



Czech Nuclear Society



Young Generation



Ústav elektroenergetiky Fakulty elektrotechniky a komunikačních technologií VUT v Brně
Česká nukleární společnost a Mladá generace ČNS, o. s.
Újv Řež, a. s.
Český svaz vědeckotechnických společností

Jaderná energetika v pracích mladé generace - 2019

„Mikulášské setkání Mladé generace ČNS“

**SBORNÍK REFERÁTŮ ZE SEMINÁŘE
4. až 6. prosince 2019, FEKT, VUT v Brně**

ISBN 978-80-02-02895-6

PARTNEŘI SETKÁNÍ



SETKÁNÍ PROBÍHALO NA AKADEMICKÉ PŮDĚ
VYSOKÉHO UČENÍ TECHNICKÉHO V BRNĚ
ÚSTAV ELEKTROENERGETIKY
FAKULTY ELEKTROTECHNIKY
A KOMUNIKAČNÍCH TECHNOLOGIÍ

A BYLO ORGANIZOVÁNO ZA PŘÍSPĚNÍ
České nukleární společnosti, z. s.
FEKT, VUT v Brně
a partnerů setkání

Organizátoři setkání děkují:

- > **Ústavu elektroenergetiky** Fakulty elektrotechniky a komunikačních technologií VUT v Brně za zapůjčení prostor pro pořádání setkání a finanční podporu
- > **Ing. Karlu Katovskému, PhD.** z Ústavu elektroenergetiky Fakulty elektrotechniky a komunikačních technologií VUT v Brně za zajištění prostor pro pořádání setkání
- > **Společnosti ÚJV Řež, a.s.** a **ČNS** za významnou podporu Mikulášského setkání CYG a za slavnostní vyhlášení výsledků nejlepších diplomových prací v jaderných oborech za rok 2019
- > **NUVIA a.s.** za umožnění exkurze v provozovně Třebíč
- > **Všem přednášejícím za jejich příspěvky a všem zúčastněným za jejich pozornost**

OBSAH

| | |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Program setkání | 7 |
| Oceněné studentské práce za rok 2019 | 10 |
| Geant4 model reakční vakuové komory CLID Martin Ansorge | 13 |
| Analýza neutronových oscilací způsobených vibracemi palivového proutku Tomáš Bohuslav | 19 |
| Laserem řízené urychlování částic: Diagnostika a směry budoucího výzkumu Vendula Filová | 26 |
| Ověření účinnosti jedno-reaktorového uspořádání technologie Molten Salt Oxidation Vojtěch Galek | 32 |
| Fotonové a neutronové pole skladu vyhořelého jaderného paliva Temelín s OS CASTOR 1000/19 Kristýna Gincelová | 37 |
| Chlazení fúzního reaktoru - Hypervapotron Miroslav Gleitz | 43 |
| Validace výpočetního kódu Serpent v České republice Pavína Haroková | 49 |
| Zjednodušený výpočet bezpečnostnej analýzy kritickosti skladovacieho bazénu vyhoreného paliva Peter Hausner | 54 |
| Možnost nedestruktivní kontroly biologického stínění reaktoru Zbyněk Hlaváč | 60 |
| Znižovanie štatistickej chyby CDBS meraní Adam Jakabovič | 65 |
| Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy Jiří Jarošík | 71 |
| Bezpečnostná analýza kritickosti bazéna skladovania vyhoreného paliva v JE Mochovce Katarina Kaprinayova | 79 |
| Návrh a konstrukce promývačky plynu pro fixaci vysokých koncentrací tritia Jaroslav Kekrt | 85 |
| Ukládání RAO a VJP - Studie sorpce radia a stroncia na cementové materiály Jana Kittnerová | 91 |
| Aktivačné a prahové reakcie v neutrónovom poli urýchľovačom riadeného generatoru p(20) + Be Ján Kozic | 97 |
| Radiační ohřev termočládku | 105 |

Martin Lovecký

Návrh metodiky měření hustoty při vysokých teplotách v kapalně fázi 109
Bence Mészáros

Analýza vlastností ATF pomocí kódu FEMAXI-6 115
Peter Mičian

**Vplyv žiarenia na vlastnosti systémov pre separáciu Ln(III)/An(III)
využívajúce lipofilné extrakčné činidlá** 123
Miriam Mindová

**Studium vlivu záření na vlastnosti systémů pro separaci Ln(III)/An(III)
využívajících hydrofilní maskovací činidla při extrakci do TODGA** 128
Jan Šebesta

Validácia Monte Carlo výpočtu aktivácie betónovej šachty reaktora JE V-1 134
Michal Šnírer

Chování palivového pokrytí v prostředí obsahující vzduch 140
Pavel Vrbka

Studium vlastností cementových materiálů 150
Iana Zamakhaeva

PROGRAM SETKÁNÍ

Středa 4.12.2019

12:00 Oficiální zahájení setkání

12:00 - 12:15 Úvodní slovo pořadatelů a garanta setkání.

12:15 Prezentace prací mladých odborníků

12:15 - 12:30 Výpočty přechodových procesů na reaktoru VR-1 pomocí kódu Serpent
(Ondřej Novák)

12:30 - 12:45 Geant4 model reakční vakuové komory CLID
(Martin Ansorge)

12:45 - 13:00 Validace výpočetního kódu Serpent v České republice
(Pavína Haroková)

13:00 - 13:15 Zjednodušený výpočet bezpečnostnej analýzy kritickosti skladovacieho bazénu vyhoreného paliva
(Peter Hausner)

13:15 - 13:30 Bezpečnostná analýza kritickosti bazéna skladovania vyhoreného paliva v JE Mochovce
(Katarina Kaprinayova)

13:35 - 13:50 *Přestávka*

13:50 - 14:10 Paliva se zvýšenou odolností při havarijních stavech - aktuální vývoj
(Martin Ševeček)

14:10 - 14:25 Chování palivového pokrytí s coatingem na bázi chromu při nadprojektové havárii
(Adéla Chalupová)

14:25 - 14:40 Ukládání RAO a VJP - Studie sorpce radia a stroncia na cementové materiály
(Jana Kittnerová)

14:40 - 14:55 Možnost nedestruktivní kontroly biologického stínění reaktoru
(Zbyněk Hlaváč)

14:55 - 15:10 Vplyv žiarenia na vlastnosti systémov pre separáciu Ln(III)/An(III) využívajúce lipofilné extrakčné činidlá
(Miriam Mindová)

15:10 - 15:25 *Přestávka*

15:25 - 15:40 Studium vlivu záření na vlastnosti systémů pro separaci Ln(III)/An(III) využívajících hydrofilní maskovací činidla při extrakci
(Jan Šebesta)

15:40 - 15:55 Návrh a konstrukce promývačky plynu pro fixaci vysokých koncentrací tritia
(Jaroslav Kekrt)

15:55 - 16:10 Analýza vlastností ATF pomocí kódu FEMAXI-6
(Peter Mičian)

16:10 - 16:25 Radiační ohřev termočlásku
(Martin Lovecký)

16:30 Shrnutí prvního dne setkání

18:00 Společná návštěva Vánočních trhů v centru Brna

19:00 Večerní posezení u Mazaného Anděla

Čtvrtek 5.12.2019 dopolední část

09:00 Předání cen a prezentace oceněných diplomantů

09:00 - 09:10 Předání cen oceněným diplomantům

09:10 - 09:30 Oceněný BP – 3. místo

09:30 - 09:50 Oceněný BP – 2. místo

09:50 - 10:10 Oceněný BP – 1. místo

10:10 – 10:25 *Přestávka*

10:25 - 10:45 Oceněný DP – 3. místo

10:45 - 11:05 Oceněný DP – 2. místo

11:05 - 11:25 Oceněný DP – 1. místo

11:25 – 11:40 *Přestávka*

11:40 – 11:55 Ověření účinnosti jedno-reaktorového uspořádání technologie Molten Salt Oxidation
(Vojtěch Galek)

12:00 - 12:45 Oběd

12:45 - 13:00 Přesun na prezentaci

13:00 - 14:30 Přednáška Vladimíra Wagnera
Jaderná energie ve vesmíru

Čtvrtek 5.12.2019 odpolední část

14:45 **Prezentace prací mladých odborníků**

- 14:45 - 15:00 Laserové centrum ELI Beamlines - zkušenosti získané za rok 2019 a plány pro rok 2020
(Martin Přeček)
- 15:00 - 15:15 Laserem řízené urychlování částic: Diagnostika a směry budoucího výzkumu
(Vendula Filová)
- 15:15 - 15:30 Chlazení fúzního reaktoru – Hypervapotron
(Miroslav Gleitz)
- 15:30 – 15:45 *Přestávka*
- 15:45 - 16:00 Validácia Monte Carlo výpočtu aktivácie betónovej šachty reaktora JE V-1
(Michal Šnírer)
- 16:00 - 16:15 Znižovanie štatistickej chyby CDBS meraní
(Adam Jakabovič)
- 16:15 - 16:30 Návrh metodiky měření hustoty při vysokých teplotách v kapalně fázi
(Bence Mészáros)

16:50 **Slavnostní zakončení setkání**

Pátek 6.12.2019

08:00 **Exkurze do společnosti NUVIA a.s., Třebíč**

Odjezd od budovy Technická 10

**OCENĚNÉ STUDENTSKÉ PRÁCE V OBLASTI MÍROVÉHO VYUŽÍVÁNÍ
JADERNÉ ENERGIE A IONIZUJÍCÍHO ZÁŘENÍ V ROCE 2019**

Na Mikulášském setkání CYG na VUT v Brně byly dne 5. prosince 2019 vyhlášeny nejlepší bakalářské a diplomové práce v jaderných oborech za rok 2019. Oceněny byly následující práce:

Kategorie A - Bakalářské práce

I. místo

Jiří Jarošík

Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy

II. místo

Iana Zamakhaeva

Studium vlastností cementových materiálů

III. místo

Ján Kozic

Aktivačné a prahové reakcie v neutrónovom poli urýchľovačom riadeného generátora p(20)+Be

Kategorie B - Diplomové práce

I. místo

Kristýna Gincelová

Fotonové a neutronové pole skladu vyhořelého jaderného paliva Temelín s OS CASTOR 1000/19

III. místo

Tomáš Bohuslav

Analýza neutronových oscilací způsobených vibracemi palivového proutku

III. místo

Pavel Vrbka

Chování palivového pokrytí při vysokoteplotní oxidaci v prostředí obsahujícím vzduch

Nakladatel: Česká nukleární společnost, z. s. (ČSVTS)
V Holešovickách 2
180 00 Praha 8
Jaderná energetika v pracích mladé generace - 2019

Rok vydání: 2020, 1. vydání

Forma vydání: vydáno pouze na CD-ROM

Materiály sestavil: Ing. Jitka Vojáčková

Příspěvky jednotlivých autorů nebyly textově ani jazykově upravovány.

ISBN 978-80-02-02895-6

Geant4 model reakční vakuové komory CLID

Martin Ansorge^{1,2}

E-mail: martin.ansorge@fjfi.cvut.cz

¹ České vysoké učení technické v Praze, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská Katedra jaderných reaktorů,
V Holešovičkách 2, Praha 8, 180 00, Česká republika

² Ústav jaderné fyziky, Akademie věd ČR, Hlavní 130, 250 68 Husinec – Řež, Česká republika

Abstrakt: Na OJR ÚJF v Řeži probíhá již několik let vývoj nové detekční sestavy CLID (z ang. Chamber for Light Ion Detection). Vakuová komora osazena křemíkovými teleskopy je navržena pro měření dvojitých diferenciálních účinných průřezů lehkých nabitých částic, které vznikají při jaderných interakcích indukovaných rychlými neutrony s kinetickými energiemi do 35 MeV. Motivací pro konstrukci zařízení CLID je především testování, ověřování a kvalifikace materiálů vhodných pro použití ve fúzních reaktorech (ITER, DEMO) a dalších s fúzí souvisejících zařízeních (IFMIF). Současně s výrobou a osazováním nové detekční komory probíhá i vývoj počítačového modelu pro Monte-Carlo simulace v prostředí Geant4. Předmětem prezentace bude především představení současných a zamýšlených možností Geant4-modelu reakční komory, jakožto i představení prvních experimentálních dat.

Klíčová slova: Monte-Carlo, simulace, Geant4 model, rychlé neutrony, detekční systém, vakuová komora, křemíkové detektory

1. ÚVOD

Isochronní cyklotron U-120M provozovaný Ústavem jaderné fyziky (ÚJF) v Řeži u Prahy je již řadu let využíván k produkci rychlých neutronů v energetickém rozmezí (18-33 MeV) [1]. Od roku 2016 je na cyklotronu U-120M možnost kolimovat rychlé neutrony do svazků o průměrech 3 cm a 9 cm. Konstrukce kolimátoru byla motivována především experimenty s polovodičovými detektory online pro detekci gama a nabitých částic z jaderných reakcí vyvolaných v materiálech rychlými neutrony. Současně s konstrukcí kolimátoru byla konstruována i vakuová komora pro detekci lehkých nabitých částic (p, d, t, He³, α) z jaderných interakcí indukovaných rychlými neutrony. Vakuová reakční komora CLID umožňuje svou konstrukcí měření dvojitých účinných průřezů, tedy účinných průřezů diferencovaných v závislosti na úhlu interakce a kinetické energii primárních neutronů (získané metodou Time-of-Flight). Znalost přesných jaderných dat pro interakce vyvolané rychlými neutrony přispívá k zpřesňování evaluací v knihovnách jaderných dat, a je tak přínosná mimo jiné při transportních výpočtech a simulacích v aplikacích spjatých s fúzními technologiemi či ADS systémy (z ang. Accelerator-Driven System) [2,3].

Svou konstrukcí je nová vakuová komora detekční systém sestávající až z 16 křemíkových detektorů sdružených do osmi tzv. teleskopů – každý sestává z průletového a závěrného detektoru. Vzhledem k velké variabilitě koncepcí budoucích experimentů je vyvíjen i počítačový model reakční komory, který umožní efektivní přípravu experimentů a podpůrné simulace pro vyhodnocení výsledků. Model komory byl vytvořen v Monte-Carlo simulačním prostředí Geant4 [4, 5], které umožňuje modelovat jaderné interakce v širokých spektrech energií pro různé typy částic. Geant4 je modulární prostředí psané v programovacím jazyce C++, které poskytuje uživateli vysokou míru variability při tvorbě konkrétního simulačního softwaru.

2. VÝVOJOVÉ PROSTŘEDÍ GEANT4

Při vytváření modelu vakuové komory bylo v prostředí Geant4 (verze 10.5) třeba vybrat či naprogramovat jednotlivé moduly, které mají na starost modely fyzikálních procesů, geometrického uspořádání materiálu

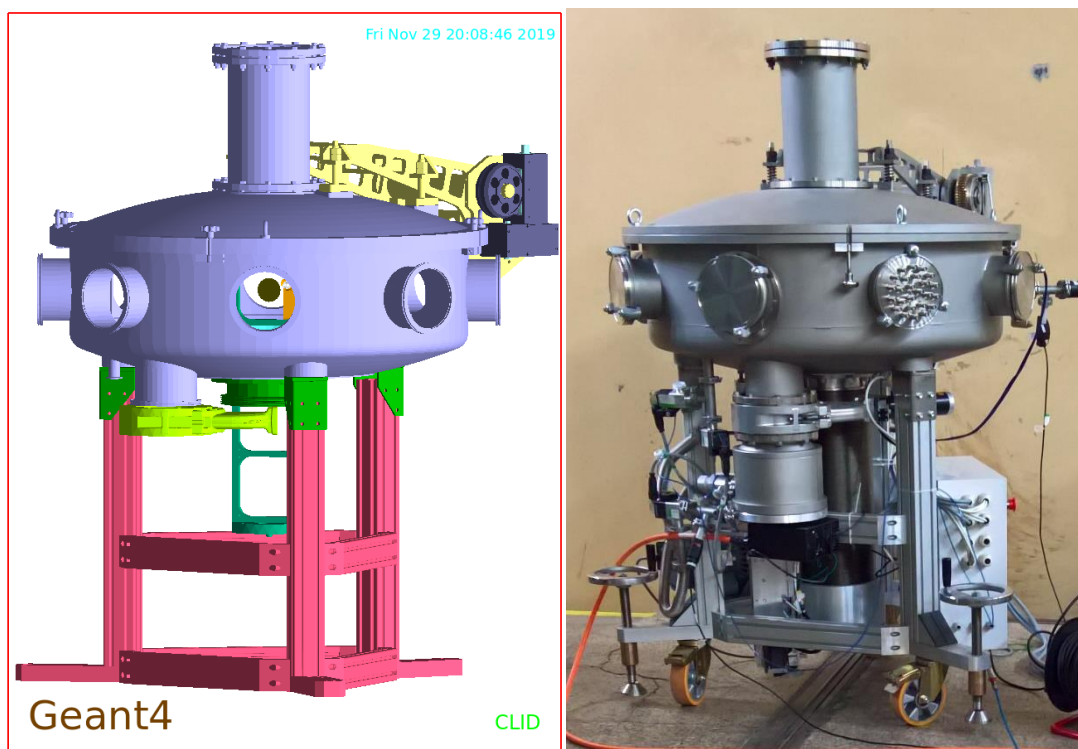
v prostoru, produkci primárních částic, ukládání a strukturování výsledných veličin a další funkce, které budou popsány v následujících odstavcích.

2.1. FYZIKA

V současné verzi nabízí Geant4 tzv. fyzikální listy, které jsou ve smyslu jazyka C++ třídami sdružujícími soubory validovaných fyzikálních modelů pro dané skupiny částic, interakcí a energií. V současné verzi simulačního softwaru CLID je implementována třída fyzikálních modelů s názvem *QGSP_BIC*, respektive *QGSP_BIC_HP* [6]. Akronym HP (z ang. High Precision) je důležité zmínit, neboť symbolizuje použití přesných modelů a účinných průřezů z knihoven jaderných dat (G4NDL4.5 [7]) pro interakce neutronů s látkou při kinetických energiích pod 20 MeV. Maximální kinetické energie primárních neutronů produkovaných na urychlovači U-120M dosahují k 35 MeV. V rozmezí 20-35 MeV jsou evaluovaná data z jaderných knihoven nahrazena parametrizovanými modely.

2.2. GEOMETRIE

Pro co nejpřesnější přiblížení ke skutečné geometrii vakuové komory byl do prostředí Geant4 konvertován CAD model vakuové komory, který byl vytvořen pro účely konstrukce reálné vakuové komory do současné podoby. Za tímto účelem bylo využito rozšíření *CADMesh* [8], které umožňuje převádět 3D modely typu PLY a STL do objektů srozumitelných prostředí Geant4, jako jsou *G4TessellatedSolid* a *G4Tet*. V současné implementaci jsou tak veškeré konstrukční celky kromě reakčních terčů a křemíkových detektorů modelovány pomocí *G4TessellatedSolid*. Inicializace geometrie je při použití takto členité geometrie časově náročnější a trvá řádově několik minut, což je ve srovnání s geometriemi definovanými standardním způsobem čas dlouhý, nicméně při simulacích trvajících stovky minut je delší inicializace ospravedlnitelná. Na obrázku 1 lze porovnat Geant4 model vakuové komory s reálnou geometrií.

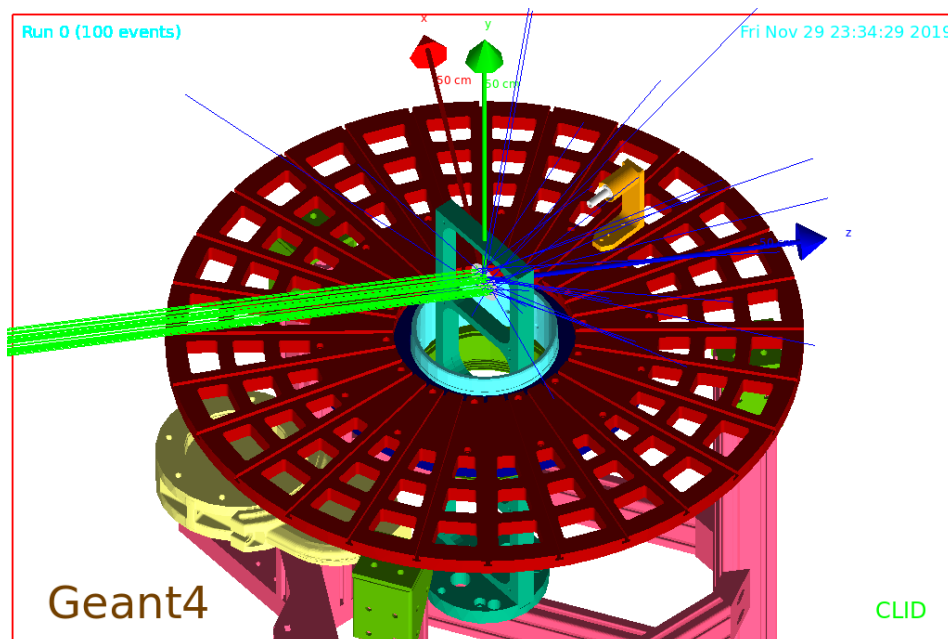


Obr. 1: Vlevo 3D model reakční vakuové komory v prostředí Geant4. Vpravo fotografie komory.

2.3. ZDROJOVÝ ČLEN

Zdroj primárních částic je během simulací řízen třídou *G4GeneralParticleSource*. Ta umožňuje variabilně nastavovat parametry jako jsou poloha, typ částic, energetické a úhlové rozdělení a další, a to pomocí tradičních UI (z ang. User Interface) příkazů, tedy bez nutnosti kompilovat celý program při zavádění nových parametrů. Při skutečných experimentech s vakuovou komorou jsou primárními částicemi rychlé neutrony kolimované do úzkých svazků za pomoci 1,6 m dlouhého kolimátoru sestaveného z železných a polyethylenových bloků.

Na obrázku 2 je zachycen zdroj primárních neutronů (zelené úsečky) simulovaný v prvním přiblížení jako dokonale kolimovaný svazek rovnoběžně s osou z se pohybujících neutronů. Předmětem zájmu simulací jsou a budou sekundární, především pak nabitě, částice. Z toho důvodu si lze na obrázku 2 povšimnout, že byla pozměněna fyzika interakcí neutronů v centrálním terčíku, kdy implementací třídy *G4GenericBiasingPhysics* byl donucen podstoupit interakci s materiálem terčíku. Výběr konkrétního způsobu interakce nebyl dále ovlivněn.



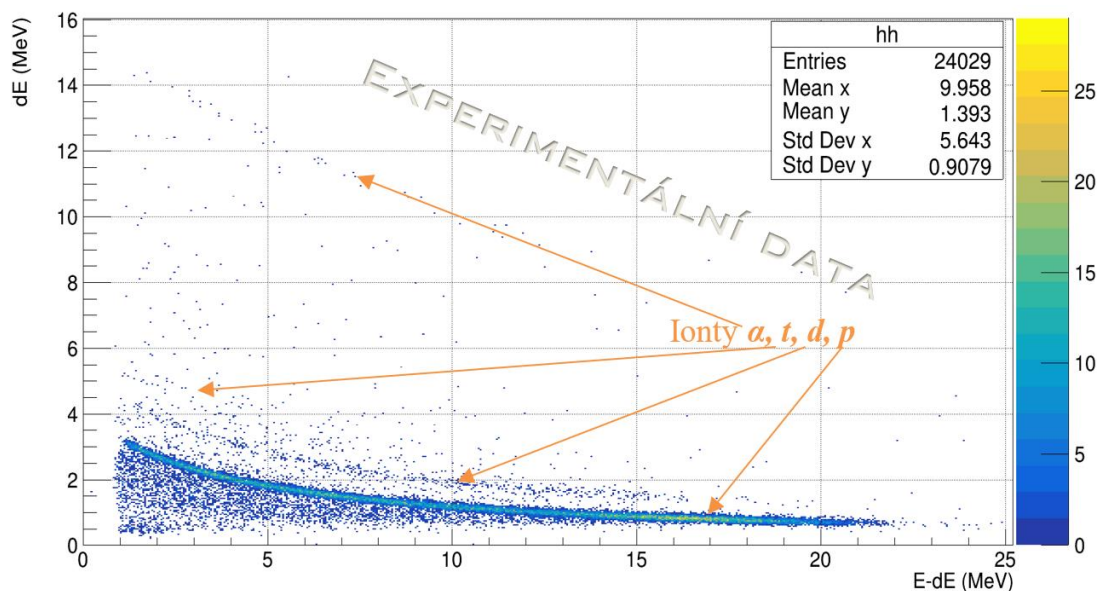
Obr. 2: Obrázek zachycuje Geant4-simulaci kolimovaných neutronů (zeleně) produkujících sekundární částice v testovacím PE terčíku. Na červeném otočném stole je umístěn teleskop s křemíkovými detektory.

2.4. UKLÁDÁNÍ SIMULOVANÝCH DAT

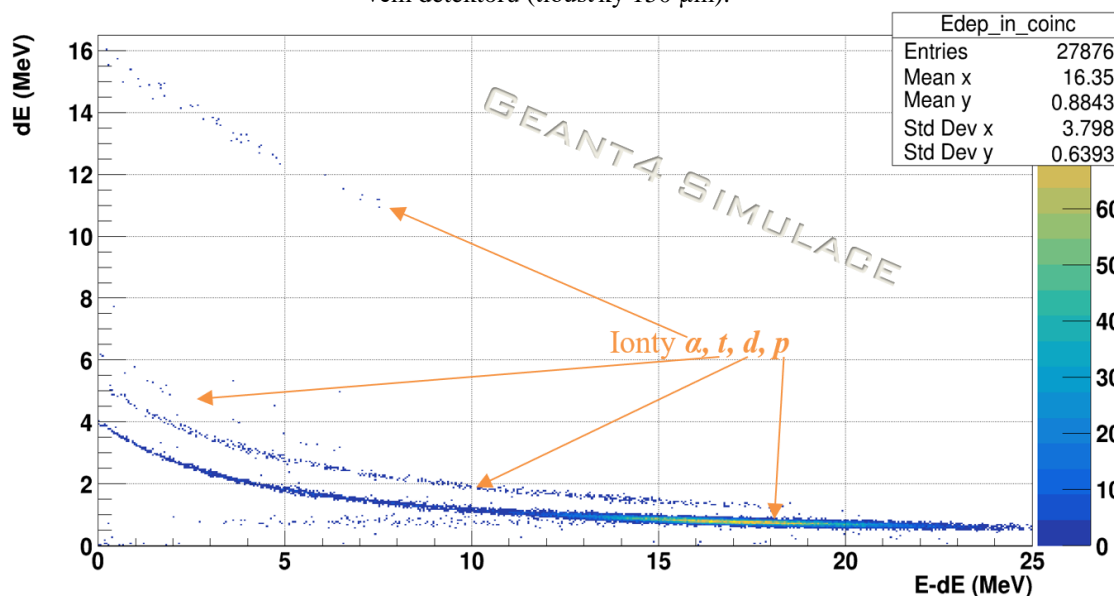
K ukládání cílových veličin simulace je s výhodou využito předpřipravené implementace obecně známého prostředí ROOT [9]. Křemíkové detektory uspořádané dle reálné předlohy do tzv. teleskopů jsou v prostředí Geant4 registrovány jako citlivé detektory pomocí třídy *G4MultiFunctionalDetector*, která umožňuje zaznamenávat a filtrovat veličiny vztažené k danému typu částice interagující s aktivním objemem detektoru. Do ROOTovského výstupního souboru je tak pro každý detektor zapisována energie deponovaná interagující částicí. Je rozlišováno mezi lehkými ionty (e^+ , e^- , p, d, t, ^3He , α), neutrony, γ fotony. Pro každý detektor a typ částice je zaznamenáno energetické spektrum a v případě koincidence jsou ukládána i koincidenční energetická spektra. Dále jsou zaznamenána energetická spektra sekundárních částic, které vylétnou z centrálního terčíku po interakci vyvolané primárním neutronem.

3. PRVNÍ SROVNÁNÍ S EXPERIMENTÁLNÍMI DATY

Od konce srpna roku 2019 je reakční vakuová komora provozována na OJR ÚJF AVČR v testovacím režimu. Od té doby byly provedeny dvě měření na kolimovaných svazcích rychlých neutronů, jejichž hlavním účelem bylo testování nových komponent akviziční trasy (předzesilovače, digitizér atd.) jakožto i vakuových systémů samotné komory. Pro účely posledního testovacího měření byly neutrony produkovány v reakci $p(34 \text{ MeV})+^9\text{Be}$ (tloušťky 2,5 mm).



Obr. 3: Experimentální koincidenční energetické spektrum sekundárních nabitých částic. Na ose x je vynesena energie deponovaná v závěrném detektoru (tloušťky 5 mm), na ose y je vynesena energie deponovaná v průletovém detektoru (tloušťky 150 μm).



Obr. 4: Nasimulované koincidenční energetické spektrum sekundárních nabitých částic. Na ose x je vynesena energie deponovaná v závěrném detektoru (tloušťky 5 mm), na ose y je vynesena energie deponovaná v průletovém detektoru (tloušťky 150 μm).

Na obrázku 3 a 4 jsou grafy zachycující četnost částic v závislosti na energii dE deponované v průletovém detektoru (tloušťky 150 μm) vůči energii $E-dE$ deponované v detektoru závěrném (tloušťky 5 mm), ve kterém se

částice zastaví. Takto interpretovaná data umožňují snadné rozlišení částic dle typu v závislosti na velikosti ionizačních ztrát v křemíku pro daný typ částice. Na obrázku 3 jsou zobrazena data z měření, při kterém byl teleskop s křemíkovými detektory nastaven pod úhlem $36,4^\circ$ vůči ose kolimovaného svazku neutronů. Neutrony dopadaly na polyethylenovou (PE) fólii tloušťky $180\ \mu\text{m}$ umístěnou v centru reakční vakuové komory a natočeným pod úhlem 30° vůči ose kolimovaného svazku. Na obrázku 4 je pro kvalitativní vizuální porovnání experimentu a simulace zobrazen graf nasimulovaných dat pro geometrické uspořádání odpovídající výše popsaným parametrům testovacího měření. Spektrum z obrázku 4 vzniklo simulací 10^9 primárních neutronů a za podmínky, kdy každý primární neutron, který vstoupil do PE fólie, interagoval s materiálem terčiku. Energetické spektrum primárních protonů v simulaci bylo určeno Gaussovým rozdělením se střední hodnotou $28\ \text{MeV}$ a hodnotou sigma $3\ \text{MeV}$.

4. DISKUSE A ZÁVĚR

Bylo ukázáno, že Monte-Carlo simulační software CLID vystavěný na nejnovější verzi prostředí Geant4 je schopen simulovat interakce neutronů s látkou. V sekci 3 byl graficky porovnán výstup z testovacího měření s reakční vakuovou komorou se simulací téže geometrie. Z tohoto kvalitativního porovnání je zřejmé, že v prvním přiblížení řádově odpovídají vzájemné poměry četností jednotlivých typů částic i jejich energie skutečnosti. S ohledem na testovací charakter experimentu nebylo zatím vyhodnoceno energetické neutronové spektrum v absolutních hodnotách. Z toho důvodu nelze provést srovnání absolutních hodnot simulace vs. experiment. Nicméně z provedeného srovnání vyplývá do budoucna velmi pozitivní zjištění, že simulační software CLID bude v případě potřeby vhodným prostředím pro porovnávání experimentálních dat s fyzikálními modely a evaluovanými jadernými daty implementovanými v široce používaném prostředí Geant4.

V běžných podmínkách experimentální fyziky nalezne představený model prozaičtější využití při ověřování správnosti energetických kalibrací, dohledávání jaderných interakcí s největším příspěvkem k danému jevu, či při určování prostorového úhlu pod kterým „vidí“ teleskop s křemíkovými detektory produkční terčik umístěny v centrální pozici reakční komory. Analytický či numerický výpočet prostorového úhlu pro geometrii s nebodovým zdrojem a detektorem osazeným kolimátory je velmi náročný a pouze přibližný. K nalezení přesného prostorového úhlu lze s výhodou využít Monte-Carlo přístupu, kdy je prostorový úhel mezi zdrojem a detektorem určitelný jednoduchým poměrem mezi částicemi detekovanými ku všem částicím izotropně vyzařovaným z povrchu zdroje do prostorového úhlu 4π .

Do budoucna bude simulační model CLID rozšiřován o další funkcionality. Především bude implementováno ukládání detekovaných veličin do ROOTovské struktury *TTree* v režimu událost za událostí. Uživatel tím získá možnost zpětně vykreslovat histogramy rozličných parametrů kdykoli po uložení výstupního souboru simulace. Dále bude implementováno načítání primárních částic z WSSA souboru, které mohou být produkovány jakožto výstupní soubory z prostředí MCNPX. Samotná fyzika kolimátoru je totiž netriviální záležitostí a kolimované neutrony nevytlétávají z kolimátoru po striktně paralelních drahách a jejich rozložení po průřezu kolimátoru nemusí být striktně homogenní. Z tohoto důvodu je třeba věnovat další pozornost modelování samotného transportu rychlých neutronů přes kolimátor, k čemuž je výhodné využít simulační prostředí MCNPX. Spektra částic vystupujících z kolimátoru lze v MCNPX uložit do formátu WSSA. Z tohoto formátu bude možno načíst kolimované částice do prostředí Geant4 pomocí utility MCPL [10].

PODĚKOVÁNÍ

Tato práce byla podpořena grantem Studentské grantové soutěže ČVUT č. SGS18/145/OHK4/2T/14.

Poděkování patří i všem členům Oddělení Jaderných reakcí Ústavu jaderné fyziky AVČR v Řeži za odvedenou práci při návrhu, výrobě a zprovoznování

LITERATURA

- [1] Bém, P. a spol., The NPI cyclotron-based fast neutron facility. France, ND2007 doi:10.1051/NDATA:07598.
- [2] Yinlu Han, Yongli Xu, Haiying Liang, Hairui Guo, Qingbiao Shen, Double differential cross sections of $n+^{63,65}\text{nat}\text{Cu}$ reactions, *Annals of Nuclear Energy*, Volume 38, Issue 9, 2011, s. 1950-1963, ISSN 0306-4549
- [3] Kokoo, Isao Murata & Akito Takahashi, Measurements of Double-Differential Cross Sections of Charged-Particle Emission Reactions for Several Structural Elements of Fusion Power Reactors by 14.1-MeV Incident Neutrons, *Nuclear Science and Engineering*, 1999, 132:1, 16-29
- [4] S. Agostinelli a spol., Geant4 a simulation toolkit, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, ISSN 0168-9002
- [5] J. Allison a spol., Recent developments in Geant4, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 835, 2016, s. 186-225, ISSN 0168-9002
- [6] Geant4 dokumentace, QGSP_BIC, http://geant4-userdoc.web.cern.ch/geant4-userdoc/UsersGuides/PhysicsListGuide/html/reference_PL/QGSP_BIC.html [online 30.11.2019]
- [7] Geant4 Physics Reference Manual, High Precision Models and Low Energy Parameterized Models, <http://geant4-userdoc.web.cern.ch/geant4-userdoc/UsersGuides/PhysicsReferenceManual/html/hadronic/LowEnergyNeutron/HPorLEP.html> [online 30.11.2019]
- [8] Poole, C. M. and Cornelius, I. and Trapp, J. V. and Langton, C. M., A CAD Interface for GEANT4, *Australasian Physical & Engineering Science in Medicine*, 2012, doi:10.1007/s13246-012-0159-8
- [9] Burn R., Rademakers F. ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework. *Proceedings AI-HENP'96 Workshop, Lausanne, Sep. 1996, Nucl. Inst. & Meth. in Phys. Res. A 389 (1997) 81-86.*
- [10] T. Kittelmann, E. Klinkby, E.B. Knudsen, P. Willendrup, X.X. Cai, K. Kanaki, Monte Carlo Particle Lists: MCPL, *Computer Physics Communications*, Volume 218, 2017, s. 17-42, ISSN 0010-4655

Analýza neutronových oscilací způsobených vibracemi palivového proutku

Tomáš Bohuslav¹

E-mail: tomas.bohous@gmail.com

¹Fakulta strojní, ČVUT v Praze, Technická 4, Praha 6, 160 00

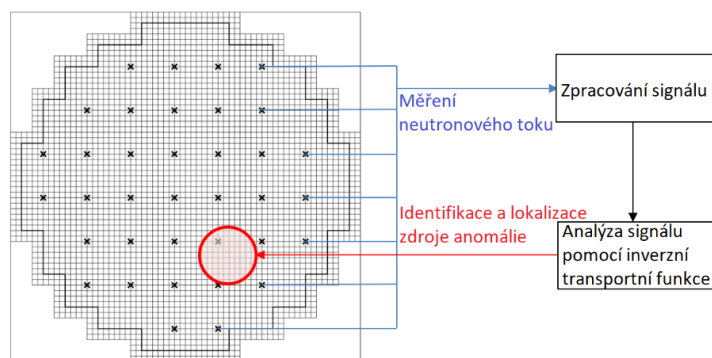
Abstrakt: Příspěvek se zabývá možnostmi využití frekvenční analýzy na školním reaktoru VR-1 pro identifikaci periodických změn reaktivity. Součástí práce byl vývoj a konstrukce nového experimentálního vybavení pro generování neutronových šumů a simulaci vibrací palivového proutku.

Klíčová slova: analýza neutronových šumů, FFT analýza, vibrace palivového proutku

1. ÚVOD

Diagnostika jaderného reaktoru s využitím analýzy neutronového šumu je postavena na relativně jednoduchém principu, zobrazeném na Obr. 1. Při ustáleném provozu jaderného reaktoru v ideálním případě nedochází ke změnám neutronového toku, reálně však vlivem proudění chladiva, vibrací a dalších faktorů dochází k různým fluktuacím. V teoretickém případě, kdy by bylo možné měřit neutronový tok ve všech místech jaderného reaktoru, by bylo možné určit veškeré iniciační události, které tyto fluktuace způsobují. V reálném případě s využitím EX-CORE a INCORE měření jsou zdroje dat výrazně omezené. Avšak významné změny aktuálního stavu, jako jsou intenzivní lokální vibrace palivových proutků nebo porucha pohonu regulačních orgánů se výrazně projeví i ve fluktuacích neutronového toku.

Díky analýze neutronových šumů je možná identifikace a lokalizace těchto poruch, metody vyvíjené v současné době k tomuto úkolu využívají zpracování signálu z neutronových detektorů toku pomocí umělé inteligence. Cílem této práce bylo ověření možnosti cíleně generovat neutronové šумы a následně je pomocí FFT analýzy identifikovat a v případě úspěšné detekce vyvinout zařízení pro simulaci vibrací palivových proutků.

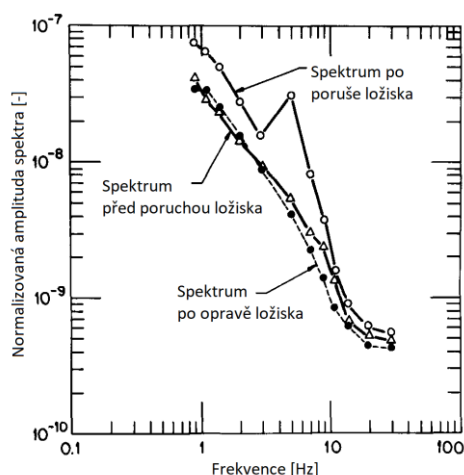


Obr. 1: Princip diagnostiky pomocí analýzy neutronového šumu.[2]

2. PRINCIP ANALÝZY NEUTRONOVÉHO ŠUMU

První ukázkou použití této metody byla zpětná analýza událostí na High Flux Isotope Reactor v americkém Oak Ridge, kde došlo k poruše jednoho ložiska v pohonu regulačního orgánu. Tato porucha byla následně opravena a reaktor byl uveden znovu do provozu. Později byla provedena frekvenční analýza dat z neutronových detektorů. V průběhu trvání poruchy se ve frekvenčním spektru objevil zřetelný pík na frekvenci 5 Hz, jak je zobrazeno na Obr. 2. Po provedení opravy se frekvenční charakteristika navrátila přibližně do původní podoby. K

diagnostice byl v tomto případě využit záznam měření ionizační komory na magnetické pásce a jeho frekvenční analýza na spektrálním analyzátoru.



Obr. 2: Změna frekvenčního spektra na HFIR během poruchy pohonu regulačního orgánu.[3]

3. MOŽNOSTI ANALÝZY NEUTRONOVÝCH ŠUMŮ NA REAKTORU VR-1

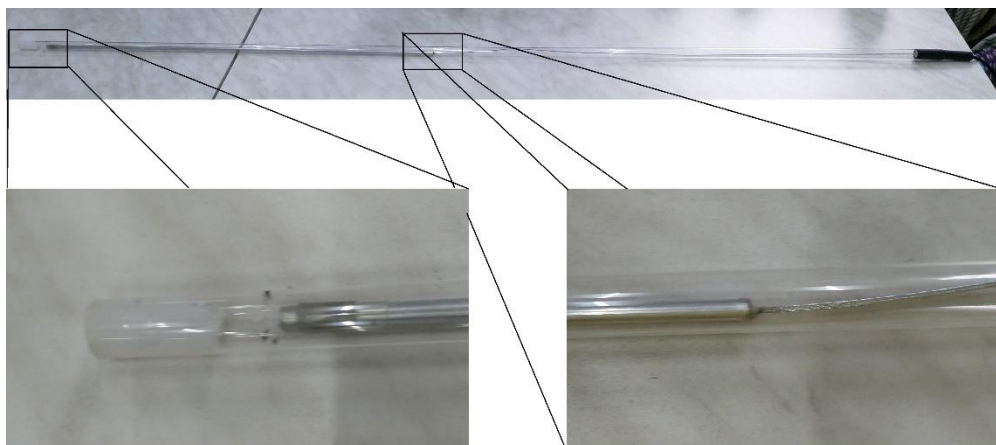
Školní reaktor VR-1 je vybaven několika zařízeními umožňujícími dynamické změny reaktivity. Jedním z nich je rotační oscilátor, který se vkládá do suchého vertikálního kanálu. Změna reaktivity je vyvolávána otáčením polyethylenového válce, ve kterém jsou usazeny dva kadmiové drátky. Díky pevnému propojení válce s pohonem je umožněno generování i velmi nízkých frekvencí. Rozměry polyethylenového válce však umožňují umístění rotačního oscilátoru pouze do vertikálního kanálu s vnějším průměrem 70 mm, což omezuje možnosti umístění oscilátoru v AZ reaktoru a zároveň toto zařízení není v současné době běžnou součástí AZ.

Dalším zařízením je „Hopík“ umožňující periodický vertikální pohyb pouzdra, ve kterém je umístěn vzorek ovlivňující reaktivitu, zpravidla kadmiový kroužek o tloušťce 1 mm. Řídicí systém tohoto oscilátoru však neumožňuje plynulé změny reaktivity. Minimální délka jednoho cyklu je přibližně čtyři sekundy, při čemž vzorek vždy alespoň jednu sekundu čeká v horní a dolní koncové poloze.

Poslední možností generování dynamických změn reaktivity jsou dávkové úlohy, umožňující opakující se pohyb zvolené regulační tyče dle předem napsané dávky příkazů. Takové dávkové úlohy jsou běžnou součástí výuky dynamiky reaktorů, avšak většina z nich negeneruje plynulou změnu reaktivity. Změnou rychlosti pohybu regulační tyče v dávkové úloze je možné přiblížit se sinusové změně reaktivity. Zápis takové dávky je však dlouhý a v případě několika opakování taková dávka naráží na limity řídicího systému pro množství instrukcí v dávce. Vykonání jedné periody pohybem regulační tyče pak trvá přes deset sekund a neumožňuje přílišné změny frekvence. Z těchto důvodů bylo přistoupeno ke konstrukci nových oscilátorů pro generování neutronových šumů.

4. MĚŘENÍ NEUTRONOVÝCH ŠUMŮ POMOCÍ LINEÁRNÍHO OSCILÁTORU

Jako první byl zkonstruován lineární oscilátor, umožňující generování plynulých změn reaktivity do frekvence jednotek Hz. S ohledem na možnost umístění do libovolného vertikálního kanálu reaktoru VR-1 bylo pro změnu reaktivity použito kadmiového absorbátoru. Absorbátor byl zafixován k hliníkové trubičce a celá tato soustava byla umístěna do pouzdra z plexiskla. Přenos lineárního pohybu mimo vertikální kanál, kde byl umístěn lineární pohon, byl zajištěn pomocí bowdenového lanka. Sestava lineárního oscilátoru je zobrazena na Obr. 3. Tento oscilátor umožňuje změnu výšky, ve které probíhá pohyb absorbátoru, lineární pohon pak umožňuje změnu amplitudy oscilací a změnu frekvence.

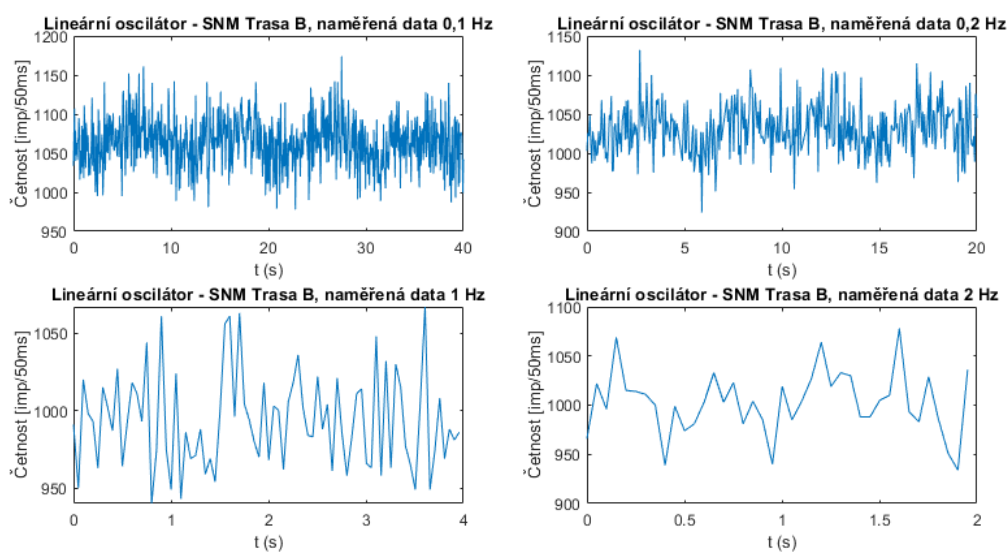


Obr. 3: Sestavený lineární oscilátor, vlevo detail zakončení s kadmiovým absorbatorem, vpravo detail uchycení bowdenového lanka.[1]

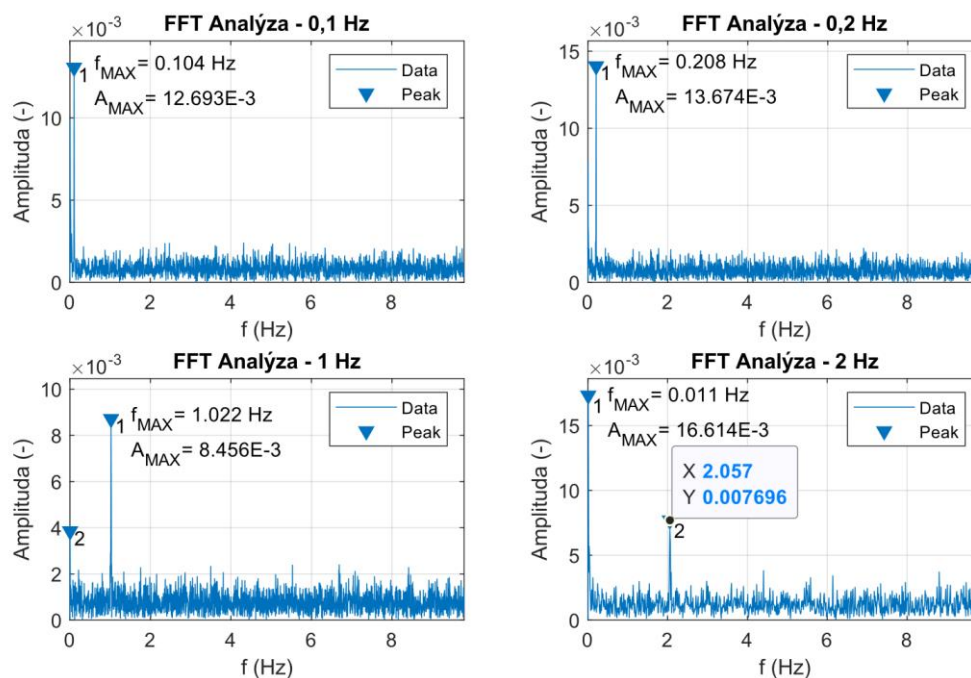
Pokusy s lineárním oscilátorem byly prováděny na reaktoru VR-1 při konfiguraci AZ C13. Oscilátor byl umístěn do vertikálního kanálu na pozici C2 a měření probíhalo při výkonu reaktoru 1E5 v automatickém režimu provozu. Pro měření neutronových četností byla použita trojice detektorů SNM10 umístěná ve vertikálních kanálech na pozicích B2, C2 a F2. Výška umístění každého z detektorů byla upravena tak, aby měřená četnost na počátku měření byla přibližně $2E4$ imp/s, snímkování probíhalo s frekvencí 20 Hz.

Počáteční poloha kmitání absorbatóru byla umístěn do středu AZ, vzorek pak kmital s amplitudou 5 cm. Generovaná změna reaktivity byla v takovém případě, na základě předchozího experimentu, přibližně 0,3 centu. Měření probíhalo vždy po dobu přibližně 4 minut s frekvencemi oscilátoru 0,1; 0,2 a 1 Hz s časovým rozestupem mezi jednotlivými měřeními. Při posledním měření při frekvenci 2 Hz došlo k poruše upevnění bowdenového lanka k lineárnímu pohonu, následkem toho bylo měření ukončeno po 1,5 minutě. Data získaná z tohoto zkráceného měření však byla také dále vyhodnocena.

Při měření se ukázalo, že i při vyšších frekvencích je změna četností zřejmá již při pohledu na naměřená data, jak je zobrazeno na Obr. 4. FFT analýza jednotlivých měření pak jednoznačně identifikovala píky na frekvencích generovaných lineárním oscilátorem s desetinásobnou amplitudou proti pozadí. U zkrácených dat byla nalezena dominantní frekvence 0,011 Hz jako první bod spektra (nulová frekvence nebyla zahrnuta), přesto se už ve frekvenčním spektru objevuje pík s frekvencí lineárního oscilátoru 2 Hz.



Obr. 4: Výřez naměřených dat četností při měření s lineárním oscilátorem.[1]



Obr. 5: FFT analýza dat z měření s lineárním oscilátorem, detektor SNM10, trasa A.[1]

Provedený experiment prokázal funkčnost měřicí aparatury pro měření generovaných neutronových šumů. Se zmenšující se změnou reaktivity je však nutné prodloužení měření. Proto mohlo být přistoupeno ke konstrukci oscilátoru simulujícího vibrace palivového proutku.

5. SIMULACE VIBRACÍ PALIVOVÉHO PROUTKU

Vzhledem k vybavení reaktoru VR-1 byl ke konstrukci oscilátoru použit palivový proutek EK-10. Simulaci vibrací palivového proutku pak zajišťovala jeho rotace, kdy byl palivový proutek umístěn s odstupem od osy rotace. Konstrukci oscilátoru pak tvoří dvě sousední trubice z plexiskla. Vnitřní trubice, vnějšího průměru 15 mm a tloušťky 1 mm, slouží k fixaci proutku EK-10 v oscilátoru a jeho oddělení od statické části oscilátoru. Na koncích této trubice jsou umístěny koncovky s excentrickými otvory pro konce proutku EK-10, v horní koncovce je zároveň zafixováno ocelové lanko přenášející rotační pohyb. Vzdálenost osy umístěného proutku EK-10 od osy otáčení byla zvolena 1 mm. Celá tato soustava je umístěna ve druhé trubici s vnějším průměrem 20 mm a tloušťkou 2 mm zajišťující vnější ochranu a vymezení ve vertikálním kanálu. Na koncích této vnější trubky jsou umístěny zátky, ve vrchní zátkě je pak otvor s připevněným bowdenem sloužícím pro vyvedení ocelového lanka. Konstrukční díly, kromě trubek, byly vyrobeny pomocí 3D tisku technologií FDM z materiálu PAJet.

