům, které se nacházely v různých časových úsecích měření, jednalo se o: Xe-138 (434,5 keV), Sr-93 (590,4 keV), Mo-103 (641,6 keV), Sb-130 (793,5 keV), Y-94 (918,74 keV), Sb-132 (974,4 keV), Cs-138 (1009,6 keV), Rb-89 (1031,9 keV), I-134 (1072,6 keV), Tc-104 (1737,9 keV) a Kr-88 (2195,2 keV). Největší plochy peaků těchto izotopů patřily k Sb-132 – 840 v časovém úseku od 9 minut do 18 minut po konci ozařování a I-134 – 937 v čase od 64 minut do konce měření. Plochy peaků odpovídajícím štěpným produktům v ozářeném vzorku tvoří malou část aktivity v porovnání s izotopy z rozpadových řad neozařeného vzorku, kde plochy peaků jsou v řádech tisíců až desetitisíců, například gama linka 185,64 keV má plochu 181699.

Ke konci práce byla provedena simulace s ozářeným uranovým vzorkem pomocí kódu PHITS. Nejdříve autor popsal kód PHITS, přiblížil jeho funkce a možnosti využití. Poté byl vytvořen vstupní soubor, který sloužil k implementaci dat o výtěžku simulovaného uranového materiálu pomocí výpočtu DCHAIN. Z dat z kódu DCHAIN byly vybrány nejzastoupenější výtěžky a porovnány s izotopy (štěpnými produkty) z praktické části. Všech 11 izotopů bylo

objeveno i v datech z kódu. Průměrný podíl z celkové aktivity vzorku z těchto izotopů byl podle kódu v rádech setin až desetin procenta.

Ze srovnání simulace a experimentu byly vybrány dva izotopy, které jsou nejvhodnější k určování obohacení jaderného materiálu. Jednalo se o Rb-89 a Sb-132, výskyt těchto izotopů s dostatečnou intenzitou gama linek (Rb-89 – 62,9 % a Sb-132 – 99,0 %) a jejich aplikace na stanovenou úlohu byly potvrzeny také v práci [4].

Většina z 11 nalezených izotopů vykazuje největší aktivitu v prvních 30 minutách měření. S tím souvisí poločas rozpadu jednotlivých izotopů, například 4,2 minuty pro Sb-132 a 15,2 minuty pro Rb-89. Při půlhodinovém ozařování se aktivita Sb-132 blíží k saturované hodnotě čili delší ozařování by nemělo smysl z hlediska vykazované aktivity izotopu. Možným vylepšením experimentu je zvýšení statistické přesnosti tím, že bude ozařováno/měřeno ve vhodně zvolených cyklech (ozáření – měření – ozáření – měření – ozáření - ...).

Na Katedře jaderných reaktorů FJFI je používán D-T generátor MP320 s emisí zdroje $1e+08$ n/s, který byl použit i v této práci při ozáření uranového vzorku ES17 ve formě UO_2 s hmotností 11,25 g a obohacením 3,78 %, bylo detekováno 11 štěpných produktů a následně byly vytipovány produkty Rb-89 a Sb-132, které mohou vést k určení obohacení uranového materiálu. Při použití větších materiálů a cyklického ozařování by bylo možné objevit ještě víc charakteristických štěpných produktů k určení obohacení jaderného materiálu, a to celé s větší statistickou přesností. Tato metoda je tedy proveditelná na Katedře jaderných reaktorů s D-T generátorem, navíc je použitelná už se vzorkem stejné velikosti, jako byl použit v této práci a stojí za kvantitativní ověření opravdové hodnoty obohacení uranu pomocí těchto dvou nalezených štěpných produktů.