Právě využití 3D tisku při výrobě konstrukčních částí se v pozdější fázi experimentu projevilo jako velký benefit, umožňující rychlou úpravu konstrukce na základě naměřených dat. Rotační pohyb byl zajišťován krokovým motorem umožňujícím plynulou regulaci otáček v rozmezí 0,1-40 Hz, přenos rotačního pohybu mezi motorem umístěným nad vertikálním kanálem a oscilátorem byl zajištěn pomocí bowdenového lanka. Před samotným experimentem byl sestaven testovací kus s využitím makety palivového proutku, zobrazený na Obr. 6. Tento prototyp prokázal funkčnost oscilátoru ve frekvenčním rozsahu 3-25 Hz, poté byla maketa nahrazena palivovým proutkem EK-10.

Před vložením rotačního oscilátoru s palivovým proutkem byla ve výpočetním kódu MCNP ověřena váha oscilátoru na AZ. Výpočet modelu AZ v MCNP proběhl i pro různé polohy (otočení) palivového proutku, ale takto způsobená změna reaktivity byla menší než vypočtená odchylka. Z důvodu přítomnosti palivového proutku byla během experimentu snížena poloha experimentální tyče E2 na 0 mm. Po umístění rotačního oscilátoru do vertikálního kanálu byl reaktor uveden do automatického režimu provozu na výkonu 1E5. Měření probíhalo po dobu

5 minut při frekvencích 5, 10, 15 a 20 Hz. Snímkovací frekvence detektorů byla zvýšena na 200 Hz. Při vyhodnocení dat pomocí FFT analýzy však ani u jednoho z měření nebyl zřejmý píky na frekvenci oscilátoru kvůli příliš malé změně reaktivity. Z tohoto důvodu byly provedeny změny v konstrukci oscilátoru a excentricita uložení proutku byla zvětšena na 4 mm.

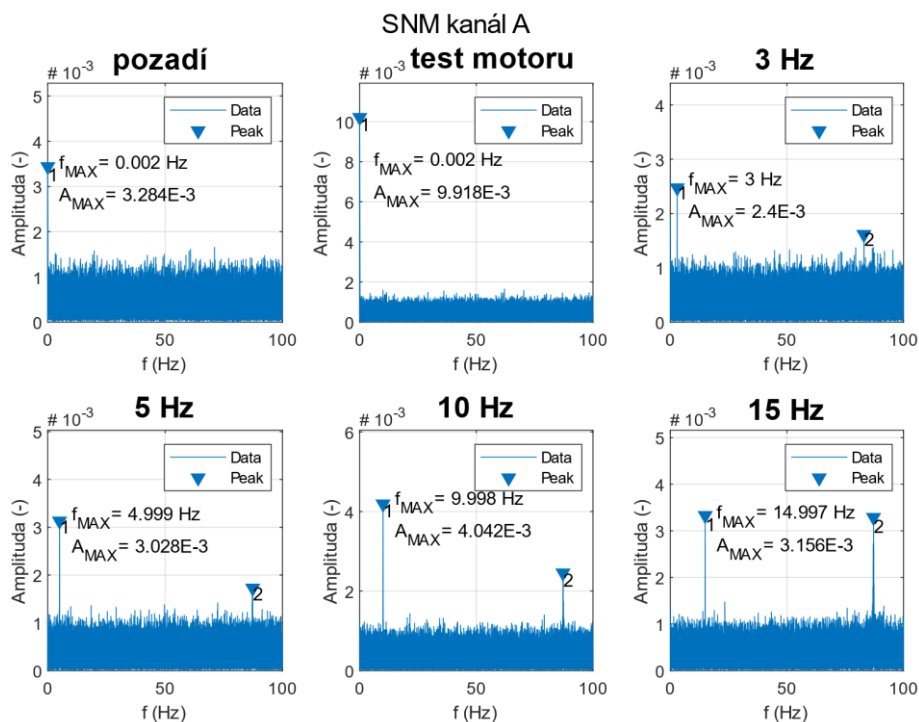


Obr. 6: Test rotačního oscilátoru s maketou palivového proutku.[1]

5.1. MĚŘENÍ S UPRAVENÝM ROTAČNÍM OSCILÁTOREM

Po provedení konstrukčních změn byl znovu proveden výpočet v MCNP, kdy se zvýšení excentricity proutku projevilo rozdílem reaktivity $0,9 \pm 0,4 \text{ } \rho$. Měření probíhalo při stejné konfiguraci jako v předchozím případě. Před samotným měřením s rotačním oscilátorem bylo provedeno 10 minutové měření pozadí a pro vyloučení vlivu provozu samotného motoru na měřená data bylo provedeno 10 minutové měření při frekvenci 10 Hz s rozpojenou spojkou mezi motorem a oscilátorem. Měření s rotačním oscilátorem pak probíhala při frekvencích 3, 5, 10 a 15 Hz. Doba měření byla prodloužena na 15 minut.

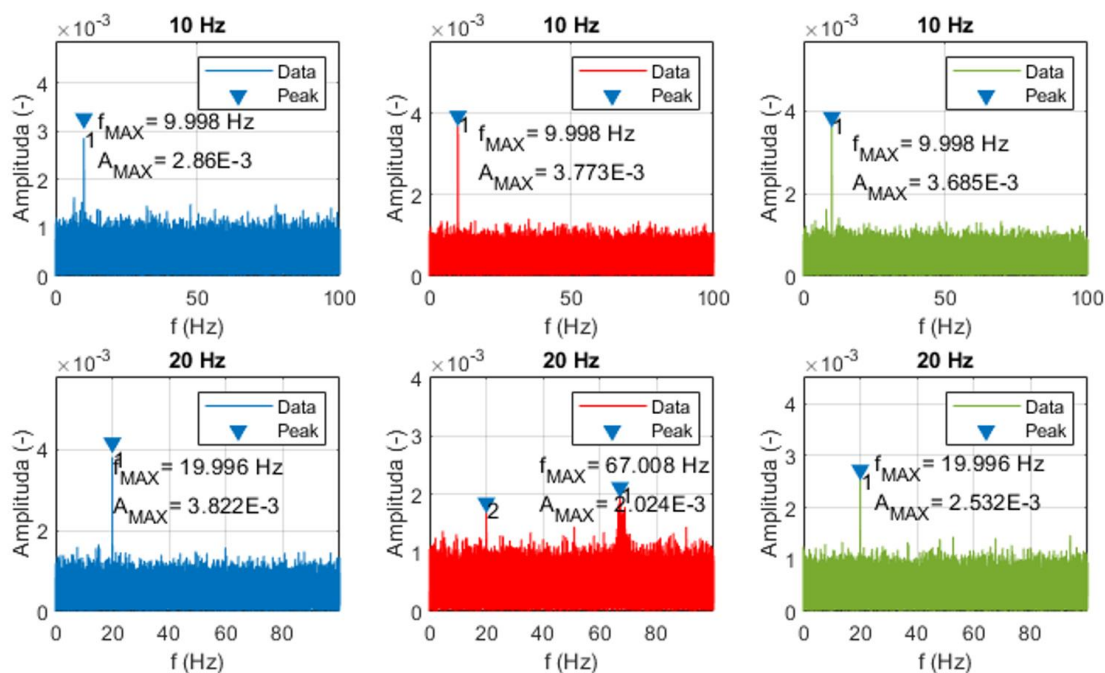
Na Obr. 7 je přehled frekvenčních spekter z FFT analýzy dat naměřených na trase A. Při porovnání průměrné hodnoty amplitudy při měření pozadí a testu motoru se potvrdilo, že samotný provoz motor nemá vliv na měření a případná detekovaná frekvenční maxima jsou způsobena provozem oscilátoru. Při všech měřených frekvencích pak byl jednoznačně identifikován dominantní pík na frekvenci oscilátoru.



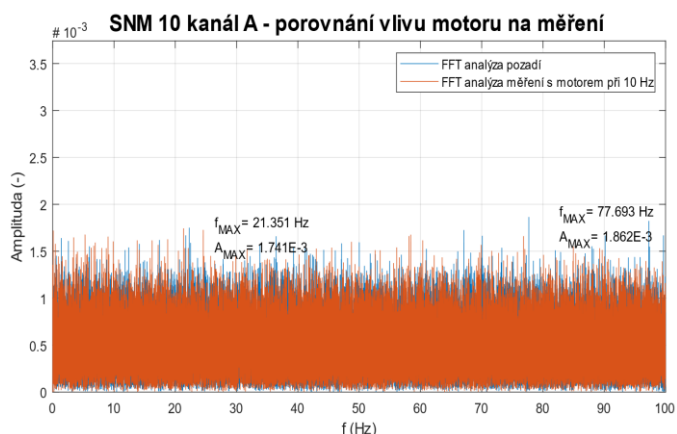
Obr. 7: FFT analýza dat z detektoru SNM10, trasa A, upravený rotační oscilátor.[1]

S rostoucí frekvencí však docházelo k růstu vedlejšího píku, u trasy A na frekvenci 87 Hz. Podobný jev byl pozorován i u dat z trasy B. Vertikální kanály s detektory těchto tras přímo sousedily s vertikálním kanálem rotačního oscilátoru. Pravděpodobně tedy docházelo k přenosu vibrací na detektory, které způsobily výskyt těchto sekundárních píků.

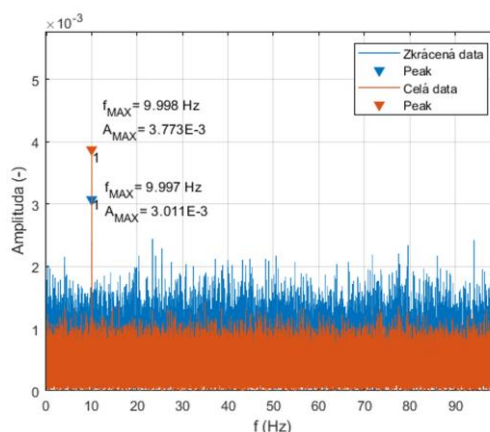
Z tohoto důvodu bylo měření opakováno. Byly však upraveny kabelové trasy od detektorů, aby nedocházelo ke kontaktu s vertikálním kanálem oscilátoru a v důsledku byl zmenšen přenos vibrací. Následně byla znovu měřena data na frekvenci 10 Hz a poté na 20 Hz. Při tomto měření se prokázalo, že výskyt sekundárních píků byl způsoben přenosem vibrací na zavěšení detektorů. Jak je zobrazeno na Obr. 8, při opakovaném měření se sekundární pik objevil pouze u kanálu B při vyšší frekvenci 20 Hz. Tento vertikální kanál přímo sousedí s vertikálním kanálem oscilátoru, intenzivnější přenos vibrací proti kanálu A tak může být způsoben umístěním v palivovém článku.



Obr. 8: FFT analýza dat z opakovaného měření, detektory SNM10, zleva trasa A, B a C.[1]



Obr. 9: Porovnání vlivu provozu motoru na měření, detektor SNM10, trasa A.[1]



Obr. 10: Porovnání zkrácených dat, detektor SNM10, trasa B.[1]

6. ZÁVĚR

Na základě provedených měření byla potvrzena možnost detekovat neutronové šумы na reaktoru VR-1. Ke generování neutronových šumů byly použity nově zkonstruované oscilátory s různým využitím. Zkonstruovaný lineární oscilátor umožňuje generování šumů o frekvencích od setin Hz do jednotek Hz. Maximální generovaná změna reaktivity je v současné konfiguraci 1 ϵ , minimální generovaná změna však není omezena a je možné ji měnit změnou amplitudy oscilátoru a změnou polohy absorbátoru v AZ. Díky této variabilitě bude tento oscilátor dále využit i v rámci výuky dynamiky reaktorů.

Zkonstruovaný rotační oscilátor je možné použít k simulaci vibrací palivového proutku. S rostoucí frekvencí však výrazně rostou i generované vibrace. Testem motoru bylo ověřeno, že provoz motoru nemá vliv na měření, jak je zobrazeno na Obr. 9 a detekovaná frekvenční maxima jsou způsobena přímo provozem rotačního oscilátoru. Pro další experimenty tak bude konstrukce tohoto oscilátoru doplněna o tlumiče vibrací a bude zmenšena excentricita uložení palivového proutku. Na základě této konstrukce bude zkonstruován i druhý rotační oscilátor, využívající absorbátor místo palivového proutku pro zjednodušení manipulace.

Oba oscilátory však ukázaly možnost detekovat pomocí FFT analýzy neutronové šумы buzené velmi malou změnou reaktivity. Z porovnání výšky amplitudy frekvenčního spektra rotačního oscilátoru vychází, že změna reaktivity je proti lineárnímu oscilátoru na úrovni 30-50 % v závislosti na frekvenci. I přesto by pro detekci vibrace palivového proutku stačilo kratší měření, jak je zobrazeno na Obr. 10 porovnáním FFT analýzy dat zkrácených na 5 minut s původní FFT analýzou. Další experimenty se zkonstruovanými oscilátory budou zaměřeny na možnost lokalizace poruchy s využitím FFT analýzy.

PODĚKOVÁNÍ

Tento příspěvek vznikl v rámci výzkumného programu VP3 – Výzkum dynamiky, diagnostiky a monitorování aktivních zón jaderných reaktorů na KJR, FJFI. Chtěl bych proto poděkovat vedoucímu projektu a konzultantovi Ing. Ondřeji Humlovi Ph.D a také vedoucímu práce Ing. Janu Prehradnému Ph.D. Poděkování také patří společnosti Infinity Ward a kolegům z oboru Jaderná energetická zařízení Fakulty strojní za morální podporu v průběhu psaní diplomové práce.

LITERATURA

- [1] BOHUSLAV, Tomáš. *Analýza neutronových oscilací způsobených vibracemi palivového proutku*. Praha, 2019. Diplomová práce. Fakulta strojní, ČVUT v Praze. Vedoucí práce Jan Prehradný.
- [2] DEMAZIÈRE, C., P. VINAI, M. HURSIN, S. KOLLIAS a J. HERB. *Noise-Based Core Monitoring And Diagnostics: Overview of the Cortex Project* [online]. In: KOLLIAS a HERB. Zenodo, 2017 [cit. 2019-05-20]. DOI: 10.5281/zenodo.1230346.
- [3] FRY. *Nuclear Technology* [online]. 2017, **10**(3) [cit. 2019-05-02]. DOI: 10.13182/NT71-A30959. ISSN 0029-5450. Dostupné z: <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.13182/NT71-A30959>
- [4] BERNITT, P. *In-Core Neutron Noise Analysis for Diagnosis of Fuel Assembly Vibrations*. Göteborg, 2008.
- [5] THIE, Joseph A. *Power reactor noise*. La Grange Park, Ill.: ANS, c1981. ISBN 91-7291-135-2.
- [6] PÁZSIT, Imre a Christophe DEMAZIÈRE. *Noise Techniques in Nuclear Systems. Handbook of Nuclear Engineering*. Boston, MA: Springer US, 2010, 2010, , 1629-1737. DOI: 10.1007/978-0-387-98149-9_14. ISBN 978-0-387-98130-7. Dostupné také z: http://link.springer.com/10.1007/978-0-387-98149-9_14
- [7] HUML, Ondřej. *Dílčí provozní předpisy reaktoru VR-1: Experimentální vybavení školního reaktoru VR-1*. Praha, 2018.
- [8] HUML, Ondřej. *Neutronově-Fyzikální charakteristiky: AZ C13 školního reaktoru VR-1*. Praha, 2017.

Laserem řízené urychlování částic: Diagnostika a směr budoucího výzkumu

Vendula Filová, Dušan Král

E-mail: xfilov00@vutbr.cz

VUT v Brně, Fakulta elektrotechniky a komunikačních technologií, Ústav elektroenergetiky,
Technická 3058/10, 616 00 Brno, Česká republika

Abstrakt: Práce se věnuje problematice urychlování částic pomocí laseru. První část textu popisuje vlastní principy urychlování částic při působení intenzivního laserového pulzu. Ve druhé části jsou představeny nejčastější způsoby monitorování urychlených částic. Závěr se věnuje oblastem, pro které se uvažuje využití laserem urychlovaných částic a také projekty, které se na tato témata zaměřují.

Klíčová slova: laser, částicový urychlovač, detekce, diagnostika, monitoring

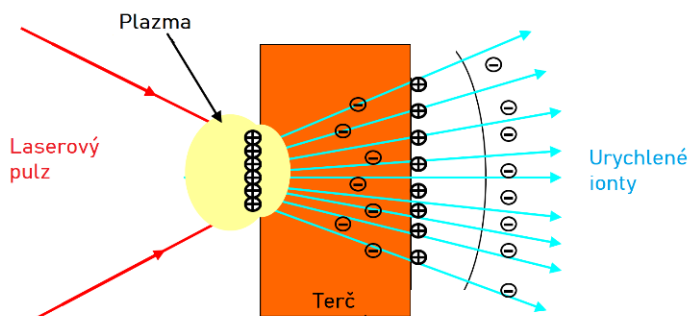
1. ÚVOD

Technologie laseru, od zprovoznění prvního zařízení na počátku 60. let minulého století, prošla značným vývojem. Výkony v současnosti budovaných zařízení, jako v případě laserů ELI (Extreme Light Infrastructure) [1], dosahují hodnot v řádu PW s opakovací schopností v řádu desítek Hz i vyšší. To umožňuje pokrok ve výzkumu fyziky plazmatu, termojaderné fúze, fyziky materiálů, molekulární biologie a dalších odvětvích.

Jednou z oblastí výzkumu je i urychlování částic laserem. Jde o velmi mladé odvětví, neboť produkce urychlených svazků elektronů, iontů i neutronů hraje důležitou roli v mnoha vědních oborech. Díky laserům by mohlo dojít k zmenšení, zjednodušení a tím i zlevnění řady aplikací, jež dnes vyžadují složitá a drahá zařízení, která jsou i provozně náročná.

2. URYCHLOVÁNÍ ČÁSTIC LASEREM

Základním předpokladem pro urychlování částic laserem je ostřelování terčového materiálu krátkými laserovými pulzy o vysoké intenzitě. Důsledkem této interakce je vznik plazmatu a intenzivního elektromagnetického pole.



Obr. 1: Princip TNSA [2].

Existuje mnoho režimů urychlování iontů. Jednou z nejpoužívanějších metod je tzv.: „urychlování ve směru normály k povrchu terče“, zkráceně TNSA (Target Normal Sheath Acceleration). Na přední straně terče (v místě působení laseru) dojde k uvolnění proudu vysokoenergetických elektronů. Při jejich prostupu směrem k zadní straně terče se vytvoří silné elektrostatické pole s intenzitou dosahující řádově až TV/m. To vyvolá ionizaci atomů zadní strany terče a jejich urychlení. Směr jejich šíření je kolmý k povrchu terče s rozptylem do 20°. Princip TNSA

je zjednodušeně znázorněn na Obr. 1. Energie takto urychlených protonů se pohybuje v řádu desítek MeV v závislosti na energii v laserovém pulzu (např. 85 MeV u laseru PHELIX [3]). Dalšími způsoby urychlování iontů může být RPA (Radiation Pressure Acceleration), BOA (Break-Out Afterburner), ke kterému dochází při interakci laseru s ultratenkou folií (řádově nm) a mnoho dalších [2].

Využití pevného terče má určitá omezení. Při jeho porušení může např. dojít k šíření jeho částí v experimentální komoře. Tomuto lze předejít vhodným posunem terče. V takovém případě ale hrozí nepřesnost zaměření laseru. Další nevýhodou je vznik silného EM pulzu.

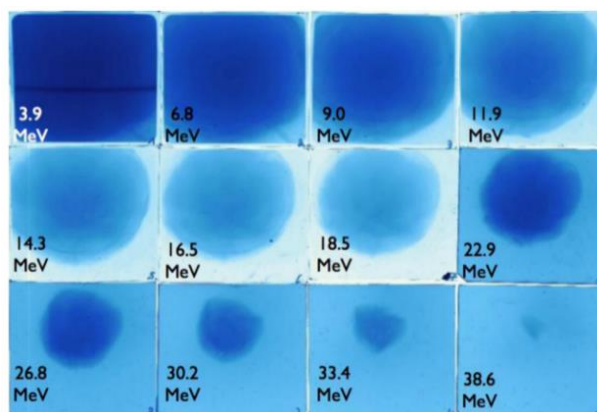
Z výše uvedených důvodů je uvažováno využití kapalných a plyných terčů, u kterých by nedocházelo k šíření zbytků terče do prostor komory. Například, nedávno publikované PIC (Particle-In-Cell) simulace 20 ps laserových pulzů o výkonu 2 PW, ostřelujících plyný terč ze směsi C a H, předpovídají energie protonů až 350 MeV [3]. Jako vhodná alternativa k foliím se jeví i využití kryogenních terčů, například vodíkových. U těch byl při experimentech na laseru DRACO pozorován mechanismus TNSA [4], [5].

Urychlování elektronů využívá ionizace plyného terče intenzivním laserovým pulzem. Ve vzniklém plazmatu se za pulzem vytvoří „brázda“ (angl. wakefield) v níž se nacházejí obrovské gradienty elektrického pole na mikroskopických rozměrech, ve srovnání s klasickými dutinovými rezonátory. LWFA (Laser Wake Field Accelerator) urychlování kromě toho využívá pomocné pulzy, které vytvoří stojatou vlnu, umožňující úpravu parametrů urychlených elektronů. Laserem urychlené elektrony v současnosti dosahují energií až v řádu GeV [5]. Např. 7,8 GeV dosažených na laseru BELLA s energií svazku 31 J, délkou pulzu 35 fs a opakovací frekvencí 1 Hz [6].

K produkci neutronů nejčastěji slouží systém terče a konvertoru, kdy ionty opouštějící terč (např. v důsledku TNSA) interagují s konvertorem, kde dochází k reakcím (p, n), (d, n) apod. Stejný princip se může uplatnit i při využití pouze jednoho, silného terče. V případě plyného terče s obsahem deuterionů se uplatňuje jev zvaný „Coulomb explosion“, při kterém dochází k produkci neutronů díky srážkám urychlených iontů s dalšími ionty a atomy deuteria. Při urychlování elektronů a jejich interakci s dalším materiálem může dojít k produkci brzdného γ záření a následně reakcím (γ , f), (γ , xn). Velmi vysoké toky neutronů se také vyskytují např. u D-T nebo D-D fúze u tzv. inerciálního udržení, které využívá působení laserů ze všech stran na palivovou peletu [7].

3. MONITOROVÁNÍ URYCHLENÝCH ČÁSTIC

Při měření parametrů laserem produkováných částic jednotlivé laboratoře využívají nejrůznější typy detektorů a jejich kombinace. Mezi nejvíce využívané patří RCF (Radio Chromické Filmy), jejichž použití je jednoduché a při sendvičovém uspořádání umožňují určit energetické i prostorové rozložení dopadajících částic, viz Obr. 2. Jejich nevýhodou je, že jsou určeny k jednomu použití, tedy jeden detektor na jeden výstřel paprsku, což u laserů s velkou opakovací frekvencí povede k jejich velké spotřebě. Také nejsou citlivé pro nízké energie dopadajících částic. Další nevýhodou může být saturace detektoru při vysokých proudech protonů a jeho možné zničení [8].



Obr. 2 RCF po interakci s urychlenými protony [8].

Dalšími pasivními detektory, které jsou hojně využívány jsou CR-39. Jednou z hlavních výhod těchto detektorů je snadné rozlišení iontů od elektronů a fotonů. Stejně jako u RCF je možné sendvičové uspořádání. Saturaci je možné předejít pokrytím detektoru dalším materiálem. Další komplikací je doba zpracování výsledků, která se prodlužuje kvůli nutnosti leptání detektoru. V současnosti je tedy snaha snížit počet leptacích cyklů [9].

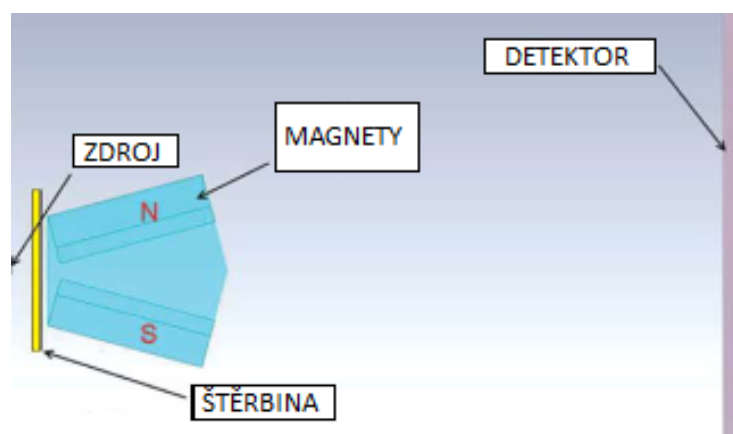
Zobrazovací desky, IP (Image Plates), byly původně určeny pro měření rentgenového záření, používají se ale i pro monitorování ostatních částic. Mezi výhody jejich použití patří velký rozsah a také možné znovupoužití. Nevýhodou je nutnost zpracovat desky skenováním proto nemohou být použity jako on-line detektory [10].

Další off-line metodou je použití tzv. aktivačních detektorů. Mezi jejich výhody patří odolnost vůči saturaci, a lze tedy provádět spolehlivá měření i pro vysoké toky částic. Metodu NAIS (Nuclear Activation-based Imaging Spectroscopy) využívají experimentální skupiny např. na laseru PHELIX v německém GSI. Měděné fólie (69,17 % ^{63}Cu a 30,83 % ^{65}Cu) byly aktivovány laserem urychlenými protony, za vzniku nestabilních izotopů zinku (zejména ^{63}Zn a ^{65}Zn), u kterých dochází k β^+ rozpadu. Pomocí detektorů NaI byly následně měřeny koincidence fotonů s energií 511 keV, která je typická pro anihilaci elektronu a pozitronu. Naměřená data byla porovnána s výsledky měření pomocí RCF, což prokázalo vhodnost použití metody NAIS [11], [12].

Na francouzském zařízení LULI2000 byl vyvinut multidetektor NATALIE (Nuclear Activation Technique for Analysis of Laser Induced Energetic particles). Jeho účelem je detekce různých částic produkovaných lasery s velkou intenzitou. Systém umožňuje měření různých produktů přeměny (β^+ , β^- , γ). Obsahuje 26 menších a 6 větších detektorů, díky čemuž lze měřit i vzorky s nízkou aktivitou. Celkem 32 NaI scintilačních detektorů je uspořádáno do dvojic vzdálených alespoň 40 cm. Páry detektorů obklopují držáky, určené pro vzorky ozářené urychlenými částicemi. Toto uspořádání umožňuje souběžné měření 16 vzorků. To je výhodné kvůli krátkému poločasu přeměny některých jader. Původní sestava sloužila pro měření koincidenčních fotonů s energií 511 keV [13].

Často je využívána Thomsonova parabola. Princip detektoru spočívá v působení elektrického a magnetického pole na urychlené částice, v důsledku čehož jsou tyto částice rozděleny podle své hmotnosti, náboje a hybnosti. Následně dopadají na detektor, kterým může být např. CR-39 [14] nebo zobrazovací desky [15].

Spektrometr iWASP (ion Wide Angle SPectrometer) je dalším způsobem diagnostiky, založený na působení magnetického pole. Oproti měření Thomsonovou parabolou pokrývá větší prostorový úhel a v porovnání s RCF vykazuje lepší přesnost i při vyšších energiích měřených částic. Magnetické pole iWASP je kolmé na směr šíření svazku iontů a způsobuje rozptyl částic v závislosti na jejich energii. Rovnoběžně a naproti tomuto poli je umístěna dlouhá štěrbiná. Výsledkem je prostorové rozdělení iontů podle energie. Ty následně dopadají na detektor, stejně jako v případě Thomsonovy paraboly [16].

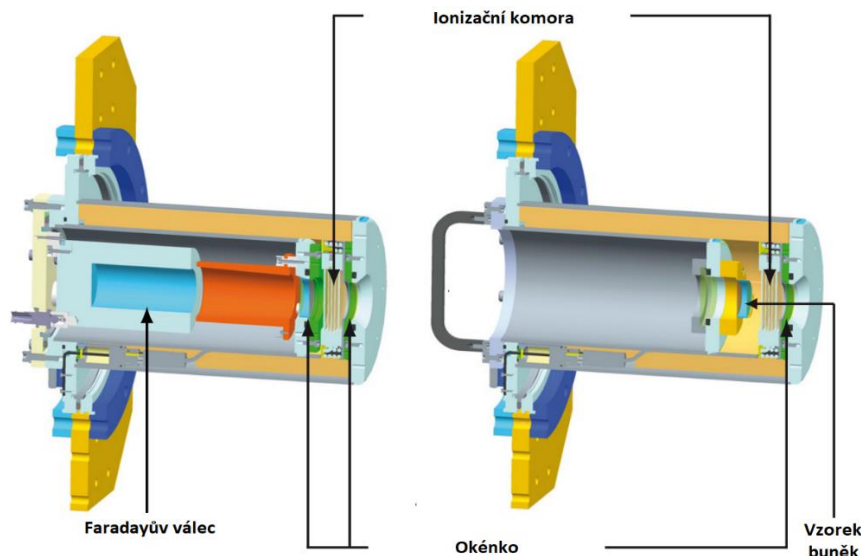


Obr. 3: Schéma detektoru iWASP [16].

Pro měření v režimu více výstřelů (s frekvencí v řádech Hz) je důležité on-line detekce urychlovaných částic. Na Van de Graafově tandetronu v HZDR (HelmholtzZentrum DresdenRossendorf) byl vyvinut detektor tvořený

sendvičově uspořádanými 10 scintilačními detektory BC418, propojenými s CCD kamerou, umožňující měření protonů s energií od 1,5 do 12 MeV. Další vývoj probíhá na laseru DRACO v HZDR, který dodává pulzy s frekvencí 10 Hz [17].

Většina experimentů spočívá ve využití více způsobů monitorování produkovaných částic. Velice přesnou diagnostiku vyžaduje třeba využití laserem urychlovaných iontů k ozařování nádorových buněk. Na dané téma je zaměřen např. výzkum na zařízení DRACO. Ozařovaný vzorek je vkládán do modulu iDocis (Integrated DOSimetry and Cell Irradiation System), odděleného od vakua v prostoru urychlovací komory okénkem. Pro on-line měření dávky je za ním situována ionizační komora, obsahující tři ultratenké kaptonové folie. Za touto komorou se nachází prostor, umožňující kromě vložení biologického vzorku také umístění RCF nebo CR-39 pro diagnostiku protonového svazku a Faradayova válce pro měření absolutní dávky. Řez modulem iDocis je vyobrazen na Obr. 4 [18].



Obr. 4: Vizualizace modulu iDocis [18].

4. BUDOUCÍ VÝZKUM

V současnosti je v provozu mnoho zařízení malého výkonu a jednotky velkých zařízení jež mají výkon PW, na kterých probíhá výzkum urychlování částic. Průběžně dochází k vylepšování parametrů stávajících laserů a také ke spouštění nových zařízení.

Jedním z cílů výzkumu je lepší popis různých režimů urychlování částic. To je mimo jiné účelem francouzské výzkumné infrastruktury Apollon, která má být pro uživatele přístupná od roku 2020 [19]. Aby laserové urychlovače mohly být používány i v jiných výzkumech je třeba znát detailní charakteristiky svazků částic jež urychlují. Mezi ně patří energetické spektrum, integrál toku částic v jednom pulzu, prostorové rozložení urychleného svazku, stálost parametrů apod. Např. Helmholtz Institute Jena se v současné době zaměřuje na zkoumání kryogenních terčů, jež oproti pevným terčům nabízejí možnost provádět dlouhé ozařovací kampaně [20].

Lawrence Berkeley National Laboratory má za cíl sestavit urychlovač pro srážení elektronů urychlených laserem. Za tímto účelem vyvíjí laser k-BELLA, který má mít v první fázi opakovací frekvenci 1 kHz při energii 3 J [21].

Významným krokem kupředu ve výzkumu laserů a jejich interakci je ELI (Extreme Light Infrastructure), celoevropská výzkumná infrastruktura, zahrnující tři výzkumná pracoviště: ELI-BL (Beamlines) v České

republice, ELI-ALPS (Attosecond Light Pulse Source) v Maďarsku a ELI-NP (Nuclear Physics) v Rumunsku. Velká část ELI je v současné době stále ve výstavbě [22].

V oblasti urychlování elektronů má projekt ELI ambice dosáhnout energie až 100 GeV, a to pomocí různých režimů urychlování. Dalším cílem je dosáhnout energie urychlených iontů v řádu jednotek GeV. Podle [22] by takto urychlené ionty mohly najít využití např. ve výzkumu srážek vysokoenergetických iontů nebo v oblasti spalačnických zdrojů, za předpokladu, že se podaří dosáhnout dostatečného proudu urychlených částic. Dále má urychlování iontů velký potenciál pro využití v medicíně a biochemii, např. v oblasti hadronové terapie. Této oblasti se bude věnovat výzkum na zařízení ELIMED, jež bude součástí ELI-Beamlines [1], nebo na laseru ATLAS-3000 v centru CALA [23].

Využití v oblasti neutronových zdrojů může být například při testování materiálů nebo při léčbě nádorových onemocnění. Projekt ELI dále předpokládá měření účinných průřezů zachytu neutronu a (n, f) reakcí [22].

5. ZÁVĚR

Pokrok ve vývoji laserových technologií je v posledních letech opravdu výrazný. Díky zvyšování výkonu a intenzity laserového pulzu dosahují urychlené částice stále vyšších energií. Důležitou roli hraje i výzkum použitých terčů. Aby bylo možné potenciál laserů v oblasti urychlování maximálně využít, je třeba co nejpřesněji popsat děje, které při interakci laserového pulzu s terčem probíhají. Neméně důležitá je znalost parametrů urychlených částic. Za tímto účelem jsou využívány a vyvíjeny různé detektory.

Pro zkoumání vlastností částic vzniklých v režimu jednoho výstřelu postačují jednodušší off-line metody využívající např. detektory RCF nebo CR-39, které se ale ukazují jako nedostatečné pro provoz zařízení s opakovací frekvencí v řádu Hz a vyšší. Mnohem vhodnějšími jsou způsoby měření, u kterých nedochází k saturaci detektoru, jako např. aktivační detektory a dále pak on-line metody, založené na scintilačních detektorech.

Díky upgradu stávajících zařízení a díky novým projektům, jako je zejména evropská výzkumná infrastruktura ELI, čeká v blízké budoucnosti oblast urychlování částic laserem řada dalších pokroků. Tyto projekty mají ambice dosáhnout energií až o dva řády vyšších, než jakých je dosahováno v současnosti. Díky tomu, při současném navyšování opakovací frekvence, budou lasery v budoucnu možnou konkurencí stávajících částicových urychlovačů.

PODĚKOVÁNÍ

Tento příspěvek vznikl v rámci výzkumného projektu TJ02000321 - Activation Detectors for High Energy Lasers: využití kvazi-offline metod pro detekci laserem generovaných neutronů, jež probíhá díky výzkumnému programu ZÉTA, který poskytuje Technologická agentura České republiky.

LITERATURA

- [1] ELI Beamlines [online]. 2019 [cit. 2019-11-25]. www.eli-beams.eu/cs
- [2] LEDINGHAM, K W D a W GALSTER. Laser-driven particle and photon beams and some applications. *New Journal of Physics* [online]. 2010, 12(4) [cit. 2019-11-19]. DOI: 10.1088/1367-2630/12/4/045005. ISSN 1367-2630.
- [3] SHARMA, Ashutosh, Christos KAMPERIDIS, J. DANIELS, et al. High energy proton micro-bunches from a laser plasma accelerator. *Scientific Reports* [online]. 2019, 9(1) [cit. 2019-11-24]. DOI: 10.1038/s41598-019-50348-0. ISSN 2045-2322.
- [4] OBST, Lieselotte, Sebastian GÖDE, Martin REHWALD, et al. Efficient laser-driven proton acceleration from cylindrical and planar cryogenic hydrogen jets. *Scientific Reports* [online]. 2017, 7(1) [cit. 2020-01-05]. DOI: 10.1038/s41598-017-10589-3. ISSN 2045-2322.
- [5] GIACONE, R.E., J.R. CARY, D. BRUHWILER, et al. Simulations of electron injection into plasma wake fields by colliding laser pulses using XOOPIC. PACS2001. *Proceedings of the 2001 Particle Accelerator*

- Conference (Cat. No.01CH37268) [online]. IEEE, 2001, 30(3), 4023-4025 [cit. 2020-01-07]. DOI: 10.1109/PAC.2001.988332. ISBN 0-7803-7191-7. ISSN 11201797.
- [6] GONSALVES, A. J., K. NAKAMURA, J. DANIELS, et al. Petawatt Laser Guiding and Electron Beam Acceleration to 8 GeV in a Laser-Heated Capillary Discharge Waveguide. *Physical Review Letters* [online]. 2019, 122(8) [cit. 2019-11-24]. DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.084801. ISSN 0031-9007.
- [7] ALVAREZ, J., et al. Laser Driven Neutron Sources: Characteristics, Applications and Prospects. *Physics Procedia* [online]. 2014, 60, 29-38 [cit. 2020-01-07]. DOI: 10.1016/j.phpro.2014.11.006. ISSN 18753892.
- [8] BOLTON, P.R., M. BORGHESI, C. BRENNER, et al. Instrumentation for diagnostics and control of laser-accelerated proton (ion) beams. *Physica Medica* [online]. 2014, 30(3), 255-270 [cit. 2020-01-07]. DOI: 10.1016/j.ejmp.2013.09.002. ISSN 11201797.
- [9] SEIMETZ, M., P. BELLIDO, P. GARCÍA, et al. Spectral characterization of laser-accelerated protons with CR-39 nuclear track detector. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2018, 89(2) [cit. 2020-01-06]. DOI: 10.1063/1.5009587. ISSN 0034-6748.
- [10] MANČIĆ, A., J. FUCHS, P. ANTICI, S. A. GAILLARD a P. AUDEBERT. Absolute calibration of photostimulable image plate detectors used as (0.5–20MeV) high-energy proton detectors. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2008, 79(7) [cit. 2020-01-10]. DOI: 10.1063/1.2949388. ISSN 0034-6748.
- [11] WAGNER, F., O. DEPERT, C. BRABETZ, et al. Maximum Proton Energy above 85 MeV from the Relativistic Interaction of Laser Pulses with Micrometer Thick CH₂ Targets. *Physical Review Letters* [online]. 2016, 116(20) [cit. 2019-11-14]. DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.205002. ISSN 0031-9007.
- [12] GÜNTHER, M. M., A. BRITZ, R. J. CLARKE, et al. NAIS: Nuclear activation-based imaging spectroscopy. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2013, 84(7) [cit. 2019-11-14]. DOI: 10.1063/1.4815826. ISSN 0034-6748.
- [13] TARISIEN, M., C. PLAISIR, F. GOBET, F. HANNACHI, M. M. ALÉONARD a A. REBII. NATALIE: A 32 detector integrated acquisition system to characterize laser produced energetic particles with nuclear techniques. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2011, 82(2) [cit. 2019-11-17]. DOI: 10.1063/1.3527061. ISSN 0034-6748.
- [14] BELLIDO, P., M. SEIMETZ, R. LERA, et al. Design of a Thomson parabola spectrometer for the detection of laser-accelerated protons and ions. 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC) [online]. IEEE, 2015, 2015 1-4 [cit. 2020-01-09]. DOI: 10.1109/NSSMIC.2015.7581884. ISBN 978-1-4673-9862-6.
- [15] KAR, S., K. F. KAKOLEE, B. QIAO, et al. Ion Acceleration in Multispecies Targets Driven by Intense Laser Radiation Pressure. *Physical Review Letters* [online]. 2012, 109(18) [cit. 2019-11-19]. DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.185006. ISSN 0031-9007.
- [16] JUNG, D., R. HÖRLEIN, D. C. GAUTIER, et al. A novel high resolution ion wide angle spectrometer. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2011, 82(4) [cit. 2019-11-24]. DOI: 10.1063/1.3575581. ISSN 0034-6748.
- [17] METZKES, J., L. KARSCH, S. D. KRAFT, et al. A scintillator-based online detector for the angularly resolved measurement of laser-accelerated proton spectra: A 32 detector integrated acquisition system to characterize laser produced energetic particles with nuclear techniques. *Review of Scientific Instruments* [online]. 2012, 83(12) [cit. 2019-11-17]. DOI: 10.1063/1.4768672. ISSN 0034-6748.
- [18] RICHTER, C, L KARSCH, Y DAMMENE, et al. A dosimetric system for quantitative cell irradiation experiments with laser-accelerated protons. *Physics in Medicine and Biology* [online]. 2011, 56(6), 1529-1543 [cit. 2020-01-19]. DOI: 10.1088/0031-9155/56/6/002. ISSN 0031-9155.
- [19] Apollon Laser Facility [online]. [cit. 2020-01-10]. <https://apollonlaserfacility.cnrs.fr/>
- [20] Helmholtz Institute Jena [online]. Germany [cit. 2020-01-10]. Dostupné z: <https://www.hi-jena.de/>
- [21] LEEMANS, W. Report of Workshop on: Laser Technology for k-BELLA and Beyond. Lawrence Berkeley National Laboratory, 2017.
- [22] ALÉONARD, M. M. et al. WHITEBOOK ELI – Extreme Light Infrastructure: Science and Technology with Ultra-Intense Lasers [online]. Thoss Media, 2011 [cit. 2020-01-10].
- [23] Centre for Advanced Laser Applications [online]. Germany [cit. 2020-01-10]. <https://www.cala-laser.de/>

Ověření účinnosti jedno-reaktorového uspořádání technologie Molten Salt Oxidation

Vojtěch Galek¹, Petr Pražák¹, Jan Hadrava¹

Vojtech.galek@cvrez.cz

¹Centrum výzkumu Řež, Hlavní 130, Řež, 250 68 Husinec

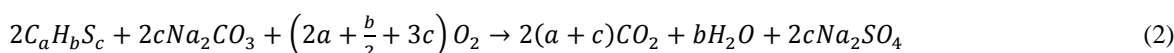
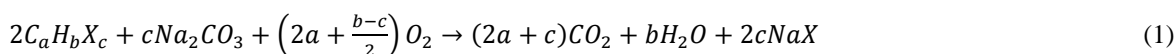
Abstrakt: Využívání tavenin anorganických solí má v technologiích široké použití, jako například v případě likvidace nebezpečných organických odpadů. Technologie Molten Salt Oxidation (MSO) využívá rozpuštěných solí a vysokých teplot k bezplamenné oxidaci pod hladinou taveniny. V laboratorním měřítku je technologie využívána k likvidaci zatím nezkoušených odpadů a použití alternativních druhů tavenin. Experimenty probíhaly v jedno-reaktorovém uspořádání při teplotě 840 °C a tavenina měla složení eutektika (49–51 hm.% Na₂CO₃-K₂CO₃) a byl spalován turbínový olej mogul TB32S. Spaliny byly analyzovány přístrojem Testo 350. Výsledky experimentů prokázaly, že jedno-reaktorové uspořádání není vhodné pro spalování odpadu typu Mogul TB32S, protože hodnoty CO byly vysoké. S ohledem na nastaveném dávkování byly hodnoty v rozmezí od 10000 do 80000 ppm CO. Příprava a průběh experimentů sloužily k ověření funkčnosti laboratorní aparatury a pro její další využití k likvidaci chlorovaných látek.

Klíčová slova: MSO, organické odpady

1. ÚVOD

V dnešní době se nebezpečné organické odpady likvidují převážně ve spalovnách, kde jsou za vysokých teplot a za přebytku vzduchu spalovány na anorganické sloučeniny. V rámci takovéto spalovny je potřeba mít výkonný a efektivní systém čištění spalin, který dokáže zachytit nebezpečné látky ve spalinách, které vznikají při oxidaci. Mnoho organických odpadů obsahuje halogeny nebo sloučeniny síry, které je potřeba zachytit před únikem do atmosféry. Technologie Molten Salt Oxidation je v tomto případě ideální náhrada za klasické spalovny. Technologie využívá roztavené soli k bezplamenné oxidaci organických odpadů. Teplota procesu závisí na použité soli, ale běžně jsou používány teploty od 400 do 950 °C, tedy teploty nižší než při spalování (1,2). Celkově dokáže enthalpická bilance oxidace udržet taveninu nad bodem tání taveniny a není potřeba dodávat další teplo pro ohřev reaktoru (3).

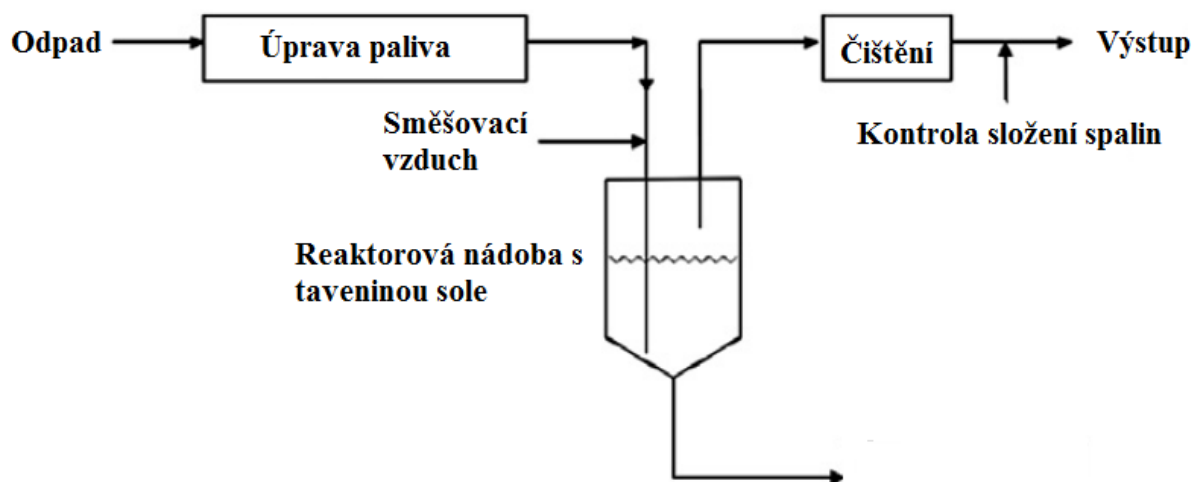
Organické odpady jsou dávkovány společně s koeficientem přebytku vzduchu ($\lambda = 2$) pod hladinu taveniny, kde dochází k jejich oxidaci na CO₂ a H₂O. Při použití alkalických solí dochází k reakci se vzniklými kyselými plyny: SO₂, NO_x, HX (X značí halogeny) a vznikají další anorganické netěkavé soli, které jsou zachyceny v tavenině. Těžké prvky jako jsou kovy a kovové oxidy jsou také zachyceny v tavenině soli a je tedy možné touto technologií získávat drahé kovy, například z plošných spojů (4) nebo je možné zachytávat kovové radionuklidy – Cs, Co, Sr. Zároveň se jedná o jednu z mála technologií, která je schopna efektivně likvidovat ozářený grafit a grafitový prášek (1). Technologie také umožňuje likvidaci kontaminovaných iontoměničů, které se využívají k čištění primárního a sekundárního okruhu. Jako palivo je také možné využít kontaminované oleje a maziva. Níže uvedené rovnice dokládají reakce mezi organickými odpady s obsahem halogenů (1), resp. sírou (2) a alkalickým uhličitánem:



2. EXPERIMENTY

2.1. EXPERIMENTÁLNÍ APARATURA

Experimentální práce probíhaly na laboratorní jedno-reaktorové aparatuře MSO. Aparatura je tvořena reaktorovou nádobou s reaktorovou vložkou, pecí, analyzátozem spalin a dávkovačem kapalného paliva. Na obr. 1 je uvedeno schéma zařízení.



Obrázek 1: Schéma laboratorního MSO. (5)

Organický odpad (palivo) je vedený přes peristaltické čerpadlo do dávkovací trubice ve víku reaktoru. Do dávkovací trubice je přiveden ze zásobní tlakové nádoby vzduch, který funguje jako oxidační médium a zároveň strhává kapalný odpad pod hladinu taveniny soli. Strhávání média je důležité z důvodu, aby nedocházelo k částečné oxidaci odpadu již v trubici, vzniku dehtů, a následné ucpávání trubice. Před dávkováním vzduchu je přidán průtokoměr na přesnější regulaci průtoku vzduchu. V reaktorové nádobě dochází k samotné reakci a spaliny odcházejí trubici ve víku.

2.2. POUŽITÉ MATERIÁLY

Jako odpad byl použit motorový olej Mogul TB32 S, výrobce Paramo. Jako použítá sůl byla použita eutektická směs $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-K}_2\text{CO}_3$ (49 hm. % - 51 hm.%), která má teplotu tání $710\text{ }^\circ\text{C}$ (6,7). Celková vsázka anorganických solí činila 1,7 kg.

2.3. ANALÝZA SPALIN

Spaliny jsou analyzovány přenosným přístrojem Testo 350, a byly měřeny hodnoty CO , CO_2 , SO_2 , H_2 a O_2 .

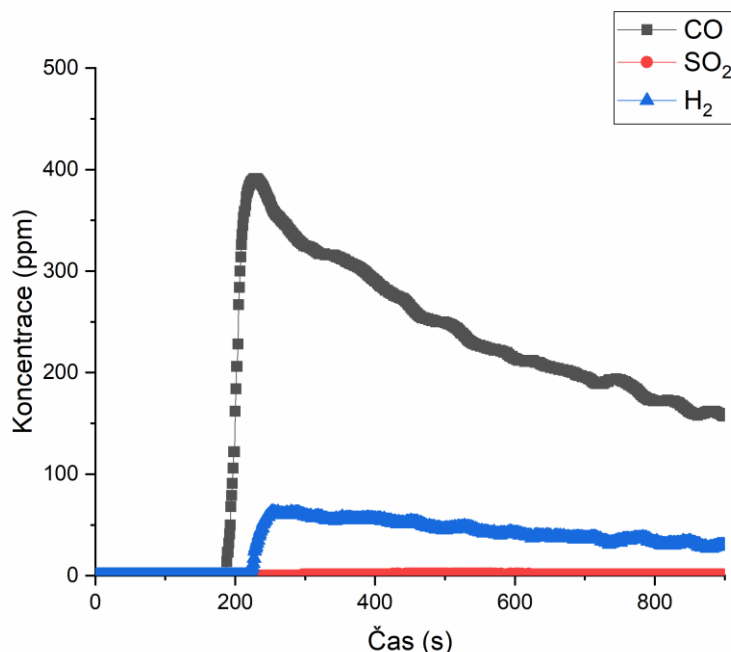
2.4. PRŮBĚH EXPERIMENTŮ

Dávkování odpadu trvalo u prvního experimentu 1 hodinu a u druhého experimentu 40 minut. Peristaltické čerpadlo bylo nastaveno na stejný průtok. Experimenty se lišily průtokem vzduchu a dávkovací hadičkou peristaltického čerpadla. Vsázka soli byla připravena pro první experiment a pro druhý byla použita stejná vsázka. Teplota vsázky byla $840\text{ }^\circ\text{C}$ a průtok vzduchu byl 5 l/min, resp. 6 l/min při druhém experimentu. Při prvním experimentu byla použita úzká hadička s vnitřním průměrem 1,6 mm, a bylo nadávkováno 7,74 g oleje. Při druhém experimentu byla použita hadička s vnitřním průměrem 3,2 mm a bylo nadávkováno 24,56 g oleje. Během experimentů byly spaliny kontinuálně odebírány a analyzovány.

3. VÝSLEDKY A DISKUZE

Byly provedeny dva experimenty s laboratorní aparaturou MSO. Experimenty měli stejné provozní podmínky, tedy 840 °C, stejné složení a hmotnost vsázky. Experimenty byly rozdílné v použité dávkovací hadičce, díky čemu se lišilo nadávkované množství.

U prvního experimentu byla použita úzká hadička a bylo nadávkováno 7,74 g oleje. Průtok vzduchu byl 5 l/min. Na obr. 2 je znázorněn graf výsledků z analyzátoru spalin před začátkem dávkování oleje. Jak je vidět z grafu, tak již při ohřevu je vyšší podíl CO ve spalinách. Toto může mít důvod v termickém rozkladu uhličitánů, který nastává při teplotách kolem 600 °C. Vyšší podíl H₂ může být z nespálených zbytků v injektorové části reaktoru. Hodnoty SO₂ jsou na hranici detekovatelnosti, neboť se nespaloval olej s obsahem síry.

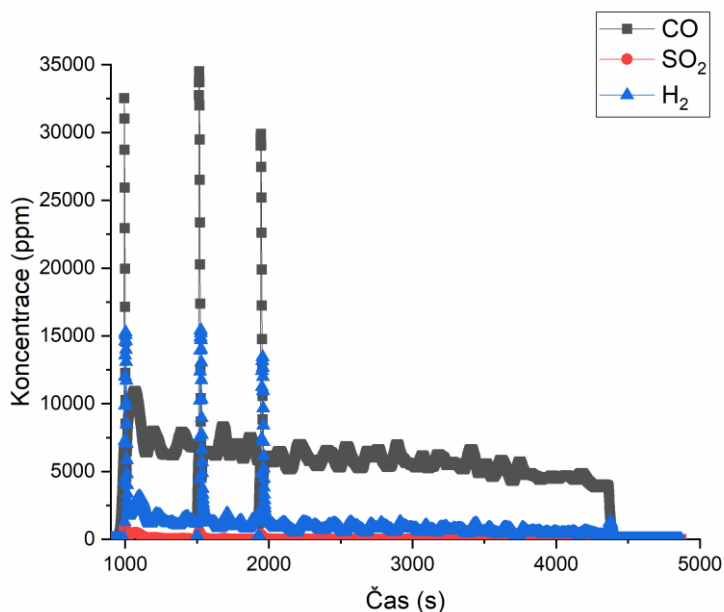


Obrázek 2: Hodnoty koncentrace spalin v závislosti na čase před začátkem dávkování.

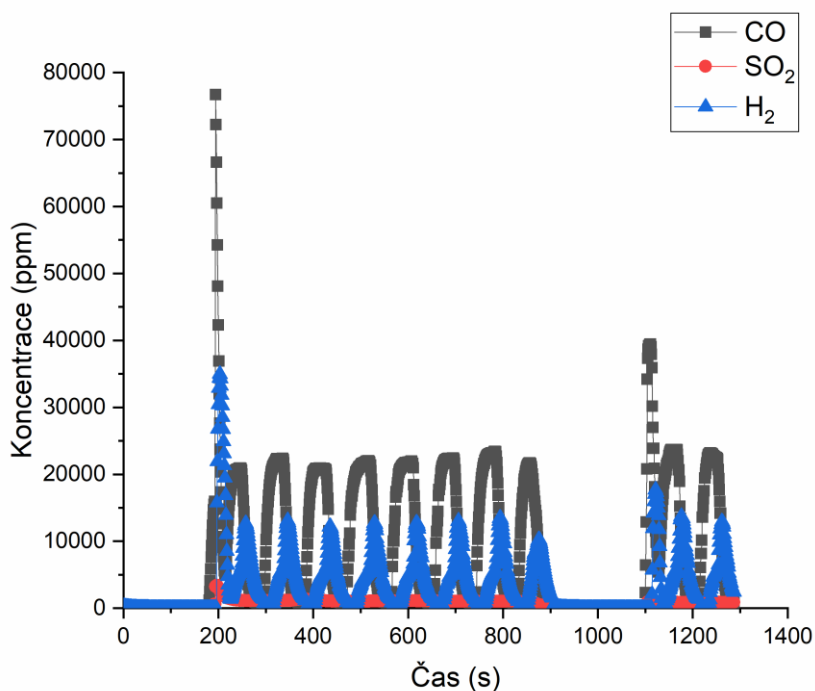
Na obr. 3 je graf dávkování oleje, které bylo zapnuto po 15 minutách průtoku vzduchu. Z grafu vyplývá, že při dávkování oleje nedochází ke kompletní oxidaci organického podílu, a proto spaliny obsahují vysoké množství CO a H₂. Po naměření takto vysokých koncentrací bylo zapnuto automatické ředění plynů vstupujících do analyzátoru na poměr 1:5 vůči vzduchu. Následně dochází ke snížení koncentrace na hodnoty v rozmezí od 12000 do 8000 ppm, nicméně jsou to stále velmi vysoké koncentrace. Následně bylo ředění příchozích spalin vypnuto a po opětovném nárůstu CO zase zapnuto. Tento proces se opakoval ještě jednou a do konce experimentu nebylo již ředění vypnuto. I při pomalém dávkování a celkově nízké nadávkované hmotnosti oleje jsou hodnoty CO a H₂ velmi vysoké. Tyto experimenty dokazují, že pro co nejnižší emise CO je nutné provozovat technologii ve dvou-reaktorovém uspořádání.

Výsledky spalování oleje druhého experimentu jsou znázorněny na obr. 4. Druhý experiment probíhal za stejných teplot a při stejné vsázce jako první experiment. Rozdíl byl v dávkovací hadičce v peristaltickém čerpadle. Hadička měla širší průměr a nadávkované množství bylo více než 3x vyšší. Na obr. 4 je vidět velice rychlý nárůst hodnoty CO, když dojde ke spálení prvních kapek oleje. Následně bylo zapnuto ředění spalin v analyzátoru, aby bylo zabráněno znehodnocení měřicího čidla. Jednotlivé píky na obrázku znázorňují dopad kapky oleje na taveninu a její reakci. Po měření obsahu spalin cca 15 minut byl odstaven analyzátor, kvůli nesnižujícím se hodnotám CO. Po kalibraci a vyčištění analyzátoru byl zvýšen průtok vzduchu na 6 l/min a analyzátor byl opět připojen. Následovalo další krátké měření polutantů, než byl analyzátor definitivně odstaven a experiment předčasně ukončen. Ani při vyšším průtoku vzduchu nebylo dosaženo účinnější oxidace. Z experimentu vyplývá, že

využití širšího průměru hadičky nemá pro jedno-reaktorové uspořádání smysl, neboť jsou hodnoty polutantů velmi vysoké. Muselo by se upravit dávkování oleje na velice nízký průtok nebo upravit dávkování vzduchu. Bohužel dosavadní konstrukce aparátu neumožňuje dávkování více vzduchu kvůli silnému bublání taveniny a následnému úniku taveniny z reaktorové vložky do reaktoru.



Obrázek 3: Závislost koncentrace polutantů na čase při dávkování oleje.



Obrázek 4: Závislost koncentrace polutantů na čase při druhém experimentu.

4. ZÁVĚR

Byly provedeny dva experimenty s jedno-reaktorovým uspořádáním aparatury MSO. Experimenty se lišily množstvím nadávkovaného oleje. V prvním experimentu byla použita hadička s vnitřním průměrem 1,6 mm a za 1 hodinu bylo nadávkováno 7,74 g oleje a průtok vzduchu byl 5 l/min. Před začátkem experimentu byla pozorována termolýza taveniny, a proto bylo naměřeno zvýšené množství CO ve spalínách. Při dávkování dosáhly hodnoty polutantů hranice 35000 ppm pro CO a pro H₂ hodnoty kolem 15000 ppm. Následně bylo zapnuto ředění vzorků, aby nedošlo k znehodnocení čidla. Po ředění klesly hodnoty polutantů k hodnotě 8000 ppm pro CO a 2500 pro H₂. Ředění vzorků bylo vypnuto ještě dvakrát a vždy následoval vzrůst polutantů.

Při druhém experimentu byla použita hadička se vnitřním průměrem 3,6 mm a při stejné dávkovací rychlosti bylo nadávkováno 24,56 g oleje. Dávkování bylo přerušeno po 40 minutách spalování kvůli vysokým hodnotám CO a H₂ ve spalínách. Měření hodnot polutantů bylo přerušeno cca po 15 minutách dávkování, aby nedošlo ke zničení čidla. Dávkování vzduchu bylo 5 l/min a po odstavení analyzátoru byl průtok zvýšen na 6 l/min. Hodnoty CO a H₂ se přiblížily, po začátku dávkování, k hodnotám 80000 ppm, resp. 35000 ppm. Následně bylo zapnuto ředění vzorků, ale koncentrace CO a H₂ dosahovaly 22000 ppm, resp. 12000. Ani po zvýšení průtoku vzduchu nebylo dosaženo žádaného snížení polutantů ve spalínách, a proto opět byl zapnuto ředění vzorků.

Experimenty prokázaly, že je nutné využít druhého reaktoru k efektivnímu spalování odpadů s vysokým obsahem C a H₂. Ani při zvýšeném průtoku vzduchu nedošlo ke snížení obsahu polutantů ve spalínách a další zvýšení průtoku nelze provést kvůli konstrukci reaktoru a reaktorové vložky. Pokud by byl spalován odpad s nižším obsahem C, tak je možné dosáhnout nižších hodnot CO a H₂, jako v případě prvních experimentů se spalování chlorovaných látek, přesněji C₂Cl₄. Další experimenty budou spíše zaměřeny na spalování chlorovaných odpadů a pro další spalování olejových látek předpokládáme s upgradem o další reaktor.

LITERATURA

- [1] Ojovan, M. I., Lee, W. E., & Kalmykov, S. N. (2019). Chapter 16 - Treatment of Radioactive Wastes. In M. I. Ojovan, W. E. Lee, & S. N. B. T.-A. I. to N. W. I. (Third E. Kalmykov (Eds.) (pp. 231–269). Elsevier. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102702-8.00016-9>
- [2] Lin, C., Chi, Y., Jin, Y., & Song, H. (2016). Experimental study on molten salt oxidation of high salt content pharmaceutical residue. *Procedia Environmental Sciences*, 31, 335–344. <https://doi.org/10.1016/j.proenv.2016.02.045>
- [3] Griffiths, T. R., Volkovich, V. A., & Anghel, E. M. (2000). Molten salt oxidation: A reassessment of its supposed catalytic mechanism and hence its development for the disposal of waste automotive tires, 3819(1997), 3819.
- [4] Flandinet, L., Tedjar, F., Ghetta, V., & Fouletier, J. (2012). Metals recovering from waste printed circuit boards (WPCBs) using molten salts. *Journal of Hazardous Materials*, 213–214, 485–490. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.02.037>
- [5] Hadrava, J.; et al. Bezplamenné spalování radioaktivních a nebezpečných odpadů v tavenině soli MSO. *Electroscope* 2016, (2).
- [6] Volkovich, V. A., Gri, T. R., Fields, M., & Fray, D. J. (1998). Oxidation of ceramic uranium dioxide in alkali metal carbonate-based melts: a study using various oxidants and comparison with UO₂ powder. *Journal of Nuclear Materials*, 256(0022), 131–138.
- [7] Miguel, M. T. De, Lasanta, M. I., & Pérez, F. J. (2018). Corrosion resistance of Cr/Ni alloy to a molten carbonate salt at various temperatures for the next generation high-temperature CSP plants. *Solar Energy*, 171(February), 286–292. <https://doi.org/10.1016/j.solener.2018.06.091>

Fotonové a neutronové pole skladu vyhořelého jaderného paliva Temelín s OS CASTOR 1000/19

Kristýna Gincelová¹

E-mail: gincekri@kee.zcu.cz

¹Západočeská univerzita v Plzni, Univerzitní 2732/8, Plzeň, 301 00, Česká republika

Abstrakt: Diplomová práce se zabývá sestavením matematického modelu skladu vyhořelého jaderného paliva elektrárny Temelín. Zdrojové členy pro účely simulace transportu záření modelovou geometrií byly odvozeny z parametrické databáze ETEstorage. Databáze byla vytvořena pomocí sekvence TRITON a ARP-ORIGEN ze sady SCALE 6.2.3. Simulace transportu záření byla řešena dvěma způsoby: aproximativním způsobem vycházejícím ze znalosti řešení sdružené úlohy s využitím metody CADIS a přímým způsobem pomocí sekvence MAVRIC ze sady SCALE 6.2.3.

Klíčová slova: ORIGEN, MAVRIC, CASTOR[®]1000/19, JE Temelín

1. ÚVOD

Jaderná elektrárna Temelín je vybavena dvěma reaktory typu VVER-1000 (V-320). Aktivní zóna tohoto typu reaktoru je tvořena 163 palivovými soubory a 61 prvky klastrové regulace. Vyhořelé jaderné palivo je po ukončení palivové kampaně chlazeno v bazénu skladování vyhořelého jaderného paliva, který se nachází v bezprostřední blízkosti jaderného reaktoru. Po požadované době chlazení jsou palivové soubory přeloženy do skladovacího obalového souboru CASTOR[®]1000/19. Tento typ obalového souboru je také určen pro skladování použité klastrové regulace. Obalové soubory s vyhořelým jaderným palivem (případně i s použitou klastrovou regulací) jsou převezeny do skladu vyhořelého jaderného paliva.

Sklad vyhořelého jaderného paliva elektrárny Temelín se nachází v areálu elektrárny. Sklad byl uveden do provozu v roce 2010. Budova skladu je rozdělena na dvě části: skladovací loď a příjmovou část. Příjmová část skladu je od skladovacích lodí oddělena stínící stěnou.

Cílem diplomové práce bylo vytvořit základní model skladovací haly s obalovými soubory CASTOR[®]1000/19. Validace výpočetního modelu byla rozdělena do dvou částí: validaci modelu samostatně stojícího obalového souboru a validaci zjednodušeného modelu skladu.

2. MĚŘICÍ PŘÍSTROJE

Měření fotonové složky směsného pole bylo provedeno pomocí přístroje FH40G-L10 (Thermo Scientific) s měřicím rozsahem 10 nSv/h – 100 mSv/h (36 keV – 1,3 MeV) [1]. Měřidlo je vybaveno proporcionálním počítačem a kalibrováno na měření příkonu prostorového dávkového ekvivalentu fotonů. Měření bylo provedeno v režimu čítání impulzů po dobu 60 s.

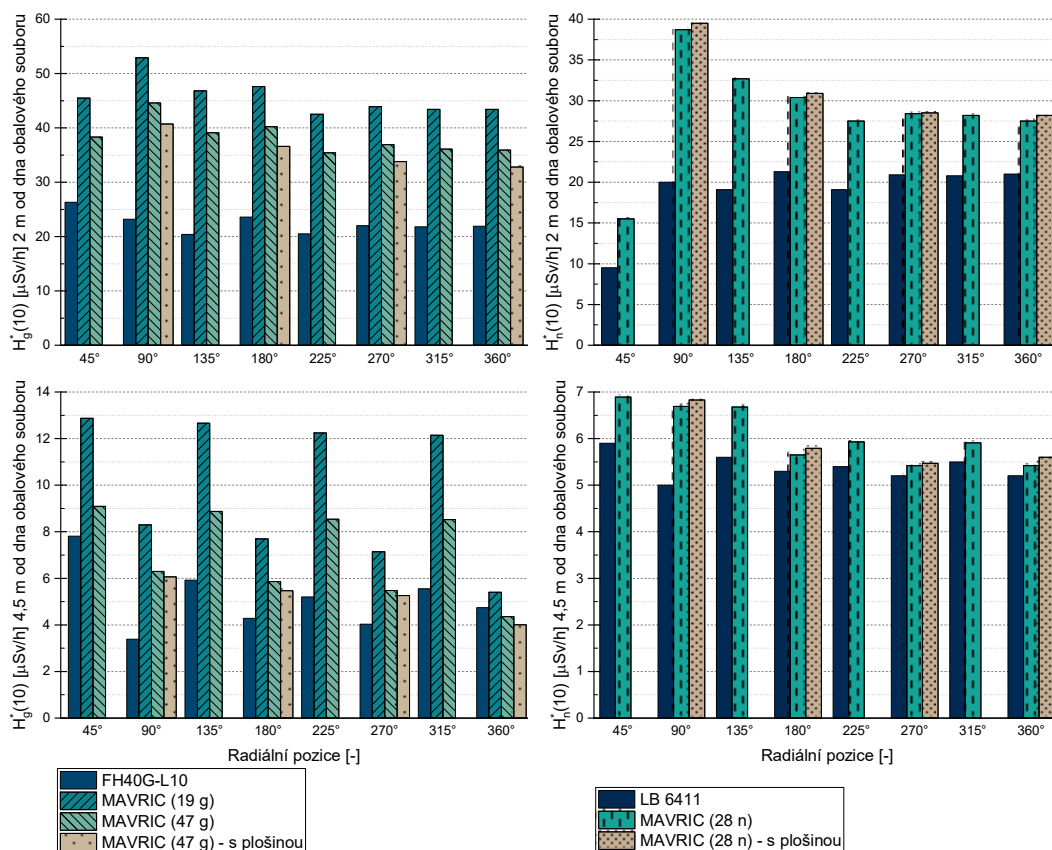
Neutronová složka směsného pole byla charakterizována pomocí měřidla LB 6411 (Berthold Technologies) s měřicím rozsahem 100 nSv/h – 100 mSv/h (0,025 eV – 20 MeV) [2]. Neutronová sonda se skládá z polyethylenové sféry s 2 % uhlíku jako aditiva a proporcionálního počítače s náplní ³He/Metan. Měření bylo provedeno v režimu čítání pulzů po dobu 160 s.

3. MODEL OBALOVÉHO SOUBORU

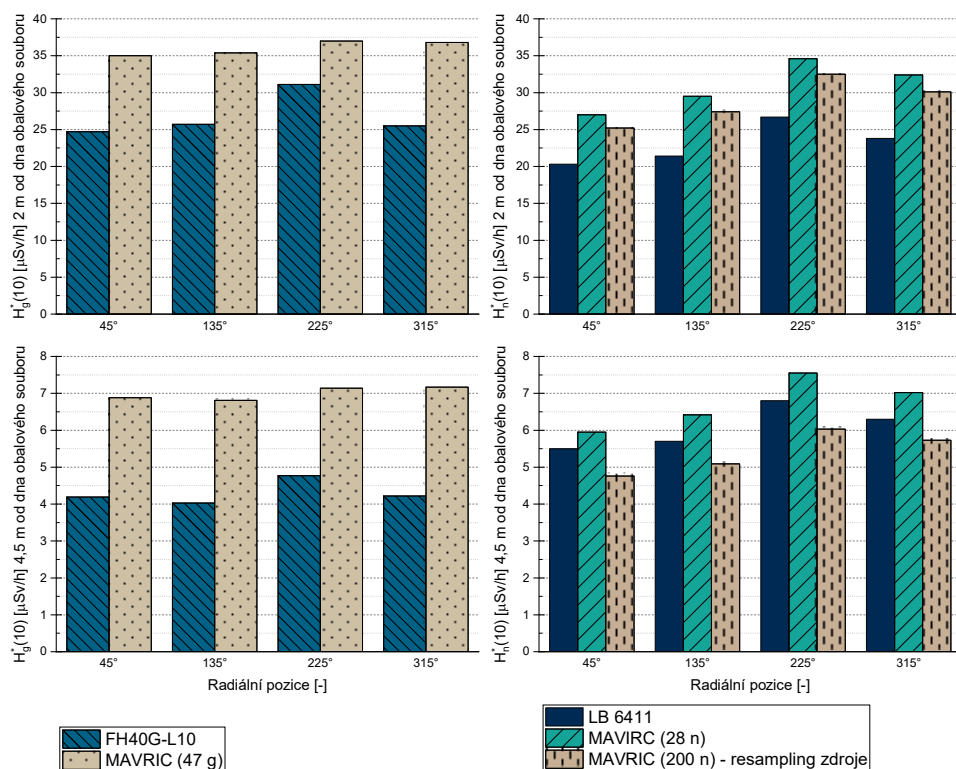
Geometrický model obalového souboru CASTOR[®] 1000/19 byl sestaven v sekvenci MAVRIC z kódové sady SCALE 6.2.3. Neutronový a fotonový zdroj, odvozený z reálných parametrů vyhořelého jaderného paliva, byl vypočten pomocí sekvence ORIGAMI ze sady SCALE 6.2.3 s použitím vytvořené knihovny efektivních účinných průřezů popisující palivo VVANTAGE6 firmy Westinghouse [3]. Zdrojové členy vyhořelého jaderného paliva nezahrnují počáteční variaci obohacení v radiálním ani axiálním směru.

Geometrický model palivové kazety se skládá z 312 palivových proutků, 18 vodičích trubek klastrové regulace a jednoho centrálního kanálu vnitro-reaktorového měření. Model palivového souboru je zakončen koncovými distančními mřížkami. Distanční mřížky ve střední části palivového souboru nejsou uvažovány. Hlavice a patice palivového souboru jsou modelovány zjednodušeně.

Příkon prostorového dávkového ekvivalentu ve stanovených bodech okolo obalového souboru byl vypočítán pomocí sekvence MAVRIC s využitím metody CADIS. Validace modelu byla provedena pomocí výsledků měření obalového souboru B034 [4] a B035 [5]. Validační měření bylo provedeno na servisní plošině obklopující obalový soubor na reaktorovém sále. Výsledky simulace v porovnání s naměřenými hodnotami jsou pro obalový soubor B034 zobrazeny v grafech na obrázku č. 1, pro obalový soubor B035 v grafech obrázku č. 2.



Obrázek 1: Porovnání hodnot příkonu prostorového dávkového ekvivalentu fotonů (grafy vlevo) a příkonu prostorového dávkového ekvivalentu neutronů (grafy vpravo) získaných pomocí simulace a reálného měření. Výsledky jsou uvedeny pro obalový soubor B034.



Obrázek 2: Porovnání hodnot příkonu prostorového dávkového ekvivalentu fotonů (grafy vlevo) a příkonu prostorového dávkového ekvivalentu neutronů (grafy vpravo) získaných pomocí simulace a reálného měření. Výsledky jsou uvedeny pro obalový soubor B035.

4. MODEL SKLADU VYHOŘELÉHO JADERNÉHO PALIVA

Zjednodušený model skladu vyhořelého jaderného paliva uvedený v diplomové práci je prvním přiblížením výpočtového modelu. Výpočetní model se skládá ze čtyř obalových souborů ve skladovací konfiguraci, umístěných ve stejné rozteči jako ve skladovací lodi. Fotonové a neutronové zdroje jednotlivých obalových souborů byly odvozeny z parametrické databáze ETEStorage [6].

Parametrická databáze ETEStorage byla sestavena pomocí sekvence TRITON a kódu ORIGEN ze sady SCALE 6.2.3. Rozsah databáze je dán středním počátečním obohacením 0,5 - 6,0 % ^{235}U , vyhořením 4,05 - 49,95 GWd/tU a zájmovou dobou chlazení 900 – 6000 dní. Ke každé kombinaci středního počátečního obohacení, vyhoření a doby chlazení jsou v databázi uloženy celkové vydatnosti neutronových a fotonových zdrojů, neutronová a fotonová spektra. K získání konkrétního spektra je potřeba zadat databázový požadavek s parametry: střední počáteční obohacení, střední vyhoření palivového souboru a požadovanou dobu od ukončení poslední kampaně. Databázové požadavky jsou zpracovány podpurným kódem a předány databázi ETEStorage. Podpurný kód vyhodnotí střední počáteční obohacení, hmotnosti axiálních vrstev palivového souboru a vyhoření jednotlivých axiálních úseků. Výsledky databázového požadavku jsou následně uloženy do databáze ETESpec.

Simulace transportu záření byla řešena dvěma způsoby: aproximativním způsobem vycházejícím ze znalosti řešení sdružené úlohy s využitím metody CADIS a přímým způsobem pomocí sekvence MAVRIC ze sady SCALE 6.2.3.

4.1. APROXIMATIVNÍ ŘEŠENÍ POMOCÍ KÓDU DENOVO

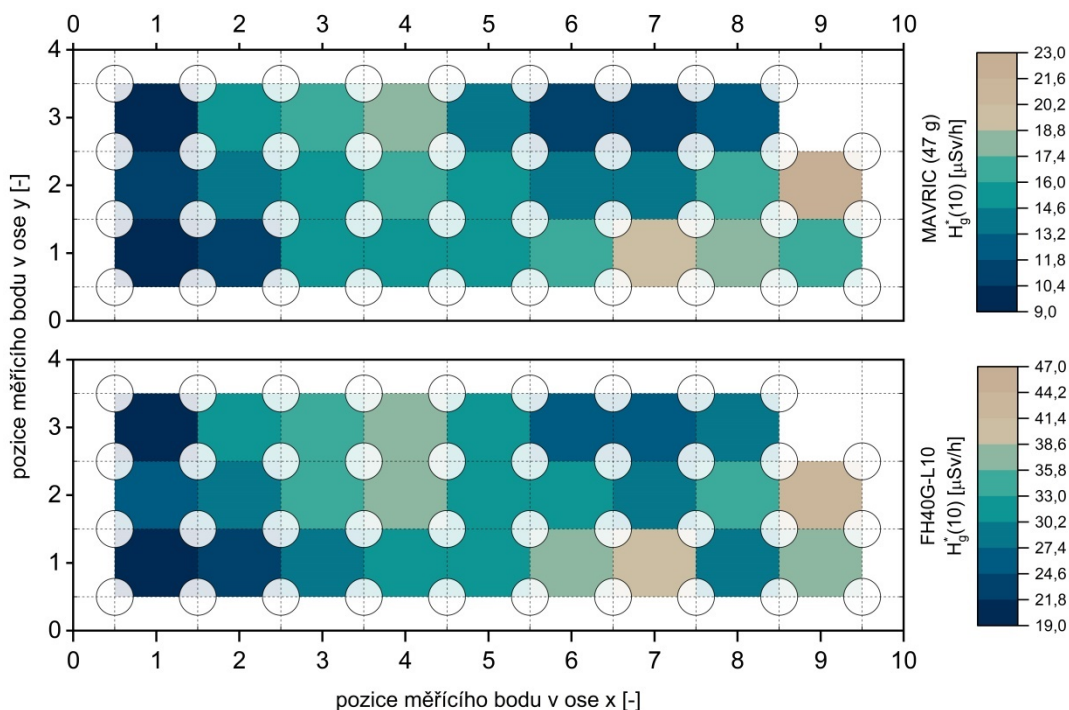
Nalezení aproximativního řešení simulace transportu záření vychází ze znalosti řešení sružené úlohy vypočtené pomocí sériového kódu Denovo (xkba) ze sady SCALE 6.2.3. Hledaná odezva detektoru R je následně vypočtena podle rovnice (1), kde $q(\vec{r}, E, \hat{\Omega})$ reprezentuje zdrojový člen a $\Psi^+(\vec{r}, E, \hat{\Omega})$ řešení sružené úlohy.

$$R = \iiint q(\vec{r}, E, \hat{\Omega}) \Psi^+(\vec{r}, E, \hat{\Omega}) d\Omega dE dV \quad [7] \quad (1)$$

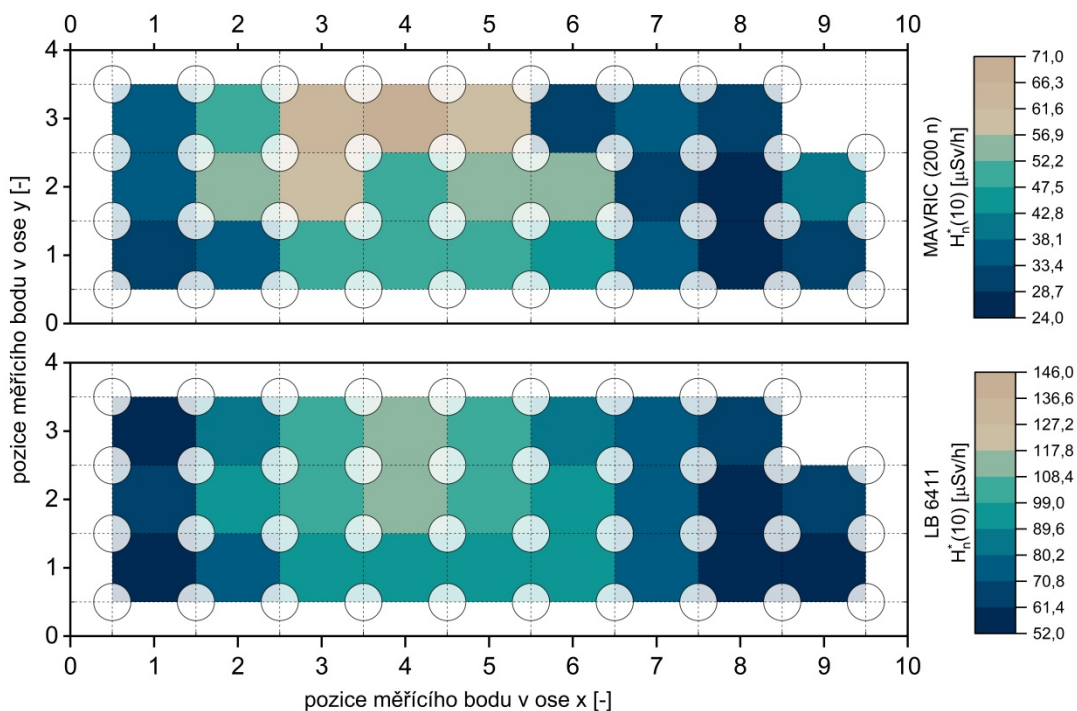
K nalezení odezvy detektoru R podle rovnice (1), byl vytvořen výpočetní program TISS (Temelin Interim Storage Solver), který má k dispozici databázi zdrojových členů ETEspec a databáze obsahující řešení sružené úlohy. Program TISS pak podle rovnice (1) vypočte odezvu detektoru na požadovaném místě.

4.2. ŘEŠENÍ POMOCÍ SEKVENCE MAVRIC

Příkon prostorového dávkového ekvivalentu mezi čtveřicí obalových souborů byl dále vypočítán pomocí sekvence MAVRIC s využitím metody CADIS. K validaci zjednodušené modelové geometrie skladu bylo provedeno detailní měření. Měřicí body byly rozmístěny mezi čtveřicí obalových souborů 1 m nad zemí. Výsledky simulace jsou porovnány s reálným měřením v mapách na obrázcích č. 3 a 4.



Obrázek 3: Mapa příkonu prostorového dávkového ekvivalentu fotonů naměřeného ve skladu s vyhořelým jaderným palivem (mapa dole) a získaného simulací pomocí sekvence MAVRIC v 47 grupové (47 g) struktuře (mapa nahoře).



Obrázek 4: Mapa příkonu prostorového dávkového ekvivalentu neutronů naměřeného ve skladu s vyhořelým jaderným palivem (mapa dole) a získaného simulací pomocí sekvence MAVRIC v 200 grupové (200 n) struktuře (mapa nahoře).

5. ZÁVĚR

Výsledky simulace jednotlivých obalových souborů v porovnání s reálně naměřenými hodnotami mohou indikovat nesprávný popis zdroje i modelové geometrie. Odchylka simulovaných hodnot může být především způsobena nezahrnutím vlivu servisní plošiny do výpočtu. V této práci byl odzkoušen vliv aproximované servisní plošiny u obalového souboru B034.

Prvotní výsledky základního modelu skladu vyhořelého jaderného paliva ukazují, že příkon prostorového dávkového ekvivalentu mezi čtveřicí obalových souborů je systematicky podhodnocen o 50 %. Toto podhodnocení je způsobeno především striktními geometrickými limitacemi modelu. Dále je zde částečný vliv uskladněné klastrové regulace a nedostatečný popis zdrojů hlavíc a patič palivového souboru. Z pohledu rychlosti výpočtu je nalezení příkonu prostorového dávkového ekvivalentu pomocí programu TISS mnohonásobně rychlejší než řešení přímé úlohy. Problémem programu TISS je nedostatečná přesnost řešení sdružené úlohy, která vede k řádovým odchýlkám vůči referenčním hodnotám.

PODĚKOVÁNÍ

Diplomová práce vznikla za podpory Ing. Martina Loveckého, PhD. (Škoda JS a.s.), Ing. Františka Klímka (JE Temelín) a pracovníků JE Temelín.

LITERATURA

- [1] FH 40 G Dose Rate Measuring Unit. Thermo Scientific, 2008. DB-033-961017 E
- [2] Neutronová sonda LB 6411. Berthold Technologies, 1996. Id. No. 82042BA2

- [3] DOSHI, P. K., E. E. DEMARIO, R. P. KNOTT a J. P. DUCRUET. VVANTAGE 6 - an advanced fuel assembly design for VVER reactors. Transactions of the American Nuclear Society. 1993, 67(1), 236 - 238. ISSN 0003-018X.
- [4] Měření radiační situace na OS 034GP. JE Dukovany, řízení radiačních rizik, 2018. ŘRR/2018/02 revize 0
- [5] Měření radiační situace na OS 035. JE Dukovany, řízení radiačních rizik, 2018. ŘRR/2018/03 revize 0
- [6] GINCELOVÁ, K. *Fotonové a neutronové pole skladu vyhořelého jaderného paliva Temelín s OS CASTOR 1000/19*. Praha, 2019. Diplomová práce. ČVUT v Praze, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření
- [7] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design. Manuál. Oak Ridge, 2011. ORNL/TM-2005/39, verze 6.1. Dostupné z RSICC pod CCC-785.

Chlazení fúzního reaktoru - Hypervapotron

Gleitz Miroslav¹, Zácha Pavel¹, Entler Slavomír¹

E-mail: miroslav.gleitz@fs.cvut.cz

¹Fakulta strojní ČVUT v Praze, Technická 4, Praha 6, 160 00

Abstrakt: Článek prezentuje hlavní principy a funkce hypervapotronu, jež slouží k přenosu vysokých tepelných toků (až desítky MW/m²). Vzhledem k využívání výparného tepla se tento typ tepelného výměníku jeví pro využití ve fúzních reaktorech jako velmi perspektivní. Výměník se svou specifickou geometrií pracuje s dvoufázovým prouděním v podchlazeném varu a v režimu bublinkového varu. Článek se zaměřuje na úvodní studie simulací přestupu tepla v hypervapotronu pomocí CFD kódu Star-CCM+ a prezentuje další směřování výzkumu na Ústavu energetiky FS ČVUT v Praze v této oblasti.

Klíčová slova: Hypervapotron, Star-CCM+, fúze, dvoufázové proudění, podchlazený var

1. ÚVOD

Fyzika fúzních reaktorů je řešena od začátku jejich vývoje. V oblasti technologie odvodu tepla z reaktoru je tomu však jinak. Teprve v posledních dekádách, kdy výkon nově vyvíjených fúzních reaktorů postupně vzrostl až na úroveň energetického využití, se stává odvod tepla z divertoru a první stěny reaktoru nedílnou součástí důležitých technologií, které je třeba vyvíjet. Odvod tepla v řádu desítek MW/m² je na hranici dnešních technologií a je z mnoha důvodů velmi problematický, protože se dotýká jak materiálového inženýrství, tak oblasti termomechaniky přestupu tepla do chladicího média.

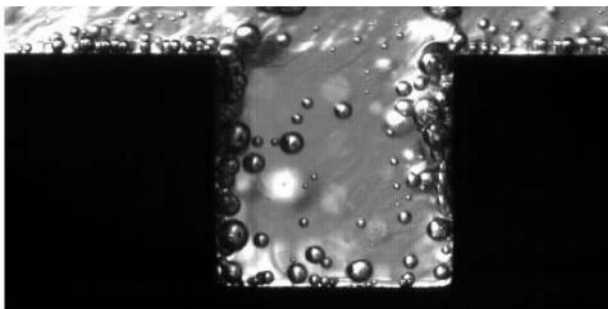
Jednou ze zkoumaných variant účinného odvodu tepla je chlazení vodou s využitím podchlazeného varu. Podchlazený var je jednou z variant zvýšení prostupu tepla do chladicí látky, kdy dochází k využití latentního tepla varu a následně kondenzace. Samotné zařízení pracující s podchlazeným varem je ale nutné chránit před vznikem krize varu. Jedním z takových zařízení je Hypervapotron.

2. SOUČASNÝ STAV

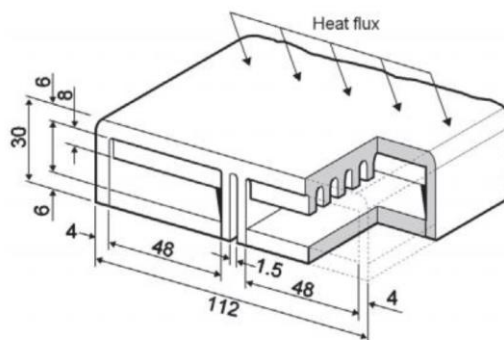
Historie Hypervapotronu se začala psát roku 1970, kdy poprvé Charles Beurtheret [1] použil termín Hypervapotron. Název je z evolučního hlediska odvozen od zařízení Vapotron a Supervapotron, který se liší především ve směru proudění. V této souvislosti se vynořil pojem „Vapotron efekt“, jež znamená charakteristický přenos tepla pomocí podchlazeného varu a v rozdílných teplotních hladinách po výšce žebra. Od té doby se provedlo několik experimentálních měření s různými geometriemi, ovšem návrh a predikce chování při různých parametrech vázla na poměrně složitým fyzikálním modelu. V posledních letech se tento trend s rozvojem CFD programů mění, stále je však jeho modelování příliš závislé na schopnosti jednotlivých numerických řešení a vhodném použití matematických modelů. Jelikož je v současnosti poměrně málo volně dostupných experimentálních dat potřebných k validaci, je nutné každý nový numerický model podpořit experimentem.

Na Obr. 1 lze vidět řez Hypervapotronem za provozu, na Obr. 2 je pak zobrazena jeho typická geometrie. Princip fungování Hypervapotronu je následující: voda na vstupu protéká kanálem, kdy část vody vtéká mezi žebra kanálu. Tam dochází k varu – tvorbě bublinek, které se následně odpoutávají od stěny a turbulentním efektem se strhávají zpět do hlavního proudu, kde následně kondenzují. Žebra zde primárně zvyšují plochu pro

odvod tepla, je však nutné dodržovat vhodné provozní podmínky (tlak, teplotu podchlazené kapaliny a rychlost proudění) zabraňující tvorbě parního polštáře a následné krizi varu.



Obr. 1: Řez Hypervapotronem [2]



Obr. 2: Typická geometrie Hypervapotronu [2]

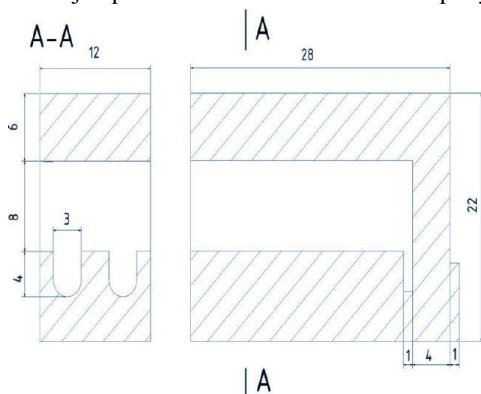
V tomto článku jsou k validaci použita jak data z experimentu prováděného na tokamaku JET v Culhemu [2], tak i následně prováděné studie (disertační práce [2] diplomové práce [3] a [4]). Tyto validační studie úspěšně použily k simulacím CFD program ANSYS CFX ([2] a [4]), u programu ANSYS Fluent r16 [3] byla validace numerického modelu úspěšná pouze částečně. Protože program CFX má faktická omezení v možnosti použití polyhedrálních sítí, snižuje to jeho aplikační potenciál v případech složitějších geometrií. Konkurenční CFD program StarCCM+ toto omezení nemá, jeho aplikace pro simulaci hypervapotronu se však v otevřené literatuře nepodařilo nalézt.

3. CÍL PRÁCE

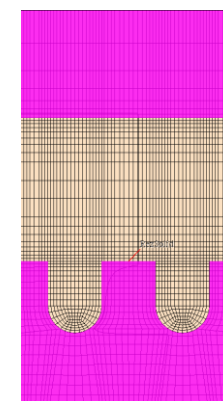
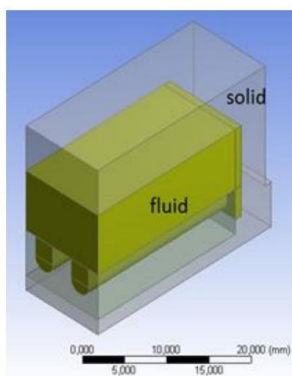
Cílem této práce bylo ověřit možnost aplikace programu StarCCM+ pro simulaci podchlazeného varu v rámci zařízení hypervapotron. Pro ověření posloužily práce [2], [3] a [4]. Součástí zde prováděného výzkumu podchlazeného varu aplikovaného na hypervapotronu je následná stavba experimentálního zařízení, které by mělo definovat jak vhodné oblasti a kombinace podmínek pro použití hypervapotronu (geometrie, tlak, rychlost proudění, vstupní teplota), tak i schopnost věrohodně popsat fyzikální děj právě pomocí CFD programu StarCCM+.

3.1. MODELOVÁNÍ PODCHLAZENÉHO VARU VE STAR-CCM+

Geometrie a výpočetní síť modelu experimentálního vzorku byl pro dodržení rozměrů a vlastností validačního modelu převzat z práce [3], viz Obr. 3. Výpočetní síť zahrnovala 169546 buněk, nejmenší tloušťka buněk je aplikována v mezní vrstvě u otápených stěn (0,15 mm), viz Obr. 4.



Obr. 3: Použitá geometrie Hypervapotronu [3]



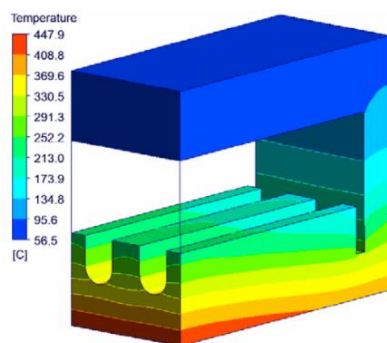
Obr. 4: Použitá síť [3]

Okrajové podmínky pro validační výpočet vychází z hodnot uvedených v [2], resp. [3] a [4]. Jednotlivé

parametry shrnuje Tab. 1, průběh teplot při zatížení z práce [2] zobrazuje Obr. 5.

Tab. 1: Vstupní okrajové podmínky

| Parametr | Hodnota |
|--------------------|--------------------------------------|
| Tlak | 6 bar |
| Rychlost na vstupu | 4 a 8,55 m/s |
| Teplota na vstupu | 50 °C |
| Teplota sytosti | 158,85 °C |
| Tepelný tok | 2; 4; 6; 8; 10; 12 MW/m ² |



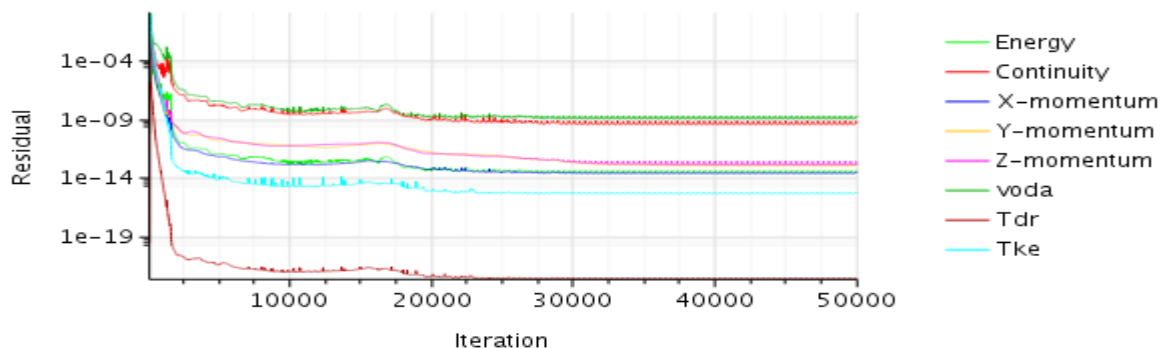
Obr. 5: Průběh teplot pro solid [2]

V první fázi došlo k sadě testovacích úloh, během kterých bylo možné nalézt vhodné matematické modely a numerická nastavení v nich tak, aby výsledky simulací dosáhly relevantních výstupů. Výsledné řešení využívá pro vícefázové proudění VOF model, jež nabízí dva modely interakce mezi fázemi, tedy i modelování varu a kondenzace – Rohsenow Boiling (v legendě Obr. 9 označeno „StarCCM+ R“) a Transition Boiling model (označeno „StarCCM+ T“). V rámci analýzy dosažených výsledků byl pro další výpočty použit Rohsenow Boiling model, jak ukazuje srovnání na Obr. 8. Model turbulence byl zvolen Standard k-Epsilon Low-Re a z důvodu y^+ pohybující se ve výpočtu v rozmezí cca 1-15 byla zvolena stěnová funkce All- y^+ , jež spojuje Low- y^+ (<1) a High y^+ (>30) modely. Rohsenow Boiling model umožňuje nastavení parametrů C_{qw} a n_p . Parametr C_{qw} je funkcí vlastností povrchu pevné části (zejména drsnosti) a parametr n_p je exponent s Prandtlovým číslem [5]. Reálně tyto parametry určují intenzitu přestup tepla do tekutiny, čímž ovlivňují množství generované parní složky, a tedy mění teplotu povrchu. Souhrn hlavních použitých numerických modelů a nastavení je uveden v Tab. 2.

Tab. 2: Souhrn hlavních použitých numerických modelů

| Použité modely pro tekutinu | Modely interakce mezi fázemi |
|--------------------------------------------|--------------------------------------------------|
| Space: Three Dimensional | Phase Interaction: VOF-VOF |
| Time dependence: Steady | Boiling: VOF Boiling |
| Multifluid model: Eulerian Multiphase | Rohsenow Boiling ($C_{qw}=0,008$; $N_p=1,73$) |
| Multifluid model: Volume of Fluid (VOF) | Transition Boiling model |
| Turbulent model: Standard k-Epsilon Low-Re | |
| Wall treatment: All y^+ Wall Treatment | |

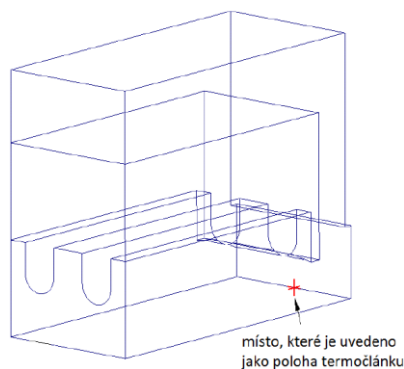
Pro názornost je na Obr. 6. uveden průběh reziduí pro rychlost 4 m/s a tepelný tok 10 MW/m². Vzhledem k dosažení bezpečně konvergentních kritérií (v řádu 10⁻⁹ a níže) a současně ve srovnání s dosaženými fyzikálními výsledky bylo možné simulaci s podchlazeným varem považovat za finální.



Obr. 6: Průběh reziduí pro rychlost 4 m/s a tepelný tok 10 MW/m²

Jediným dostupným validačním parametrem uvedeným v [2] je měřená teplota v oblasti ohříváné části tělesa. Pro jednotlivé tepelné toky tak byly provedeny simulace, z nichž byla následně stanovena závislost teploty

v měřeném místě na tepelném toku, viz červený bod na Obr. 7. Výsledné teploty a porovnání s výsledky experimentu jsou uvedeny v Tab. 3.

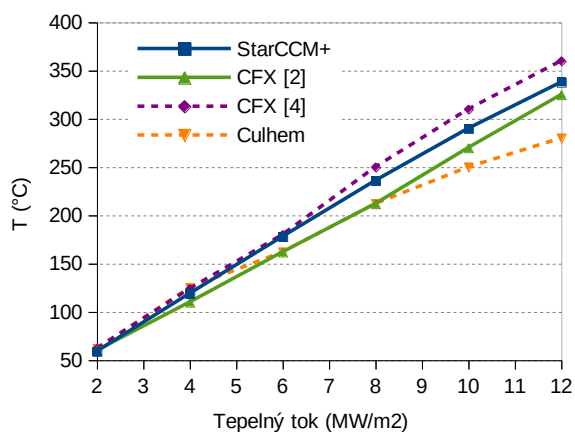


Obr. 7: Místo sledované teploty [3]

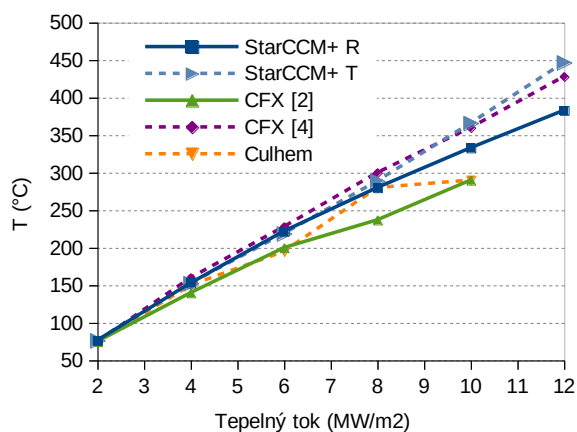
Tab. 3: Porovnání dat ze StarCCM+ s naměřenými daty z Culhemu [2]

| Tepelný tok [MW/m ²] | 8,55 m/s | | | | 4 m/s | | | |
|----------------------------------|---------------|-----------------|-------------------------|------------------------|---------------|-----------------|-------------------------|------------------------|
| | StarCCM+ (°C) | Experiment (°C) | Absolutní odchylka (°C) | Relativní odchylka (%) | StarCCM+ (°C) | Experiment (°C) | Absolutní odchylka (°C) | Relativní odchylka (%) |
| 2 | 59,4 | 62 | -2,6 | -0,78 | 76,6 | 75 | 1,6 | 0,46 |
| 4 | 118,8 | 125 | -6,2 | -1,56 | 153,1 | 150 | 3,1 | 0,73 |
| 6 | 178,1 | 162 | 16,1 | 3,70 | 222,3 | 195 | 27,3 | 5,83 |
| 8 | 236,1 | 212 | 24,1 | 4,97 | 280,0 | 280 | 0 | 0 |
| 10 | 289,9 | 250 | 39,9 | 7,63 | 332,7 | 290 | 42,7 | 7,58 |
| 12 | 337,8 | 280 | 57,8 | 10,45 | 383,7 | - | - | - |

Porovnání s dostupnými experimentálními daty a provedenými simulacemi při vstupních rychlostech proudění 4 a 8,55 m/s lze vidět na Obr. 8 a Obr. 9.



Obr. 8: Validace modelu pro 4 m/s



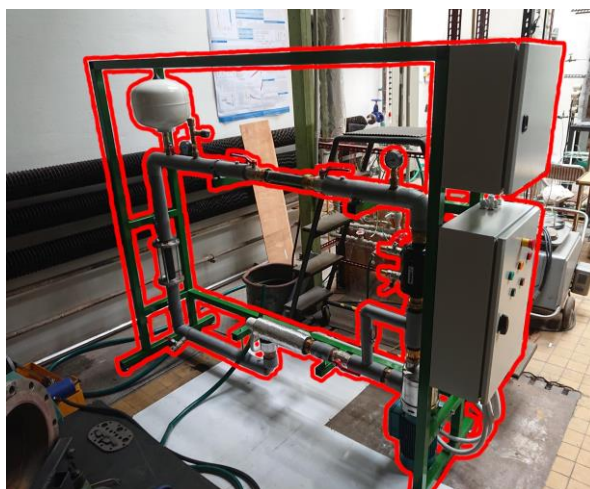
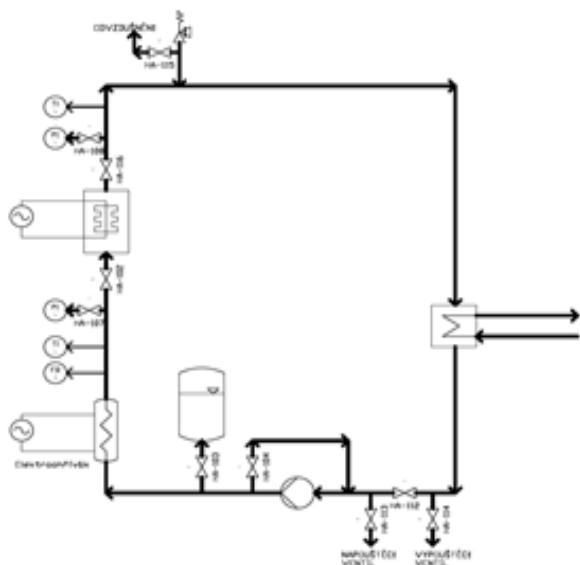
Obr. 9: Validace modelu pro 8,55 m/s

Z prezentovaných výsledků je patrné, že výpočty provedené pomocí CFD programu StarCCM+ dosahují vůči experimentu průměrné odchylky 4,8 % pro rychlost 8,55 m/s a 2,9 % pro rychlost 4 m/s. Jak je z Tab. 3 patrné, odchylka mezi simulacemi a měřením se s rostoucím výkonem zvyšuje. To může být způsobeno několika faktory. Na jedné straně jde o vhodnost kombinace použitých numerických modelů včetně volitelných parametrů, na druhé straně nejsou dostupné informace o přesnosti měření na experimentálním zařízení. Z tohoto

pohledu lze dosažené výsledky považovat za uspokojivé. Z Obr. 9 a Obr. 10 je dále patrné, že v práci dosažené výsledky jsou srovnatelné s výsledky provedenými v CFD programu ANSYS CFX. Pro simulace provedené v programu StarCCM+ se jako vhodný prostředek k dosažení vyšší shody s naměřenými daty jeví aplikace změn parametrů Rohsenowa modelu varu (C_{qw} a n_p), které byly v provedených výpočtech ponechány v přednastavených hodnotách.