Literatura

- [1] KRECHLEROVÁ, Alena. *Studium environmentálních vzorků využitím neutronové aktivační analýzy na školním reaktoru VR-1* [online]. Praha, 2019 [cit. 2023-07-04]. Dostupné z: <https://dspace.cvut.cz/handle/10467/95707>. Bakalářská práce. ČVUT.
- [2] OBODOVSKIY, Ilya. Radiation. In: OBODOVSKIY, Ilya. *Radiation*. Amsterdam: Elsevier, 2019, s. 41-62. ISBN 9780444639790.
- [3] VAN DER HORST, H. L. Gas-Discharge Tubes. In: VAN DER HORST, H. L. *Gas-Discharge Tubes* [online]. Eindhoven: Philips Technical Library, 1964, s. 281-295 [cit. 2023-07-04]. ISBN 10391645. Dostupné z: <http://www.coultersmithing.com/OldStuff/pdfs/Pch8.pdf>
- [4] MARRS R.E., a kol.: Fission-product gamma-ray line pairs sensitive to fissile material and neutron energy, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 592, Issue 3, 463-471 [cit. 2023-07-04].
- [5] Beddingfield D.H., Cecil F.E.: Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 417, Issues 2-3, 1998 [cit. 2023-07-04]
- [6] KNOLL, Glenn F. *Radiation Detection and Measurement*. 3rd ed. Michigan: John Wiley, 2000. ISBN 0471073385.
- [7] HOSSAIN, I., N. SHARIP a K. K. VISWANATHAN. Efficiency and resolution of HPGe and NaI(Tl) detectors using gamma-ray spectroscopy. *Academic Journals*. 2012, **2012**(7), 86-89. ISSN 1992-2248. Dostupné z: doi:10.5897/SRE11.1717
- [8] LAMARSH, John R. a Anthony J. BARATTA. *Introduction to Nuclear Engineering*. 3rd ed. Upper Saddle River, New Jersey: Prentice Hall, 2001. ISBN 0-201-82498-1.
- [9] SPRIGGS, Gregory D., Joann M. CAMPBELL a Vladimir M. PIKSAIKIN. An 8-group delayed neutron model based on a consistent set of half-lives. *Progress in Nuclear Energy* [online]. 2002, **2002**(41), 223-251 [cit. 2023-07-28]. ISSN 0149-1970. Dostupné z: [https://doi.org/10.1016/S0149-1970\(02\)00013-6](https://doi.org/10.1016/S0149-1970(02)00013-6).
- [10] CZAKOJ, Tomáš, Michal KOŠTÁL, Marek ZMEŠKAL, et al. The characterization of D-T neutron generators in precise neutron experiments. In: *Nuclear Inst. and*

Methods in Physics Research, A [online]. Elsevier, 2022, s. 1-2 [cit. 2023-07-04]. ISSN 0168-9002. Dostupné z: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.166837>

[11] U.S. DEPARTMENT OF ENERGY. *DOE FUNDAMENTALS HANDBOOK NUCLEAR PHYSICS AND REACTOR THEORY Volume 1 of 2*. Washington, D.C., 1993. ISBN 1304149889.

[12] *High Purity Germanium Detectors – HPGe* [online]. In: . [cit. 2023-07-08]. Dostupné z: <https://www.nuclear-power.com/nuclear-engineering/radiation-detection/semiconductor-detectors/high-purity-germanium-detectors-hpge/>

[13] N. Soppera, M. Bossant, E. Dupont, "JANIS 4: An Improved Version of the NEA Java-based Nuclear Data Information System", *Nuclear Data Sheets*, Volume 120, June 2014, Pages 294-296.

[14] FATHI, A., S.A.H. FEGHHI, S.M. SADATI a E. EBRAHIMIBASABI. Magnetic field design for a Penning ion source for a 200 keV electrostatic accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* [online]. 2017, **2017**(850), 1-6 [cit. 2023-07-08]. Dostupné z: [doi:https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.01.028](https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.01.028)

[15] Duke, Dana Lynn, '*Fission Fragment Mass Distributions and Total Kinetic Energy Release of 235 – Uranium and 238Uranium in Neutron-Induced Fission at Intermediate and Fast Neutron Energies*', LA-UR-15-28829, Los Alamos, USA (2015)

[16] NATTRESS, J., K. OGREN, A. FOSTER, A. MEDDEB, Z. OUNAIES a I. JOVANOVIC. Discriminating Uranium Isotopes Using the Time-Emission Profiles of Long-Lived Delayed Neutrons. *PHYSICAL REVIEW APPLIED* [online]. 2018, **2018**(10), 024049 [cit. 2023-07-10]. Dostupné z: [doi:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.024049](http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.024049)

[17] MIGLIERINI, Marcel. *Detektory ionizujúceho žiarenia a gama spektrometria*. [Prezentace]

[18] RATAJ, Jan. *Úvod do experimentálnej neutronovej fyziky*. [Prezentace], 2023

[19] Araujo, Wagner & Campos, Tarcisio. (2010). *Issues on beam-plasma instability: early simulations focusing on the development of a compact neutron generator*. *Revista Brasileira de Ensino de Física*. 32. 1-6. 10.1590/S1806-11172010000300002.

[20] T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Ogawa, T. Furuta, S. Abe, T. Kai, P.-E. Tsai, N. Matsuda, H. Iwase, H. Shigyo, L. Sihver, and K. Niita, *Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02*, *J. Nucl. Sci. Technol.* 55, 684-690 (2018).