3.2. EXPERIMENTÁLNÍ SMYČKA

Jak bylo uvedeno v kapitole 3, za účelem validace výsledků získaných z programu Star-CCM+ je v současné době stavěna experimentální smyčka, jejíž schéma je na Obr. 10 a její reálná podoba je na Obr. 11.



Obr. 11: Experimentální smyčka

Obr. 10: Schéma experimentální smyčky

Experimentální smyčka se v současnosti skládá z čerpadla (1,8 kW), průtokového ohříváku (3kW), kompenzátoru objemu, expanzního ventilu, dvou barometrů a průtokového chladiče. Dále se smyčka plánuje doplnit o samotný měřicí kanál Hypervapotronu, indukční ohřev (15kW), indukční průtokoměr, systém měření a regulace smyčky a systém pro měření teplot a tlaku. Provozní parametry jsou omezeny současnými a budoucími komponentami, maximální hodnoty jsou uvedeny v Tab. 4

Tab. 4: Maximální parametry smyčky

| Parametr | Hodnota |
|-----------------------------|----------------------|
| Maximální tlak | <10 bar |
| Maximální průtok | 416 l/min |
| Maximální rychlost* | 19 m/s* |
| Maximální teplota na vstupu | <110 °C |
| Maximální výkon ohřevu | 15 kW |
| Maximální tepelný tok | 12 MW/m ² |

* při geometrii uvažovaného kanálu

3.3. BUDOUCÍ PRÁCE

Návazné práce se v oblasti simulací zaměří na citlivostní analýzy v programu Star-CCM+, a to jak na volbě vícefázového modelu (VOF model, resp. Eulerian Multiphase model), tak na vhodné úpravě parametrů C_{qw} a n_q v Rohsenowa modelu varu. Dalším krokem je doplnění stávající smyčky o nové komponenty, včetně samotného kanálu Hypervapotronu. Po úspěšném zprovoznění experimentální smyčky budou provedena měření a validace s výsledky získanými v programu Star-CCM+. Validace programu vůči provedeným experimentálním měřením

by měla následně být využita k parametrickým studiím, jejichž cílem je připravit další měřicí kanály, na nichž by provedené parametrické studie měly potvrdit oblast platnosti zvoleného numerického řešení.

4. ZÁVĚR

Hypervapotron se jeví jako perspektivní typ tepelného výměníku nejen pro odvod velkých tepelných toků ve fúzních reaktorech, ale všude tam, kde je potřeba odvádět velké tepelné toky. Jeho nevýhodou jsou specifické provozní podmínky, a tedy i složité ověřování jejich použitelnosti. Vzhledem k pokroku numerických modelů podchlazeného varu implementovaných v CFD programech se však potenciál využívání hypervapotronů v praxi významně zvyšuje.

PODĚKOVÁNÍ

Tento příspěvek vznikl za podpory projektu OPVVV: CZ.02.1.01/0.0/0.0/16_019/0000778 (Centrum pokročilých aplikovaných přírodních věd).

LITERATURA

- [1] Beurtheret. C: Transfert de flux superieur a 1kW/cm2 par double changement de phase entre une paroi non isotherme et un liquide en convection forcee, in: Proceedings of the Fourth International Heat Transfer conference, Versailles, France, September 1970.
- [2] Milnes, J.: Computational Modelling of the HyperVapotron Cooling Technique for Nuclear Fusion Application, Disertační práce, 2010. Department of Aerospace Sciences Cranfield University Cranfield, UK [online], [cit. 28.11.2019]. Dostupné z: <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2012.06.014>
- [3] Písek, V.: Ověření aplikovatelnosti CFD metodik pro výpočty podchlazeného varu, Diplomová práce, 2016, Ústav energetiky Fakulty strojní ČVUT v Praze, [online], [cit. 28.11.2019]. Dostupné z: <http://hdl.handle.net/10467/66240>
- [4] Pitoňák, V.: Studie podchlazeného varu v hypervapotronu, Diplomová práce, 2017, Ústav energetiky Fakulty strojní ČVUT v Praze, [online], [cit. 28.11.2019]. Dostupné z: <http://hdl.handle.net/10467/70909>
- [5] Star-CCM+ Version 14.04.013-R8 User's Guide, Siemens PLM Software Inc., 2019

Validace výpočetního kódu Serpent v České republice

Pavλίna Haroková¹

E-mail: pavlina.harokova@skoda-js.cz

¹Škoda JS a.s., Orlík 266, 316 06, Plzeň, Česká republika

Abstrakt: Serpent je víceúčelový 3D Monte Carlo transportní kód, který je vyvíjen ve výzkumném centru VTT ve Finsku od roku 2004. V roce 2018 proběhla standardizace Serpentu v České republice, při které byla provedena řada výpočtů a srovnání, mezi hlavní patří srovnávací úlohy kritičnosti. Pro potřeby validace bylo propočteno 687 úloh z databáze ICSBEP s čtyřmi různými knihovnami jaderných dat. Výsledky pak byly porovnány s MCNP a experimentálními daty. V obou případech vykazují výsledky Serpentu velmi dobrou shodu.

Klíčová slova: Serpent, MCNP, validace, kritičnost

1. ÚVOD

Serpent [1] je víceúčelový 3D Monte Carlo transportní kód, který je vyvíjen ve výzkumném centru VTT ve Finsku od roku 2004. Během svého vývoje byl zdrojový kód Serpentu mnohokrát upravován a přepisován. V roce 2010 bylo rozhodnuto o kompletním přepracování kódu, čímž vznikla současná verze – Serpent 2.

Základní rysy Serpentu jsou v mnoha ohledech podobné ostatním Monte Carlo kódům. Pro popis geometrie využívá definice CSG (*Constructive Solid Geometry*), umožňuje však i zadání pomocí nestrukturované sítě (UM – *Unstructured Mesh*). Účinné průřezy načítá z bodových knihoven ve formátu ACE. Samotný transport fotonů a neutronů je řešen pomocí metody Woodcock delta-tracking. Ačkoliv prvotní verze Serpentu představovala pouze zjednodušený kód pro výpočty v oblasti reaktorové fyziky, možnosti Serpentu 2 jsou dnes podstatně rozsáhlejší. Kromě tradičních úloh jako kritičnost či vyhořívání umožňuje např. citlivostní výpočty s využitím poruchové teorie, aj.

V současné době Serpent podléhá stále aktivnímu vývoji. Každá nově vydaná verze Serpentu je autorskou organizací validována srovnáním sady úloh s kódem MCNP (*Monte Carlo N-Particle Transport Code*). Výpočty se provádí na úrovni palivových souborů, koeficient násobení a homogenizované účinné průřezy musí být v rámci statistické nejistoty při použití stejných vstupních knihoven jaderných dat. Srovnání s MCNP se provádí i pro výpočty s vybranými nuklidy a určení energetického spektra neutronů [2][3].

Z hlediska hodnocení kvality výpočtových programů v ČR je zajišťování kvality programů povinností autor- ské i uživatelské organizace, zároveň je žádoucí provést nezávislé hodnocení ze strany místního jaderného dozo- ru. Pro využití Serpentu v České republice proto není validace pouze autorskou organizací postačující a kód musel projít samostatným procesem validace zde v ČR [4]. Tato validace proběhla v roce 2018 za spolupráce týmů ze Škoda JS, ÚJV Řež a FJFI ČVUT. K výpočtům byla použita tehdy aktuální verze Serpentu 2.1.30, vy- daná v únoru 2018.

2. PROCES VALIDACE V ČR

V České republice musí být veškeré výpočtové analýzy v jaderné bezpečnosti prováděny pouze ověřenými kódy, které musí splňovat požadavky Státního úřadu pro jadernou bezpečnost (SÚJB) dané směrnicí VDS 030 [5]. V rámci tohoto procesu byla SÚJB předložena rozsáhlá validační dokumentace.

K validaci Serpentu byly provedeny výpočty z těchto oblastí:

- kritičnost,
- rozložení hustoty toků neutronů a jeho funkcionalů,
- reaktivita a rozložení výkonu v aktivní zóně reaktoru ve stavech HZP i na výkonu,
- izotopický inventář ozářeného paliva a zbytkový výkon VJP.

Vzhledem k rozsáhlosti výše popsaných oblastí se tento příspěvek omezuje pouze na popis výpočtů kritických srovnávacích úloh, které představují důležitý bod v procesu validace.

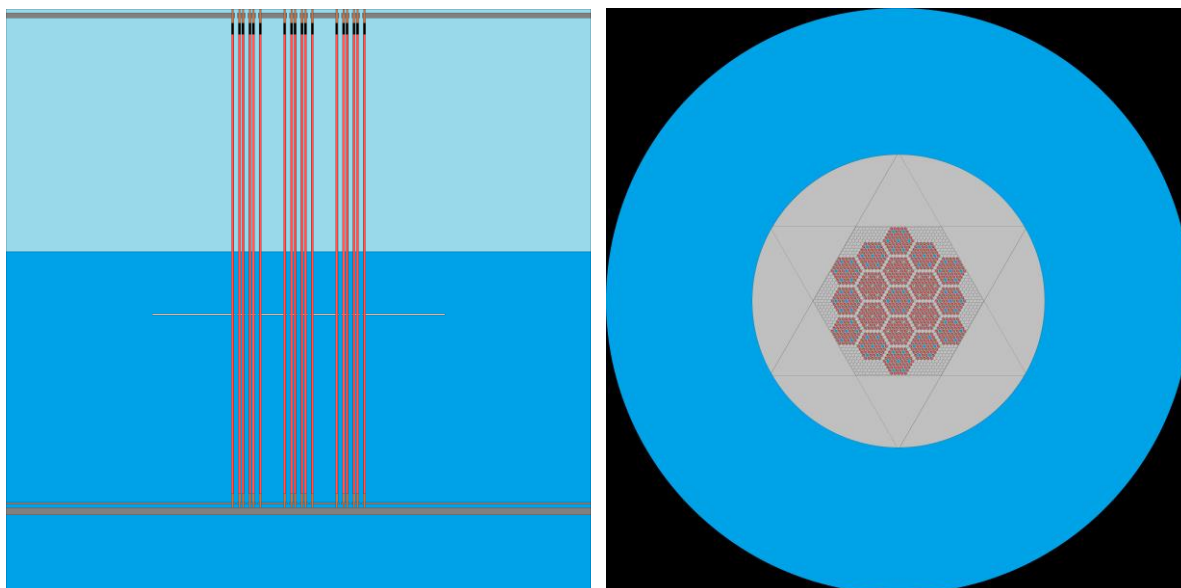
3. KRITICKÉ SROVNÁVACÍ ÚLOHY

Pro ověření výpočtů kritičnosti byly použity úlohy z databáze ICSBEP (*International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project*). Součástí každé úlohy v databázi je její detailní popis – uspořádání palivových proutků, rozměrů jednotlivých částí modelu, materiálové složení aj. Některé benchmarky obsahují také např. vstupy pro jiné Monte Carlo výpočetní kódy a výsledky k_{eff} po jejich propočtení s vybranou knihovnou. Hodnota efektivního koeficientu násobení k_{eff} by u všech úloh měla být rovna 1, jelikož je však každá experimentální úloha zatížena nejistotou, může být skutečná experimentální hodnota mírně odlišná od 1.

V rámci validace byly z databáze ICSBEP vybrány úlohy týkající se reaktorů typu VVER/PWR s nízkoobohaceným uranovým palivem v tepelném spektru neutronů – všechny tyto úlohy mají označení LEU-COMP-THERM (zkr. LCT). Z nich bylo vybráno 687 úloh z 39 sad benchmarků, z čehož 507 úloh bylo převzato z originální validační sady autorské organizace a zbylých 180 úloh bylo nově připraveno v rámci této validace. Ve Škoda JS bylo připraveno 111 úloh, zbylých 69 úloh připravila Katedra jaderných reaktorů FJFI.

Z hlediska formulace byly úlohy v rámci své sady velmi podobné. Obvykle se měnil pouze počet či uspořádání proutků, což se kompenzovalo změnou hladiny moderátoru či obsahem absorbátoru. Každá úloha pak byla propočtena s čtyřmi různými knihovnami jaderných dat:

- ENDF/B-VIII.0 (2018), data převzata z *Nuclear Data Team Los Alamos National Laboratory*,
- ENDF/B-VII.1 (2011), data z distribuce MCNP,
- JEFF-3.3 (2017), data připravená programem NJOY,
- JEF-2.2 (1993), data z distribuce Serpentu.

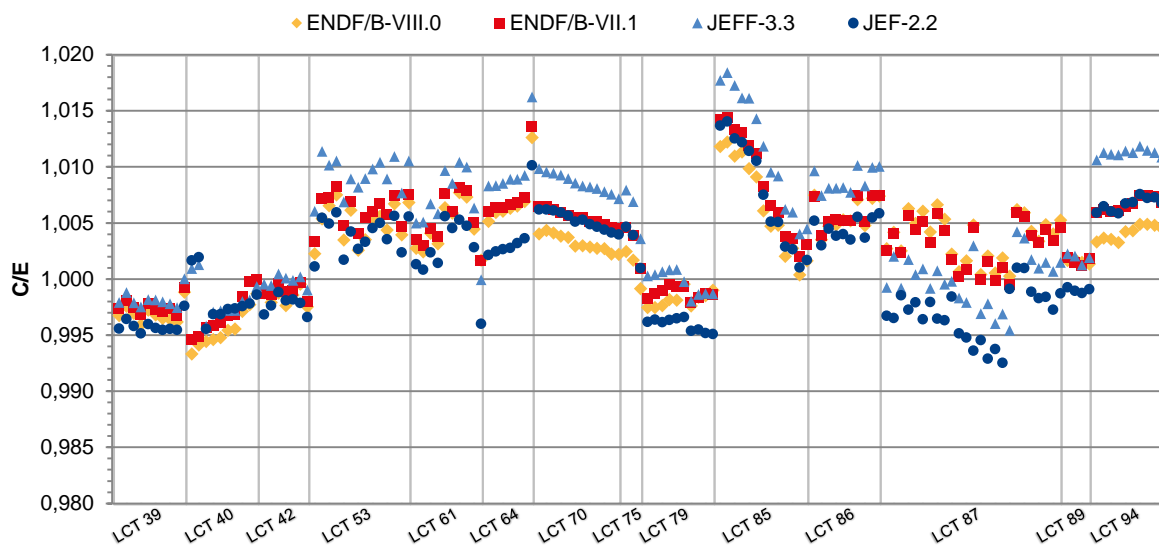


Obr. 1: Ukázka modelu kritické srovnávací úlohy LCT 36 v Serpentu.

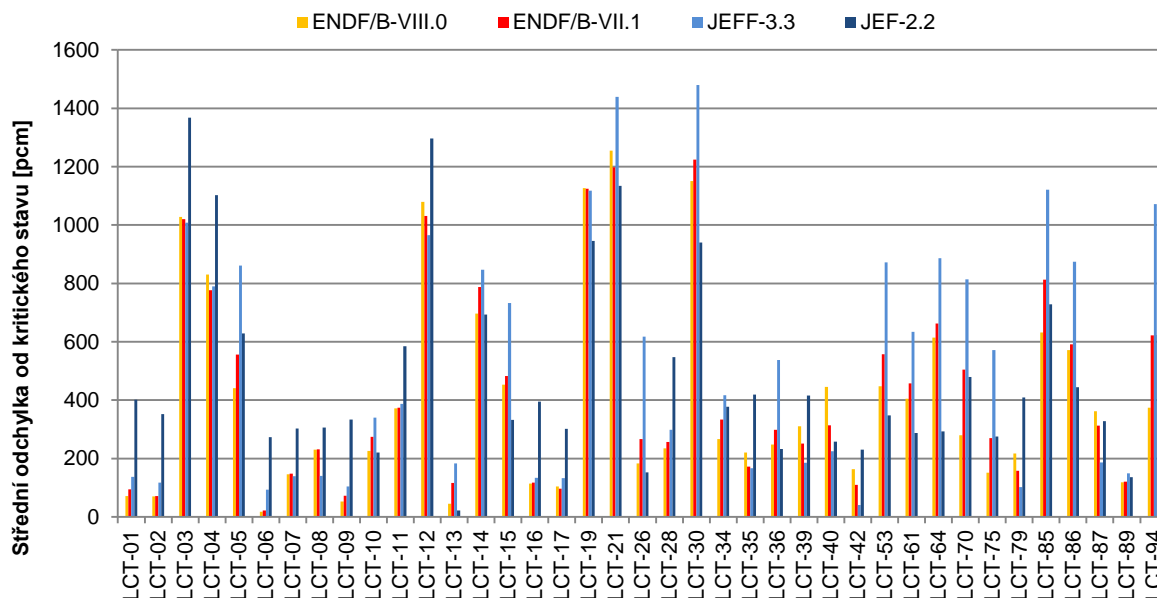
4. VÝSLEDKY

Při hodnocení vypočtených úloh lze výsledné k_{eff} srovnat buď s experimentální hodnotou a určit poměr mezi výpočtem a experimentem (C/E), nebo jej porovnat s výsledkem jiného kódu, např. MCNP. V prvním případě přispívá k rozdílu mezi výpočtem a experimentem zjednodušení výpočetního modelu úlohy oproti reálnému stavu, svou roli hrají také neurčitosti jaderných dat nebo nejistota experimentu samotného. V případě srovnání výsledků s MCNP je situace jednodušší vzhledem k podobnostem obou kódů – výpočetní model je prakticky totožný (stejná definice geometrie, materiálů i jaderných dat). Při validaci Serpentu byly uplatněny oba výše uvedené přístupy, výsledky MCNP však byly dostupné pouze u některých úloh.

Shoda mezi experimentem a výpočtem Serpentu se liší podle typu úlohy a knihovny jaderných dat. Některé sady úloh mají vyšší odchylku poměru C/E, většina těchto úloh však vykazuje odchylky mezi referenčními hodnotami výpočtů a experimentů přímo v databázi ICSBEP. Při srovnání stejné sady s výsledky MCNP jsou výsledky mezi MCNP a Serpentelem v dobré shodě. U některých sad je rovněž patrný trend v poměru C/E (viz např. LCT 70 na Obr. 2). Oba tyto jevy jsou zřejmě způsobeny nedostatky v popisu dané úlohy [3].



Obr. 2: Poměr C/E vybraných úloh ze sad LCT 39–94 vypočtených v Serpentu.

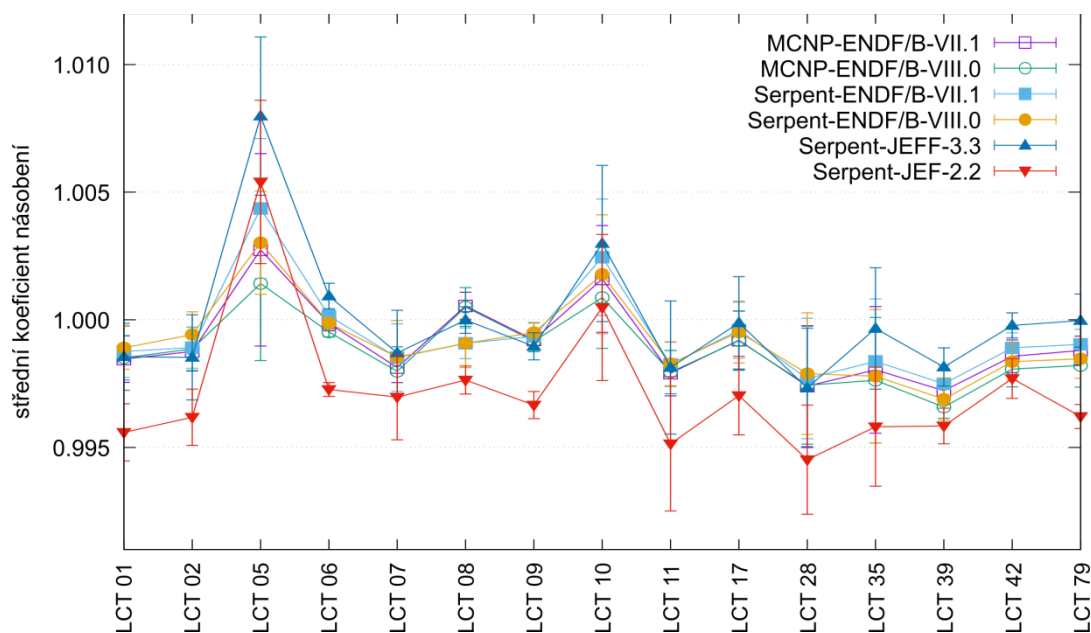


Obr. 3: Střední odchylka od kritického stavu pro všechny sady úloh vypočtených kódem Serpent.

Z hlediska knihoven jaderných dat dosahují všechny knihovny podobných výsledků. Zde byly úlohy hodnoceny ze dvou pohledů: všechny úlohy (687 úloh), a pouze úlohy, u nichž jsou k dispozici výsledky z MCNP (198 úloh). Při srovnání úloh s MCNP vykazují všechny knihovny velmi dobrou shodu s výjimkou knihovny JEF-2.2. Tato knihovna navíc v drtivé většině případů podhodnocuje koeficient násobení v porovnání s ostatními knihovnami (viz Obr. 4). Naopak při srovnání všech úloh vyazuje knihovna JEF-2.2 nejlepší střední shodu mezi experimentem a výpočtem (viz Tab. 1). Za spolehlivé lze označit výsledky s knihovnami ENDF/B-VII.1 a ENDF/B-VIII.0, které mají v obou typech srovnání velmi dobré výsledky a mají nejmenší směrodatnou odchylku. Knihovna JEFF-3.3 naopak v obou srovnáních vyazuje největší rozptyl výsledků [3].

Tab. 1: Střední poměr C/E a jeho směrodatná odchylka při celkovém hodnocení výpočtů Serpentu a MCNP.

| knihovna | všechny úlohy | úlohy s výsledky MCNP | |
|---------------|-------------------|-----------------------|-------------------|
| | Serpent | Serpent | MCNP |
| ENDF/B-VIII.0 | 1.00113 ± 0.00496 | 0.99954 ± 0.00224 | 0.99905 ± 0.00202 |
| ENDF/B-VII.1 | 1.00169 ± 0.00510 | 0.99981 ± 0.00250 | 0.99940 ± 0.00228 |
| JEFF-3.3 | 1.00306 ± 0.00607 | 1.00032 ± 0.00333 | — |
| JEF-2.2 | 0.99949 ± 0.00564 | 0.99762 ± 0.00331 | — |



Obr. 4: Srovnání koeficientu násobení mezi Serpentem a MCNP pro vybrané sady úloh.

5. ZÁVĚR

V rámci validačních výpočtů kritických srovnávacích úloh s nízkoobohaceným uranovým palivem v tepelném spektru neutronů se ukázalo, že výpočetní kód Serpent je pro tento typ úloh schopen spolehlivě určit koeficient násobení. Výsledky Serpentu jsou v dobré shodě s výsledky vypočtenými kódem MCNP. Jako nejspolehlivější se ukázaly výpočty s jadernými daty knihoven ENDF/B. Knihovna JEF-2.2 nebyla ve validační dokumentaci doporučena.

Výpočetní kód Serpent byl úspěšně validován dle směrnice SÚJB a 20. listopadu 2018 byl přijat mezi hodnocené programy pro jadernou bezpečnost.

LITERATURA

- [1] Leppänen, J., et al. (2015) "*The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013.*" Ann. Nucl. Energy, 82 (2015) 142-150.
- [2] VTT. „*Serpent – A Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code.*“ <http://montecarlo.vtt.fi>
- [3] Frýbort, J., Haroková, P. (2018): *Validační zpráva programu Serpent – posouzení výpočtů kritických srovnávacích úloh.* ÚJV report ORF-2018-035.
- [4] Státní úřad pro jadernou bezpečnost. „*Koncepce posuzování nových typů jaderného paliva v České republice: Licenční požadavky na projekt paliva a aktivní zóny.*“ Bezpečnostní návod. SÚJB, Praha, listopad 2005.
- [5] Česko. Státní úřad pro jadernou bezpečnost. Směrnice VDS 030/1996 (rev. 1/2001) k hodnocení výpočtových programů pro posuzování jaderné bezpečnosti.

Zjednodušený výpočet bezpečnostnej analýzy kritickosti skladovacieho bazénu vyhoreného paliva

Peter Hausner¹, Gabriel Farkas¹, Katarína Kaprinayová¹, Kristína Krištofová¹, Michal Šnírer¹, Vladimír Slugeň¹

xhausnerp@stuba.sk

¹Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva, Ilkovičova 3, Bratislava, 812 19, Slovensko

Abstrakt: Práca je zameraná na bezpečnostnú analýzu kritickosti skladovacieho bazénu vyhoreného paliva pre elektrárňu Mochovce 1,2. Na tvorbu zjednodušeného výpočtového modelu bol použitý kód MCNP5 s knižnicami ENDF/B-VII. Model sa skladá z kompaktnej mreže naplnenej pracovnými palivovými kazetami s obohatením 4,87%. Za účelom zvýšenia operatívnej kapacity kompaktnej mreže sa do jej priestoru vložilo niekoľko absorpčných častí kaziet HRK na zabezpečenie limitu podkritickosti, ktorý je stanovený legislatívou. Pri výpočte bol aplikovaný konzervatívny prístup a geometrické zjednodušenia. Cieľom týchto výpočtov je stanoviť optimálnu konfiguráciu absorbátorov v kompaktnej mreži bazénu vyhoreného paliva. Tieto výpočty na zjednodušenom modeli sa vykonali s cieľom znížiť výpočtový čas. Najlepšie konfigurácie zavezenia bazénu vyhoreného paliva boli použité pre výpočty a optimalizáciu na komplexnejšom výpočtovom modeli s vyššou presnosťou.

Kľúčové slová: jadrová bezpečnosť, bazén vyhoreného paliva, MCNP5 kód, palivová kazeta, absorbátor

1. ÚVOD

Bazén skladovania vyhoreného paliva (BSVP) je zariadenie určené na skladovanie použitých palivových kaziet podľa legislatívou stanovených predpisov [1]. Hlavný cieľ tejto práce je zvýšenie operatívnej skladovacej kapacity BSVP. Toto bolo dosiahnuté zasunutím 24 absorbátorov z kontrolných kaziet do priestoru kompaktnej mreže namiesto 4 voľných radov z dôkladom na bezpečnostný limit v ustálenom stave $k_{eff}^{max} = 0.95$ stanoveným vo vyhláske [1]. Cieľom je nájdenie optimálnej konfigurácie záväzky absorbátorov do kompaktnej mreže BSVP.

2. METODOLÓGIA

Kompaktná mreža bazénu je silno podmoderovaný systém. Z hľadiska voľby konzervatívnych parametrov výpočtu je to veľmi dôležité. Všetky konzervatívne zvolené parametre a zjednodušenia musia zvyšovať hodnotu vodo-uránového pomeru alebo výsledného efektívneho multiplikačného koeficientu. Ná výpočet maximálnej hodnoty k_{eff} v závislosti od konfigurácie zavezenia absorbátorov bol vytvorený zjednodušený model kompaktnej mreže BSVP v programe MCNP5 [2]. Na výpočet bola použitá knižnica ENDF/B-VII.0. Tento výpočtový model je striktno konzervatívny a vypočítané výsledky, ako aj zvolené parametre by sa nikdy nemali dosiahnuť pri bezpečnom ustálenom stave reálneho systému. Hlavné zvolené konzervatívne parametre sú v tab. 1.

Tab. 1: Konzervatívne hodnoty vstupných geometrických a materiálových parametrov [3][4].

| Č. | Parameter | Nominálna hodnota | Tolerancia | Konzervatívna hodnota |
|----|-----------------------------------------------------------------|-------------------------------|-----------------|------------------------|
| 1 | Krok mriežky palivových prútikov | 12,3 mm | $\pm 0,12$ mm | 12,42 mm |
| 2 | Krok mreže absorpčných rúr | 162 mm | $\pm 0,842$ mm | 161,158 mm |
| 3 | Krok mreže hermetických puzdier | 230 mm | | 230 mm |
| 4 | Stredné obohatenie paliva ^{235}U v PK | 4,87 %hm. | $\pm 0,05$ %hm. | 4,92 %hm. |
| 5 | Stredné obohatenie ^{235}U v palivovom prútiku "TVEL" | 4,6 %hm. 4,95 %hm. | $\pm 0,05$ %hm. | 4,65 %hm. 5,00 %hm. |
| 6 | Stredné obohatenie ^{235}U v palivovom prútiku "TVEG" | 4,4 %hm. | $\pm 0,05$ %hm. | 4,45 %hm. |
| 7 | Koncentrácia Gd_2O_3 v palivovom prútiku "TVEG" | 3,35 %hm. | $\pm 0,15$ %hm. | 3,20 %hm. |
| 8 | Hustota materiálu paliva v "TVEL" a "TVEG" prútiku | 10,4 – 10,7 g/cm ³ | | 10,7 g/cm ³ |
| 9 | Koncentrácia bóru v oceli ATABOR | 1,00 %hm. | | 0,95 %hm. |
| 10 | Teplota chladiacej vody | 50 °C | | 4 °C |
| 11 | Koncentrácia H_3BO_3 v chladiacej vode | | | 0,0 g/kg |
| 12 | Hmotnostný podiel bóru v bórovej oceli nastavca kazety HRK | 1,6 -2,0 %hm. | | 1,6 %hm. |

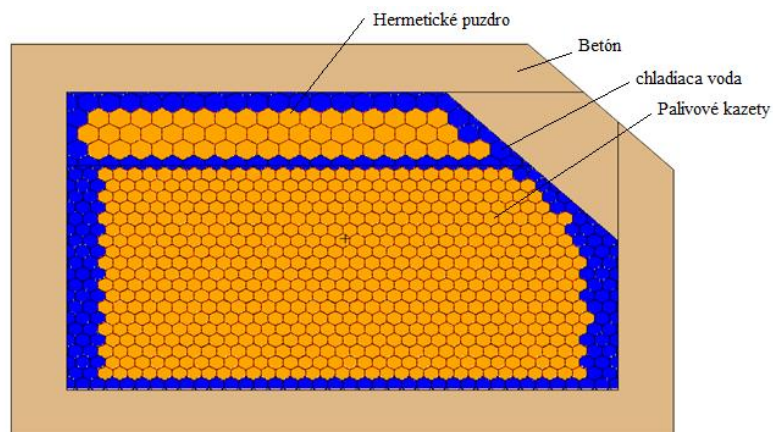
Pri výbere najlepších výsledkov pre neskoršie použitie na optimalizáciu bezpečnostnej analýzy kritickosti boli vykonané nasledujúce úlohy:

- A. Tvorba zjednodušeného modelu kompaktnej mreže BSVP, palivovej kazety a absorpčnej časti kazety HRK s uvažovaním konzervatívneho prístupu.
- B. Tvorba rôznych scenárov zavezenia 24 absorbátorov do priestoru kompaktnej mreže.
- C. Vyhodnotenie výsledkov a stanovenie optimálnej konfigurácie zavezenia absorbátorov.

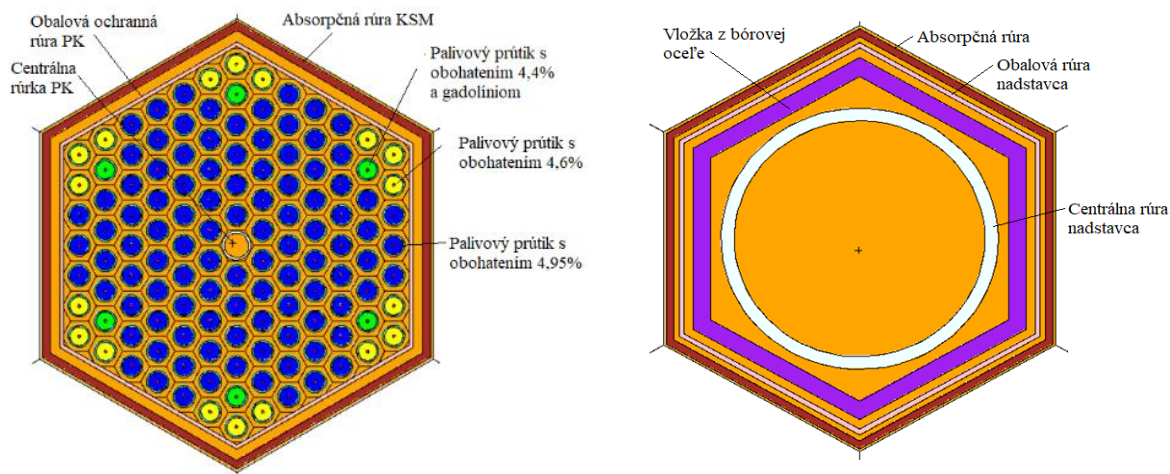
2.1. ZJEDNODUŠENÝ MODEL BAZÉNU SKLADOVANIA VYHORENÉHO PALIVA

Za účelom zníženia výpočtového času bol vytvorený nový trojrozmerný model BSVP. Tento zjednodušený model je iba časť zariadenia skladovacieho bazéna. Pozostáva z kompaktnej mreže s absorpčnými rúrami, hermetickými puzdrami a betónovou šachtou okolo kompaktnej mreže (Obr. 1). Výška modelu bola zvolená na 248 cm, kvôli výške palivových prútikov pri teplote 20 °C. Bazén skladovania vyhoreného paliva je zavezený palivovými kazetami s priemerným obohatením 4,87%. Všetky konštrukčné komponenty kompaktnej mreže boli v tomto modeli zanedbané s ohľadom na konzervatívny prístup. Kapacita kompaktnej mreže BSVP je 603 miest v absorpčných rúrach a 54 miest v hermetických puzdách, ktoré slúžia na odkladanie poškodených/netesných palivových kaziet [5].

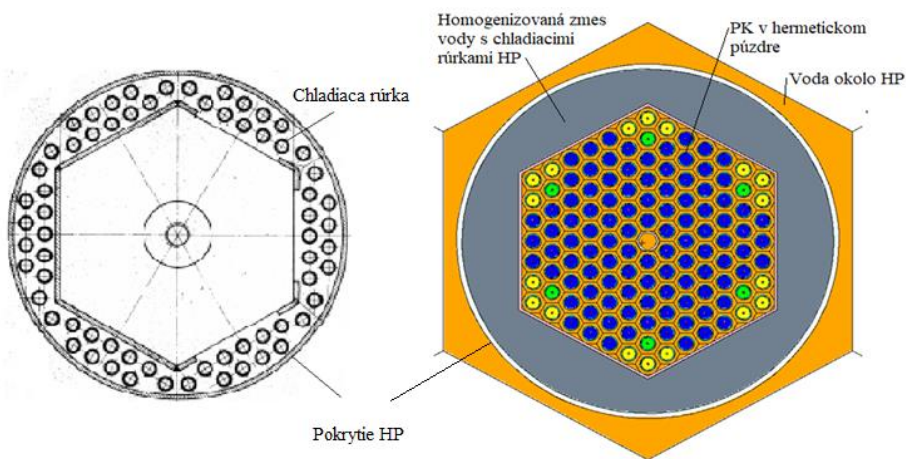
V modeli palivovej kazety boli zanedbané dištančné mriežky ako aj horná a dolná hlavica. Model palivovej kazety pozostáva z centálnej rúrky, palivových prútikov a pokrytia kazety. Model hermetického puzdra je zložený z homogenizovanej zmesi ocele chladiacich rúrok a chladiacej vody. Model absorpčnej časti kazety HRK sa skladá z bórovej ocele, pokrytia kazety a centrálnej rúry. V absorpčnej časti kazety HRK je 22 vložiek z bórovej ocele s hrúbkou 7,1 mm a výškou 102 mm. Tieto vložky boli v modeli uvažované ako jeden kus [5].



Obr. 1: MCNP5 model kompaktnej mreže BSVP



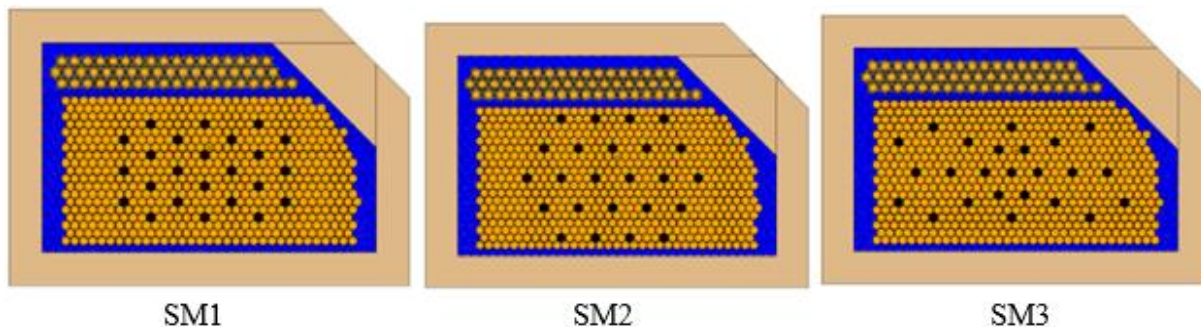
Obr. 2: Model palivovej kazety (v ľavo) a absorpčnej časti kazety HRK (v pravo)



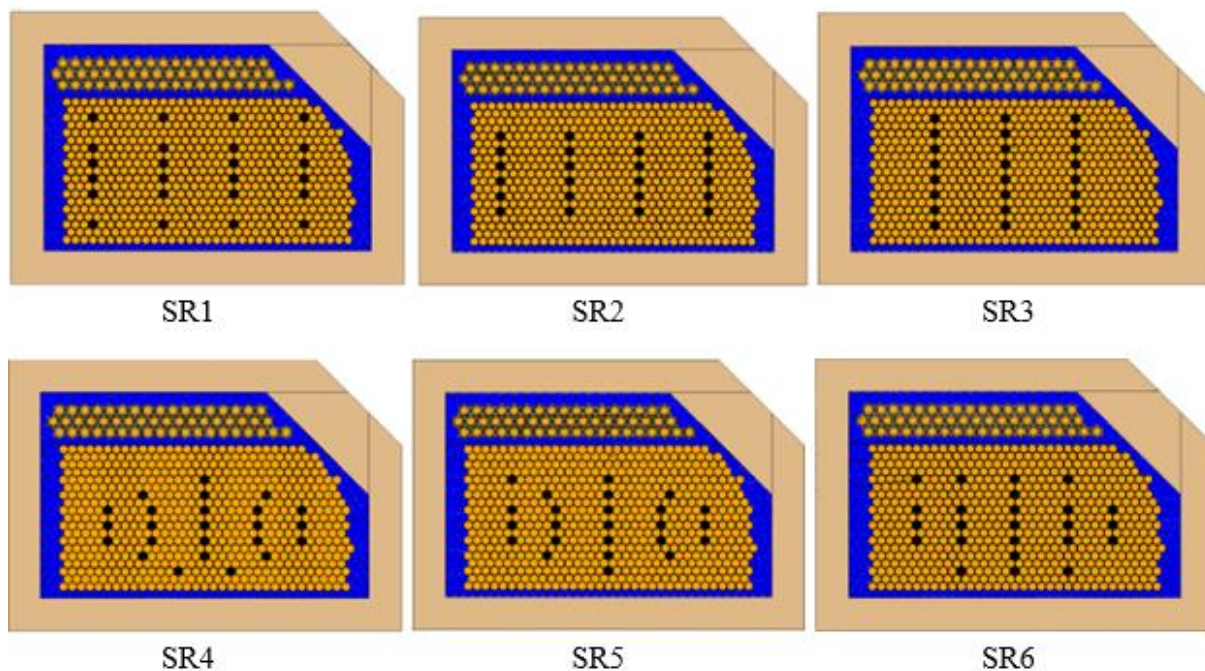
Obr. 3: Model hermetického puzdra s palivovou kazetou

2.2. SCENÁRE VÝPOČTU

Rôzne scenáre zavezenia absorbátorov do priestoru kompaktnej mreže BSVP boli vytvorené s uvážením rozloženia hustoty toku tepelných neutrónov. Pôvodný scenár bol počítaný s plným zavezením kompaktnej mreže palivovými kazetami, bez použitia absorbátorov z kaziet HRK vid'. Obr. 1. Ostatné scenáre boli vytvorené krokovo. Vkladaním absorbátorov kaziet HRK do miesta s najvyššou hustotou toku tepelných neutrónov, teda miesta s najvyššou váhou absorbátora. Finálne scenáre zvolené na zjednodušenú analýzu kritickosti sú na Obr. 4 a 5. Tieto scenáre sú založené na dvoch prístupoch zavážania absorbátorov – „do mreže“ a „do radov“.



Obr. 4: Scenáre zavezenia „do mreže“



Obr. 5: Scenáre zavezenia „do radov“

2.3. VÝSLEDKY VÝPOČTU

Maximálna hodnota efektívneho multiplikačného koeficientu k_{eff}^{max} bola stanovená z výstupnej hodnoty konzervatívneho výpočtu k_{eff}^{conser} , korigovaného systematickou chybou Δ_{bias} , smerodajnými odchýlkami z výpočtu a neistôt vstupných dát s uvažovaním konzervatívneho prístupu podľa rovnice (1). Kombinovaná neistota bola vynásobená koeficientom $k = 1,695$, ktorý reprezentuje pravdepodobnostný interval 95,5% pri normálnom rozložení (interval 2σ).

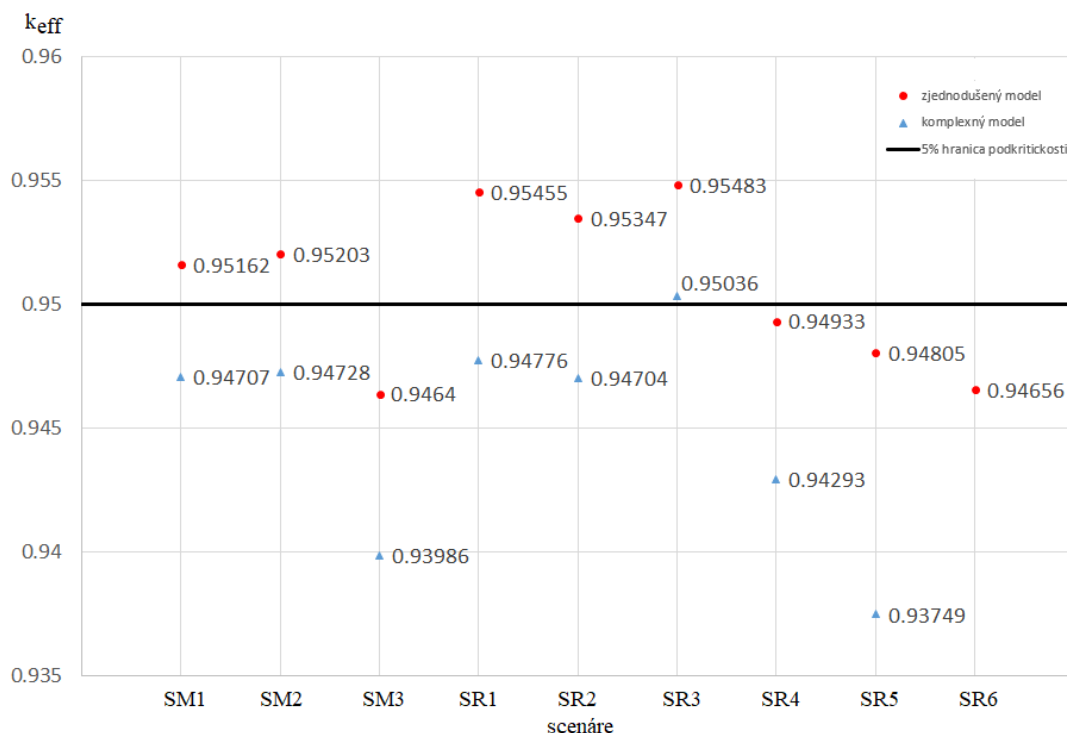
$$k_{eff}^{max} = k_{eff}^{conser} + \Delta_{bias} + 1,695 \sqrt{\sigma_{exp}^2 + \sigma_{cal}^2 + \sigma_{conser}^2} \quad (1)$$

19. MIKULÁŠSKÉ SETKÁNÍ MLADÉ GENERACE ČNS 4. - 6. 12. 2019

Kde k_{eff}^{conser} je konzervatívnym výpočtom stanovená hodnota multiplikačného koeficientu, Δ_{bias} je systematická chyba, σ_{exp} je neistota experimentálne stanovenej hodnoty k_{eff} z benchmark úlohy, σ_{cal} je neistota výpočtom stanovenej hodnoty k_{eff} z benchmark úlohy a σ_{conser} je neistota k_{eff} stanovenej konzervatívnym výpočtom.

Tab. 2: Výsledky z výpočtov na zjednodušenom/komplexnom modeli BSVP

| Scenár | k_{eff}^{max} stanovené zjednodušeným modelom | k_{eff}^{max} stanovené komplexným modelom | Relatívna odchýlka od komplexného modelu [%] |
|--------|-------------------------------------------------|----------------------------------------------|----------------------------------------------|
| SF | 0,96910 | 0,95738 | 1,22 |
| SM1 | 0,95162 | 0,94707 | 0,48 |
| SM2 | 0,95203 | 0,94728 | 0,5 |
| SM3 | 0,94640 | 0,93986 | 0,69 |
| SR1 | 0,95455 | 0,94776 | 0,71 |
| SR2 | 0,95347 | 0,94704 | 0,68 |
| SR3 | 0,95483 | 0,95036 | 0,47 |
| SR4 | 0,94933 | 0,94293 | 0,68 |
| SR5 | 0,94805 | 0,93749 | 1,12 |
| SR6 | 0,94656 | - | - |



Obr. 6: Grafické porovnanie výsledkov zjednodušeného a komplexného modelu s limitnou hodnotou podkritickosti stanovenou ÚJD SR [1].

V tabuľke 2 a na obrázku 6 je možné vidieť, že výsledky výpočtov na zjednodušenom modeli BSVP udávajú konzervatívnejšie hodnoty ako výpočty na komplexnom modeli. Je to spôsobené nadhodnotením

konzervatívnych parametrov pri tvorbe modelu. Aj keď niektoré scenáre nespĺňajú požadovanú podkritickosť, poskytujú nám dobrý prehľad problému a scenáre s najlepšimi výsledkami boli ďalej použité na optimalizáciu zavážania absorbátorov do kompaktnej mreže.

3. ZÁVER

Scenáre SM3 a SR2 boli zvolené pre nasledujúcu optimalizáciu zavezenia asorbátorov do kompaktnej mreže bazénu skladovania vyhoreného paliva. Pri hľadani najlepšej konfigurácie zavezenia absorbátorov, sme posudzovali scenáre na základe výslednej počítanej hodnoty k_{eff}^{max} . Scenár SM3 udáva najlepší výsledok zo scenárov usporiadania "do mreže", pretože počítaná hodnota k_{eff}^{max} je pri ňom najmenšia. Aj keď scenár SR2 neposkytuje najlepší výsledok zo scenárov usporiadania "do radov", bol zvolený na zjednodušenie a skrátenie procesu zavážania absorbátorov do kompaktnej mreže. Scenár SR6 bol vytvorený vylepšením scenáru SR5. Scenár SR6 poskytuje najlepšie výsledky zo zvolených scenárov usporiadania "do radov" počítaných na zjednodušenom modeli. Scenár SR5 poskytuje najlepší výsledok zo scenárov usporiadania do "radov" počítaných na komplexnom modeli. Preto by scenár SR6, ktorý bol vytvorený vylepšením scenáru SR5 udával ešte lepšie výsledky. Mohol by sa použiť, ak by sa uvažovalo použitie všetkých 24 absorbátorov na zabezpečenie podkritickosti v kompaktnej mreži BSVP. Takto by sa uvoľnilo aspoň 47 miest pre palivové kazety. Neskoršia optimalizácia ale ukázala, že operatívna kapacita bazénu skladovania vyhoreného paliva sa ešte dá zvýšiť.

Výpočtový čas nie je závislý iba od komplexnosti modelu, ale aj od zvolených parametrov výpočtu. Výpočty boli robené kódom MCNP5 použitím funkcie KCODE s 2500 cyklami (250 neaktívnych) a 100000 neutrónmi. Čas získaný jedným výpočtom je približne 5 hodín, pričom výpočet na zjednodušenom modeli trval maximálne 3 a pol hodiny, pričom získaná časová úspora rastie s použitím väčšieho množstva cyklov.

POĎAKOVANIE

Tento príspevok vznikol za podpory projektu VEGA 1/0104/17.

LITERATÚRA

- [1] Vyhláška ÚJD SR č. 30/2012 Z. z. v znení vyhlášky č. 101/2016 Z. z., ktorou sa ustanovujú podrobnosti o požiadavkách pri nakladaní s jadrovými materiálmi, rádioaktívnymi odpadmi a vyhoreným jadrovým palivom, 2016.
- [2] X-5 Monte Carlo Team, MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume III: Developer's Guide. LA-CP-03-0284. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 24-Apr-2003.
- [3] Predprevádzková bezpečnostná správa PPBS pre EMO12, Gd palivo 4,87%, kapitola 4. Reaktor, Revízia 1, EMO12, SE a.s. 2011.
- [4] *Pre-operational Safety Report for NPP EMO revision 1 - Supplement no. 3, 1 and 2 unit.* Federal Agency for Atomic Energy, Federal State Unitary Enterprise OKB GIDROPRES, Federal State Institution RSC Kurchatov Institute, U213-TI-1768, 2005.
- [5] Technologický predpis TP/1036, Zariadenie skladovania a transportu vyhoreného paliva. Jadrová elektrárň Mochovce. 2009.
- [6] X-5 Monte Carlo Team, MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume II: User's Guide. LA-CP-03-0245. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 24-Apr-2003.

Možnost nedestruktivní kontroly biologického stínění reaktoru

Fatih Caktur^{1,2}, Zbyněk Hlaváč¹, Jaroslava Zatloukalová¹

E-mail: j.zatloukalova@cvrez.cz

¹Research Centre Rez, Řež-Husinec, Czech Republic

²Eskisehir Technical University, İkiEylül Campus, 26555-Eskisehir, Turkey

Abstrakt: Neutrony ozařované betonové konstrukce jaderných elektráren jsou vystaveny vysokému namáhání. Z toho důvodu mohou s časem vykazovat známky poškození a výskyt trhlin, a proto je nutné najít vhodné nedestruktivní metody pro spolehlivou diagnostiku jejich stavu a integrity materiálu. Ultrazvuková metoda dvoufrekvenčního směšování byla vyvinuta pro nedestruktivní detekci trhlin v betonu. Cílem tohoto příspěvku je porovnat konvenční nedestruktivní a destruktivní metody testování betonu s novou metodou nelineární ultrazvukové spektroskopie při použití na vzorcích běžného betonu. Poškození betonu neutrony bylo simulováno teplotním zatěžováním zkušebních těles. Byly použity metody: ultrazvuková impulzní metoda, rezonanční metoda, stanovení pevnosti betonu v tlaku, stanovení pevnosti betonu v tahu za ohybu a nová metoda dvoufrekvenčního směšování.

Klíčová slova: Nelineární ultrazvuková spektroskopie, beton, ozařování

1. ÚVOD

Ozařování betonu neutrony způsobuje poškození mikrostruktury materiálu v důsledku samotné interakce neutronů s materiálem a také nepřímo v důsledku vystavení betonu vysokým teplotám, jež ozařování doprovázejí. Tento problém se týká zejména betonu biologického stínění jaderných elektráren [1]. Beton biologického stínění vymezující prostor reaktorové šachty je velmi těžko přístupný pro konvenční diagnostické metody, přičemž metody destruktivní či semi-destruktivní jsou zde zcela mimo možnosti použití. Z toho důvodu hraje nedestruktivní testování velmi významnou roli v posuzování stavu konstrukce.

Nelineární spektroskopie je založena na měření elasticko-plastické odezvy materiálu vznikající přítomností mikrotrhlin. Část této odezvy může být způsobena samotnou nehomogenitou materiálu nebo nelinearitou použitého testovacího systému, jež je potřeba minimalizovat.

Metoda dvoufrekvenčního směšování je založena na postupném vyslání dvou budících signálů a jejich následném směšování. V současné době jsou možné dva způsoby použití této metody pro beton: a) směšování nízko-frekvenčního signálu (cca 5-20 kHz) a vysokofrekvenčního signálu (cca 70-120 kHz) nebo b) směšování dvou signálů o podobných frekvencích. Zaznamenaná odezva je poté zpracována pomocí Rychlé Fourierovy transformace. Poškození materiálu je promítnuto do výsledného spektra, jež se liší od „zdravého“ materiálu výskytem vyšších harmonických složek signálů a postranních pásem. Tato procedura se tak stává efektivním nástrojem pro nedestruktivní testování betonových konstrukcí [2, 3].

Tento příspěvek porovnává možnosti využití nelineární ultrazvukové spektroskopie s konvenčními metodami testování v závislosti na výsledcích dosažených z destruktivního testování zkušebních těles betonu, jež byly zatěžovány vysokými teplotami.

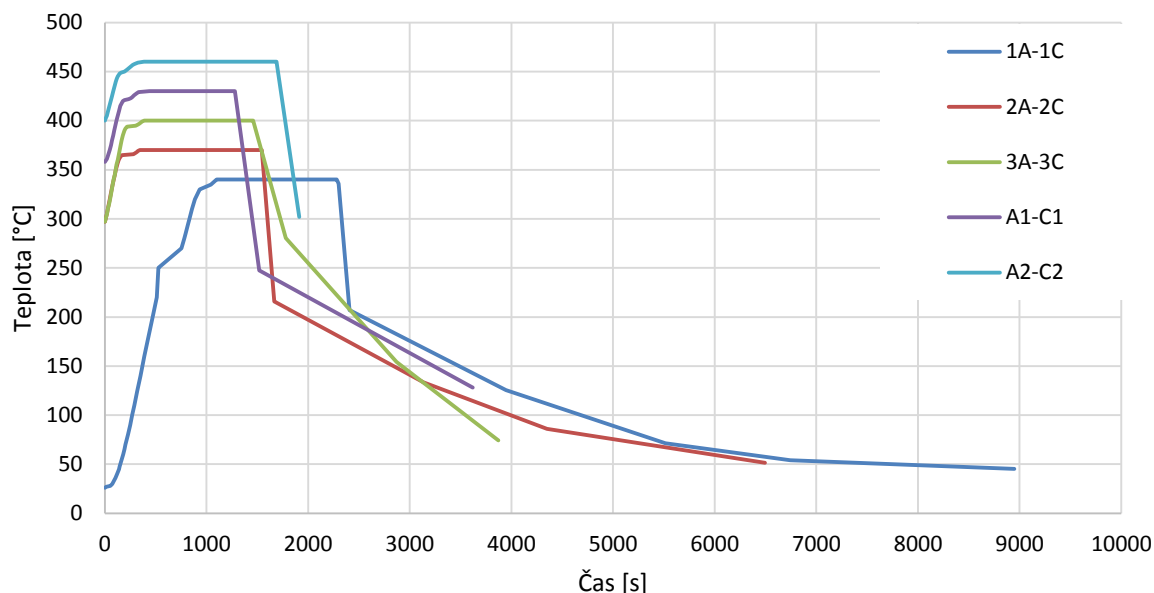
2. EXPERIMENTÁLNÍ PROGRAM

Výroba zkušebních betonových těles byla provedena ve dvou po sobě následujících dnech. Materiálové složení vzorků bylo následující: 3450 g plniva, konkrétně se jednalo o jemné křemičité kamenivo, 1150 g Portlandského směsného cementu CEM II 32,5 a 575g vody, vodní součinitel tedy byl stanoven na hodnotu 0.5. Čerstvou směsí se vyplnily formy pro zkušební tělesa o rozměrech 40 x 40 x 160 mm. Bylo vyrobeno šest sad totožného

složení, které byly po 2 letech zrání teplotně zatěžovány pro simulaci poškození betonu radioaktivním zářením. První sada vzorků byla určena jako referenční (s označením A3, B3 a C3), tj. byla ponechána v laboratorních podmínkách bez teplotního zatížení. Ostatní sady pak byly postupně vypalovány na 340 – 460 °C (viz Tab. 1 a obr. 1). Všechna zkušební tělesa byla zkoušena nedestruktivně, pomocí metod ultrazvukové impulsní techniky, impakt echo, dvoufrekvenčního směřování a destruktivním zkoušením, tj. stanovení pevnosti betonu v tlaku a v tahu za ohybu.

Tab. 1: Teploty výpalu jednotlivých vzorků

| Sample Name | Heating Temperature [°C] | Sample Name | Heating Temperature [°C] |
|-------------|--------------------------|-------------|--------------------------|
| A3 | 26 | 3A | 400 |
| B3 | 26 | 3B | 400 |
| C3 | 26 | 3C | 400 |
| 1A | 340 | A1 | 430 |
| 1B | 340 | B1 | 430 |
| 1C | 340 | C1 | 430 |
| 2A | 370 | A2 | 460 |
| 2B | 370 | B2 | 460 |
| 2C | 370 | C2 | 460 |



Obr. 1: Průběh teplot při teplotním zatěžování zkušebních těles

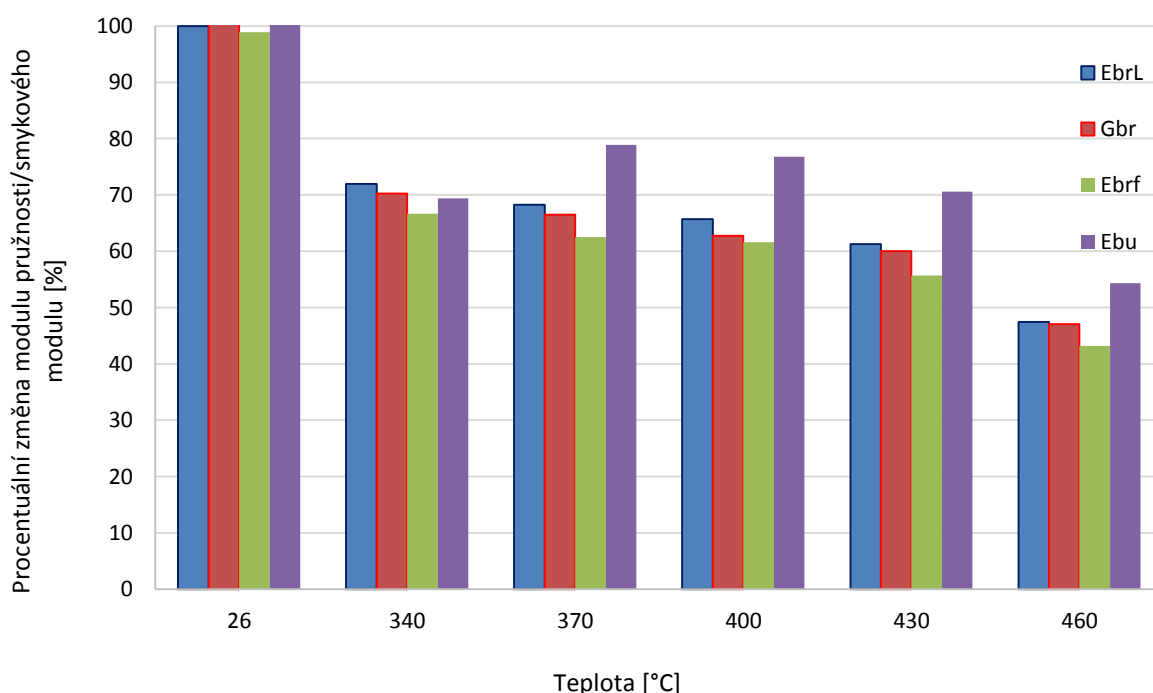
3. VÝSLEDKY

Obrázek 2 porovnává výsledky měření ultrazvukové impulsní metody, z níž byl získán dynamický modul pružnosti E_{bu} a metody impakt echo, která poskytla jak hodnoty dynamických modulů pružnosti E_{brL} (v podélném směru), E_{brf} (v příčném směru), tak hodnoty smykového modulu G_{br} . Změny vyvolané teplotním zatěžováním se nejvíce projeví ve změnách parametru E_{brf} , kdy došlo při výpalu na nejvyšší teplotu (tj. 460°C) k poklesu až o 56,8% oproti hodnotě naměřené na „zdravých“ vzorcích, tj. referenčních (uchovávaných při pokojové teplotě 26°C). Naproti tomu dynamický modul získaný ultrazvukovou impulsní metodou (E_{bu}) nevykazoval tak značné změny, kdy při maximální teplotě výpalu došlo k poklesu o 45,7%. Také ve všech ostatních případech teplotního zatěžování se změna modulu pružnosti E_{bu} projevila nejméně. Z toho vyplývá, že ultrazvuková impulsní metoda je méně citlivá na změny v mikrostruktuře poškozeného betonu než metoda impakt echo.

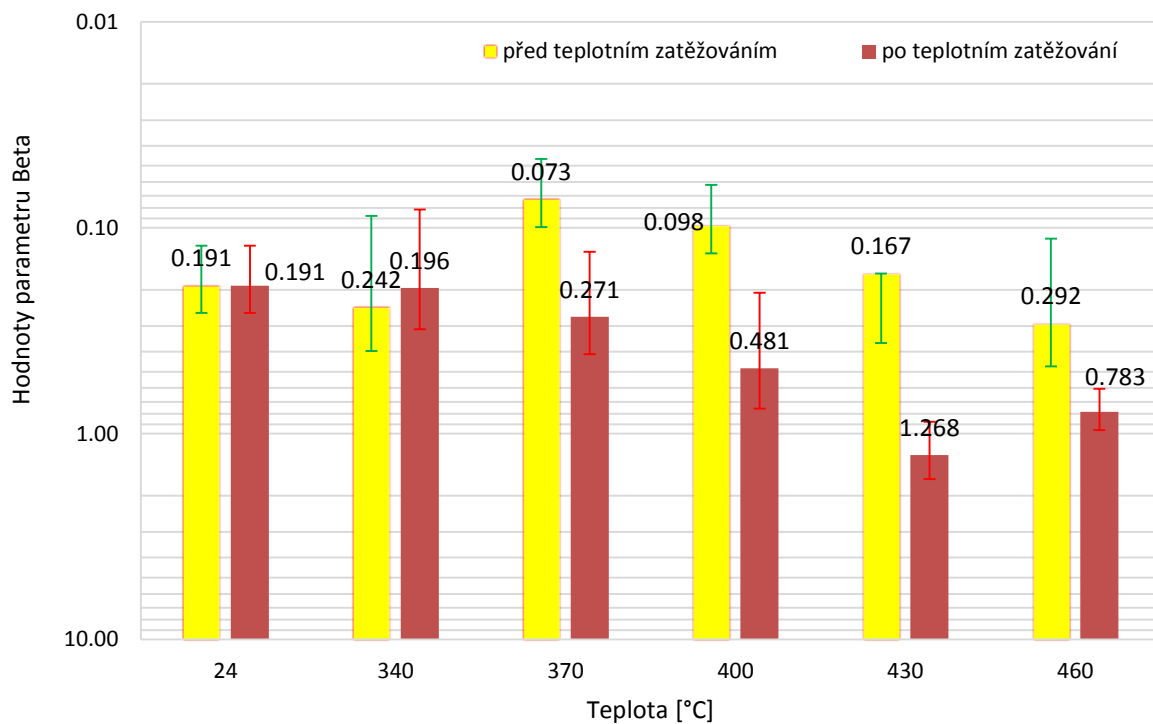
Obrázek 3 přináší výsledky měření nově vyvinutou nelineární ultrazvukovou metodou dvoufrekvenčního směšování před a po teplotním zatěžování. Nelineární parametr β stoupá se stoupajícím stupněm poškození betonu, tj. s nárůstem teploty zatěžování. Tento parametr je velice citlivý na výskyt jakýchkoli nehomogenit v betonu, proto je nutné vyloučit z měření možný vliv přirozených nehomogenit heterogenního materiálu jako je beton (např. přechody mezi cementovou maticí a kamenivem, porozita apod). Avšak při vyloučení těchto vlivů a větším počtu měření se parametr β stává velmi účinným ukazatelem. Z grafu vyplývá, že se tento parametr s poškozením betonu mění až o stovky procent. Nejvyšší změny dosáhla zkušební tělesa vystavená teplotě 430 °C, kde došlo k nárůstu hodnot až o 759 % (z hodnoty 0,167 před výpalem až na hodnotu 1,268 po výpalu). Z grafu je ale také patrná abnormalita v očekávaném trendu, kdy u zkušebních těles vystavených teplotě 340°C došlo k poklesu hodnoty parametru β o 19 %.

Výsledky destruktivních testů jsou zobrazeny v grafu na obrázku 4. Je patrné, že pevnost v tahu za ohybu nebyla teplotním zatěžováním až do teploty 430°C výrazně ovlivněna. Teprve při výpalu na teplotu 460°C došlo ke snížení hodnoty pevnosti v tahu za ohybu o cca 37% oproti referenčním zkušebním tělesům. Při teplotním zatížení na 340°C došlo dokonce k nepatrnému navýšení hodnoty cca o 4%, takto malý rozdíl ale může být vysvětlen i v rámci chybovosti měření.

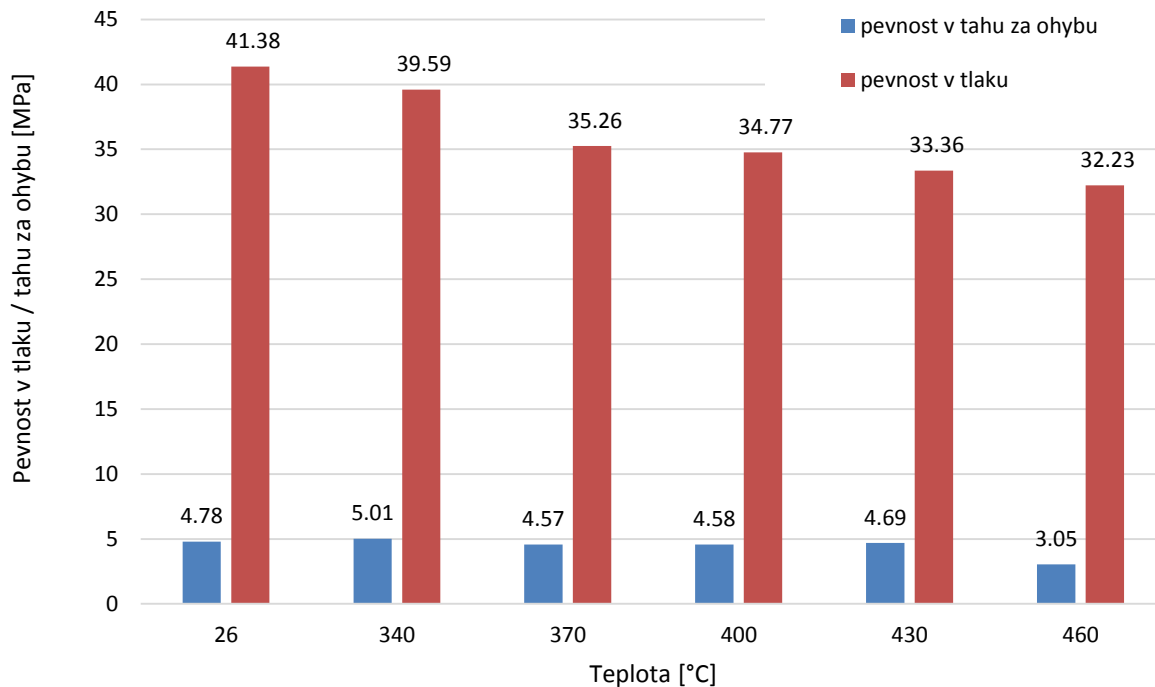
Naproti tomu, výsledky měření pevnosti v tlaku ukazují jasný klesající trend v hodnotách s narůstající teplotou zatěžování. Největší pokles pevnosti v tlaku při teplotě 460°C však dosahoval „pouze“ 22%, tedy efekt teplotního zatížení na nejvyšší teplotu byl nižší než v případě pevnosti tahu za ohybu. Porovnáme-li výsledky destruktivního a nedestruktivního měření, je jasné, že nedestruktivní metody jsou výrazně citlivější na poruchy v mikrostruktuře materiálu, nejvíce v případě nelineární ultrazvukové metody dvoufrekvenčního směšování.



Obr. 2: Porovnání procentuálních změn hodnot modulů pružnosti stanovených metodami impakt echo E_{brL} (v podélném směru) a E_{brf} (v příčném směru) a ultrazvukovou impulsní metodou E_{bu} a smykového modulu stanoveného metodou impakt echo G_{br} v závislosti na teplotě výpalu



Obr. 3: Porovnání hodnot parametru Beta zjištěného metodou dvoufrekvenčního směřování v závislosti na teplotě výpalu



Obr. 4: Porovnání hodnot pevnosti betonu v tlaku a v tahu za ohybu v závislosti na teplotě výpalu

4. ZÁVĚR

V příspěvku byly porovnány metody nedestruktivního testování, tj. konvenční metody impakt echo a ultrazvuková impulsní metoda, a dále nově vyvinutá nelineární ultrazvuková metoda dvoufrekvenčního směšování, s metodami destruktivními, tj. stanovení pevnosti v tlaku a pevnosti v tahu za ohybu, pro zjišťování defektů v mikrostruktuře betonu poškozeném teplotním zatížením, jež simuluje poškození radiační. Výsledky prokázaly výrazně vyšší citlivost nedestruktivních metod oproti metodám destruktivním. Mezi konvenčními NDT metodami se ukázala jako citlivější metoda impakt echo, kdy v případě teplotního zatížení na 460°C došlo k poklesu hodnot až o 56,8%. Výrazně nejcitlivější metodou je ale metoda dvoufrekvenčního směšování, která dosahuje změn v řádu stovek procent oproti hodnotě naměřené na „zdravém“ betonu. Při této metodě je ale třeba vyloučit z měření vliv přirozených nehomogenit betonu, jež je velice heterogenní materiál. Větší počet měření, jež zajistí dostatečný statistický soubor, na rozdíl od potřeby konvenčních nedestruktivních metod, je důležitý z pohledu věrohodnosti měření.

PODĚKOVÁNÍ

Článek byl vytvořen s podporou projektu Kontrola betonu biologické ochrany po ozáření neutrony z jádra reaktoru VI20192022154 Programu bezpečnostního výzkumu Ministerstva vnitra ČR.

LITERATURA

- [1] Field KG, Remec I, Pape Y Le. Radiation effects in concrete for nuclear power plants – Part I: Quantification of radiation exposure and radiation effects. *Nuclear Engineering and Design* 2015; 282: 126–143.
- [2] Abeele K Van Den, Desadeleer W, Schutter G De, et al. Active and passive monitoring of the early hydration process in concrete using linear and nonlinear acoustics. *Cement and Concrete Research* 2009; 39: 426–432.
- [3] Wang ML, Lynch JP, Sohn H. *Sensor Technologies for Civil Infrastructures*. Burlington: Elsevier Science, 2014.

Znižovanie štatistickej chyby CDBS meraní

Adam Jakabovič¹, Vladimír Kršjak¹, Vladimír Slugeň¹

E-mail: ajakabovic@gmail.com

¹Slovenská technická univerzita v Bratislave, Fakulta elektrotechniky a informatiky, Ilkovičova 3, 84104 Bratislava, Slovenská republika

Abstrakt: Cieľom tejto práce bolo zistiť časový drift spektra koincidenčných meraní Dopplerovho rozšírenia anihilačnej čiary. Experiment pozostával z meraní rôznej početnosti CDBS spektier, bližšie sa počtu zdetegovaných impulzov 10^9 , čo predstavuje takmer 100-násobok štandardnej dĺžky merania na zaužívaných 10^7 impulzov. Na základe získaných výsledkov sme uskutočnili ďalšie opakované merania vzorky na určenie funkcie smerodajnej odchýlky v závislosti od počtu nameraných impulzov. Na merania bola použitá vzorka čistého železa diskového tvaru s priemerom 9 mm a hrúbkou 1 mm, ktorej povrch bol vyleštený a následne bola vyžíhaná za účelom odstránenia výrobných defektov.

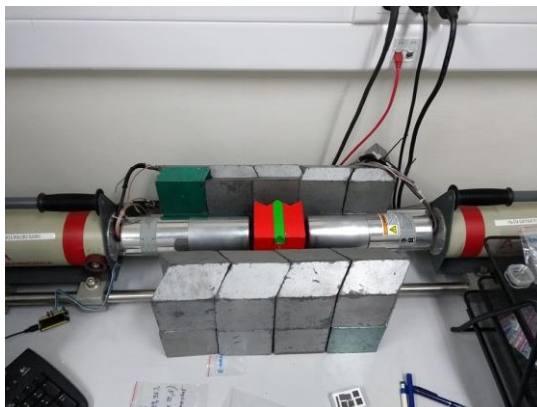
Keľúčové slová: PAS, CDBS, chyba meraní

1. ÚVOD

Pozitrónová anihilačná spektroskopia (PAS) je nedeštruktívna spektroskopická metóda využívajúca jav elektrón-pozitrónovej anihilácie. PAS zahŕňa tri principiálne odlišné metódy, menovite metódu merania doby života pozitrónov (PALS), metódu uhlovej korelácie a metódu merania dopplerovho rozšírenia anihilačnej čiary (DBS). V našich PAS laboratóriách ÚJFI využívame metódy PALS a CDBS (DBS s dvomi koincidenčne zapojenými detektormi). Kým metóda PALS podáva obraz o veľkosti defektov prítomných v materiáli, metóda DBS je citlivá aj na štruktúru a chemické zloženie. Do akej miery dokáže táto metóda analyzovať konkrétne štrukturálne zmeny vyšetrovanej vzorky, značne závisí od presnosti meraní. Vplyvy chemického zloženia na výsledné spektrá sa často pohybujú na úrovni chyby meraní, preto je pre spresnenie detekcie nutné eliminovať faktory prispievajúce k zvyšovaniu chyby meraní. Jedným z jednoducho odstrániteľných faktorov je práve štatistická chyba týchto meraní, ktorej určenie bolo predmetom tejto práce.

2. ŠPECIFIKÁ APARATÚRY

Naše merania boli uskutočnené na CDBS aparátúre v laboratóriách FEI STU na obrázku 1. Aparatúra pozostáva z dvoch HpGe detektorov v koincidenčnom zapojení. Takéto zapojenie potláča vplyv pozadia na výsledné spektrum až o 3 rády. V strede je umiestnené olovené tienenie, pod ktorým je vo fixnej polohe umiestnený držiak so vzorkou.



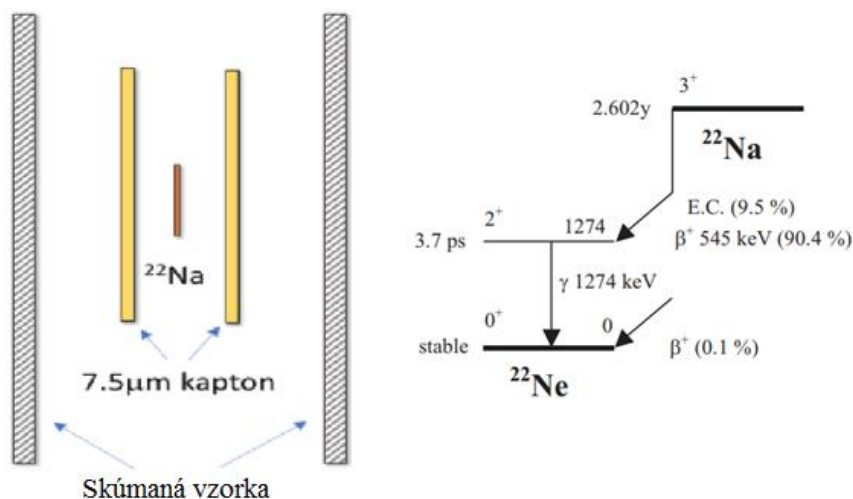
Obr. 1: Fotografia meracej aparatury CDBS

2.1. VZORKA

Pre účely merania bola použitá vzorka čistého Fe diskového tvaru o priemere 9mm a hrúbke 1mm. Vzorka bola vyleštená a taktiež vyžíhaná, za účelom odstránenia výrobných defektov a dosiahnutia čo najhomogénnejšej štruktúry, aby bolo možné povedať, že zmena nameraných parametrov v čase, je funkciou štatistiky merania a nie je významne ovplyvnená vzorkou.

2.2. ZDROJ

Počas merania sme využívali ako zdroj pozitronov ^{22}Na ktorý je β^+ žiarič. ^{22}Na je výhodný nakoľko má pomerne dlhú dobu polpremeny (2,61 roka), a taktiež pri rozpade súčasne s pozitronom emituje aj γ -žiarenie o energii 1,274 MeV, čo umožňuje merať dĺžku života pozitronu v materiáli γ -koincidenčným spektrometrom. ^{22}Na je bežne dostupný ako $^{22}\text{NaCl}$, čiže je rozpustný, stabilný a dá sa s ním ľahko manipulovať. Na zapuzdrenie používame kaptonovú fóliu o hrúbke 7,5 μm v ktorej anihiluje približne 20% pozitronov. Geometrická a rozpadová schéma zdroja sú zobrazené na obrázku 2.



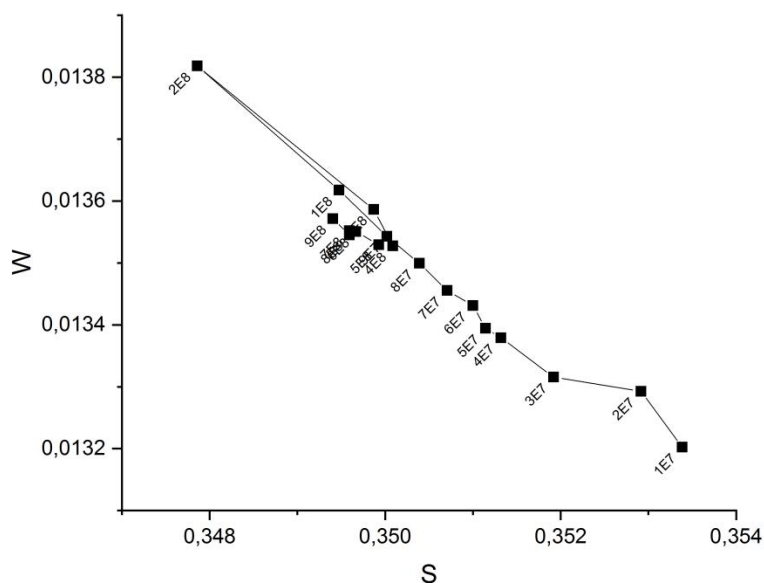
Obr. 2: Geometrická a rozpadová schéma ^{22}Na zdroja [1][2]

3. MERANIE ČASOVÉHO DRIFTU

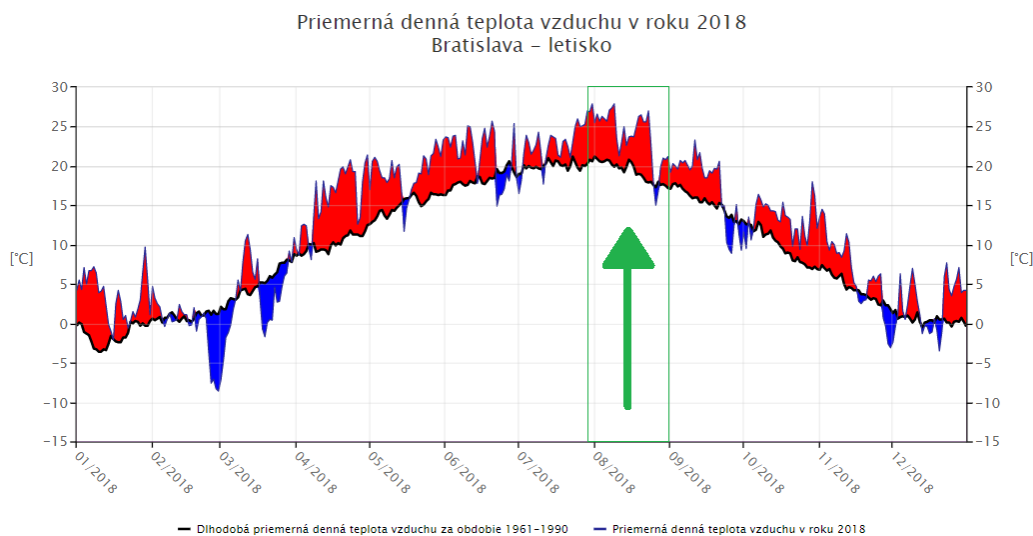
Vzorka FeX093 bola meraná externým ^{22}Na pozitronovým zdrojom metódou CDBS s prvým zápisom pri 10^7 impulzoch (štandardný počet impulzov používaný pre všetky naše ostatné merania) 23.7.2018 a posledným zápisom 8.10.2018 pri početnosti nameraných impulzov takmer 9×10^8 , čo reprezentuje takmer stonásobok bežnej dĺžky merania a počtu nameraných impulzov.

Na stanovenie optimálneho počtu impulzov som zvolil prístup kombinovania vizuálnej tendencie driftu S a W parametra a štatistických výpočtov. Parameter S bol volený ako 0 – 2,5 p_L a W ako 15 – 25 p_L , čo predstavuje najčastejšie volený rozsah využívaný pri vyhodnocovaní CDBS spektier kovových materiálov. S-W plot nameraných dát na obrázku 3 ukázal, že drift hodnôt má systematický charakter. V grafe je vidno, že niekoľko bodov je výrazne vychýlených a sú zjavne nesprávne. Meranie prebiehalo počas leta 2018 po dobu 1830 hodín. Po analýze záznamov počasia sa ukázalo, že chybné dáta boli zozbierané v období extrémnych horúčav. Časová oblasť chybných meraní je vyznačená na obrázku 4. Vysoké teploty vzduchu v laboratóriu a nedostatočné klimatizovanie priestorov spôsobili nárast teploty na zosilňovačoch detektorov, v dôsledku čoho vznikali nežiaduci jednosmerný signál, vychýľujúci výsledky. Nakoľko sa aj po týchto výkyvoch vrátili hodnoty na svoju krivku konvergencie, môžeme považovať za najsprávnejší bod, koncový bod zodpovedajúci početnostiam blížiacim sa

9×10^8 . Toto sa potvrdilo aj viacnásobným opakovaním experimentu, kedy hodnoty opäť konvergovali k tomuto bodu. [3]

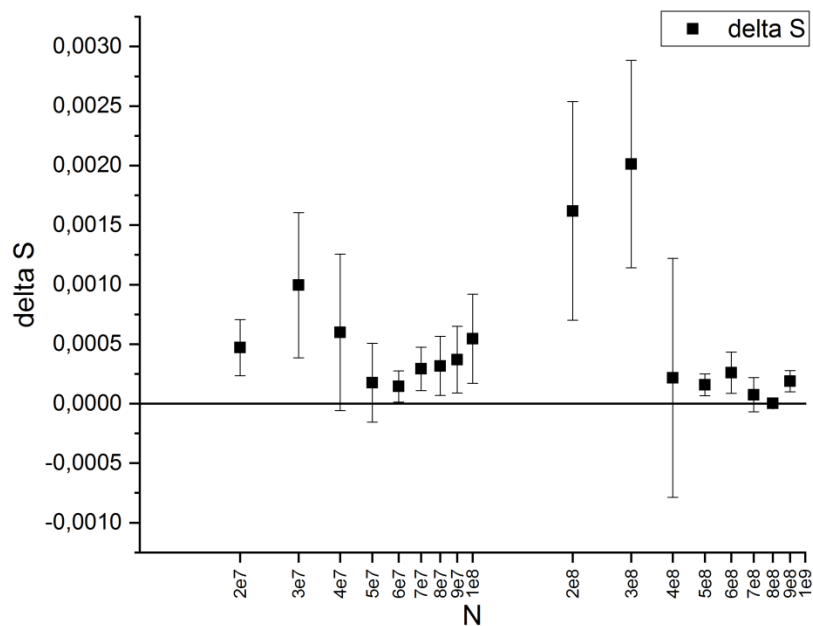


Obr. 3: Drift hodnôt S a W parametrov

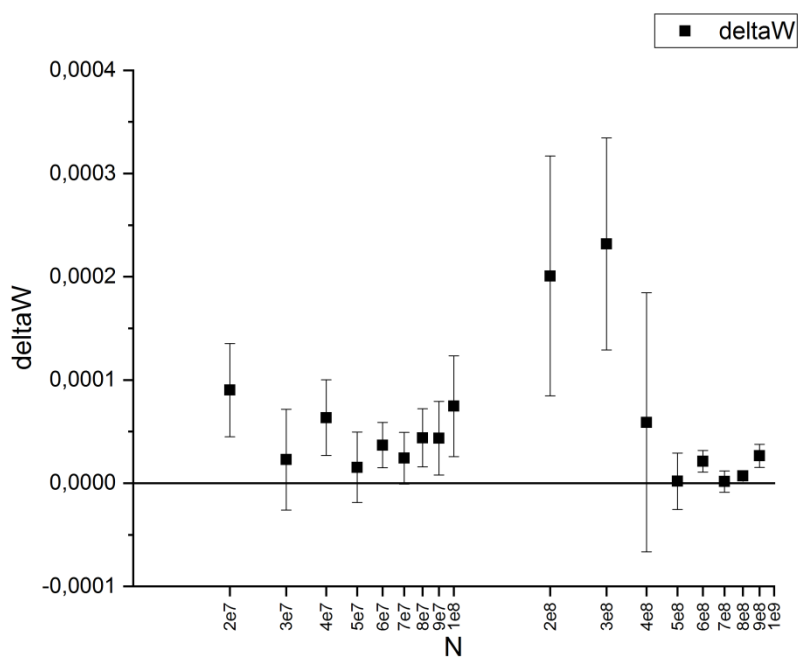


Obr. 4: Záznam teplôt v období chybných meraní [4]

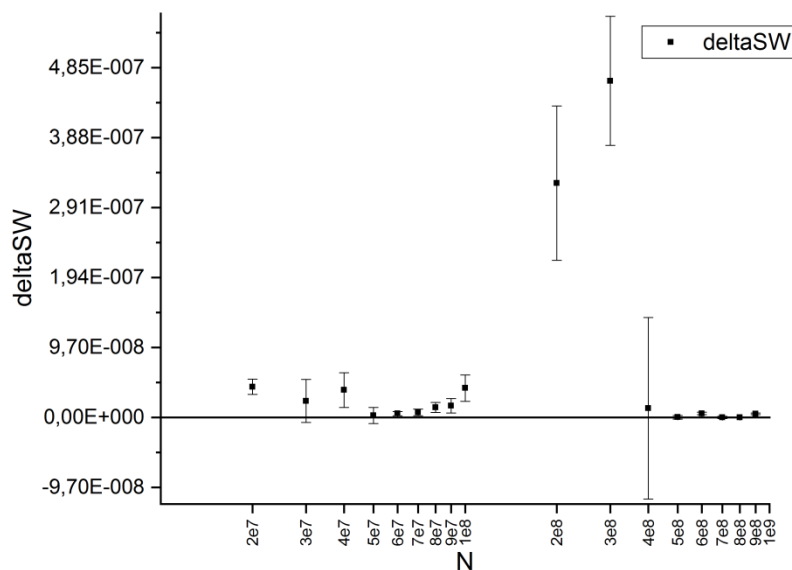
V grafoch na obrázkoch 5,6 a 7 sú zobrazené absolútne zmeny S parametra (obr. 7), W parametra a ich kombinácie, vzhľadom na krok zápisu dát. Prislúchajúce smerodajné odchýlky boli vypočítané z predošlého, aktuálneho a nasledujúceho zápisu. Všetky scenáre ukázali, že za početnosťou spektra vyššou ako 6×10^7 sa parametre výrazne nemenia a efekt znižovania štatistickej chyby za týmto bodom je príliš nízky na to, aby sa oplatilo bežne uskutočňovať takto dlhé merania.



Obr. 5: Zmena S parametra medzi krokmi merania



Obr. 6: Zmena W parametra medzi krokmi merania



Obr. 7: Zmena kombinácie S a W parametra medzi krokmi merania

3.1. KVANTITATÍVNE STANOVENIE ŠTATISTICKEJ CHYBY

Z nameraných dát a získaných výsledkov sme si odčítaním spektier dokázali rozdeliť namerané dáta na diskrétne balíky o početnostiach 10^7 až 10^8 , ktorých porovnávaním sme získali vzťah pre pokles celkovej chyby meraní, v závislosti od zvyšovania početnosti. Pri počítaní smerodajnej odchýlky som zbral v úvahu chybné hodnoty z merania driftu a nezahrnul ich do ďalšieho výpočtu. Z porovnania balíkov početností bolo možné odvodiť rovnice pre pokles smerodajnej odchýlky S a W parametra v závislosti od početnosti.

$$\sigma_s = 0,001 e^{-7E-09N} \quad (1)$$

$$\sigma_s = 0,0002 e^{-7E-09N} \quad (2)$$

Rovnica 1 vyjadruje vzťah pre pokles štatistickej smerodajnej odchýlky σ_s vzhľadom na početnosť zdetegovaných impulzov N pre S parameter a rovnica 2 pre W parameter. Dosadením dopočítanej odchýlky do rovnice 3, vieme stanoviť, ako nám poklesne celková smerodajná odchýlka konkrétneho merania, zvolením vyššej početnosti. Toto môže byť užitočné v prípadoch, kedy sa pozorovaná zmena nachádza na úrovni chýb a potrebujeme ju primerane znížiť, aby mali dáta lepšiu výpovednú hodnotu.

$$\sigma = \sqrt{\sigma_x + \sigma_s} \quad (3)$$

V rovnici 3 je σ celková smerodajná odchýlka skúmaného parametra, σ_s je štatistická smerodajná odchýlka príslušného parametra σ_x predstavuje príspevok ostatných chýb, ktorý sa bude správať ako konštanta, nakoľko zatiaľ nevieme kvantitatívne charakterizovať jeho členy.

4. ZÁVER

Vyhodnocovaním získaných dát sa mi v tejto práci podarilo stanoviť vplyv veľkosti spektra na štatistickú chybu CDBS meraní. Vychádzal som pri tom z jednotkovej zmeny S a W parametrov a počítania prislúchajúcich smerodajných odchýlok. Zo štatistiky je všeobecne známe, že dlhším meraním sa získava presnejšia hodnota, avšak z hľadiska časovej efektivity som maximálnu hodnotu nameraných impulzov, s ktorou je ešte efektívne pracovať, stanovil ako 6×10^7 , nakoľko parciálny krok zmeny parametrov za touto hodnotou bol minimálny a dosahovaná kombinovaná odchýlka vysoko uspokojivá rovná $4,56579 \times 10^{-09}$. Výsledky ukázali aj nepriaznivé

vplyv vysokej teploty prostredia počas meraní na výsledné spektrum, z čoho vyplýva, že na dôkladné obstaranie výsledkov z PAS meraní je dôležité udržiavať priestory laboratória vo vhodných podmienkach. Získané rovnice zmeny smerodajnej odchýlky meraní je možné aplikovať v prípade potreby opakovania experimentu, z dôvodu znemožnenia pozorovania istých javov, spôsobeného vysokou nepresnosťou. Takýmto spôsobom môžeme odhadnúť požadovaný počet impulzov opakovaného merania a tým optimalizovať trvanie experimentu. Zároveň vieme stanoviť, či opakovanie experimentu s vyššou početnosťou vôbec prinesie požadovaný výsledok a teda sa môžeme vyhnúť uskutočňovaniu zbytočných opakovaní experimentu.

POĎAKOVANIE

Tento príspevok vznikol za podpory projektu VEGA 1/0104/17.

LITERATÚRA

- [1]. *Positron annihilation spectroscopy studies of irradiated Fe-based alloys using different radioisotope sources*. **V. Krsjak, J. Degmova, R. Lauko, J. Snopek, M. Saro, K. Sedlackova, S. Sojak, M. Petriska, G. Farkas, Y. Dai, V. Slugen**. s.l. : ELSEVIER, 2018, Vols. Nuclear Inst, and Methods in Physics Research B 434.
- [2] *POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY*. **I., PROCHÁZKA**. 8, 2001, Materials Structure, pp. 55-60.
- [4] **Jakabovic, Adam**. Štúdium konštrukčných materiálov jadrových zariadení s dôrazom na využitie meraní Dopplerovho rozšírenia anihilačnej čiary. *Diplomová práca*. Bratislava : s.n., 2019.
- [3] www.shmu.sk. [Online] shmu, Január 6, 2018.
http://www.shmu.sk/sk/?page=1&id=klimat_operativneudaje1&identif=11816&rok=2018&sub=1.

Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy

Jiří Jarošík^{1,2}, Vladimír Wagner²

E-mail: jarosji9@fjfi.cvut.cz

¹KJR FJFI ČVUT, V Holešovičkách 2, Praha, 180 00, ČR

²ÚJF AV ČR v.v.i., Hlavní 130, Husinec-Řež, 250 68, ČR

Abstrakt: K měření účinných průřezů reakcí rychlých neutronů s prvky Al, Au, Bi, Y byla využita aktivační metoda. Jako kvazimonoenergetický zdroj neutronů s energiemi řádově desítek megaelektronvoltů posloužil cyklotron U-120M a lithiová terčová stanice na Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky v Řeži. Znalost excitačních funkcí některých sledovaných reakcí by mohla být potenciálně užitečná při návrhu a provozu pokročilých jaderných systémů.

Klíčová slova: urychlovačem řízený zdroj neutronů, aktivační detektor, účinný průřez, spektrometrie gama záření, knihovny jaderných dat, zdrojové reakce na lithiu

1. ÚVOD

Vzdálenější budoucnost jaderných elektráren je v tzv. pokročilých jaderných systémech, kam lze zařadit jaderné reaktory IV. generace, urychlovačem řízené transmutační systémy a případná budoucí fúzní zařízení. Aby však tyto koncepce mohly být v příštích dekádách uvedeny do provozu, je nutné provádět intenzivní výzkum v mnoha oblastech spojených s touto problematikou. Jednou z nich je studium reakcí rychlých neutronů, protože na rozdíl od současné generace jaderných reaktorů využívají pokročilé jaderné systémy právě rychlé neutrony. Ačkoliv excitační funkce mnohých jaderných reakcí jsou pro nízké energie velmi dobře proměřeny, v oblasti vyšších energií je experimentálních dat nedostatek. Výborná znalost excitačních funkcí mnoha jaderných reakcí je však nezbytná pro posouzení interakcí rychlých neutronů s konstrukčními materiály i pro případnou zpětnou rekonstrukci neutronového pole, kterému byl analyzovaný materiál vystaven. Mnohé výzkumné instituce intenzivně pracují na rozšiřování knihoven jaderných dat. Studiu účinných průřezů reakcí rychlých neutronů je věnována značná pozornost i v Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky v Řeži. Jako kvazimonoenergetický zdroj rychlých neutronů zde slouží cyklotron U-120M s lithiovou terčovou stanicí. Díky znalosti neutronového spektra tohoto zdroje je možné k měření účinných průřezů využít aktivační detektory a jejich následnou analýzu metodami gama spektrometrie.

2. URYCHLOVAČEM ŘÍZENÝ NEUTRONOVÝ GENERÁTOR NG-2

Neutron, jak již napovídá jeho název, je elektricky neutrální částice, což znemožňuje jeho urychlení pomocí elektrického pole. Jako zdroje rychlých neutronů s energiemi v řádu desítek MeV a více se využívají reakce urychlených nabitých částic s vhodným konverzním materiálem. Tímto materiálem bývá nejčastěji beryllium, lithium či deuterium. Svazek nabitých částic je z urychlovače veden na terč, ve kterém jsou v různých jaderných reakcích produkovány neutrony. Volbou typu urychlovaných částic (protony, deuterony, alfa částice, jiné lehké ionty), druhem konverzního materiálu a tloušťkou terče z tohoto materiálu lze ovlivnit neutronové spektrum daného zdroje. Pro měření účinných průřezů je nutné mít monoenergetické či kvazimonoenergetické spektrum neutronů. Jeho produkce je obvykle realizována zdrojovou reakcí p+Li.

2.1. ZDROJOVÁ REAKCE P+LI

Spektrum neutronů produkovaných v tenkém lithiovém terči v jaderné reakci ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ je pro energie protonu v řádu desetin MeV monoenergetické, pro vyšší energie (jednotky až stovky MeV) se jedná o spektrum kvazimonoenergetické, ve kterém je výrazný monoenergetický pík a nezanedbatelné neutronové pozadí, jehož vliv roste směrem k nižším energiím. K monoenergetickému píku přispívají neutrony produkované v reakcích ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ vedoucích na vznik ${}^7\text{Be}$ v základním či prvním excitovaném stavu. Reakce vedoucí k vyšším excitovaným stavům ${}^7\text{Be}$ a další doprovodné procesy (deexcitace emisí neutronu, vícečásticový rozpad atd.), které v terči také probíhají, vytváří spojité neutronové pozadí [1].

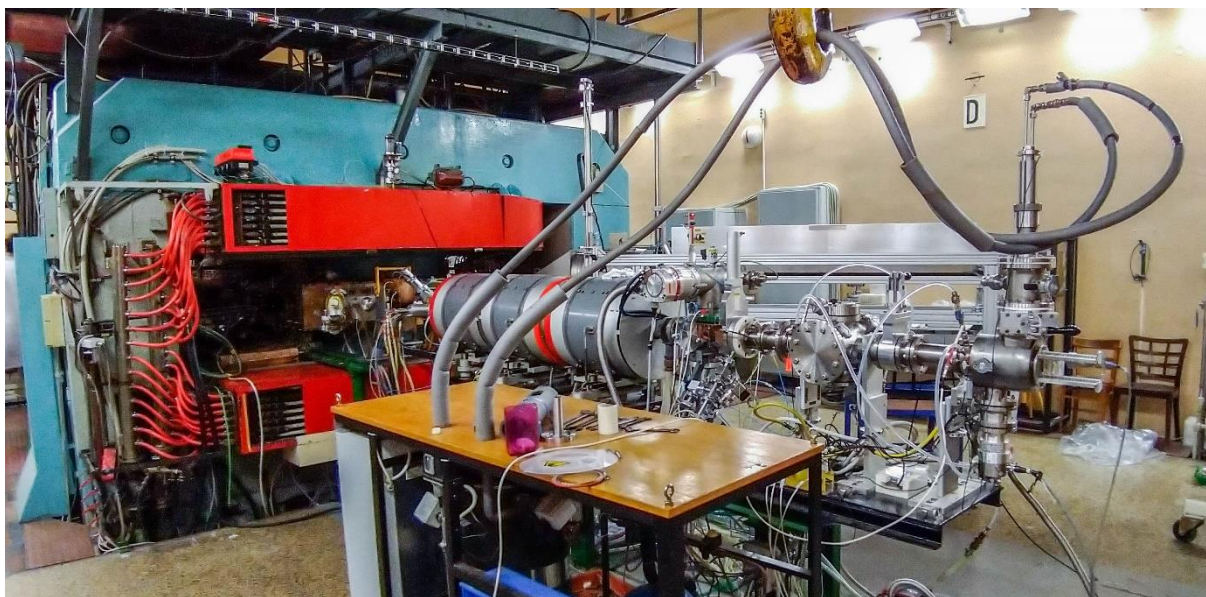
2.2. IZOCHRONNÍ CYKLOTRON U-120M

Cyklotron je typickým příkladem kruhového urychlovače nabitých částic. Sestává z kruhové vakuové komory, ve které jsou umístěny dvě duté elektrody polokruhového průřezu zvané duanty. Zdroj částic se nachází ve středu vakuové komory. Částice jsou urychlovány proměnným vysokofrekvenčním magnetickým polem v mezeře mezi duanty. Klasický cyklotron má v celé vakuové komoře stacionární magnetické pole s konstantní intenzitou B kolmou na rovinu pohybu nabitých částic. Uvnitř duantu se tedy nabitě částice vždy pohybují po kružnici, jejíž poloměr roste s rychlostí částice. Díky tomu je úhlová frekvence oběhu částic ω_c (tzv. cyklotronová frekvence) po celou dobu urychlování konstantní a je dána vztahem [2]:

$$\omega_c = \frac{q \cdot B}{m} = \text{konst.}, \quad (1)$$

kde q je náboj urychlovaných částic a m jejich hmotnost. Z rovnice (1) je zřejmé, že návrh klasického cyklotronu předpokládá konstantní hmotnost částic po celou dobu urychlování. Tento předpoklad je ovšem pro vyšší energie urychlovaných částic porušen vlivem relativistického růstu hmotnosti. Zajímavým vylepšením konstrukce klasického cyklotronu je tzv. izochronní cyklotron (z řeckého *isos* = stejný, *chronos* = čas), u kterého s poloměrem roste velikost intenzity magnetického pole tak, aby kompenzovala relativistický růst hmotnosti a poměr B/m byl tedy po celou dobu pohybu konstantní.

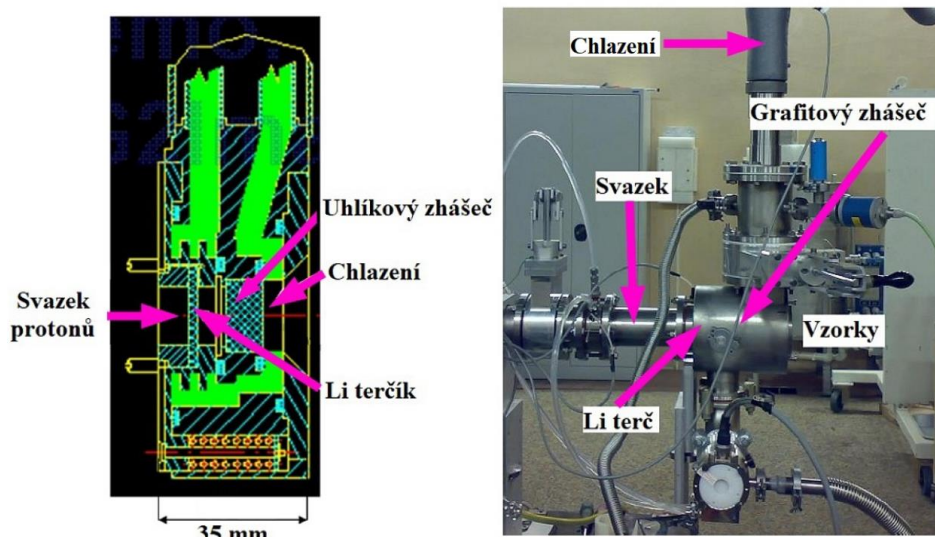
Izochronní cyklotron U-120M je provozován na ÚJF AV ČR od roku 1977. Umožňuje urychlování jak kladných, tak záporných iontů. V závislosti na režimu urychlování a typu urychlovaných částic je schopen poskytovat svazky s energiemi 1-55 MeV a proudy od jednotek nA po desítky μA . V případě urychlování záporných iontů vodíku je schopen poskytovat svazky s proudem až 13 μA v rozsahu energií svazku 20-35 MeV [3].



Obr. 1: Izochronní cyklotron U-120M na ÚJF AV ČR v Řeži.

2.3. LITHIOVÁ TERČOVÁ STANICE

Neutronový generátor NG-2 je připojen k záporné trase vyvedení svazku na řežském cyklotronu U-120M. V závislosti na volbě terčové stanice je schopen poskytovat spojitá i kvazimonoenergetická spektra neutronů. K produkci kvazimonoenergetických spekter s energií píku v rozmezí 18-33 MeV se na ÚJF AV ČR používá terčová stanice s tenkým (~2 mm) lithiovým terčem, jehož průměr je 30 mm. Terč je obohacen na vysoké zastoupení izotopu ^7Li . Před zahájením ozařování je stanice vždy osazena novým terčem. Kvůli mimořádným hygroskopickým vlastnostem lithia probíhá výměna terče vždy v ochranné argonové atmosféře, aby se zamezilo kontaktu terče se vzdušnou vlhkostí. Protože se jedná o tenký terčík, většina svazku protonů jím projde bez interakce. Tyto protony musí být odstraněny z pole produkovaných neutronů. K tomu je na ÚJF AV ČR využíván uhlíkový zhášec. Jedná se o 10 mm tlustou uhlíkovou destičku, ve které nabitě částice vlivem ionizace ztratí veškerou energii. Některé protony mohou ve zhášeci vyvolat reakce vedoucí na produkci neutronů. Tyto neutrony díky vysokým prahovým energiím produkčních reakcí na uhlíku neovlivňují monoenergetický pík, ale přispívají ke spojitému neutronovému pozadí. Lithiový terč a především uhlíkový zhášec se za provozu silně zahřívají, a proto je nezbytné zajistit jejich aktivní chlazení speciálním chladicím okruhem. Po ukončení ozařování je terč uschován v petroleji a po několika měsících je podroben gama spektrometrii za účelem určení výtěžku (tj. počtu jader vyprodukovaných ve sledované reakci za celou dobu ozařování) jader ^7Be . Výtěžek ^7Be odpovídá počtu (monoenergetických) neutronů v píku emitovaných do prostorového úhlu 4π [4].



Obr. 2: Lithiová terčová stanice na ÚJF AV ČR v Řeži [7].

3. MĚŘENÍ ÚČINNÝCH PRŮŘEZŮ POMOCÍ AKTIVAČNÍCH DETEKTORŮ

Aktivační detektor má obvykle podobu tenkého drátku či tenké fólie z čistého monoizotopického materiálu. Neutrony s materiálem detektoru interagují zejména prostřednictvím (n,xn) reakcí a produkci nabitých částic. Aktivační detektory se vyhodnocují až po ukončení ozařování, jedná se tedy o tzv. offline detektory, jejichž analýza probíhá metodami spektrometrie gama záření. Pokud je aktivační detektor vystaven svazku se známou přesně definovanou energií neutronů, lze na základě analýzy tohoto detektoru určit, jaké reakce v něm při ozařování probíhaly a z množství produktů těchto reakcí pak vypočítat účinné průřezy pro danou energii neutronů. Pokud je aktivační detektor vystaven neutronovému poli s neznámými parametry, výborná znalost závislosti účinného průřezu na energii (tzv. excitační funkce) umožní při analýze tohoto detektoru určit některé charakteristiky neznámého neutronového pole.

3.1. URČENÍ VÝTĚŽKU

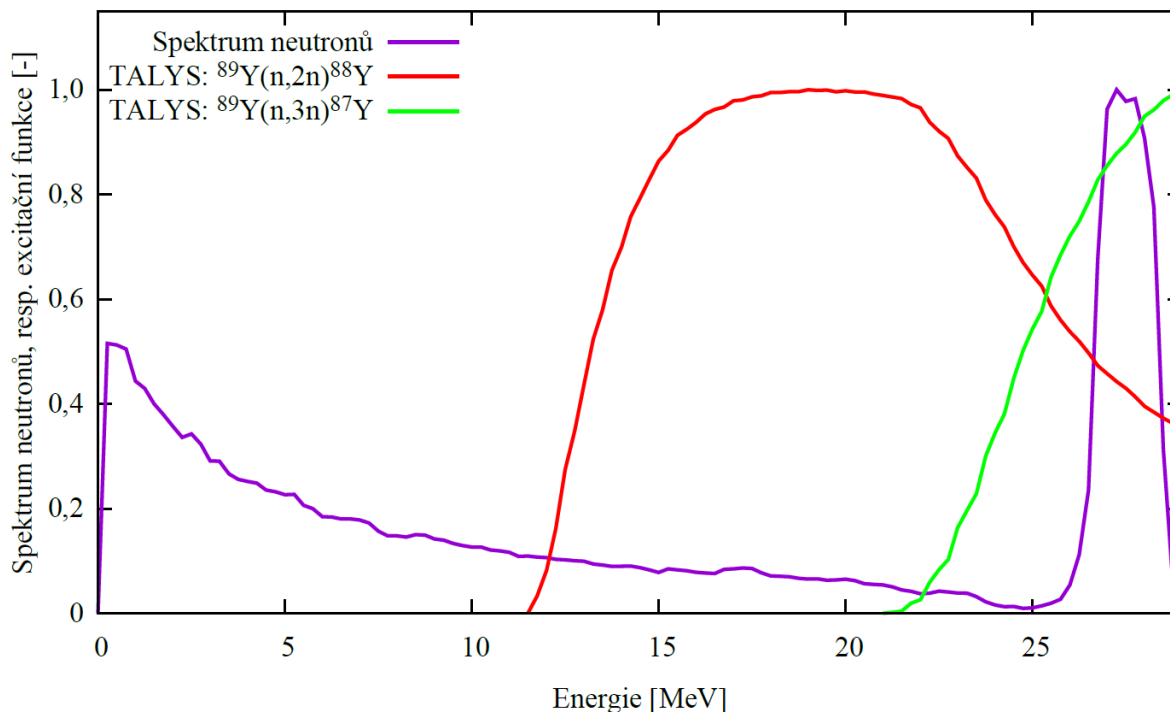
Základní úlohou gama spektrometrie při vyhodnocování aktivačních detektorů je určení výtěžku $N_{\text{výtěžek}}$ sledované reakce. K tomu je nezbytné aplikovat některé základní spektrometrické korekce. Rovnice pro určení výtěžku má tvar [5]:

$$N_{\text{výtěžek}} = \frac{S_{\text{pik}}(E_{\gamma}) \cdot C_{\text{abs}}(E_{\gamma}) \cdot C_{\text{stab}} \cdot \frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} \cdot \frac{\exp(\lambda \cdot t_0)}{1 - \exp(-\lambda \cdot t_{\text{real}})}}{I_{\gamma} \cdot \epsilon_{\text{p}}(E_{\gamma}) \cdot COI(E_{\gamma}) \cdot C_{\text{plocha}} \cdot \frac{\lambda \cdot t_{\text{irr}}}{1 - \exp(-\lambda \cdot t_{\text{irr}})}}, \quad (2)$$

kde S_{pik} je plocha píku příslušné gama linky s energií E_{γ} a intenzitou I_{γ} . Píková účinnost použité spektrometrické aparatury je označena ϵ_{p} , skutečný čas měření t_{real} , čas s korekcí na mrtvou dobu t_{live} , čas ozařování t_{irr} , čas od konce ozařování do začátku měření t_0 a rozpádová konstanta λ . Dále je použita řada standardních spektrometrických korekcí, které reprezentují korekční součinitele: C_{abs} na vliv samoabsorpce, C_{stab} na vliv nestability svazku při ozařování, COI na vliv pravých kaskádních koincidencí a C_{plocha} na vliv plochy aktivačního detektoru. Ve výsledné nejistotě výtěžku byla zohledněna nejistota plochy píku sledované gama linky, nejistota intenzity I_{λ} a nejistota účinnosti kalibrace detektoru. Ostatní nejistoty jsou co do velikosti vůči těmto třem zanedbatelné.

3.2. VLIV NEUTRONOVÉHO POZADÍ

Jelikož neutronové pole produkované lithiovou terčovou stanicí není monoenergetické, ale kvazimonoenergetické, je pro správné určení výtěžku nezbytné aplikovat vhodnou korekci na tento jev. Sledované reakce nejsou vyvolány pouze neutrony s jedinou přesně definovanou energií odpovídající píku, ale mohou být vyvolány i neutrony ze spojitého pozadí. Navíc vliv neutronů z pozadí na výtěžek je různý pro různé reakce v závislosti na prahových energiích těchto reakcí a na průběhu jejich excitačních funkcí. Na Obr. 3 je znázorněn překryv kvazimonoenergetického spektra neutronů reťžské lithiové terčové stanice a excitačních funkcí některých sledovaných reakcí, které byly namodelovány pomocí kódu TALYS [6]. Je zřejmé, že výtěžky reakcí s nižšími prahovými energiemi jsou neutronovým pozadím ovlivněny více.



Obr. 3: Kvazimonoenergetické spektrum neutronového zdroje a excitační funkce některých sledovaných reakcí se společnou osou y. Veličiny na ose y jsou normované k jedné.

Metoda použitá ke korekci vlivu neutronového pozadí na výtěžek je převzata z [7]. Korekční koeficient C_{bgr} je v podstatě poměr konvoluce účinného průřezu $\sigma(E)$ a neutronového spektra $N(E)$ pro energie E odpovídající oblasti píku ku téhož pro celé spektrum energií:

$$C_{bgr} = \frac{\int_{pík} \sigma(E)N(E)dE}{\int_{spektrum} \sigma(E)N(E)dE} = \frac{\Sigma_{pík} \sigma(E)N(E)}{\Sigma_{spektrum} \sigma(E)N(E)}. \quad (3)$$

Spektrum neutronů v místě ozařování vzorků je na ÚJF AV ČR určováno pomocí MCNP simulace v energetických binech po 0,25 MeV. Při simulaci jsou používána jaderná data ze dvou různých evaluovaných knihoven. Rozdíly mezi neutronovými spektry namodelovanými na základě údajů z jedné a z druhé knihovny jsou brány jako nejistota součinitele C_{bgr} . Pro určení tohoto korekčního součinitele je nutné znát excitační funkce sledovaných reakcí. Ty byly namodelovány pomocí kódu TALYS 1.8 taktéž v binech po 0,25 MeV. Díky tomu lze využít diskretní formulaci vztahu (3).

3.3. VÝPOČET ÚČINNÝCH PRŮŘEZŮ

Pro úspěšné vyhodnocení měření účinných průřezů pomocí aktivačních detektorů jsou klíčová experimentální data ze tří oblastí. Za prvé se jedná o znalost fyzikálních a materiálových parametrů použitého aktivačního detektoru, za druhé o znalost neutronového spektra, kterému byl aktivační detektor vystaven, a za třetí o znalost výtěžku sledované reakce. Na základě těchto dat lze účinný průřez σ sledované reakce při dané energii neutronů určit podle vztahu:

$$\sigma = \frac{N_{výtěžek,pík} \cdot S \cdot M}{N_n \cdot N_A \cdot m}, \quad (4)$$

kde S je plocha aktivačního detektoru, M molární hmotnost, N_n počet neutronů v píku, N_A Avogadrova konstanta, m hmotnost aktivačního detektoru. $N_{výtěžek,pík}$ je výtěžek produkovaný neutrony v píku:

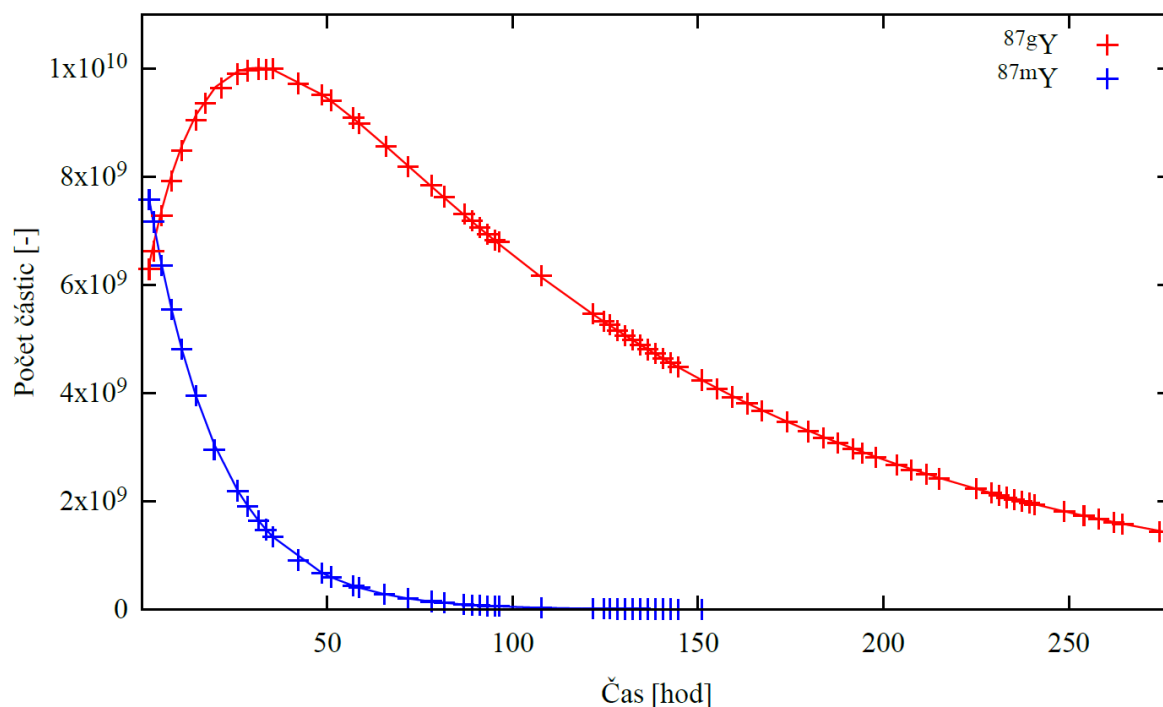
$$N_{výtěžek,pík} = C_{bgr} \cdot N_{výtěžek}, \quad (5)$$

kde $N_{výtěžek}$ je výtěžek produkovaný neutrony všech energií vypočítaný pomocí vztahu (2).

4. EXPERIMENT NA ÚJF AV ČR

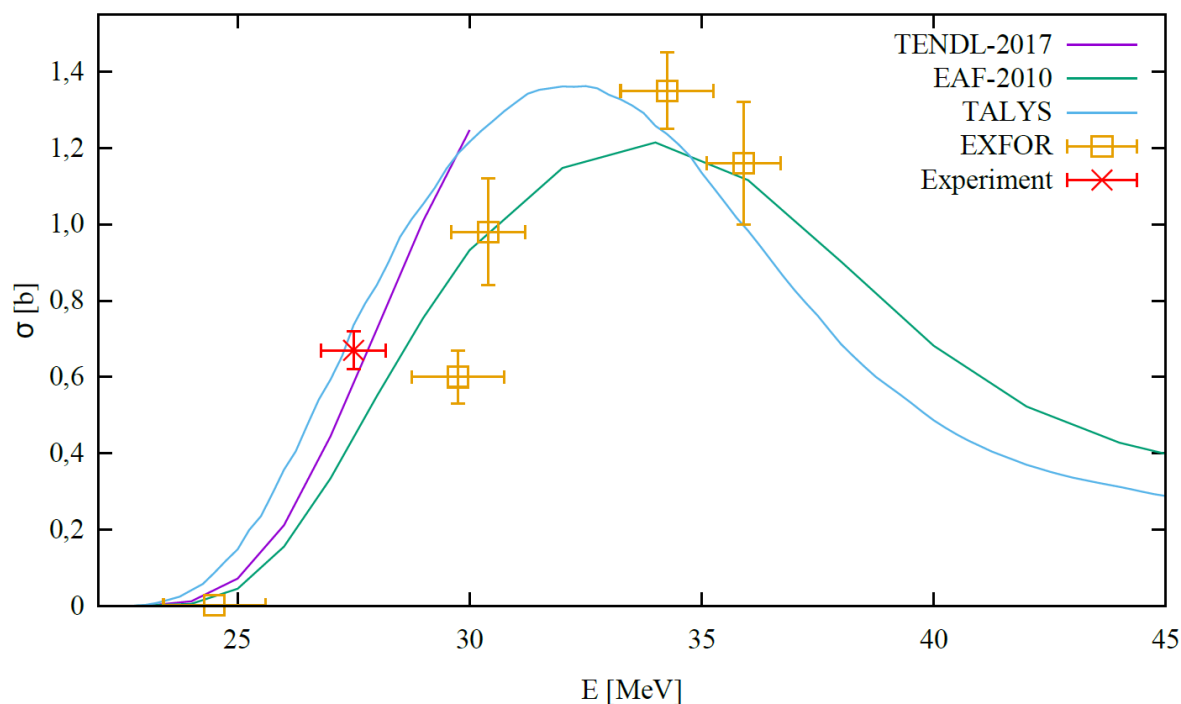
Při experimentu 15.-16.2.2019 byly pomocí kvazimonoenergetického zdroje rychlých neutronů na ÚJF AV ČR v Řeži ozařeny vzorky yttria, zlata, hliníku a bismutu. Jednalo se o tenké fólie s rozměry 25×25 mm. Svazek protonů poskytovaný urychlovačem U-120M měl energii ~ 30 MeV a proud ~ 6 μ A. Nejistota měření proudu je 5 % a při výpočtech se projeví jako nejistota počtu produkovaných neutronů. Energie píku v neutronovém spektru byla 27,5(7) MeV. Nejistota energie odpovídá směrodatné odchylce fitu monoenergetického píku neutronů s normálním rozdělením. Ozáření vzorky byly v průběhu následujících měsíců podrobovány analýze na gama spektrometrické soustavě. Podařilo se sledovat celkem 11 reakcí převážně typu (n,xn). Pro všechny reakce byly určeny jejich výtěžky a pro produkty těchto reakcí rozpadové křivky a poločasy rozpadu.

Zajímavá rozpadová křivka (Obr. 4) byla naměřena pro radionuklid ^{87}Y , který při ozařování vzniká jak v základním ^{87g}Y , tak v izomerním ^{87m}Y stavu. Jádra v izomerním stavu, která se s poločasem rozpadu 13,37(3) hodin [12] přeměňují na základní stav, způsobují, že i po ukončení ozařování počet jader v základním stavu roste. Pro určení výtěžku reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87g}\text{Y}$ tedy nelze použít rovnici (2), která nezohledňuje vznik nových radioaktivních jader po ukončení ozařování. Je nezbytné využít komplikovanější vztahy popisující kaskádní rozpad, které jsou uvedeny a odvozeny například v práci [5].

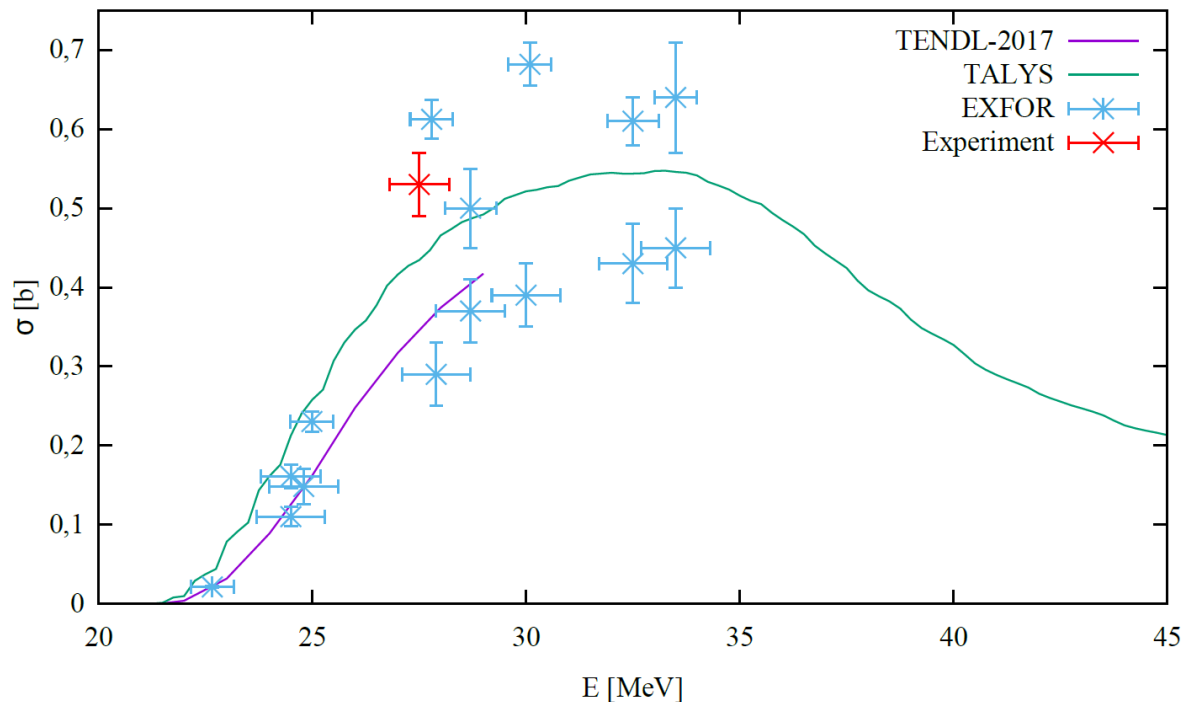


Obr. 4: Rozpadová křivka radionuklidu ^{87}Y pro základní (g) a izomerní (m) stav. Spojnice představují teoretické závislosti.

Pro všechny sledované reakce byly pomocí vztahu (4) vypočítány účinné průřezy pro energii 27,5(7) MeV. Výsledné hodnoty byly srovnány s údaji z evaluovaných knihoven jaderných dat, z knihovny experimentálních dat EXFOR [13] a s výstupem kódu TALYS.



Obr. 5: Excitační funkce reakce $^{209}\text{Bi}(n,4n)^{206}\text{Bi}$. EXFOR [9], [11].

Obr. 6: Excitační funkce reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$. EXFOR [8], [9], [10].

5. ZÁVĚR

Pro účely budoucího rozvoje pokročilých jaderných systémů je nezbytné provádět výzkum v oblasti reakcí rychlých neutronů s různými materiály. Jednou z možností monitorování polí rychlých neutronů je použití aktivačních detektorů. Vhodným materiálem na konstrukci těchto detektorů pro oblast energií neutronů v řádu desítek MeV je například yttrium. Jedná se o monoizotopický materiál, ve kterém rychlé neutrony produkují radionuklidy s výraznými gama linkami a vhodnými poločasy rozpadu. Ze současných koncepcí pokročilých jaderných systémů by s neutrony v oblasti desítek MeV mohli pracovat zejména urychlovačem řízené transmutační systémy (ADTS). U rychlých reaktorů IV. generace je neutronové spektrum v řádu spíše jednotek MeV, u fúzních zařízení v oblasti jednotek a nižších desítek MeV.

Vzorky Al, Au, Bi a Y byly ozářeny rychlými neutrony s energií 27,5(7) MeV. Aktivační detektory ze zmíněných materiálů byly podrobeny gama spektrometrii za účelem stanovení výtěžků několika sledovaných reakcí. Díky znalosti neutronového spektra použitého zdroje neutronů a parametrů (hmotnost, plocha) ozářených aktivačních detektorů bylo možné určit hodnoty účinných průřezů těchto reakcí. Při určení celkové nejistoty účinného průřezu byly zohledněny nejistoty výtěžku (~0,1-3 %), nejistota počtu neutronů v píku (5 %), nejistota korekčního součinitele na opravu vlivu neutronů ze spojitého pozadí C_{bgr} (~0,1-10 %) a nejistota kalibrace detektoru (5 %). Ostatní nejistoty jsou co do velikosti vůči těmto čtyřem zanedbatelné. Experimentálně určené účinné průřezy byly srovnány s dostupnými údaji z knihoven jaderných dat a v rámci nejistot je mezi nimi poměrně dobrá shoda. Pro další zpřesnění experimentálně získaných hodnot je v současné době prováděna detailní analýza všech nejistot, které mohly mít na měření vliv, a je kladen důraz na detailnější popis neutronového spektra v ozařovacích pozicích jednotlivých vzorků. Po dořešení zmíněných vlivů přispějí účinné průřezy určené při tomto experimentu k rozšíření knihovny jaderných dat EXFOR. V rámci experimentu byly určeny i rozpadové křivky a poločasy rozpadu produktů sledovaných reakcí. Poločasy rozpadu jsou v rozmezí nejistot shodné s tabulkovými hodnotami.

POZNÁMKA

Rozpadové křivky, celkový přehled sledovaných reakcí a detaily srovnání experimentálně určených hodnot účinných průřezů s excitačními funkcemi z knihoven jaderných dat jsou uvedeny v práci [5].

PODĚKOVÁNÍ

Na tomto místě bychom rádi poděkovali celému týmu, který má na starost provoz režského cyklotronu U-120M, za bezproblémový průběh ozařování a kvalitu svazku. Zvláštní dík patří především panu Ing. Milanu Štefánikovi, Ph.D. za úsilí, které věnuje organizaci a realizaci podobných experimentů.

LITERATURA

- [1] LONE, M. A. et al. *Thick target neutron yields and spectral distributions from the $Li(p/d,n)$ and $Be(p/d,n)$ reactions*. Nuclear instruments and methods. 1977, (vol. 143), p.331-344. DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(77\)90616-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(77)90616-4).
- [2] ÚLEHLA, I. et al. *Atomy, jádra, částice: celostátní vysokoškolská učebnice pro studenty matematicko-fyzikálních a přírodovědných fakult*. Academia, 1990. ISBN 80-200-0135-2.
- [3] ŠTEFÁNIK, M. *Experimentálne stanovenie spektier urýchľovačom riadených neutrónových generátorov*. Praha, 2016. Disertační práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce Ing. Karel Katovský, Ph.D.
- [4] SCHERY, S. D. et al. *Activation and angular distribution measurements of $7Li(p,n)7Be(0.0+0.49 MeV)$ for $E_p = 25-45 MeV$: A technique for absolute neutron yield determination*. Nuclear instruments and methods. 1997, (vol.147), p.399-404. DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(77\)90275-0](https://doi.org/10.1016/0029-554X(77)90275-0).
- [5] JAROŠÍK, J. *Studium reakcí neutronu důležitých pro pokročilé jaderné systémy*. 2019. Bakalářská práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, Csc.
- [6] KONING, A. et al. *TALYS-1.9 User manual*. 2017 [cit. 2019-03-18]. Dostupné z: <http://www.talys.eu>
- [7] SVOBODA, O. *Experimental Study of Neutron Production and Transport for ADTT*. 2011. Disertační práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, CSc.
- [8] CHUDOBA, P. et al. *Activation Measurements of Cross Sections for Ground and Isomeric States Production in Neutron Threshold Reactions on Y and Au*. Nuclear Science and Engineering. 2018, (vol. 191). DOI: <https://doi.org/10.1080/00295639.2018.1455437>.
- [9] VRZALOVÁ, J. et al. *Studies of (n,xn) cross-sections in Al, Au, Bi, Cu, Fe, I, In, Mg, Ni, Ta, Y, and Zn by the activation method*. Nuclear Instrumental Methods in Physics Research, 2013, (vol. 726) DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.05.133>
- [10] WAGNER, V. et al. *Cross-section studies of important neutron and relativistic deuteron reactions*. Journal of Physics. 2016, (vol. 553). DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/533/1/012052>.
- [11] MAJERLE, M. et al. *Au, Bi, Co and Nb cross-section measured by quasimonoeenergetic neutrons from $p+7Li$ reaction in the energy range of 18-36 MeV*. Nuclear Physics. 2016, (vol. 953). DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2016.04.036>
- [12] *Live Chart of Nuclides: nuclear structure and decay data, IAEA* [online]. [cit. 2019-02-22]. Dostupné z: <https://wwwnds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
- [13] *Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR)* [online]. Dostupné z: <https://www-nds.iaea.org/exfor/>

Bezpečnostná analýza kritickosti bazéna skladovania vyhoreného paliva v JE Mochovce

Kaprinayová Katarína¹, Farkas Gabriel¹, Krištofová Kristína¹, Hausner Peter¹,

Slugeň Vladimír¹

E-mail: katarina.kaprinayova@gmail.com

¹Slovenská technická univerzita v Bratislave, Fakulta elektrotechniky a informatiky, Ilkovičova 3, 84104 Bratislava, Slovenská republika

Abstrakt: Tento článok je venovaný optimalizačným analýzám bazénu skladovania vyhoreného paliva umiestneného v areáli JE Mochovce, v ktorom sa nachádza z dôvodu bezpečnosti a legislatívy 71 voľných pozícií (bez palivových kaziet). Výpočet sa uskutočnil pomocou kódov MCNP5 a Serpent 2 s použitím účinnopriereznych knižníc ENDF/B-VII. Bezpečnostná analýza sa uskutočňovala na trojrozmernom modeli kompaktnej mreže naplnenej palivovými kazetami typu W pre reaktor VVER-440 s nominálnym priemerným obohatením 4,87% hm. Vykonaná bola aj parametrická analýza. Sledovaná bola citlivosť multiplikačného koeficientu na zmenu mriežkového rozstupu palivových tyčí, rozstup palivových kaziet v absorpčných rúrach, teplotu chladiacej kvapaliny, hustotu paliva a obsah bóru v oceli absorbujúcej ATABOR. Parametrické analýzy ukázali, že množiacie vlastnosti systému sú negatívne ovplyvnené zvýšením rozstupu mriežky palivových tyčí, zvýšením hustoty paliva, znížením rozstupu absorpčných rúr, znížením teploty chladiča a znížením obsahu bóru v absorbujúcich rúrach. Výsledky parametrických analýz sú následne použité v modeli kompaktnej mreže bazénu skladovania vyhoreného paliva na navrhnutie optimalizačného scenára so zavedením absorpčných častí ARK kaziet do kompaktnej mreže, čím je možné zvýšiť jej skladovaciu kapacitu.

KLúčové slová: MCNP5, Serpent2, bazén skladovania vyhoreného paliva, optimalizácia, VVER-440

1. ÚVOD

Podľa platnej bezpečnostnej správy, kapitola 4.3.4.5 [1] a právnych predpisov [2], vyhorené palivové kazety (PK) sú umiestnené v bazéne skladovania vyhoreného paliva (BSVP), ako je to znázornené na obrázku 1 a uvedné v [3][4]. BSVP sa skladá z dvoch rôznych skladovacích sietí - spodnej, nazývanej „kompaktná mreža“ a hornej „rezervnej mreže“, ktorá sa používa iba pri zavážaní paliva. Kompaktná mreža je vyrobená z troch častí absorpčných bórových ocelových rúr. PK s poškodenými palivovými prútikmi sa skladujú v hermetických puzdrách (HP), ktoré sa nachádzajú na okraji BSVP. V kompaktnej mreži je 603 absorpčných rúr (AR) a 54 hermetických puzdiel. Charakteristickým rysom súčasného spôsobu skladovania vyhoreného jadrového paliva v BSVP je existencia štyroch prázdnych radov, ako je znázornené na obr. 1 (miesta bez palivových kaziet). Takto sa multiplikačný koeficient znížil na 0,946 [1] a splnila sa požiadavka, aby k_{eff} bol menší ako 0,950 za normálnych prevádzkových podmienok v BSVP. Kapacita BSVP sa však zníži o 71 pozícií. Tento článok sa zaoberá návrhom nového optimalizovaného scenára zavážky BSVP. Na tento účel by sa mali použiť absorpčné časti ARK kaziet (ktoré sú použité, t.j. po určenej dobe strávenej v aktívnej zóne reaktora). Naplnenie niektorých prázdnych pozícií v kompaktnej skladovacej mreži s až 24 absorbátormi by mohlo navýšiť kapacitu bazéna skladovania vyhoreného paliva až o 47 pozícií.

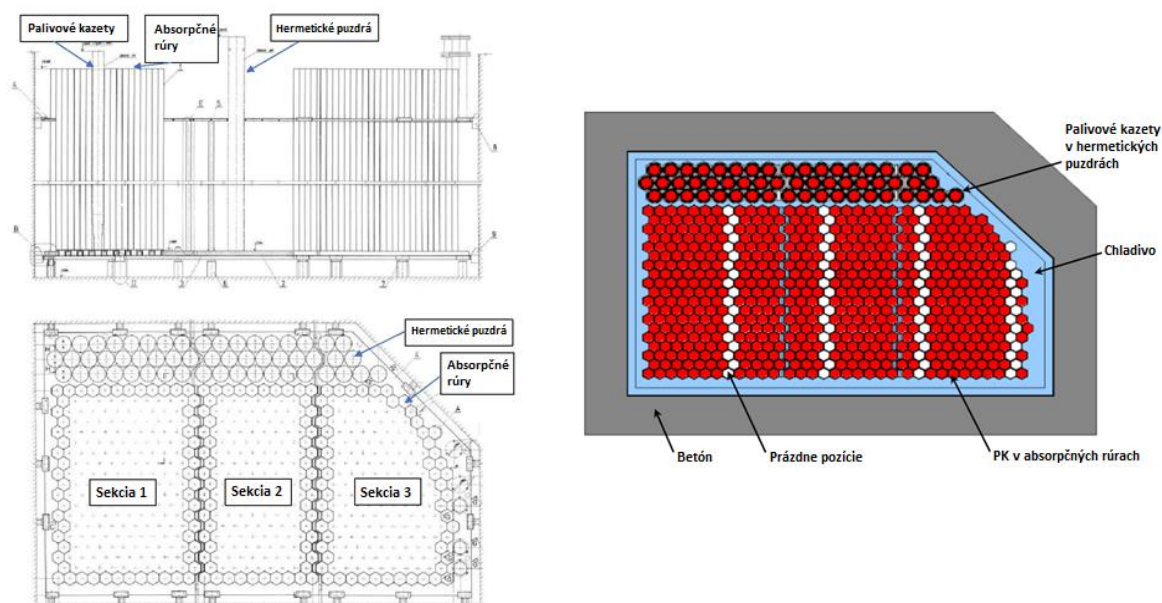
2. PARAMETRICKÉ ANALÝZY A BEZPEČNOSTNÁ ANALÝZA KRITICKOSTI

Optimalizácia skladovania palivových kaziet v BSVP blokov EMO12 pomocou kódu MCNP5 a existujúceho verifikovaného modelu BSVP EMO12 spočíva v nasledujúcich úlohách:

- vytvorenie metodiky optimalizácie výpočtu skladovania palivových kaziet v BSVP,
- modifikácia existujúceho modelu BSVP EMO12 podľa vstupných podmienok projektu,

- vytvorenie modelu absorpčných častí a ich implementácia do modelu BSVP EMO12,
- optimalizácia z hľadiska zavedenia čo najmenšieho počtu častí absorbátorov do BSVP na zabezpečenie bezpečnostných požiadaviek a dosiahnutie maximálnej kapacity BSVP pri súčasnom zohľadnení konzervatívneho prístupu podľa [1], [2],
- výpočty kritickosti Monte Carlo pre navrhované scenáre optimalizácie.

Parametrické analýzy charakteristík BSVP EMO12 zamerané na vyhodnotenie vplyvu na výstupné premenné výpočtu. V kóde MCNP5 bol vytvorený trojrozmerný model kompaktnej mreže BSVP. Model BSVP je zavezený palivovými kazetami druhej generácie s priemerným obohatením 4,87% hm. Palivové prúťky sú umiestnené v trojuholníkovej mreži s rozstupom prúťkov $12,3 \pm 0,12$ mm [3].



Obr. 1: Kompaktná mreža bazéna skladovania vyhorého paliva a MCNP5 model kompaktnej mreže

Výpočet kritickosti sa uskutočnil pomocou transportného výpočtového kódu MCNP5 [5] - [7] s účinnoprierezou knižnicou založenou na ENDF/B-VII.0 [8]. Bol vykonaný validačný výpočet, ktorého cieľom bolo zistiť systematickú chybu (bias), ktorá je spôsobená samotnou výpočtovou metódou, a použiť účinnoprierezových knižníc. Validačný výpočet je založený na súbore validačných úloh s názvom Criticality Validation Suite [9], ktorý je k dispozícii v publikácii International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments [10]. Použitá bola úloha BaW XI (2), ktorá sa najväčšmi približuje nášmu modelovanému systému – v úlohe sa jedná o heterogénny systém nízkoobohatených palivových prúťkov uránu v štvorcovej mriežke, ako moderátor a reflektor je použitá ľahká voda s určitou koncentráciou kyseliny boritej. Pre tento experiment sme overili tri rôzne knižnice - ENDF/B-VI, ENDF/B-VII a JENDL-3.3, pre analýzu bola použitá knižnica ENDF/B-VII. Systematická chyba (bias) bola stanovená z výpočtu validácie; ňou boli následne korigované výsledky výpočtu.

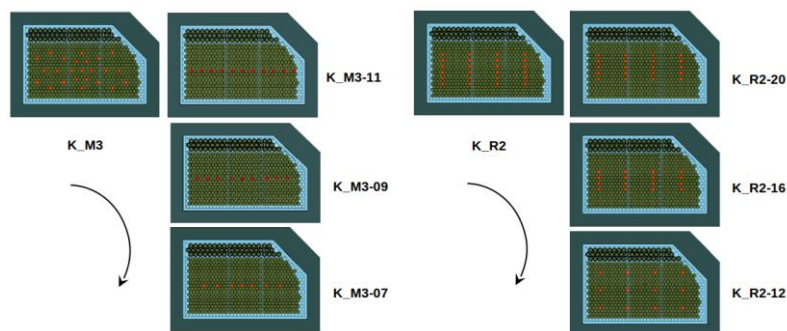
Maximálna hodnota multiplikačného koeficienta k_{eff}^{max} (1) bola stanovená pripočítaním ku konzervatívnej hodnote k_{eff}^{conser} , opravenej systematickou chybou Δ_{bias} a korekčných neistôt spojených s neurčitosťou všetkých relevantných vstupných údajov nezahrnutých do výpočtu. Kombinovaná neistota je vynásobená jednostranným koeficientom rozšírenia $k = 1,695$, čo pri normálnom rozdelení predstavuje pravdepodobnosť 95,5% (interval spoľahlivosti: 2σ).

$$k_{eff}^{max} = k_{eff}^{conser} + \Delta_{bias} + 1,695 \sqrt{\sigma_{exp}^2 + \sigma_{cal}^2 + \sigma_{conser}^2}$$

| | | | |
|------|--------------------|----|---------------------------------------------------------------|
| kde: | k_{eff}^{max} | je | maximálna hodnota multiplikačného koeficientu, |
| | k_{eff}^{conser} | - | multiplikačný koeficient stanovený konzervatívnym výpočtom, |
| | Δ_{bias} | - | systematická odchýlka, |
| | σ_{exp} | - | neistota experimentálne určeného k_{eff} z benchmark úlohy, |
| | σ_{cal} | - | neistota vypočítaného k_{eff} z benchmark úlohy, |
| | σ_{conser} | - | neistota vypočítaného k_{eff} - konzervatívny prístup. |

Pri výpočtoch sme zvolili konzervatívny prístup. Pri výpočte konzervatívnej (maximálnej) hodnoty multiplikačného faktora je potrebné vziať do úvahy všetky aspekty, ktoré ovplyvňujú neutrónovú bilanciu v skúmanom systéme tak, že k_{eff} narastá. Takto určená hodnota k_{eff} bude vyššia ako v skutočnosti, ale je dôležité pripomenúť, že v prípade konzervatívneho prístupu sa hľadá hodnota k_{eff} pri najnepriaznivejších skladovacích podmienkach BSVP. Stanovenie konzervatívnych hodnôt sa uskutočnilo prevažne parametrickou analýzou v kóde Serpent 2 [11], [12] s použitím knižníc prierezov založených na ENDF / B-VII. Sledované parametre zahŕňajú krok palivových prútikov, krok absorpčných rúr (AR), teplotu chladiva a jeho hustotu, hustotu TVEL a TVEG materiálov [3] a frakciu bóru v AT. Parametrické analýzy pre riadky 1, 2, 8 a 10 v intervaloch „nominálna hodnota parametra ± tolerancia“, uvedené v tab. 1, boli vykonané iba pre jednu čerstvú palivovú kazetu umiestnenú v absorpčnej rúre s definovanými reflexnými okrajovými podmienkami.

Proces vytvárania konfigurácie kompaktnej mreže BSVP vzhľadom na legislatívnu podmienku $k_{eff} < 0,95$ bol nasledujúci: v prvom kroku bol k_{eff} vypočítaný pre plne zavezený BSVP bez akýchkoľvek absorbátorov. Základné modelované scenáre boli založené na dvoch konceptoch zavezenia absorbátorov - „v radoch“ a „v stĺpcoch“ (zobrazené na obrázku 2). Pre obidva koncepty boli vyvinuté a následne preskúmané rôzne scenáre záväzky. Pre každý variant sa stanovila hodnota k_{eff} a vplyv rozloženia absorbátorov na distribúciu hustoty toku neutrónov v BSVP. Pretože vplyv absorbátorov závisí od štvorca hustoty toku neutrónov, pokúsili sme sa optimalizovať rozloženie absorbátorov v BSVP, aby sa maximalizoval vplyv na bilanciu neutrónov. Vzhľadom na konzervatívne podmienky, ak by bol celý BSVP úplne naložený palivovými kazetami, bol by prekročený limit pre k_{eff} stanovený legislatívou. Pri zavádzaní absorpčných častí ARK (24 kusov) sú hodnoty k_{eff} pre každý variant pod limitom.



Obr. 2: Scenáre záväzok a optimalizácia (K_Mx – v stĺpcoch, K_Rx – v radoch)

Podľa výsledkov v tab. 2, napriek tomu, že výsledky pre K_M03-07 sú dostatočné, navrhujeme konfiguráciu K_M3-09 - na „hrebeň“ maxima neutrónového poľa sa zavedie 9 absorpčných častí ARK, aby sa dosiahol maximálny vplyv na bilanciu neutrónov a splnili sa legislatívna požiadavka na podkritickosť s dostatočnou rezervou.

3. VÝSLEDKY

Boli vykonané parametrické analýzy, ktorých výsledky sú uvedené v tab. 1. V prvej analýze bol skúmaný vplyv zmeny kroku palivových prútikov na k_{inf} - zmena v rozsahu 12,18 mm na 12,42 mm s krokom 0,02 mm. To spôsobilo zlepšenie vodo-uránového pomeru, čo malo za následok zlepšenie moderačných vlastností; preto sa

19. MIKULÁŠSKÉ SETKÁNÍ MLADÉ GENERACE ČNS 4. - 6. 12. 2019

k_{inf} zvyšuje so zväčšujúcim sa krokom. Ďalej bol vyšetřovaný vplyv zmeny teploty chladiva na k_{inf} – zmena od 4°C na 50°C s krokom 2°C a 50°C až 100°C s krokom 5°C. Kompaktná mreža sa správa ako podmoderovaný systém; preto zníženie teploty chladiva vedie k zvýšeniu hustoty chladiva a zlepšeniu vodo-uránového pomeru, preto sa k_{inf} zvyšuje so znižujúcou sa teplotou. Tretia analýza bola zameraná na vplyv zmeny kroku absorpčných rúr na k_{inf} - zmena v rozmedzí 16,158 cm až 16,2842 cm s krokom 0,02 cm. Menší krok spôsobuje menšie množstvo moderátora medzi AR, zhoršenie moderovacích vlastností a nižšiu hustotu tepelných neutrónov, čo vedie k tvrdeniu spektra. Preto sa v bóre absorbuje menej neutrónov a k_{inf} sa zvyšuje s menším krokom. Následne bol študovaný vplyv zmeny koncentrácie bóru v oceli ATABOR [13] na k_{inf} – zmena v rozsahu 0,50% hmotn. až 1,00% hmotn. s krokom 0,05% hmotn. Čím je koncentrácia bóru nižšia, tým vyšší je multiplikačný faktor. Pretože nie je k dispozícii žiadny interval pre hmotnostný podiel bóru v oceli ATABOR, konzervatívne sme znížili obsah bóru o 5% na 0,95% hmotn. Vyháranie bóru nebolo brané do úvahy. Posledná analýza skúmala závislosť k_{eff} of hustoty materiálov TVEL a TVEG - táto parametrická analýza bola zameraná na zmenu hustoty paliva z 10,3 g/cm³ na 10,7 g/cm³ s krokom 0,1 g/cm³. Zvýšenie hustoty paliva vedie k zvýšeniu množstva štiepných jadier v objemovej jednotke a ku zvýšeniu k_{inf} .

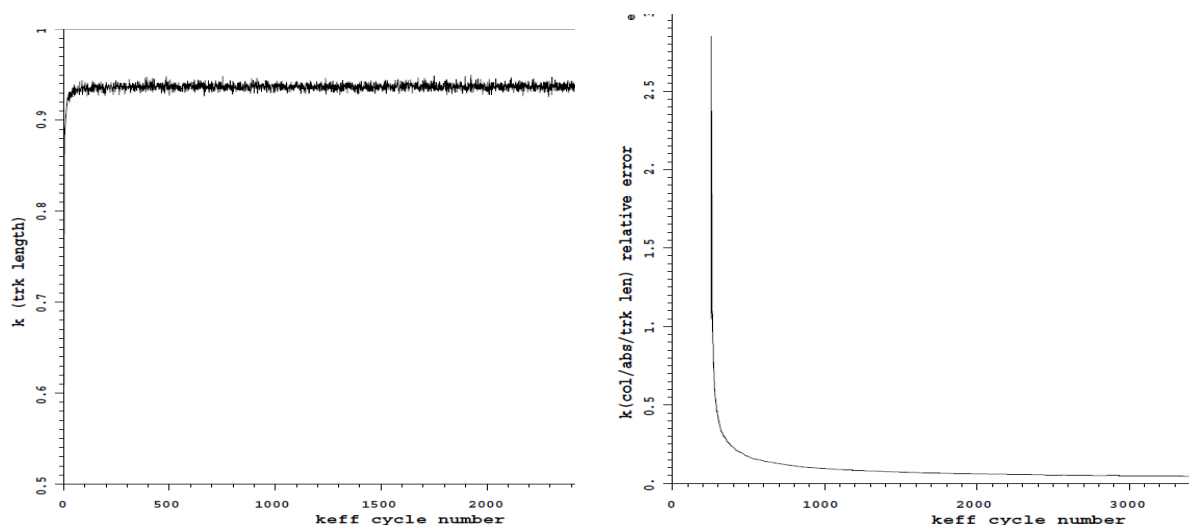
Tab.1: Konzervatívne hodnoty parametrov použité v bezpečnostnej analýze kritickosti

| No. | Parameter | Nominálna hodnota | Tolerancia | Konzervatívna hodnota |
|-----|----------------------------------------------------|-------------------------------|----------------|------------------------------|
| 1 | Krok palivových prútikov | 12,30 mm | ± 0,12 mm | 12,42 mm |
| 2 | Krok AR | 162,000 mm | ± 0,842 mm | 161,158 mm |
| 3 | Krok HT | 230 mm | | 230 mm |
| 4 | Priemerné obohatenie ²³⁵ U v PK | 4,87 % hmot. | ± 0,05 % hmot. | 4,92 % hmot. |
| 5 | Priemerné obohatenie ²³⁵ U v TVEL | 4,60 % hmot. 4,95 % hmot. | ± 0,05 % hmot. | 4,65 % hmot. 5,00 % hmot. |
| 6 | Priemerné obohatenie ²³⁵ U v TVEG | 4,40 % hmot. | ± 0,05 % hmot. | 4,45 % hmot. |
| 7 | Koncentrácia Gd ₂ O ₃ v TVEL | 3,35 % hmot. | ± 0,15 % hmot. | 3,20 % hmot. |
| 8 | Hustota TVEL a TVEG | 10,4 – 10,7 g/cm ³ | | 10,7 g/cm ³ |
| 9 | Koncentrácia bóru v ATABOR | 1,00 % hmot. | | 0,95 % hmot. |
| 10 | Teplota chladiva | 50°C | | 4°C |
| 11 | Koncentrácia bóru v chladive | | | 0 g/kg |
| 12 | Koncentrácia bóru v absorbátoroch | 1,6 – 2,0 % hmot. | | 1,6 % hmot. |

Tab. 2: Sumarizačná tabuľka výsledkov bezpečnostnej analýzy kritickosti s koncentráciou bóru v oceli ATABOR 0,95 % hmotn.

| Konfigurácia | k_{eff}^{conser} | σ^{conser} | k_{eff}^{max} | k_{eff}^{max} odchýlka od $k_{eff}^{lim} = 0.95$ [%] |
|--------------|--------------------|-------------------|-----------------|--------------------------------------------------------|
| K_FULL | 0,95486 | 0,00005 | 0,95738 | +0,77 |
| K_M1 | 0,94455 | 0,00005 | 0,94707 | -0,31 |
| K_M2 | 0,94476 | 0,00005 | 0,94728 | -0,29 |
| K_M3 | 0,93734 | 0,00005 | 0,93986 | -1,08 |
| K_M3-11 | 0,94530 | 0,00005 | 0,94782 | -0,23 |

| | | | | |
|---------|---------|---------|----------|-------|
| K_M1-09 | 0,94551 | 0,00005 | 0,947803 | -0,21 |
| K_M1-07 | 0,94738 | 0,00005 | 0,94990 | -0,01 |
| K_R1 | 0,94524 | 0,00005 | 0,94776 | -0,24 |
| K_R2 | 0,94452 | 0,00005 | 0,94704 | -0,31 |
| K_R3 | 0,94784 | 0,00005 | 0,95036 | +0,04 |
| K_R4 | 0,94041 | 0,00005 | 0,94293 | -0,75 |
| K_R5 | 0,93497 | 0,00005 | 0,93749 | -1,33 |
| K_R2-20 | 0,94569 | 0,00005 | 0,94821 | -0,19 |
| K_R2-16 | 0,94656 | 0,00005 | 0,94908 | -0,10 |
| K_R2-12 | 0,94891 | 0,00005 | 0,95143 | +0,15 |



Obr. 3: Kompaktná mreža BSVP – závislosť konvergencie k_{eff} od počtu cyklov (vľavo), klesajúci trend neistoty k_{eff} v závislosti od počtu cyklov (vpravo)

4. ZÁVER

V súlade s definovaným cieľom zadania bola vykonaná bezpečnostná analýza kritickosti bazéna skladovania vyhoreného paliva s použitím MCNP5 1.60. Uvážené boli konzervatívne podmienky skladovania čerstvých palivových kaziet typu W (stredné obohatenie palivovej kazety: 4,87%). Bezpečnostná analýza kritickosti bola vykonaná na trojrozmernom MCNP modeli s prihliadnutím na výrobné tolerancie, profilovanie paliva, prítomnosť vyhoriavajúceho absorbátora v príslušných palivových prútikoch v súlade s konzervatívnym prístupom. Výsledky výpočtu očakávaných hodnôt maximálneho efektívneho multiplikačného faktora sú uvedené v tab. 2 a zodpovedajúca konvergenčná závislosť je uvedená na obr. 3. Zhrnutie výsledkov, ktoré sa týkajú validácie modelu, sú uvedené v [14]. V dokumente [14] je taktiež podrobný opis kompaktnej mreže. Vypočítaná konzervatívna hodnota k_{eff} bola opravená o systematickú chybu (určenou na základe validačných výpočtov) a kombinovanú neistotu všetkých relevantných vstupných parametrov, ktoré nie sú zahrnuté v konzervatívnom výpočte vynásobenom jednostranným rozširovacím faktorom pre normálne rozdelenie $k = 1,695$. Výpočet ukázal, že podmienka bezpečnej podkritickosti v intervale spoľahlivosti $2\sigma \sim 95,5\%$ bola splnená iba v týchto analyzovaných prípadoch: K_M3-07, K_M3-09, K_M3-11, K_R2-16, K_R2-20. Na základe získaných výsledkov je usporiadanie absorbujúcich častí ARK kaziet „v radoch“ optimálne v porovnaní so usporiadaním „v stĺpcoch“ z hľadiska zvýšenia skladovacej kapacity BSVP - kvôli rovnomernejšiemu

pôsobeníu zavezených absorbátorov na neutrónové pole systému. Pokiaľ ide o účinnosť použitia maximálneho počtu pozícií pre palivové kazety v BSVP a minimálneho počtu zavezených absorbátorov, za najvhodnejší považujeme scenár K_M3-09, v ktorom je využitých iba 9 kusov absorbátorov a podmienka bezpečnej podkritickosti je splnená s bezpečnostnou rezervou voči legislatívnej hodnote požadovanej nariadením ÚJD č. 30/2012 Z. z. [2]. Okrem toho sa kapacita BSVP zvyšuje približne o 12%.

POĎAKOVANIE

Tento príspevok vznikol za podpory projektu VEGA 1/0104/17 a taktiež spoločnosti CVV, a.s.

LITERATÚRA

- [1] Predprevádzková bezpečnostná správa PPBS pre EMO12, Gd palivo 4,87%, kapitola 4, Revízia 1, EMO12, SE a.s. 2011
- [2] Vyhláška ÚJD SR č. 30/2012 Z. z. v znení vyhlášky č. 101/2016 Z. z., ktorou sa ustanovujú podrobnosti o požiadavkách pri nakladaní s jadrovými materiálmi, rádioaktívnymi odpadmi a vyhoretým jadrovým palivom, Úrad jadrového dozoru 2016
- [3] PpBS pre AEMO revízia 1 – dodatok č. 3, 1. a 2. blok Y213-TI-1768. Federálna agentúra pre atómovú energiu, FGUP OKB Hidropress, Moskva, Kurčatovský inštitút 2005
- [4] Jaderná elektrárna Mochovce 440 MW /2. stavba/, Prováděcí projekt, DPS 1.02.03 - Zařízení pro skladování vyhořelého paliva. Zkompaktnění Skladovacího bazénu pro vyhořelé palivo, Technická správa. 1991. Plzeň, ŠKODA, koncern, Plzeň, a. s. 1991
- [5] X-5 Monte Carlo Team: MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume III: Developer’s Guide. LA-CP-03-0284. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory 2003
- [6] X-5 Monte Carlo Team: MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume II: User’s Guide. LA-CP-03-0245. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory 2003
- [7] X-5 Monte Carlo Team, MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume I: Overview and Theory. LA-UR-03-1987. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory 2003
- [8] Chadwick, M. B. et al.: ENDF/B-VII.0: Next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. In: Nucl. Data Sheets 107, 2006
- [9] Mosteller, R. D., ENDF/B-VII.0, ENDF/B-VI, JEFF-3.1, and JENDL-3.3 Results for the MCNP Criticality Validation Suite and Other Criticality Benchmarks, in Proceedings of International Conference on Reactor Physics, Nuclear Power: A Sustainable Resource (PHYSOR 2008), Interlaken, Switzerland, 2008
- [10] International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, NEA/NSC/DOC(95)03. OECD Nuclear Energy Agency, 2007
- [11] Leppänen, J. et al.: The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013, Ann. Nucl. Energy, vol. 82, pp. 142–150, 2015
- [12] Leppänen, J.: Development of a New Monte Carlo Reactor Physics Code. Finland: VTT Technical Research Centre of Finland, 2007
- [13] Technická špecifikácia ŠKODA Ae 1838 F Plechy z korozivzdorné austenitické oceli s obsahom bóru 1,05 až 1,2% pro svařované trubky kompaktních skladů. Plzeň, ŠKODA
- [14] Farkas, G. et al.: Optimalizácia ukladania palivových kaziet v BSVP blokov EMO12. Výskumná správa, Bratislava, Slovenská technická univerzita v Bratislave 2019, 65 s.

Návrh a konstrukce promývačky plynu pro fixaci vysokých koncentrací tritia

Kekrt Jaroslav¹, Kordač Michal¹

E-mail: Jaroslav.Kekrt@cvrez.cz

¹Centrum Výzkumu Řež, Hlavní 130, Husinec-Řež, 250 68, Česká republika

Abstrakt: Tritium je jedním z radioizotopů, které se v přírodě běžně nevyskytují. Vzhledem k možnosti jeho vstupu do potravního řetězce ve formě vody, je aktivní zachycování úniků velmi důležité. Zachytávání tritia se ve většině případech odehrává za malých koncentrací a během dlouhého časového intervalu. S nástupem testů pro fúzní technologie je však vyprodukováno velké množství tritia během krátké doby. Toto množství tritia je nezbytné zachytit s velmi vysokou účinností a tritium případně uskladnit pro další výzkum. Komerčně dostupné metody takovým požadavkům nevyhovují, a proto bylo zapotřebí navrhnout odpovídající management tritia s využitím jeho fixace v promývačce plynu. Účinnost systému byla předběžně ověřena s pomocí matematického modelu. Dle této předlohy byl následně vytvořen design a vyrobeno reálné zařízení, které bude předmětem experimentálního ověření. Předními vlastnostmi této promývačky jsou její kompaktnost a univerzálnost použití.

Klíčová slova: Tritium, promývačka plynu, konstrukce, matematický model, fixace radioizotopů

1. ÚVOD

S přibývajícím testy, týkajících se fúzních technologií, se zvyšuje potřeba po efektivním a praktickém způsobu zachytávání tritia. Technologie používané pro zachytávání tritia se liší podle koncentrace tritia v proudu plynu.

Pro nízké koncentrace, typicky zachytávání tritia z atmosféry, kde se koncentrace pohybuje kolem hodnot 0,02 – 0,03 Bq/m³ [1][2], se nejčastěji využívají suché pasti obsahujících například silika gel nebo molekulová síta [3], nebo s využitím promývaček plynu obsahujících vodu nebo roztok glykolu [4]. Tyto metody předpokládají, že tritium se v plynu nachází ve formě tritiované vodní páry (HTO). Osborne[2] předložil matematický popis, popisující zachycení tritia v promývačce současně s experimentálním stanovením účinnosti takového zařízení během vzorkování tritia z atmosféry. Ve své práci demonstroval vysokou účinnost vzorkování (vyšší než 99%) a vliv obsahu atmosférické vlhkosti na tento způsob vzorkování, které výrazně ovlivňuje množství vody ve vzorkovacím systému.

Pro vysoké koncentrace tritia v molekulární formě (HT), jako jsou například odpadní plyny z experimentů s tritiem v Tritiové laboratoři v Karlsruhe, se pro skladování tritia používá uranové getrové lůžko [5]. Pro nižší koncentrace naráží tato technologie na potřebu velké styčné plochy pro zajištění účinného odstranění tritia z proudu procházejícího plynu.

Pro potřeby experimentů, kdy je sledován vliv molekulárního tritia na vlastnosti materiálů, kterých je zapotřebí při vývoji fúzních zařízení, je nezbytné nalézt jednoduché zařízení pro dekontaminaci odpadních plynů. Navržené zařízení musí splňovat požadavky na výstupní koncentraci tritia tak, aby nebyly dotčeny příslušné regulační limity pro vypust tritia do prostředí. Použití getrového lůžka je v takovém případě spojeno s nízkou účinností zachycení tritia ze zředěného plynu na povrchu getru a ceně takového zařízení. Využití promývačky plynu se jeví jako vhodné jak z hlediska jednoduchosti obsluhy a provozu, tak i z hlediska vysoké účinnosti takového zařízení.

Cílem tohoto příspěvku je navrhnout zařízení pro zachycení tritia z plynu, který obsahuje typicky 860 TBq/m³, přičemž jeho celkový objem vygenerovaný v průběhu 1 měsíce je cca 30L. Další požadavky na

navrhované zařízení je snadná obsluha, bezpečnost při další manipulaci s radioaktivním odpadem a vysoká účinnost zachycení tak, aby bylo možné splnit limity pro vypouštění tritia.

2. MODELOVÁNÍ ÚČINNOSTI PROMÝVAČKY PLYNU

Promývačka plynu zachycuje tritium ve formě tritiované vody HTO, která stejně jako vodní pára podléhá mezifázové rovnováze kapalina - pára. Protože počáteční aktivita tritia ve vodě je nulová, je tritium zpočátku zachycováno s velmi vysokou účinností, která s přibývajícím tritiem v kapalině postupně klesá tak, jak roste tenze par tritiované vody nad hladinou.

2.1. MATEMATICKÝ MODEL

Schéma promývačky plynu je na obrázku 1. Hmotnost vody v promývačce je označena M a objem plynu procházející skrze promývačku je označen V . Vlhkost plynu na vstupu, Y_I , je blízká nule, protože v experimentech je využíván suchý plyn z tlakové lahve, vlhkost výstupního plynu, Y_E , byla vypočtena pro laboratorní teplotu 25°C. Tritium vstupuje ve formě tritiované vody (HTO), jejíž aktivita ve vstupujícím plynu je C .

Hmotnost vody v promývačce je dána celkovou bilancí vody:

$$M = M_0 - \epsilon * (Y_E - Y_I) * V \quad (1)$$

Hodnota vnitřní účinnosti nasycení plynu vodní parou, ϵ , byla odhadnuta jako 0,9 jako nejhorší možný případ z bezpečnostních důvodů.

Aktivita tritia v kapalině v promývačce je vypočtena z rovnice bilance tritia:

$$\frac{dA}{dV} = \epsilon * \left(C - \frac{\alpha * A * Y_E}{M} \right) \quad (2)$$

Řešení rovnic 1 a 2 pro aktivitu vody v promývačce, za předpokladu, že $Y_E \neq Y_I$, publikoval Osborne[4] ve tvaru:

$$A_L = \frac{M * C}{(Y_E - Y_I) * W} * \left[1 - \left(\frac{M}{M_0} \right)^W \right] + A_0 \left(\frac{M}{M_0} \right)^{W+1} \quad (3)$$

Kde exponent W je dán vztahem:

$$W = \left(\frac{\alpha * Y_E}{Y_E - Y_I} \right) - 1 \quad (4)$$

Isotopický koeficient α , v rovnici 2, který vyjadřuje snížení tlaku syté páry HTO vzhledem k H_2O , byl zjištěn z rovnice 5 a ověřen pomocí experimentálních dat, které publikovali Sepall a Mason[6].

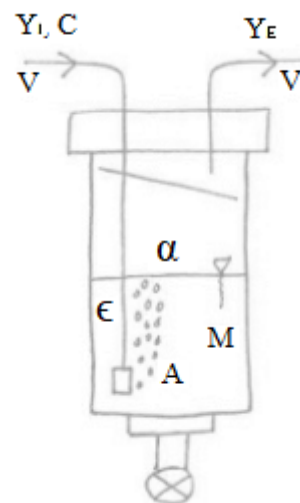
$$\alpha = \frac{A_G}{A_L} = \frac{[H^3]/[H^1]_{pára}}{[H^3]/[H^1]_{kapalina}} = \frac{p_{H_2O}^0}{p_{HTO}^0} \quad (5)$$

Celková aktivita plynu odcházejícího z promývačky za jeden den A_d se vypočte ze vztahu:

$$A_d = \frac{\alpha * A_L}{M} * Y_I * V_d \quad (6)$$

Účinnost zachycení tritia do vody v promývačce se vypočte pomocí vztahu:

$$\eta = 1 - \frac{A_I}{A_E} \quad (7)$$



Obr. 1: Schéma promývačky plynu

2.2. DIMENZOVÁNÍ PROMÝVAČKY PLYNU

Pro zajištění vysoké účinnosti fixace HTO ve vodě je zapotřebí dosáhnout účinného styku vytvořených bublin s kapalinou. Z analýzy přestupu hmoty z bubliny, ve které plyn plně cirkuluje [8], plyne, že potřebná doba kontaktu bubliny s kapalinou je cca 0,5 s. Rychlost stoupání bublin plynu s vnitřní cirkulací ve vodě je 20 cm/s téměř nezávislá na průměru bublin v rozmezí 1 – 3 mm [7]. Těmto parametrům odpovídá výška vodního sloupce v promývačce 10 cm. Celkový objem nádob pro vzorkování tritia je 200 ml. Z bezpečnostních důvodů je potřeba udržet tento minimální objem plynu nad vodní hladinou v promývačce, aby plyn zůstal v nádobě s vodou dostatečně dlouho a stihl se s ní dostat do rovnovážného stavu. Zároveň je tak ošetřen případ, kdy by se na hladině vytvořila vrstva bublin nebo pěny, která by mohla způsobit únik kapaliny z promývačky do výstupu plynu.

Pro splnění požadavků na plynostnost byly vybrány normalizované vakuové příruby DN 40 CF s vnitřním průměrem pro trubku 40,5 milimetru. Z jednoduchého přepočtu potom získáme potřebný objem vody v promývačce 140 ml. Přičteme-li 240 ml plynu, odpovídajících plynu s tritiem a bezpečnostní vůli, získáme potřebný vnitřní objem promývačky 380 ml. Tento objem odpovídá výšce 300 milimetrů.

2.3. MODELOVÁNÍ ÚČINNOSTI FIXACE TRITIA V PROMÝVAČKÁCH PLYNU

Tato promývačka plynu bude využita během připravovaných testů v reaktoru LVR-15 umístěného v CVŘ.

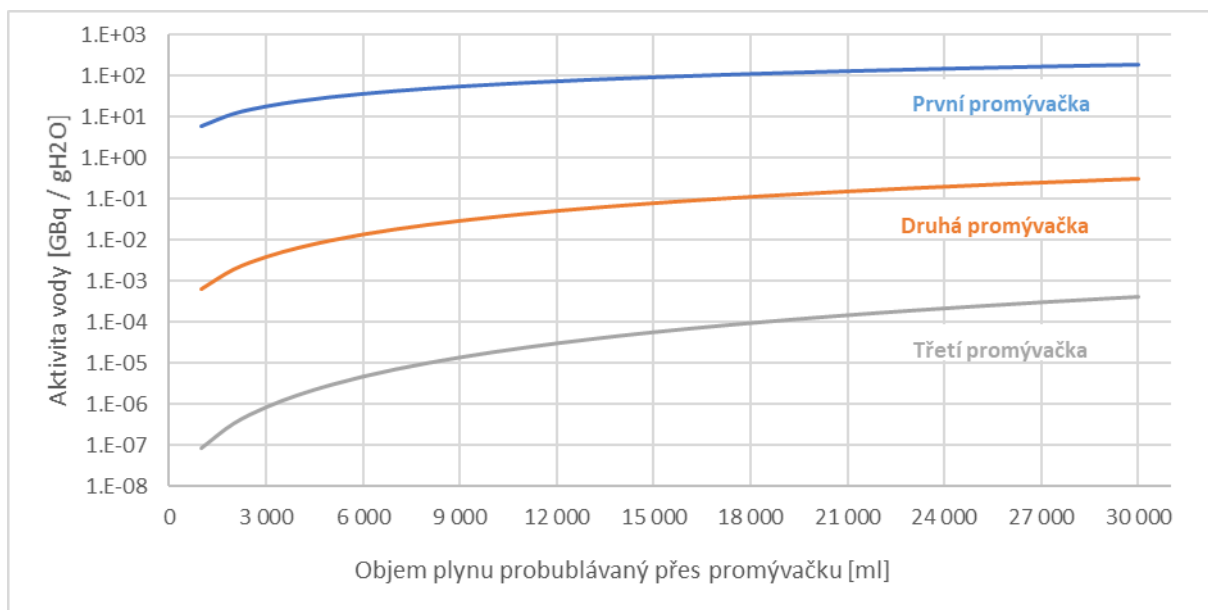
Vstupní hodnoty použité pro výpočty jsou shrnuty v tabulce 1.

Tab. 1: Vstupní parametry pro výpočty hodnot v promývačce

| Označení | Vysvětlení | Hodnota | Jednotky |
|-------------|-------------------------------------------------------|-----------------------|-------------------|
| M_0 | Počáteční hmotnost vody v jedné promývačce | 140 | g |
| ϵ | Vnitřní účinnost | 0.9 | - |
| Y_I | Vlhkost výstupního plynu | 20 | g/m ³ |
| Y_E | Vlhkost vstupního plynu | 0 | g/m ³ |
| C | Vstupující aktivita Tritia | 8.58×10^{14} | Bq/m ³ |
| A_{vstup} | Vstupující aktivita za jeden den | 858 | GBq |
| α | Izotopický koeficient | 0.92 | - |
| V_d | Objem plynu probublávaný přes promývačku za jeden den | 1000 | ml |

Aktivita tritia zachyceného ve vodě v promývačce plynu v průběhu experimentu je na obrázku 2. Po zpracování 7 L plynu klesá účinnost z počátečních 100% na 99.9%, přičemž i nadále zůstává velmi vysoká a během celého experimentu (zpracování 30 L) neklesá pod 99.5%. Současně postupně roste aktivita tritia ve zpracovávaném plynu z 240 MBq/L po zpracování 1 L (první litr plynu) až k 3560 MBq/L na konci experimentu.

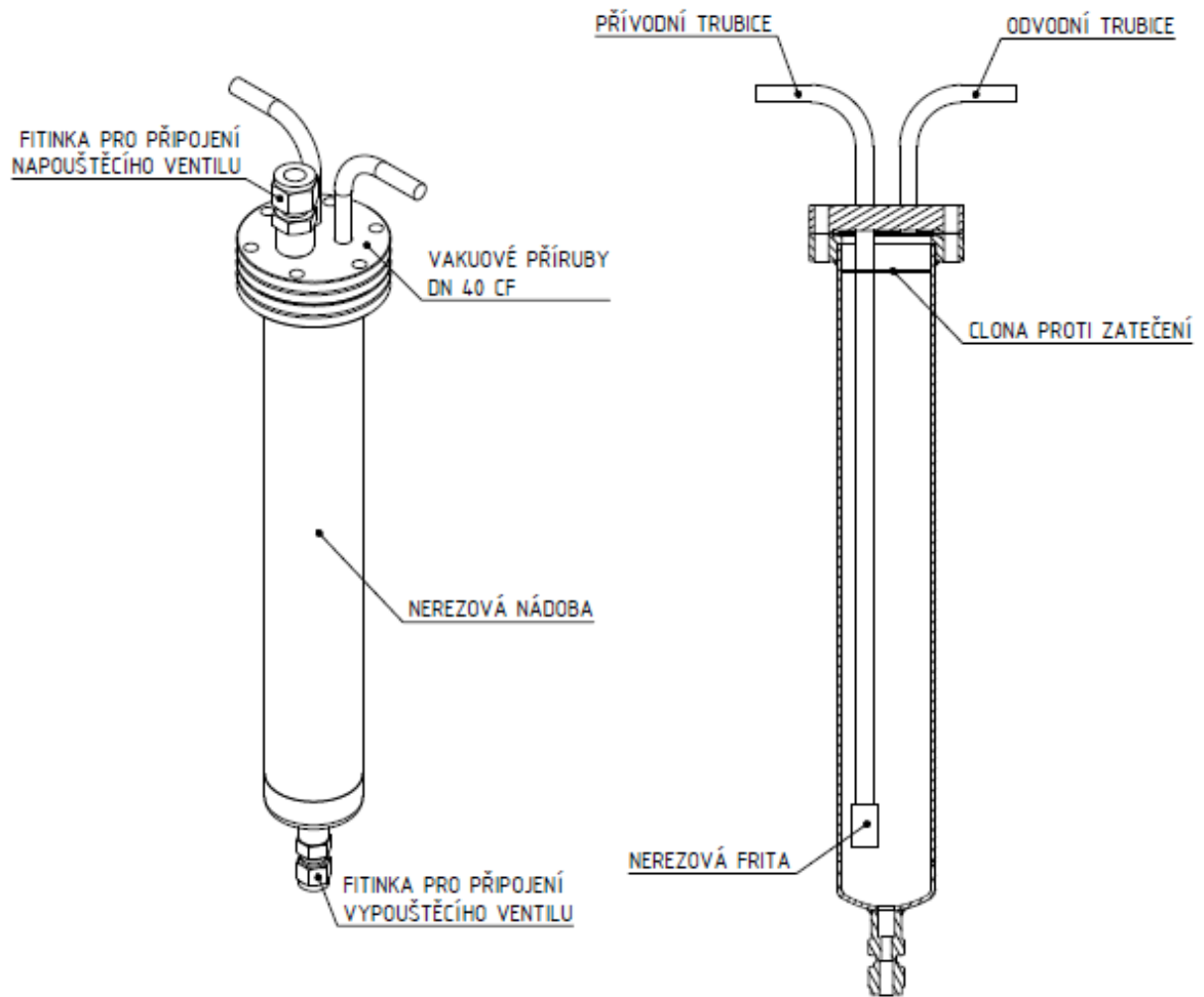
Vzhledem k vysokým koncentracím tritia na vstupu je i přes vysokou účinnost zachycení aktivita tritia vypouštěná z prvního stupně příliš vysoká. Je proto nezbytné navrhnout vícestupňové zachycování, kdy každý další stupeň je kopií prvního. Aktivita tritia v druhé a třetí promývačce, zapojených sériově za sebou, je vyznačena oranžovou (druhá), resp. šedou (třetí) barvou. Vzhledem k výrazně nižší aktivitě tritia na vstupu do jednotlivých promývaček a s tím spojená i nižší kontaminace vody zachyceným tritiem, je jejich účinnost výrazně vyšší, než první promývačky. Aktivita tritia odcházející z druhého stupně po zpracování 1 L plynu je 36 kBq/L, přičemž únik tritia postupně roste až na 8400 kBq/L na konci experimentu. Aktivita tritia v plynu unikajícího z třetí promývačky pak nepřekračuje 14 MBq/m³ po celou dobu experimentu.



Obr. 2: Graf stoupající aktivity v závislosti na objemu probublávaného plynu

3. KONSTRUKČNÍ ŘEŠENÍ

Výkres i s popisky jednotlivých dílů je zobrazen na obrázku 3. Pro bezpečnou manipulaci s tritiovanou vodou byla jako materiál zvolena nerezová ocel dle AISI 316 a 304L. Nádoby promývaček jsou navrženy jako dvoudílné s možností dekontaminace vnitřního prostoru po rozebrání. K uzavření nádoby s vodou byly použity vakuové příruby DN 40 CF spolu s měděným těsněním. Na víku promývačky je pevně navařena trubka pro přívod a odvod plynu o průměru 8 mm a dále nerezová fitinka, která slouží pro připojení napouštěcího ventilu, nebo jako průzor do nádoby. Na dno byla rovněž připojena nerezová fitinka, sloužící k připojení vypouštěcího ventilu. Uvnitř nádoby pod víkem se nachází clona z nerezového plechu. Tato clona má zabránit nechtěnému vniknutí kapaliny do trubky pro výstup plynu v případě napěnění nebo aerosolu vznikajícího při praskání bublin plynu na hladině. Na konci přívodní trubky je umístěna nerezová frita. Frita zde plní roli membrány, která brání vnikání vody do trubice a zároveň jako distributor plynu, přičemž generuje menší bubliny, než by bylo dosaženo prostým zakončením trubky. Na obrázku 4 je zobrazena fotografie složené a rozložené promývačky plynu, tak jak byla vyrobena.



Obr. 3: Výkres promývačky plynu



Obr. 4: Vyrobená promývačka plynu

4. ZÁVĚR

Celkové rozměry promývačky i s trubkami a fitinky jsou: výška 412 mm, průměr 50 mm. Vnitřní objem nádoby je 400 mL. Promývačka tak splňuje kritérium kompaktnosti a snadné manipulace. Navíc díky univerzálním připojovacím fitinkám je možné tento design promývačky použít pro mnohá uplatnění v oblasti chemie či fyziky.

LITERATURA

- [1] THI, Nguyen, Thu HA, Vo Thi ANH, Ha Lan ANH a Vuong Thu BAC. Procedure for Determining of Tritium Concentration in the Hanoi Atmosphere. *Biological and Chemical Research*. 2016, **3**, 191–199.
- [2] CALMON, P. a J. GARNIER-LAPLACE. Tritium and the environment. *Irsn*. 2001, 1–26.
- [3] HERRANZ, M., N. ALEGRIA, R. IDOETA a F. LEGARDA. Sampling tritiated water vapor from the atmosphere by an active system using silica gel. *Radiation Physics and Chemistry* [online]. 2011, **80**(11), 1172–1177. ISSN 0969806X. Dostupné z: doi:10.1016/j.radphyschem.2011.06.004
- [4] OSBORNE, R.V. *Sampling for tritiated water vapour* [online]. 1974. Dostupné z: https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:6160992
- [5] ACHE, H.J., M. GLUGLA, E. HUTTER, G. JOURDAN, R.-D. PENZHORN, D. RÖHRIG, K. SCHUBERT, H. SEBENING a J.E. VETTER. The tritium laboratory karlsruhe: R&D work and laboratory layout. *Fusion Engineering and Design* [online]. 1990, **12**(3), 331–341. ISSN 09203796. Dostupné z: doi:10.1016/0920-3796(90)90005-Q
- [6] SEPALL, O. a S. G. MASON. VAPOR/LIQUID PARTITION OF TRITIUM IN TRITIATED WATER. *Canadian Journal of Chemistry* [online]. 1960, **38**(10), 2024–2025. ISSN 0008-4042. Dostupné z: doi:10.1139/v60-272
- [7] PARK, Sung Hoon, Changhwan PARK, Jin Yong LEE a Byungchul LEE. A Simple Parameterization for the Rising Velocity of Bubbles in a Liquid Pool. *Nuclear Engineering and Technology* [online]. 2017, **49**(4), 692–699. ISSN 2234358X. Dostupné z: doi:10.1016/j.net.2016.12.006
- [8] R.CLIFT, J.R. GRACE, M.E. Weber. *Bubbles, Drops and particles*. 1. vyd. 2005. ISBN 0-486-44580-1.

Ukládání RAO a VJP – Srovnávací studie sorpce radia a stroncia na cementové materiály

Jana Kittnerová¹, Barbora Drtinová¹, Dušan Vopálka¹, Steve Lange², Guido Deissmann²,
Nicholas Evans

E-mail: Jana.Kittnerova@fjfi.cvut.cz

¹České vysoké učení technické v Praze, Břehová 7, Praha, 115 19, Česká Republika

²Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich, 52425, Německo

³Centre for Environment Fisheries and Aquaculture Science, Pakefield Rd, Lowestoft, NR33 0HT, Velká Británie

Abstrakt: Radium je důležitý radionuklid pro hodnocení dlouhodobé bezpečnosti hlubinného úložiště vyhořelého jaderného paliva. Je nutné zkoumat jeho pohyblivost, která je ovlivněna sorpcí na materiálech inženýrských bariér. V této studii byla sledována sorpce a difuze radia a stroncia, označovaného jako analog radia, v přítomnosti cementových materiálů. Chování obou radionuklidů je popsáno distribučním poměrem mezi kapalnou a pevnou fází, R_d .

Bylo použito několik komerčních cementových materiálů nadržencých na prášek a také jedna syntetická cementová fáze (CSH). Materiály byly analyzovány pomocí XRD a použity pro studium rovnovážné sorpce zejména ^{223}Ra a ^{85}Sr . Podmínky, za kterých byly experimenty prováděny, zahrnovaly proměnlivou teplotu a různý poměr kapalnou a pevnou fázi. Kapalnou fází byl nasycený $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

Bylo stanoveno, že hodnoty R_d pro sorpci Ra se pohybují v rozmezí 50-380 L/kg, zatímco pro Sr 10-30 L/kg na skutečných cementových materiálech. Byl potvrzen rozdíl mezi cementy a čistou fází CSH, kde R_d vykazují řádově vyšší hodnoty. Difuzní experimenty potvrdily chování pozorované během sorpce.

Klíčová slova: Sorpce, radium, stroncium, ukládání RAO, hlubinné úložiště, cementové materiály, CSH

1. ÚVOD

V současné době je na celém světě rozvíjena problematika ukládání radioaktivních odpadů (RAO) a zejména pak trvalého uložení vyhořelého jaderného paliva (VJP) pocházejícího z jaderných elektráren. Mezi státy s nejpokročilejším projektem hlubinného úložiště (HÚ) patří Finsko, které již staví HÚ a Švédsko, jehož koncept úložiště KBS-3 se má stát základem pro plány českého HÚ. Tento koncept počítá s využitím cementových materiálů jako konstrukčních prvků, ale také např. pro stavbu betonové zátky jednotlivých tunelů, nebo jako matrice kontejnerů pro sudy s RAO. Vzhledem k použití cementových materiálů jako součástí inženýrských bariér je potřeba je zkoumat mj. z hlediska možné migrace uvolněných radionuklidů rozpuštěných ve vodě skrz tyto porézní bariéry. Mezi radionuklidy, které jsou studovány při přípravě úložišť, patří i ^{226}Ra , které je významným radionuklidem vznikajícím ve VJP, kromě toho je také přítomno v institucionálních odpadech. Institucionální odpady se ukládají do přípovrchových úložišť (v ČR např. Richard u Litoměřic), v nichž rovněž nachází značné uplatnění cementové materiály, které zde slouží např. k solidifikaci (cementaci) kapalných odpadů. Stroncium bývá pro svoje podobné chování označováno za analog radia.

2. SORPCE RADIA A STRONCIA NA CEMENTOVÉ MATERIÁLY

Sorpce radionuklidů na cementové materiály je charakterizován distribučním poměrem R_d mezi kapalnou a pevnou fází vypočítaným podle rovnice (1), kde A_{init} je počáteční aktivita radia nebo stroncia v roztoku stanovená např. v Bq nebo CPM, A_t odpovídá aktivitě v čase t , V [L] je objem kapalné fáze a m [kg] hmotnost pevné fáze použité v experimentu.

$$R_d = \frac{A_{init} - A_t}{A_t} \cdot \frac{V}{m} \quad (1)$$

Z omezeného počtu studií týkajících se problematiky sorpce radia (a stroncia) na cementové materiály lze získat následující poznatky: sorpce radia i stroncia na cementové materiály je lineární a reverzibilní proces, pravděpodobně vedený iontovou výměnou [1]. Sorpce radionuklidů na komerční cementové materiály (HCP – hardened cement paste, cementový kámen; C – concrete, beton) je výrazně nižší než sorpce na čistou fázi CSH (Calcium Silicate Hydrate, hydratované křemičitany vápenaté), která je hlavní sorpční složkou cementových materiálů. Distribuční poměry sorpce radia na cementové materiály dosahují obvykle hodnot v řádu 100 L/kg pro HCP, zatímco na CSH hodnot až 10 000 L/kg [1,2]. I u stroncia jsou značné rozdíly v sorpci na HCP (hodnoty dosahující maximálně 100 L/kg) a CSH (řádově až 1 000 L/kg) [3,4].

2.1. POUŽITÉ MATERIÁLY

Pro studii na komerčních cementech bylo použito 5 materiálů, které mají vazbu na nakládáním s RAO v ČR.

- HCP CEM I – cementový kámen připravený z portlandského cementu (typ CEM I 42,5)
- HCP CEM II – cementový kámen připravený z portlandského cementu směsného – struskového (typ CEM II/ A-S 42,5); v ÚJV Řež, a.s. je používán k solidifikaci kapalných odpadů
- HCP CEM III – cementový kámen připravený z vysokopečního struskového cementu (typ CEM III/ B 32,5 SV)
- C CEM I – beton připravený ze stejného cementu jako HCP CEM I; v ÚJV Řež a.s. používaný pro stabilizaci sudu se solidifikovaným odpadem ve větším sudu
- C CEM III – beton připravený ze stejného cementu jako HCP CEM III; používaný k vyplňování komor Úložiště radioaktivních odpadů Richard

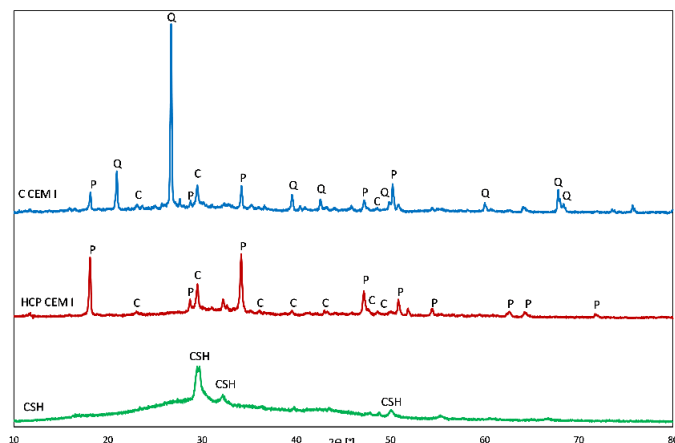
Označení odpovídá evropské cementové normě EN 197, kde CEM I je běžný portlandský cement. V betonech je kromě cementu také přídavek kameniva, popílku a plastifikátorů.

Syntetická cementová fáze CSH použitá v této práci byla připravena na pracovišti v Německu (Forschungszentrum Jülich) smícháním oxidu vápenatého s oxidem křemičitým s velkým povrchem za přítomnosti vody (popsáno v [2,5]), výsledný poměr vápníku a křemíku v CSH byl Ca/Si = 1,4.

Pro experimenty je používán izotop radia ^{223}Ra s poločasem 11,43 dne získávaný z $^{227}\text{Ac}/^{223}\text{Ra}$ generátoru, v této studii slouží jako zástupce izotopu ^{226}Ra . Izotop stroncia ^{85}Sr má poločas přeměny 64,85 dne a slouží jako zástupce izotopu ^{90}Sr , který je významným produktem štěpení. Radium bylo používáno bez nosiče, což odpovídá koncentraci $\approx 10^{-12}$ mol/L, stroncium bylo používáno také bez nosiče v obdobné koncentraci nebo s nosičem SrCl_2 o koncentraci $3,5 \cdot 10^{-4}$ mol/L, což odpovídá koncentraci stroncia vyloučené z cementu HCP CEM II. Bylo prokázáno, že experimenty se stronciem v obou koncentracích poskytují obdobné výsledky. Jako vodná fáze byl použit saturovaný roztok $\text{Ca}(\text{OH})_2$, tzv. portlanditová voda, který slouží jako přiblížení k vysoce alkalickému výluhu z cementových materiálů. Proměnnými byl poměr kapalné a pevné fáze L/S (10–600 L/kg) a teplota (22–80 °C). Experimenty byly vedeny v délce 96 h, kdy je bezpečně ustavena rovnováha, která podle dřívějších poznatků nastává přibližně po jednom dni.

2.2. XRD ANALÝZA

Práškové cementové materiály byly charakterizovány rentgenovou difrakční analýzou (XRD) v Bragg-Brentano geometrii Θ – 2Θ (Mini Flex 600, Rigaku) v rozsahu $2\Theta = 10^\circ$ – 80° s krokem $0,02^\circ$. Vyhodnocení bylo provedeno pomocí programu PDXL2 a databáze ICDD PDF-2 (verze 2013).

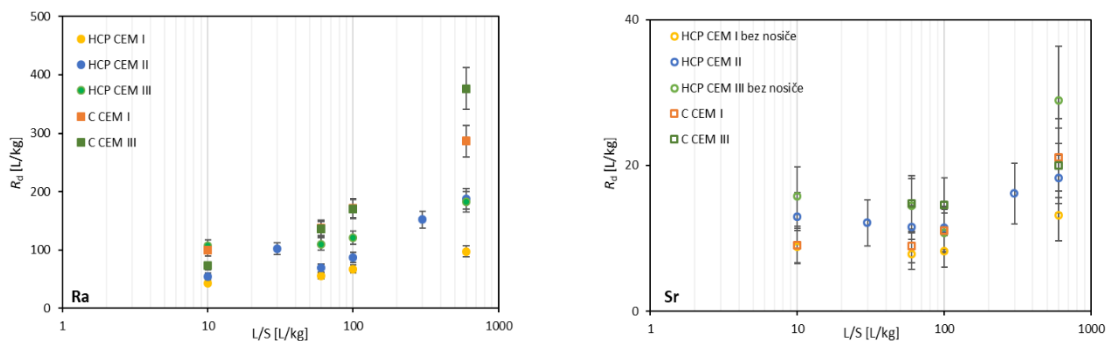


Obr. 1: Porovnání XRD spekter C CEM I, HCP CEM I a CSH (P – portlandit, C – kalcit, Q – křemen)

Při porovnání XRD spekter betonu, HCP a CSH byl pozorován významný rozdíl (obrázek 1). Silný signál křemene (SiO_2) z kameniva v betonu způsobil, že analýza vzorku C CEM I je prakticky nemožná, protože vysoké píky křemene překrývají ostatní signály, případně jsou tyto signály v porovnání se signálem křemene velmi slabé. Analýza HCP CEM I potvrdila předpoklady o složení cementových materiálů, hlavně tedy tvorbu sloučenin vápníku, zejména portlanditu $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a kalcitu CaCO_3 . V difrakčním spektru komerčních cementových materiálů není patrná fáze CSH, která má hlavní vrchol v oblasti $29^\circ 2\theta$, jak je znázorněno také na obrázku 1. Píky CSH nejsou patrné v důsledku přítomnosti silnějších linií jiných krystalických sloučenin ve srovnání s CSH, které má strukturu spíše amorfní nebo semikrystalickou. Na druhou stranu je potřeba podotknout, že ve spektrech C CEM I i HCP CEM I se v oblastech 32° a $50^\circ 2\theta$ vyskytují neidentifikované píky, které lze považovat za CSH. Kvůli silnému signálu kalcitu v oblasti $29^\circ 2\theta$ ovšem není pík CSH viditelný a není tedy možné potvrdit CSH bez potvrzení všech jeho píků ve spektru. Při porovnání získaného spektra CSH s několika spektry z literatury lze konstatovat shodu získaných hlavních píků ve spektru CSH ($29,7^\circ$, $32,2^\circ$ a $50,1^\circ 2\theta$) s literaturou [např. 6].

2.3. SORPCE NA KOMERČNÍ CEMENTY

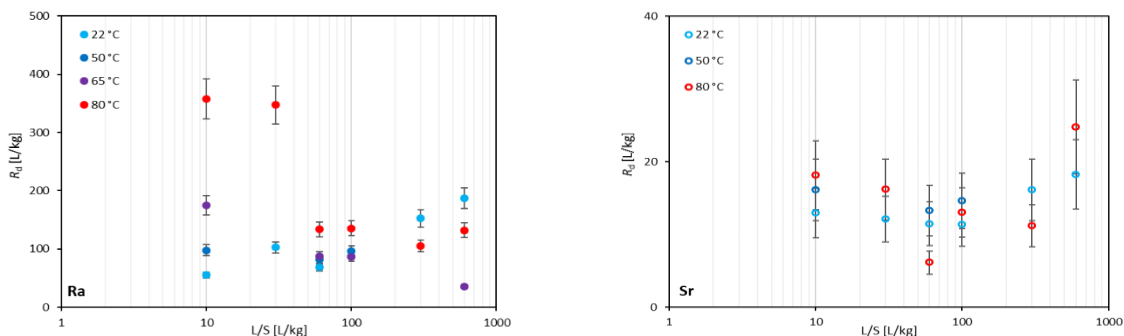
Porovnání sorpce stroncia a radia pro různá experimentální uspořádání (rozdílné materiály poměr kapalné a pevné fáze, teplota) je znázorněno na obrázku 2 a 3.



Obr. 2: Porovnání distribučního poměru ^{223}Ra a ^{85}Sr na několika komerčních cementových materiálech v nasyceném roztoku $\text{Ca}(\text{OH})_2$ při teplotě 22°C

Při porovnání distribučních poměrů R_a a R_s na cementových materiálech jsou hodnoty R_d radia výrazně vyšší (osa y má pro R_a desetkrát větší rozsah). Získané R_d pro sorpci R_a dosahují hodnot v rozmezí 50–370 L/kg, zatímco pro R_s pouze 10–30 L/kg (za laboratorní teploty).

I přes rozdílné množství cementu a tedy i CSH v HCP a betonech jsou výsledky jednotlivých HCP a betonů srovnatelné.

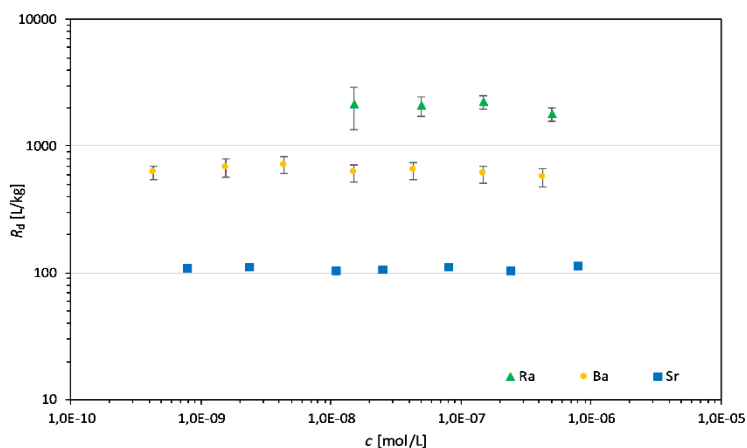


Obr. 3: Porovnání distribučního poměru ^{223}Ra a ^{85}Sr na HCP CEM II v nasyceném roztoku $\text{Ca}(\text{OH})_2$ při různých teplotách

Vliv rostoucí teploty byl přesvědčivě zaznamenán pouze pro sorpci radia, zatímco vliv na sorpci stroncia je malý, takže jej nelze odlišit od statistického rozptylu získaných výsledků. Vliv teploty na Ra je více patrný pro nižší poměry fází.

2.4. SORPCE NA CSH

Porovnání sorpce radionuklidů ^{226}Ra a ^{90}Sr na CSH bylo provedeno na pracovišti v Německu (Forschungszentrum Jülich), k porovnání bylo přidáno také baryum (^{133}Ba). Vzhledem k dlouhým poločasům těchto radionuklidů: ^{226}Ra – 1600 let, ^{133}Ba – 10,5 roku, ^{90}Sr – 28,8 let) trval experiment 3 týdny, jako kapalná fáze byl použit výluh z CSH, pro experimenty byl použit pouze jeden poměr fází ($L/S = 200 \text{ L/kg}$) ale několik různých koncentrací radionuklidů v rozmezí $5 \cdot 10^{-10}$ – $5 \cdot 10^{-7} \text{ mol/L}$. Na obrázku 4 je patrný řádový rozdíl mezi distribučními poměry těchto tří prvků, výsledky sorpce barya na CSH potvrdily očekávání, že chování tohoto prvku ze stejné skupiny periodické tabulky bude vcelku podobné radia a stronciu a hodnoty R_d se budou pohybovat mezi hodnotami Sr a Ra, právě kvůli jejich umístění v periodické tabulce.



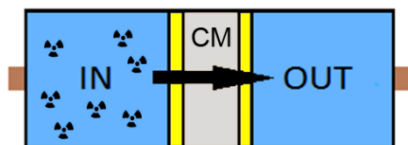
Obr. 4: Porovnání distribučních poměrů pro sorpci ^{226}Ra , ^{133}Ba a ^{90}Sr na CSH (pro Sr chyba odpovídá velikosti datových bodů)

Hodnoty získané ze všech sorpčních experimentů s komerčními cementy i syntetickou cementovou fází odpovídají poznatkům z literatury [1,2,3,4].

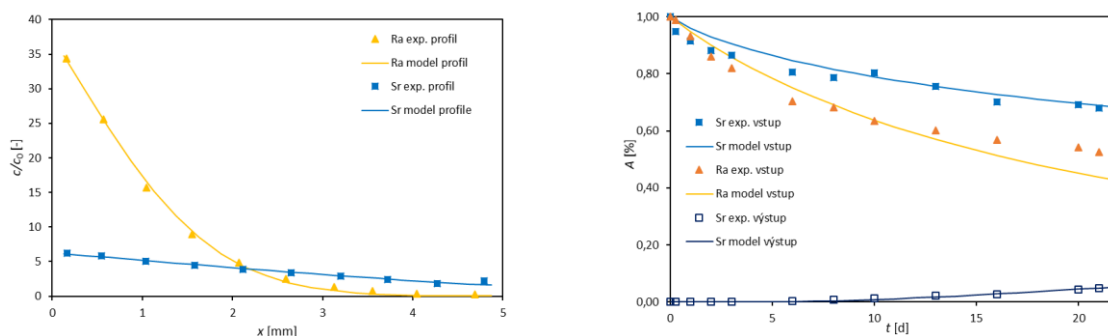
2.5. DIFUZE

Difuzní experimenty s ^{223}Ra a ^{85}Sr s nosičem SrCl_2 byly provedeny v nasyceném roztoku $\text{Ca}(\text{OH})_2$ přes 0,5 cm nadrceného a slisovaného HCP CEM II (experimentální uspořádání popsán v [7] a na obrázku 5). Vrstva cementového materiálu byla nalisována do nerezové cely, oddělena z obou stran separačními filtry o šířce 0,08 cm a nasycena pracovním roztokem. Následně byly připojeny vstupní a výstupní rezervoáry o objemu

50 ml. Do vstupního rezervoáru byl přidán sledovaný izotop. Experiment byl veden po dobu 22 dní s ohledem na relativně krátký poločas přeměny izotopu ^{223}Ra .



Obr. 5: Schéma difuzní cely, CM: cementový materiál, žluté vrstvy: filtry



Obr. 6: Výsledky difuze ^{223}Ra a ^{85}Sr přes HCP CEM II v nasyceném $\text{Ca}(\text{OH})_2$; koncentrační profil sorbovaného prvku ve vrstvě materiálu (vlevo) a nárůst a pokles koncentrace ve vstupním a výstupním rezervoáru (vpravo) s křivkami odpovídajícími modelu

Chování ^{223}Ra i ^{85}Sr při difuzním experimentu potvrdilo předpoklad, že difuze radia přes vrstvu cementového materiálu bude pomalejší kvůli vyšší míře zachycení, takže radium nepronikne do výstupního rezervoáru v tak krátké době jako stroncium. Koncentrační profil prvků zachycených ve vrstvě cementového materiálu je na obrázku 6 (vlevo). Vyhodnocením difuzního experimentu byly získány hodnoty R_d přibližně 9 L/kg pro Sr a 150 L/kg pro Ra pro poměr fází L/S odpovídající 0,3 L/kg.

3. ZÁVĚR

Byla provedena řada sorpčních experimentů s izotopy radia a stroncia na cementové materiály v prostředí portlanditové vody za různých podmínek (L/S, teplota). Distribuční poměry sorpce Ra na komerčních cementových materiálech dosahují hodnot v rozmezí 50–380 L/kg, zatímco u Sr pouze 10–30 L/kg. Hodnoty rovnovážných R_d v rozmezí L/S 10–600 L/kg jsou pro Sr srovnatelné, zatímco hodnoty pro Ra vzrůstají se vzrůstajícím poměrem fází. Vliv rostoucí teploty byl přesvědčivě zaznamenán pouze pro sorpci radia a to u nižších poměrů L/S. Sorpční experimenty se syntetickou CSH fází potvrdily očekávaný významný rozdíl mezi Sr, Ba a Ra. Hodnoty R_d pro Sr se pohybovaly okolo 100 L/kg, hodnoty barya byly přibližně 650 L/kg a hodnoty pro radium dosáhly 2000 L/kg. Podobně byl potvrzen také rozdíl mezi komerčními cementovými materiály a čistou fází CSH. Při pohledu na získané hodnoty je zřejmé, že Ra a Sr nejsou zcela analogické v sorpčním chování.

Byly rovněž provedeny difuzní experimenty s 0,5cm vrstvou drceného slisovaného HCP CEM II v portlanditové vodě. Hodnoty R_d stanovené vyhodnocením difuzních experimentů byly kolem 9 L/kg pro Sr a 150 L/kg pro Ra. Tento koncept difuzního experimentu byl použit pro práci s výrazně menším fázovým poměrem, který by bylo obtížné realizovat běžnou sorpční metodou v míchaném reaktoru.

PODĚKOVÁNÍ

Tento příspěvek vznikl za podpory Programu Evropské unie – Evropského společenství pro atomovou energii (Euratom): Horizont 2020 (NFRP-2014/2015) na základě grantové dohody 662147 – CEBAMA, projektu SÚRAO: Výzkumná podpora pro bezpečnostní hodnocení hlubinného úložiště, Transport radionuklidů z úložiš-

tě/Transport radionuklidů přes materiály na bázi cementu a částečně na pracovišti Forschungszentrum Jülich, Institute of Energy and Climate Research. Nuclear Waste Management and Reactor Safety (IEK-6), Jülich, Německo.

LITERATURA

- [1] Tits, J., Iijima, K., Wieland, E., Kamei, G.: The uptake of radium by calcium silicate hydrates and hardened cement paste. *Radiochim. Acta.* 2006, **94**, s. 637–643.
- [2] Lange, S., Kowalski, P.M., Pšenička, M., Klinkenberg, M., Rohmen, S., Bosbach, D., Deissmann, G.: Uptake of ²²⁶Ra in cementitious systems: A complementary solution chemistry and atomistic simulation study. *Appl. Geochemistry.* 2018, **96**, s. 204–216.
- [3] Wieland, E., Tits, J., Kunz, D., Dähn, R.: Strontium uptake by cementitious materials. *Environ. Sci. Technol.* 2008, **42**, s. 403–409.
- [4] Tits, J., Wieland, E., Müller, C.J., Landesman, C., Bradbury, M.H.: Strontium binding by calcium silicate hydrates. *J. Colloid Interface Sci.* 2006, **300**, s. 78–87.
- [5] Atkins, M., Glasser, F.P., Kindness, A.: Cement hydrate phases: Solubility at 25 °C. *Cem. Concr. Res.* 1992, **22**, s. 241–246.
- [6] Baur, I., Keller, P., Mavrocordatos, D., Wehrli, B., Johnson, C.A.: Dissolution-precipitation behaviour of ettringite, monosulfate, and calcium silicate hydrate. *Cem. Concr. Res.* 2004, **34**, s. 341–348.
- [7] Gondolli, J., Večerník, P.: The uncertainties associated with the application of through-diffusion, the steady-state method: A case study of strontium diffusion. *Geol. Soc. London, Spec. Publ.* 2014, **400**, s. 603–612.

Aktivačné a prahové reakcie v neutrónovom poli urýchľovačom riadeného generátora p(20)+Be

Ján Kozic¹, Milan Štefánik^{1,2}

E-mail: jan_kozic@yahoo.com

¹ České vysoké učení technické v Praze, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, V Holešovičkách 2, Praha 8, 180 00, Česká republika

² Ústav jaderné fyziky AV ČR, v.v.i., Husinec – Řež čp. 130, Řež, 250 68, Česká republika

Abstrakt: V príspevku je analyzovaný aktivačný experiment s novým neutrónovým poľom využívajúcim zdrojovú reakciu p(20)+Be, ktorá bola študovaná na ÚJF AV ČR, v.v.i. Na produkciu neutrónov bola použitá berýliová terčová stanica NG-2 s hrubým terčom pripojená na izochrónny cyklotrón U-120M. Protóny boli urýchlené na energiu 20 MeV a v reakcii s berýliovým terčom produkovali neutróny s kinetickou energiou do 18 MeV. Na meranie parametrov nového neutrónového poľa bola zvolená aktivačná technika. Na analýzu boli vybrané tri aktivačné fólie, konkrétne Au, Al a Co, a boli získané príslušné reakčné rýchlosti. Stanovená sada reakčných rýchlostí bude využitá v nasledujúcich prácach na rekonštrukciu spojitého spektra nového neutrónového poľa zo zdrojovej reakcie p(20)+Be.

KLúčové slová: Aktivačná technika, reakčná rýchlosť, HPGe detektor, neutrónový generátor NG-2, aktivačné detektory, urýchľovač U-120M

1. ÚVOD

Neutrónové spektrum je základnou charakteristikou neutrónového poľa. Z energetického spektra neutrónového poľa je možné stanoviť strednú energiu a výťažok neutrónov. V príspevku je analyzované nové neutrónové pole urýchľovačom riadeného generátora NG-2, ktorý je prevádzkovaný na ÚJF AV ČR v Reži, pomocou aktivačnej techniky a jadrovej gama spektrometrie. Na produkciu neutrónového poľa bola použitá zdrojová reakcia p(20)+Be, kde protóny boli urýchlené na energiu 20 MeV, čo produkovalo neutróny s energiami do 18 MeV. V rámci aktivačného experimentu bola stanovená sada reakčných rýchlostí pre tri vybrané aktivačné detektory.

2. AKTIVAČNÁ TECHNIKA

Aktivačná technika je metóda vhodná pre neutrónovú spektrometriu resp. pre meranie parametrov neutrónového poľa. Pomocou tejto techniky je možné stanoviť spektrum neutrónového poľa ožarovaním vhodnej sady spektroskopicky tenkých fólií, nazývaných aktivačné detektory, v neznámom neutrónovom poli. Následnou gama-spektrometriou ožiarených aktivačných detektorov sa stanoví sada reakčných rýchlostí pre sledované aktivačné a prahové reakcie v ožiarených fóliách. Sada reakčných rýchlostí sa použije na dekonvolúciu neutrónového spektra. [1]

Na ožarovací experiment sa vyberajú aktivačné materiály v závislosti na ich jadrových a fyzikálnych vlastnostiach. Musia mať vysokú čistotu, aby nedochádzalo k aktivácii prímiesí. Aktivačné detektory nesmú ovplyvniť merané neutrónové pole, preto sú spektroskopicky tenké. Interakcie neutrónov s jadrami aktivačných detektorov je možné popísať štatistickými metódami. Mieru pravdepodobnosti danej reakcie popisuje mikroskopický účinný prierez pre danú reakciu. Pre meranie neutrónov s energiou v oblasti tepelnej energie sú vhodné aktivačné detektory s vysokým mikroskopickým účinným prierezom pre bezprahovú reakciu (n, γ). Spomenuté aktivačné detektory sú používané predovšetkým v jadrových reaktoroch. Pri meraní energetického spektra rýchlych neutrónov sú vhodné prahové detektory s optimálnym účinným prierezom pre reakcie, napr. (n, n'), (n, α), (n, p), (n,

xn). Pri veľmi vysokých energiách neutrónov môže dochádzať k exotickým reakciám, kedy môže vznikáť viac nabitých častíc alebo neutrónov. Materiály aktivačných detektorov sú volené tak, aby svojimi prahovými reakciami pokryli celé očakávané energetické spektrum neutrónov. [1]

Pred aktivačným experimentom sa aktivačné detektory zväžia, stanoví sa ich hrúbka, zabalia sa a pripevnia sa na nosič. Následne sú na experimente ožarované v presnej geometrii zdroj-aktivačné detektory. Doba ožarovania je optimalizovaná vzhľadom na polčasy rozpadov očakávaných produktov aktivačných a prahových reakcií v ožarovaných fóliách a vzhľadom na mikroskopické účinné prierezy aktivačných reakcií. Ožarovaním dochádza v aktivačných detektoroch k produkcii rádioaktívnych jadier. Pri deexcitácii produkovaných jadier je vyžiarené gama žiarenie. Gama žiarenie je merané formou energetického spektra v gama-spektrometrickom laboratóriu, kam sú detektory premiestnené hneď po ukončení ožarovania. Z nameraného gama spektra je možné získať hodnoty veličín potrebných pre výpočet reakčnej rýchlosti vzťahnutej na jedno terčové jadro.

2.1. REAKČNÁ RÝCHLOSŤ

Reakčná rýchlosť vzťahnutá na jedno terčové jadro vyjadruje počet reakcií daného typu v terči za jednotku času na jedno neutrálne terčové jadro.

Reakčná rýchlosť vzťahnutá na jedno terčové jadro je definovaná vzťahom [2]:

$$R_R = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \sigma(E_n) \Phi(E_n) dE_n. \quad (1)$$

Pre aktivačné reakcie je $E_{\min} = 0$, pre prahové reakcie je spodná hranica integrálu rovná prahovej energii danej reakcie. Horná hranica integrálu predstavuje maximálnu energiu neutrónov použitých k ožarovaniu. Veličina $\sigma(E_n)$ je mikroskopický účinný prierez pre danú reakciu a $\Phi(E_n)$ je diferenciálny neutrónový tok. [2]

Pre reakčnú rýchlosť stanovenú na základe aktivačných meraní je možné odvodiť empirický vzťah [1, 2]:

$$R_R = \frac{S(E_\gamma) \lambda_{\text{live}}^{t_{\text{real}}}}{I(E_\gamma) \varepsilon(E_\gamma) N_0 (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}) e^{-\lambda t_v} (1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}})}. \quad (2)$$

Vo vzťahu (2) je $S(E_\gamma)$ plocha pod píkom plnej absorpcie v nameranom gama spektre, λ je rozpadová konštanta produktu danej reakcie, t_{live} je čistá doba merania gama spektra, t_{real} je doba merania gama spektra s uvažovaním mŕtvej doby detektoru, $I(E_\gamma)$ je intenzita gama linky s energiou E_γ , $\varepsilon(E_\gamma)$ je absolútna detekčná účinnosť detektora pre gama linku s energiou E_γ , t_{irr} je doba ožarovania a t_v je doba vymierania. [2]

Sadu reakčných rýchlostí stanovených podľa vzťahu (2) je možné použiť na dekonvolúciu neutrónového spektra pre geometriu, v ktorej boli detektory ožarované.

3. SPEKTROMETRIA GAMA ŽIARENIA

Spektrometria gama žiarenia je technika umožňujúca kvalitatívne a kvantitatívne meranie gama žiarenia. V aktivačnej technike hrá veľkú rolu, pretože aktivovaným vzorkám je nutné merať ich gama spektrum. Fotóny gama žiarenia reagujú hlavne s elektrónovým obalom, čo vyúsťuje v merateľný signál. Tento signál je následne zosilnený a zaznamenaný. Existuje mnoho reakcií gama žiarenia s látkovým prostredím, ale pre aktivačné meranie sú dôležité fotoelektrický jav, Comptonov rozptyl a tvorba elektrón-pozitrónových párov. [1]

4. PROBLEMATIKA NEUTRÓNOVÝCH SPEKTIER VO SVETE

Rôzni autori merali spektrum neutrónov zdrojovej reakcie p+Be. Neutrónové spektrum je základným parametrom produkovaného neutrónového poľa. Znalosť tohto parametra je nutná pre rôzne aplikácie urýchľovačom riadeného generátora neutrónov využívajúceho zdrojovú reakciu p+Be, napr. pre bórovú záchytnú terapiu, neutrónovú aktivačnú analýzu, spresňovanie a určovanie nových jadrových dát, testy radiačnej odolnosti. Berýliový

terč môže byť použitý ako energeticky hrubý aj tenký. Energeticky hrubý terč úplne zastaví nabitú časticu, čo vyúsťuje v spojité spektrum produkovaných neutrónov. V energeticky tenkom terči urýchlené častice odovzdajú iba časť svojej energie, čím vzniká kvazimonoenergetické neutrónové spektrum. V spojitom neutrónovom spektre prispieva do vysoko energetickej oblasti neutrónov najviac reakcia ${}^9\text{Be}(p, n)$, do nízko energetickej oblasti neutrónov prispievajú reakcie ${}^9\text{Be}(p, xn)$ a viac časticové interakcie [2].

M. A. Lone meral neutrónové spektrá zo zdrojových reakcií urýchlených protónov a deuterónov s berýliom alebo lítiom metódou doby doletu neutrónov (neutron time-of-flight). Použil energeticky hrubé terče, ktoré produkovali spojité spektrum neutrónov. Jeho meranie bolo vykonané pre tri energie urýchlených protónov a to 14,8 MeV, 18 MeV, 23 MeV. [3]

Pre neutróny zo zdrojovej reakcie $p+\text{Be}$ s energiou nad 0,3 MeV, kde protóny sú urýchlené na energiu v rozsahu 14 – 24 MeV, odvodil M. A. Lone empirický vzťah pre strednú energiu neutrónov [3]:

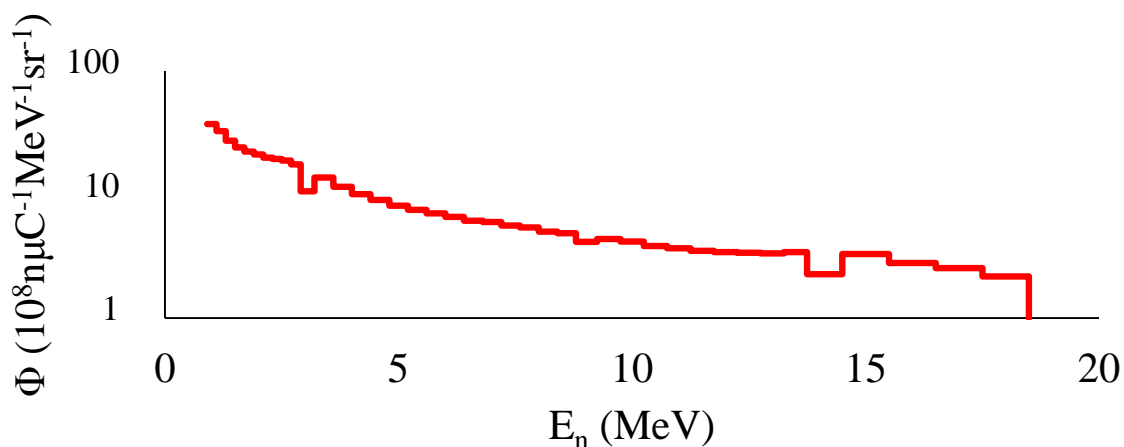
$$\bar{E}_n = 0,14E_p^{1,13}, \quad (3)$$

kde E_p je energia primárneho zväzku protónov.

Energetické neutrónové spektrum zo zdrojovej reakcie $p+\text{Be}$ meral aj H. J. Brede. Pri meraní boli použité protóny urýchlené na 12 energií v rozsahu 17 – 22 MeV. Meranie vykonal s energeticky hrubým terčom aj energeticky tenkým terčom. [4]

Pre neutróny zo zdrojovej reakcie $p+\text{Be}$ s energeticky hrubým terčom, kde neutróny majú energiu nad 2 MeV, a protóny sú urýchlené na energiu v rozsahu 17 – 22 MeV, odvodil H. J. Brede vzťah [4]:

$$\bar{E}_n = 0,433E_p - 1,39 \quad (4)$$



Obr. 1: Neutrónové spektrum zo zdrojovej reakcie $p+\text{Be}$ s protónmi urýchlenými na energiu 19,92 MeV, ktoré meral H. J. Brede [4, 8]

5. NEUTRÓNOVÝ ZDROJ NG-2 NA ÚJF ŘEŽ

Terčová stanica NG-2 zapojená na izochrónny cyklotrón U-120M tvorí urýchľovačom riadený neutrónový generátor. Experimentálne zariadenie prevádzkuje ÚJF AV ČR. Na oddelení jadrových reakcií sú skúmané jadrové reakcie s neutrónmi dosahujúcimi kinetické energie do 34 MeV, ktoré sú produkované bombardovaním terčov terčových staníc NG-2 urýchlenými protónmi alebo deuterónmi. Neutrónové zdroje NG-2 sú využívané hlavne pre meranie a validáciu účinných prierezov pomocou aktivácie v definovanom neutrónovom poli s následným meraním energetických spektier gama žiarenia produkovaných izotopov. [5]

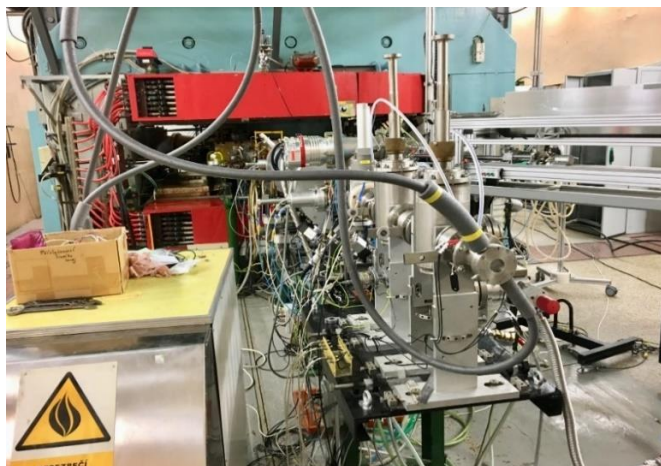
Izochrónny cyklotrón U-120M je viacúčelové zariadenie, ktoré je schopné urýchliť ako kladné tak aj záporné ióny. Bol vyrobený v Spojenom Ústave Jadrového Výskumu v Dubne ako urýchľovač kladných iónov. Počas modernizácie bol urýchľovač doplnený o záporný režim urýchľovania nabitých častíc. Cyklotrón sa nachádza vo vlastnej hale. Kladná trasa je vyvedená do externej experimentálnej haly, záporná trasa sa nachádza priamo v cyklotrónovej hale. V tabuľke 1 sú uvedené rozsahy energií a prúdov pre jednotlivé urýchľované ióny. [5]

Tab. 1: Parametre urýchlených a vyvedených zväzkov [5]

| Ión | Energia (MeV) | Maximálny prúd (μA) |
|-------------------------------|---------------|----------------------------------|
| H ⁺ | 6 – 25 | 5 |
| D ⁺ | 12 – 20 | 5 |
| ³ He ²⁺ | 18 – 52 | 2 |
| ⁴ He ²⁺ | 24 – 38 | 5 |
| H ⁻ | 6 – 35 | 13 |
| D ⁻ | 11 - 20 | 10 |

5.1. TERČOVÉ STANICE NG-2

Na oddelení jadrových reakcií ÚJF AV ČR sú prevádzkované dve terčové stanice NG-2 a to jedna s berýliovým terčom a druhá s lítiovým terčom. Berýliový terč je energeticky hrubý a v reakcii s urýchlenými nabitými časticami produkuje spojité neutrónové spektrum. Pri štandardnej prevádzke, kedy sú protóny urýchlené na energiu 35 MeV, dosahuje neutrónový tok hodnotu $10^{11} \text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$ v najbližšej ožarovacej pozícii pri terči. Aby nedošlo k taveniu berýlia, je terč počas prevádzky chladený kvapalným liehom na teplotu 5 °C. Lítiová terčová stanica obsahuje tenký terč a v reakcii s urýchlenými protónmi produkuje kvazimonoenergetické neutrónové spektrum. Maximálny neutrónový tok je dosahovaný v monoenergetickom píku a má hodnotu $10^9 \text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$. [5]



Obr. 2: Urýchľovačom riadený neutrónový zdroj NG-2 s berýliovou terčovou stanicou

6. KALIBRÁCIA POLOVODIČOVÉHO HPGE DETEKTORA

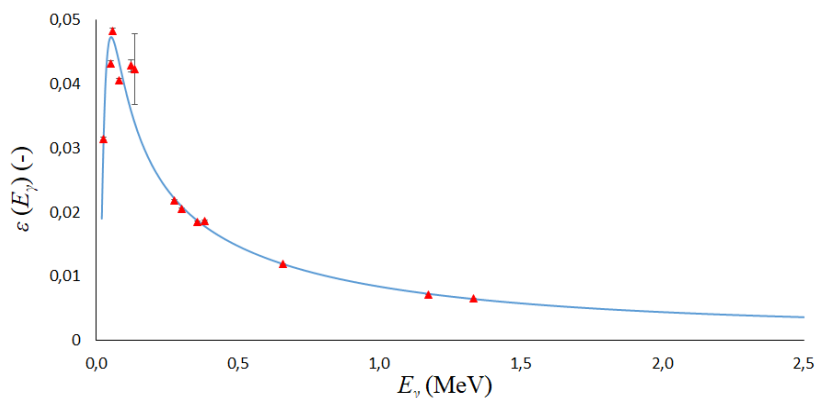
Pred aktivačným experimentom je nutné vykonať kalibráciu detektora v zmysle energetickej kalibrácie a kalibrácie absolútnej detekčnej účinnosti detekčného systému. Energetická kalibrácia slúži ku kvalitatívnemu popisu gama žiarenia a spočíva v priradení energie gama žiarenia jednotlivým kanálom analyzátora. Energetická kalibrácia sa vykonáva pomocou rôznych etalónov a môže byť vyhodnotená ručne alebo softvérovo. HPGe detektory majú približne lineárnu krivku energetickej kalibrácie s výnimkou nízkych energií, kde má polynomickejší charakter. Absolútna detekčná účinnosť vyjadruje podiel počtu fotónov gama zachytených detektorom a počtu fotónov gama žiarenia vyžiarených zdrojom. Absolútna detekčná účinnosť rastie približne do energie 120 keV,

pretože rastie pravdepodobnosť, že fotón gama žiarenia preletí cez obal kryštálu HPGe detektora. Následne absolútna detekčná účinnosť začína klesať, pretože rastie pravdepodobnosť, že fotón gama žiarenia preletí cez aktívny objem HPGe detektora bez interakcie. Absolútna detekčná účinnosť sa stanovuje pomocou etalónov rádioaktivity, a to ako podiel nameranej aktivity detekčným systémom a referenčnej aktivity etalónu. Absolútna detekčná účinnosť sa vyhodnotí pre dostupné etalóny v celom rozsahu aktivačného experimentu a následne sa fituje polynomicou funkciou stupňa m podľa funkcie:

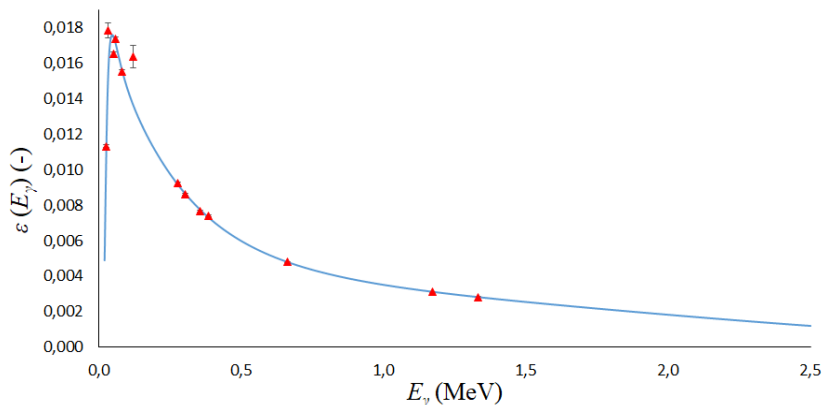
$$\varepsilon(E_\gamma) = \exp(\sum_{i=0}^m a_i \ln^i(E_\gamma)) \quad (5)$$

6.1. ZÍSKANÉ KRIVKY ABSOLÚTNEJ DETEKČNEJ ÚČINNOSTI

Kalibrovaný bol HPGe detektor Canberra v pozíciách P5 a P10, čo predstavuje vzdialenosť 5 cm a 10 cm od detektora. Na kalibráciu boli použité etalóny ^{57}Co , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{241}Am . Céziu je monolinkový žiarič, zvyšné žiariče sú polylinkové. Spomenutým etalónom boli merané gama spektrá, z ktorých boli stanovené dve sady bodov absolútnaj detekčnej účinnosti pre pozície P5 a P10, ktoré boli fitované funkciou (5) pomocou programu efekt32 z ÚJF. V prípade pozície P5 bola využitá polynomicá fitovacia funkcia stupňa $m = 5$, v prípade pozície P10 stupňa $m = 6$. Kalibračné krivky sú zobrazené na obrázkoch 3, 4.



Obr. 3: Krivka absolútnaj detekčnej účinnosti HPGe detektora Canberra pre pozíciu P5



Obr. 4: Krivka absolútnaj detekčnej účinnosti HPGe detektora Canberra pre pozíciu P10

7. AKTIVAČNÝ EXPERIMENT

Aktivačný experiment bol vykonaný na ÚJF AV ČR. Na ožarovanie bola použitá berýliová terčová stanica NG-2, ktorej energeticky hrubý terč bol bombardovaný protónmi urýchlenými na kinetickú energiu 20 MeV. Neutróny produkované reakciami urýchlených protónov s jadrami berýlia dosahovali energie do 18 MeV. Neutrónové spektrum bolo merané pomocou aktivačnej techniky a jadrovej gama spektrometrie.

19. MIKULÁŠSKÉ SETKÁNÍ MLADÉ GENERACE ČNS 4. - 6. 12. 2019

Na aktivačným experiment boli zvolené aktivačné detektory z prvkov Au, In, Fe, Ti, Co, Lu, Y, Nb, Ni, Al. Pred experimentom boli aktivačné detektory zvážené a bola stanovená hrúbka každého z nich. Nakoniec bola sada zabalená do plastovej fólie a nalepená na držiak. Boli zostavené dve sady aktivačných detektorov.



Obr. 5: Sada aktivačných detektorov

Sady aktivačných detektorov boli ožarované na pozíciách P0 a P14, čo predstavuje pozíciu v tesnej blízkosti zdroja neutrónov a pozíciu vzdialenú približne 156 mm od zdroja neutrónov. Aktivačný experiment trval 11 hodín. Po ukončení ožarovania bola sada, ktorá bola na pozícii P14, prenesená do gama-spektrometrického laboratória. V prípade sady, ktorá bola ožarovaná na pozícii P0, bolo nutné počkať, kým aktivita sady klesne pod bezpečnú hodnotu. V gama-spektrometrickom laboratóriu bola sada ožiarených aktivačných detektorov rozbalená a každý z nich bol zvlášť pripevnený na držiak. Gama spektrá aktivačných detektorov boli merané polovodičovým HPGe detektorom na pozíciách P5 a P10. Pozícia merania bola volená tak, aby mŕtva doba detektora bola menšia než 10 %. Gama spektrá jednotlivých aktivačných detektorov boli merané cyklicky po dobu štyroch týždňov. Gama spektrum každého aktivačného detektora bolo zmerané osem až desať krát. Produkty aktivačných a prahových reakcií v ožiarených aktivačných detektoroch boli v gama spektrách identifikované na základe ich charakteristických gama línií a odpovedajúcich intenzít. Pre tieto gama linky bola odčítaná plocha píku plnej absorpcie a jej relatívna neurčitost'.

Tab. 2: Aktivačné a prahové reakcie detegované vo vybraných aktivačných detektoroch a gama linky s intenzitami produktov reakcií [6, 7]

| Reakcia | Polčas rozpadu produktu | Prahová energia reakcie (MeV) | E_γ (keV) | $I_\gamma(E_\gamma)$ (%) |
|---------------------------------------------|-------------------------|-------------------------------|------------------|--------------------------|
| $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ | 16,96 h | 3,25 | 1368,63 | 100,0 |
| | | | 2754,03 | 99,9 |
| $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ | 2,70 d | 0 | 411,80 | 96,0 |
| $^{197}\text{Au}(n, p)^{197}\text{Pt}$ | 19,89 h | 0 | 77,35 | 17,0 |
| $^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$ | 6,18 d | 8,11 | 332,98 | 22,9 |
| | | | 355,68 | 87,0 |
| $^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196m}\text{Au}$ | 9,60 h | 8,11 | 147,81 | 43,0 |
| | | | 188,27 | 37,4 |
| $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ | 5,27 r | 0 | 1332,5 | 100,0 |
| | | | 1173,24 | 100,0 |
| $^{59}\text{Co}(n, \alpha)^{56}\text{Mn}$ | 2,58 h | 0 | 846,77 | 98,9 |
| | | | 1810,77 | 27,2 |
| | | | 2113,12 | 14,3 |
| | | | 2522,88 | 1,0 |
| $^{59}\text{Co}(n, p)^{59}\text{Fe}$ | 44,50 d | 0,80 | 1099,25 | 56,5 |
| | | | 1291,60 | 43,2 |
| | | | 192,35 | 3,1 |
| | | | 142,65 | 1,0 |
| $^{59}\text{Co}(n, 2n)^{58}\text{Co}$ | 70,86 d | 10,63 | 810,78 | 99,0 |

7.1. VÝSLEDNÉ REAKČNÉ RÝCHLOSTI

Analyzované boli vybrané aktivačné detektory z ^{197}Au , ^{59}Co , a ^{27}Al , ktoré boli ožarované na pozícii P14. Detegované aktivačné a prahové reakcie sú uvedené v tabuľke 2. Z nameraných spektier gama žiarenia aktivačných detektorov boli odčítané veličiny nutné pre výpočet reakčnej rýchlosti vzťahnutej na jedno neutrálne terčové jadro, ktorá bola počítaná podľa vzťahu (2). Následne boli vykonané korekcie na fluktuáciu zväzku protónov, nebudovosť zdroja gama žiarenia a samotienenie zdroja. V tabuľke 3 sú uvedené stanovené reakčné rýchlosti a ich relatívne neurčitosti vo vybraných aktivačných detektoroch.

Tab. 3: Stanovené reakčné rýchlosti vo vybraných aktivačných detektoroch

| Reakcia | Reakčná rýchlosť (s^{-1}) | Relatívna neurčitosť reakčnej rýchlosti (%) |
|---------------------------------------------|-------------------------------|---------------------------------------------|
| $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ | $1,72 \times 10^{-17}$ | 4,8 |
| $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ | $3,50 \times 10^{-16}$ | 1,3 |
| $^{197}\text{Au}(n, p)^{197}\text{Pt}$ | $8,39 \times 10^{-17}$ | 5,6 |
| $^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$ | $2,59 \times 10^{-16}$ | 3,8 |
| $^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196m}\text{Au}$ | $1,61 \times 10^{-17}$ | 9,4 |
| $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ | $6,84 \times 10^{-17}$ | 6,8 |
| $^{59}\text{Co}(n, \alpha)^{56}\text{Mn}$ | $4,00 \times 10^{-18}$ | 8,1 |
| $^{59}\text{Co}(n, p)^{59}\text{Fe}$ | $9,78 \times 10^{-18}$ | 6,7 |
| $^{59}\text{Co}(n, 2n)^{58}\text{Co}$ | $6,56 \times 10^{-17}$ | 2,3 |

Nakoniec boli stanovené aktivity produktov aktivačných a prahových reakcií vybraných aktivačných detektorov za účelom overenia výsledkov. Z aktivít boli stanovené polčasy rozpadov spomenutých produktov reakcií, ktoré sú v dobrej zhode s tabelárnymi hodnotami. Hodnoty stanovených a tabelovaných polčasov rozpadov produktov sledovaných reakcií sú uvedené v tabuľke 4.

Tab. 4: Stanovené a tabelárne polčasy rozpadu [6]

| Rádionuklid | Experimentálny polčas rozpadu | Tabelárny polčas rozpadu |
|-------------------|-------------------------------|--------------------------|
| ^{24}Na | 15,07 h | 14,96 h |
| ^{198}Au | 2,63 d | 2,70 d |
| ^{196}Au | 5,78 d | 6,18 d |
| ^{60}Co | 4,04 r | 5,27 r |
| ^{59}Fe | 48,03 d | 44,50 d |

8. ZÁVER

V rámci aktivačného experimentu bola získaná sada reakčných rýchlostí pre tri vybrané aktivačné detektory z Al, Co a Au, zmeraných bolo celkom deväť reakcií. Na overenie výsledkov boli stanovené polčasy rozpadu detegovaných aktivačných produktov v ožiarených fóliách. Zmerané polčasy rozpadov sú v dobrej zhode s ich tabelovanými hodnotami. V nadväzujúcich prácach budú analyzované ďalšie aktivačné detektory. Po získaní úplnej sady reakčných rýchlostí aktivačných a prahových reakcií dozimetrických fólií bude možné dekonvoluovať neutrónové spektrum nového neutrónového poľa využívajúceho zdrojovú reakciu $p(20)+\text{Be}$. Nové neutrónové pole je analyzované za účelom rozšírenia možností použitia neutrónového generátoru NG-2, ktorý sa nachádza na ÚJF AV ČR a bude využiteľné pre integrálne validácie účinných prierezov reakcií rýchlych neutrónov a konštrukčných materiálov.

POĎAKOVANIE

Merania boli vykonané na zariadeniach CANAM ÚJF AV ČR Řež s podporou projektu MŠMT číslo LM2015056.

LITERATURA

- [1] Knoll G.F.: *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons, Inc., USA, 1999, ISBN 0-471-07338-5
- [2] Štefánik M. et al.: *Neutron field study of p(35)+Be source reaction at the NPI Rez*, Radiation Physics and Chemistry, 2018, dostupné na: <<https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.06.046>>
- [3] Lone M. A. et al.: *Thick Target Neutron Yields and Spectral distributions from the ${}^7\text{Li}(\text{d}, \text{n})$ and ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})$ reactions*, Nuclear Instruments and Methods, 1977
- [4] Brede H. J. et al.: *Neutron Yields from Thick Be Targets Bombarded with Deuterons or Protons*, Nuclear Instruments and Methods A, Vol. 274, 1989
- [5] Dobeš J. (2014, August) Center of Accelerators and Nuclear Analytical Methods. [ONLINE]. <http://canam.ujf.cas.cz>
- [6] S. Y. F. Chu, L. P. Ekström, and R. B. Firestone (2011, October) The Lund/LBNL Nuclear Data Search Version 2.0. [Online]. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi>
- [7] Los Alamos National Laboratory (2012, February) T-2 Nuclear Information Service [ONLINE] <http://ww.t2.lanll.gov>
- [8] National Nuclear Data Center (2014, June) Experimental Nuclear Reaction Data – EXFOR [ONLINE] <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>

Radiační ohřev termočlátku

Martin Lovecký^{1,2}

E-mail: lovecky@rice.zcu.cz

¹ Regionální inovační centrum elektrotechniky, Západočeská univerzita v Plzni, Univerzitní 26, Plzeň, 30614, Česká republika

² ŠKODA JS a.s., Orlik 266, Plzeň, 31600, Česká republika

Abstrakt: Termočlánek umístěný nedaleko výstupu chladiva z hlavice palivového souboru může indikovat teplotu s chybou danou radiačním ohřevem. Různé jaderné reakce přispívají k radiačnímu ohřevu v aktivním objemu oceli termočlátku. Transportní výpočet radiačního ohřevu byl proveden Monte Carlo kódem MCNP pro střední palivový soubor na EDU. Výsledky jsou srovnány s dříve publikovanými výsledky na elektrárnách Paks a Kola.

Klíčová slova: Monte Carlo, radiační ohřev, termočlánek, VVER-440

1. ÚVOD

Termočlánek umístěný nedaleko výstupu chladiva z hlavice palivového souboru může indikovat teplotu s chybou danou radiačním ohřevem. Různé jaderné reakce přispívají k radiačnímu ohřevu v aktivním objemu oceli termočlátku. Transportní výpočet radiačního ohřevu byl proveden Monte Carlo kódem MCNP pro střední palivový soubor na EDU.

Radiační ohřev může pocházet z následujících zdrojů:

1. fotony z kobaltu aktivované oceli hlavice palivového souboru
2. fotony z kobaltu aktivované oceli bloku ochranných trub
3. neutrony ze štěpení paliva během provozu
4. sekundární fotony (pocházející z (n, γ) reakcí neutronů ze štěpení paliva během provozu)
5. štěpné fotony (fotony ze štěpení paliva během provozu)
6. neutrony z vyhořelého jaderného paliva
7. fotony z vyhořelého jaderného paliva

Pro reaktory VVER-440 jsou k dispozici dva články pro elektrárny Kola [2] a Paks [3]. Maďarská práce dochází k závěru, že 64 % radiačního ohřevu pochází ze sekundárních fotonů z (n, γ) reakcí neutronů ze štěpení a 31 % pochází ze štěpných fotonů. Radiační ohřev 2.76 mW/g zvyšuje teplotu až o 2 °C. Novější ruská analýza odhaduje průměrné radiační ohřev 3 mW/g. Jako dominantní zdroje jsou identifikovány jak sekundární fotony z (n, γ) reakcí, tak štěpné fotony. První část představuje 75 % vytápění, zatímco druhá část odpovídá za zbývajících 25 %.

Analýza prezentovaná v tomto příspěvku navazuje na předchozí práce se dvěma změnami. Geometrický model hlavice palivového souboru v MCNP vychází z CSG modelu vyvinutém na základě CAD modelu. Vstupní parametry včetně typů palivových souborů, rozšířené množiny reakcí přispívajících k radiačnímu ohřevu a operační historie byly určeny pro parametry EDU.

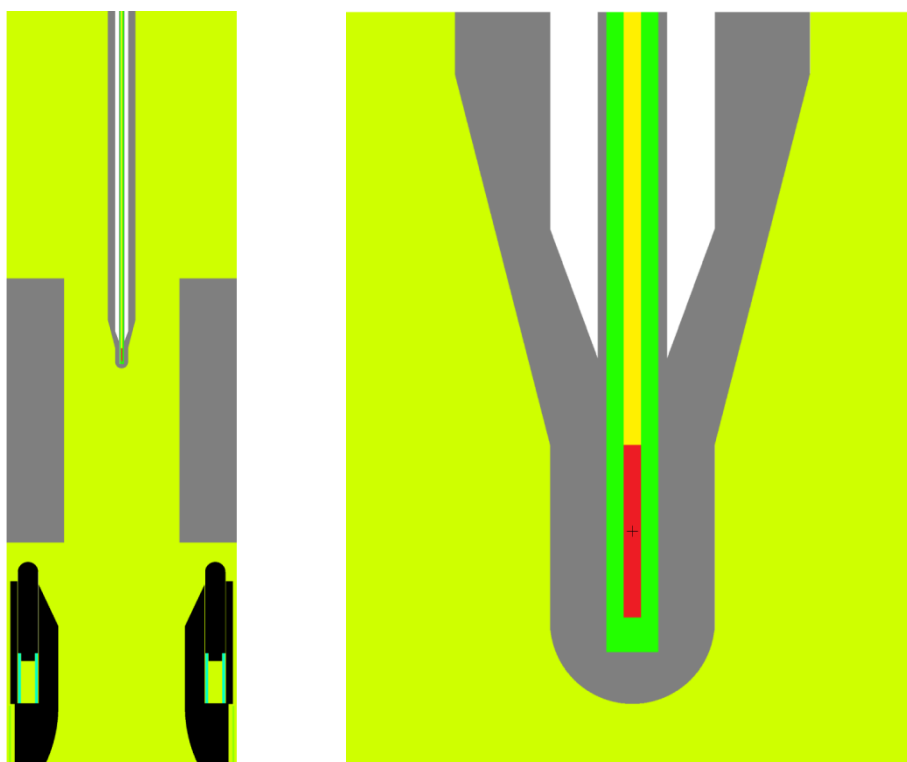
2. VÝPOČETNÍ MODEL

Radiační ohřev je popsán jadernými daty v knihovnách jaderných dat, v kódu MCNP6 jej lze spočítat přes F6 tally, využito bylo knihovny ENDF/B-VII.1. Palivový soubor s reflexní okrajovou podmínkou simulující nekonečnou mříž byl uvažován se středními zdroji pro cyklus B3C29 na EDU, detail geometrie v okolí hlavice palivového souboru (PS) viz Obr. 1.

Radiační zdroje vyhořelého jaderného paliva (VJP) byly určeny sekvencí kódu TRITON ze sady SCALE-6.2.3 pro střední vyhoření PS v AZ (35076 MWd/MTU) pro palivo typu Gd-2M se středním obohacením 4.38 wt% U-235.

Neutronová aktivace ocelových částí má dominantní reakci $\text{Co-59}(n,\gamma)\text{Co-60}$. Aktivace kobaltu byla určena kódem MCNP6 pro 11 axiálních vrstev. Neutronový zdroj pro výpočet aktivace byl připraven poproutkovým výpočtem kódem MOBY-DICK pro 42 axiálních úseků paliva pro relevantní aktinidy (U-235, U-238, Pu-239 a Pu-241). Obsah kobaltu v oceli 08X18N10T byl uvažován 0.20 wt%, fotonový zdroj je lineárně závislý na počátečním obsahu kobaltu a v závislosti na konkrétní tavně může ovlivnit výsledky analýzy. Ozařovací doba byla uvažována 3 roky pro hlavici PS (černá barva na Obr. 1) a 29 let pro blok ochranných trub (šedá barva na Obr. 1). Částečný rozpad Co-60 s poločasem přeměny 5.27 let je zahrnut v přípravě zdroje neutronů v kódu MOBY-DICK v metodě efektivního zdroje.

Štěpné fotony byly určeny multiplikací neutronového zdroje z kódu MOBY-DICK podílem počtu fotonů a neutronů na jedno štěpení (např. pro U-235 vzniká při jednom štěpení v průměru 7.0437 fotonů a 2.4367 neutronů).



Obr. 1: CSG model palivového souboru VVER-440 v kódu MCNP6 pro výpočet radiačního ohřevu.

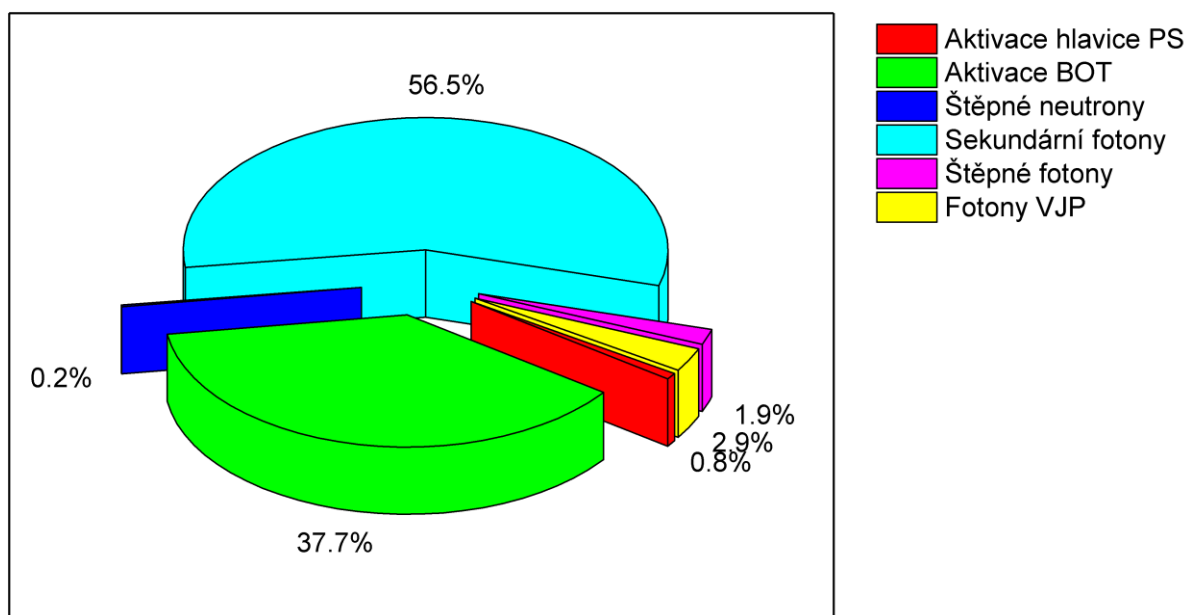
3. VÝSLEDKY VÝPOČTŮ

Výsledky transportního výpočtu radiačního ohřevu jsou shrnuty v Tab. 1 a na Obr. 2. Hlavními zdroji radiačního ohřevu jsou sekundární fotony a aktivovaný blok ochranných trub (BOT), tyto dva zdroje tvoří 94 % radiačního ohřevu termočlátku (TČ). Z pohledu přístupu středního PS se obě složky chovají odlišně:

1. Radiační ohřev vlivem sekundárních fotonů je úměrný výkonu. Nejjednodušší aproximací je lineární závislost radiačního ohřevu na výkonu palivového souboru pod TČ, přesnost aproximace bude vysoká.
2. Radiační ohřev vlivem aktivovaného BOTu je úměrný době provozu reaktoru a výkonu paliva. V případě kampaně B3C29 je aktivita kobaltu 98 % saturované aktivity, současné cykly budou mít shodnou míru aktivity kobaltu.

Tab. 1: Výsledek transportního výpočtu radiačního ohřevu termočlátku EDU.

| Zdroj radiačního ohřevu | Vydatnost zdroje [1/s/PS] | Radiační ohřev [mW/g] | Podíl [%] |
|-------------------------|---------------------------|-----------------------|-----------|
| Aktivace hlavice PS | 2.51E+14 | 0.06 | 0.8 |
| Aktivace BOT | 3.49E+14 | 2.88 | 37.7 |
| Štěpné neutrony | 3.49E+17 | 0.01 | 0.2 |
| Sekundární fotony | 3.49E+17 | 4.31 | 56.5 |
| Štěpné fotony | 9.86E+17 | 0.15 | 1.9 |
| Fotony VJP | 2.05E+18 | 0.22 | 2.9 |
| Celkem | | 7.63 | 100.0 |



Obr. 2: Výsledek transportního výpočtu radiačního ohřevu termočlátku EDU.

4. ZÁVĚR

Radiační ohřev termočlátku určený pro Dukovany ukazuje shodu s analýzami provedenými pro elektrárny Paks a Kola z pohledu dominantního příspěvku, který tvoří sekundární fotony s cca 2/3 podílem. Zbývající třetina byla určena jako výsledek neutronové aktivace bloku ochranných trub namísto štěpných fotonů v dříve publikovaných analýzách. Celkový radiační ohřev 7.6 mW/g je zhruba dvakrát vyšší než ve dříve publikovaných analýzách.

PODĚKOVÁNÍ

Autoři děkují Technologické agentuře České republiky za podporu jejich výzkumu v rámci centra kompetence č. TE01020455 CANUT.

LITERATURA

- [1] D. B. Pelowitz: MCNP6 User's Manual, Version 1. Los Alamos National Laboratory, Report LA-CP-13-00634, Revision 0, Los Alamos, 2013.
- [2] Представительность термодатчика активной зоны блока 4 Кольской АЭС с РК-3. ООО «Инновационная фирма СНИИП АТОМ», Москва, 2017.
- [3] J. Erika: Effect of radiation heating on temperature measurement above the fuel assembly. AER Working Group C+G, Ráckeve, 2007.
- [4] M. Lovecký: Radiační ohřev termočlátku EDU. ŠKODA JS report Ae 18801/Dok Rev. 0, Plzeň, 2018.

Návrh metodiky měření hustoty při vysokých teplotách v kapalně fázi

Mészáros B.¹, Hrbek J.¹, Paukov M.¹, Kudláč M.¹

E-mail: bence.meszaros@cvrez.cz

¹Centrum výzkumu Řež, Hlavní 130, Řež, Husinec, 260 68, Česká republika

Abstrakt: Příspěvek se zabývá vývojem nové metody pro měření hustoty při vysokých teplotách. Hustota je jedním z významných materiálových parametrů například v jaderném průmyslu. Pro úplné pochopení dějů během jaderné havárie je nezbytné tyto materiálové parametry znát. Měření těchto veličin je velmi náročné převážně kvůli velmi vysoké teplotě přibližně 2500 °C. Pro práci s takto vysokými teplotami je vhodnou technologií vysokofrekvenční indukční pec se studeným kelímkem. Výhodou indukčního tavení ve studeném kelímku je možnost pracovat při teplotách do 3200 °C nebo velmi nízká kontaminace taveného materiálu. V rámci této práce bude navržena metodika měření hustoty při vysoké teplotě. Budou probrány její výhody i nevýhody. Metoda měření bude později ověřena měřením na modelových materiálech, směsích $Al_2O_3 + ZrO_2$ v různých poměrech. Výsledky budou porovnány se současnou literaturou.

Klíčová slova: Hustota, Vysoká teplota, Studený kelímek, Metodika měření.

1. ÚVOD

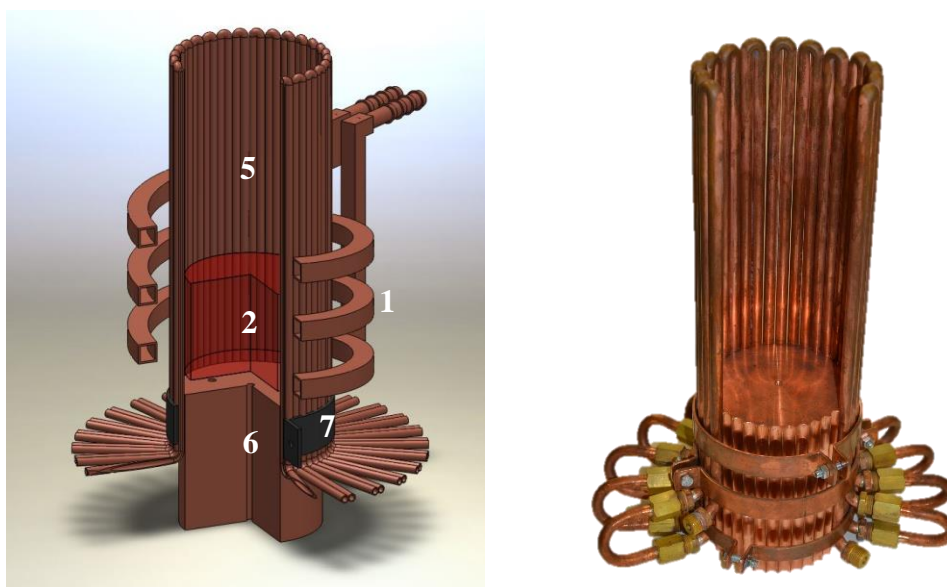
V současné době je ve značné míře uplatňuje při řešení technických problémů matematického modelování. Toho je hojně využíváno při návrhu nových zařízení, změně jejich parametrů nebo, v případě těžkých jaderných havárií, studiu různých scénářů průběhu havárie. Ve všech případech je nutné do modelu zadat materiálové parametry, které zásadně ovlivňují výsledky řešení. Materiálové vlastnosti látek při vysokých teplotách v kapalně fázi nejsou v mnoha případech známy, pokud známy jsou, tak většinou bez teplotní závislosti, proto je studium těchto vlastností výzva.

Pro výzkum fyzikálních vlastností oxidů v kapalně fázi lze využít výhod indukčního tavení ve studeném kelímku při němž se dosahuje vysokých teplot do 3 000 °C. Tento výzkum je možné provádět čistě experimentálně nebo kombinací experimentálně získaných dat a numerických výpočtů. Pomocí technologie tavení oxidů ve studeném kelímku lze experimentálně studovat například teplota likvidu, hustota, viskozita, měrná tepelná kapacita nebo povrchové napětí. Kombinací experimentálních dat a numerických výpočtů se určují rezistivita nebo součinitel tepelné vodivosti pomocí řešení inverzního problému [1].

Indukční tavení oxidů ve studeném kelímku funguje na stejném fyzikálním principu jako indukční tavení kovů v indukční kelímkové peci. Teplo vzniká přímo ve vsázce protékáním vířivých proudů generovaných časově proměnným magnetickým polem, které je způsobeno průchodem elektrického proudu induktorem navinutým kolem vsázky a kelímku. Možnosti indukčního tavení materiálu tedy přímo závisí na jeho elektrické vodivosti. Geometrické uspořádání indukční pece se studeným kelímkem je vyobrazeno na obrázku 1. Studený kelímek je v tomto případě vyroben z měděných trubíc a dna, které jsou během experimentů intenzivně chlazené. Vlivem chlazení se na rozhraní mezi taveninou a stěnou studeného kelímku tvoří tzv. „skull“ vrstva. „Skull“ vrstva chrání taveninu před znečištěním, ale také zabraňuje přímému kontaktu stěny kelímku s taveninou [2]. Teplota taveniny je měřena bezkontaktně pomocí pyrometru.

Velmi důležitou roli hraje v procesu tavení ve studeném kelímku startovací fáze. Oxidy mají při pokojové teplotě velmi špatnou elektrickou vodivost, ta roste s teplotou, proto je nutné použít jiný způsob roztavení mate-

riálu pro dostatečné zvýšení jeho elektrické vodivosti, aby bylo možné pokračovat v tavení elektromagnetickou indukcí materiálu samotného [3]. Prvním možným způsobem provedení startovací fáze je vložení malého množství dobře elektricky vodivého materiálu do směsi oxidů. Při přístupu vzduchu dochází k oxidaci daného kového materiálu, při které se uvolní značné množství energie, které způsobí nárůst teploty ve svém okolí a tím i zvýšení elektrické vodivosti původně elektricky nevodivého materiálu. Tento způsob startovací fáze je nezbytné pečlivě navrhnout na základě chemických vlastností daného kovu, a to především vzhledem k množství kovu, teplotě, při které dochází k reakci a také průběhu oxidace v závislosti na rychlosti ohřevu. Není-li tento přístup možný z důvodu znečištění taveného materiálu, je další možností startovací fáze vložení grafitového kruhu do vsázky a po nastartování tavby jeho vyndání. Jde tedy o komplikovanější variantu s ohledem na její technické provedení.



Obr. 1: Geometrické uspořádání indukční pece se studeným kelímkem (vlevo) - 1 - induktor, 2 - vsázka/tavenina, 5 - stěna studeného kelímku tvořená segmenty, 6 - dno studeného kelímku, 7 - objímka. Reálný studený kelímek používaný pro experimenty (vpravo).

2. METODIKA

2.1. MĚŘENÍ VÝŠKY TAVENINY A URČENÍ JEJÍHO SLOŽENÍ.

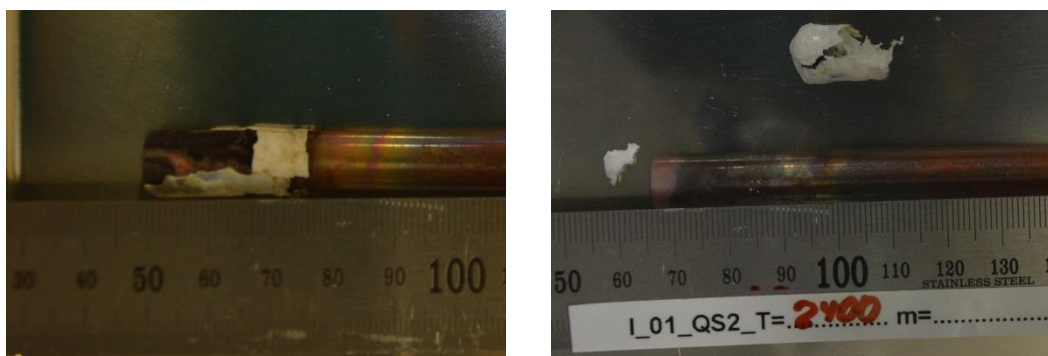
Měření hustoty kapalin při takto vysokých teplotách není možné přímo. Tato metoda se opírá o měření základních veličin, ze kterých je možné později hustotu vypočítat. První nezbytně nutnou veličinou pro výpočet hustoty je objem taveniny, druhou pak její hmotnost. Vzhledem k velmi přesně definovaným rozměrům studeného kelímku, je pro výpočet objemu nezbytné převážně měření výšky taveniny. Pro správnou interpretaci výsledků je pak také nezbytné znát přesné složení taveniny při konkrétní teplotě, protože toto složení se může nepatrně lišit oproti vstupní směsi. Za tímto účelem se používá metoda nazývaná „quenching“, při které je vzorek taveniny odebrán při dané teplotě přímo z taveniny.

Pro tyto účely bylo v naší laboratoři vyvinuto zařízení pro odběr vzorků (Obr. 2). Toto zařízení umožňuje bezpečně ponořovat předměty do taveniny a je plně nastavitelné ve všech směrech. Jeho nespornou výhodou je umožnění používat zařízení z bezpečné vzdálenosti, kde je uživatel odizolován od elektrického proudu při vysokém napětí. Na jeho konci je možné připevňovat předměty různého druhu, které jsou instalovány pomocí standardního závitu uvnitř odběrového zařízení.



Obr. 2: Pracovní komora IS-1 s odběrovým zařízením (černé ohraničení).

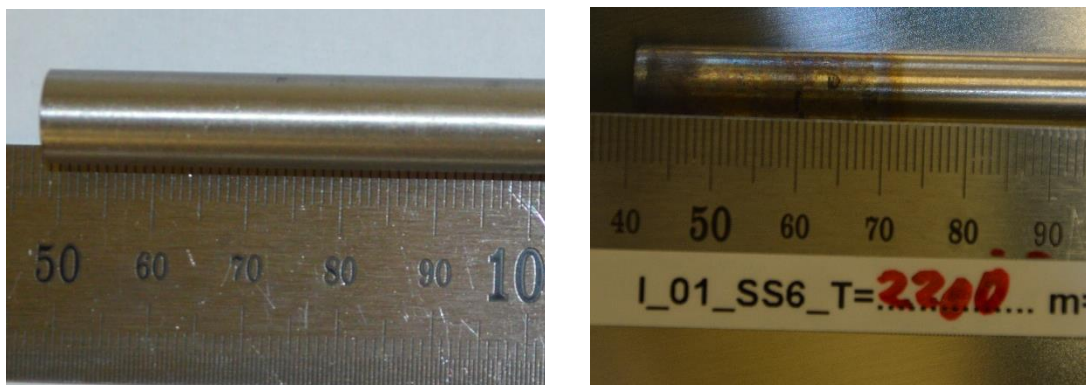
Vzorky „Quench“ jsou odebírány pomocí měděné tyčky. Měděná tyč je ponořena do taveniny na velmi krátkou dobu, aby nedošlo k jejímu roztavení, a je pomocí ní odebrán vzorek taveniny (Obr. 3). Měď je vhodný materiál pro odběr vzorky díky dobré tepelné vodivosti je vyšší pravděpodobnost, že na ní zůstane tavenina i po vtažení z taveniny. Druhou výhodou je snadné odečtení nečistot po provedení analýz. Pro plnou charakterizaci taveniny je vhodné provést analýzy kvantitativní i kvalitativní. Pro určení strukturálního složení taveniny bylo zvoleno měření na XRD (X-ray diffraction) z práškového vzorku. Pro určení procentuálního zastoupení prvků, budou prováděny analýzy na elektronovém mikroskopu s elektronově disperzním spektrometrem (SEM/EDS).



Obr. 3: „Quench“ vzorky při různých teplotách

Pro měření výšky taveniny jsou používány nerezové tyčky. Tyto tyče jsou do taveniny ponořeny po dobu dvou sekund, kdy je nerez prudce zahřáta, ale ještě nedochází k jejímu tavení [4]. Poté je nerezová tyč vytažena

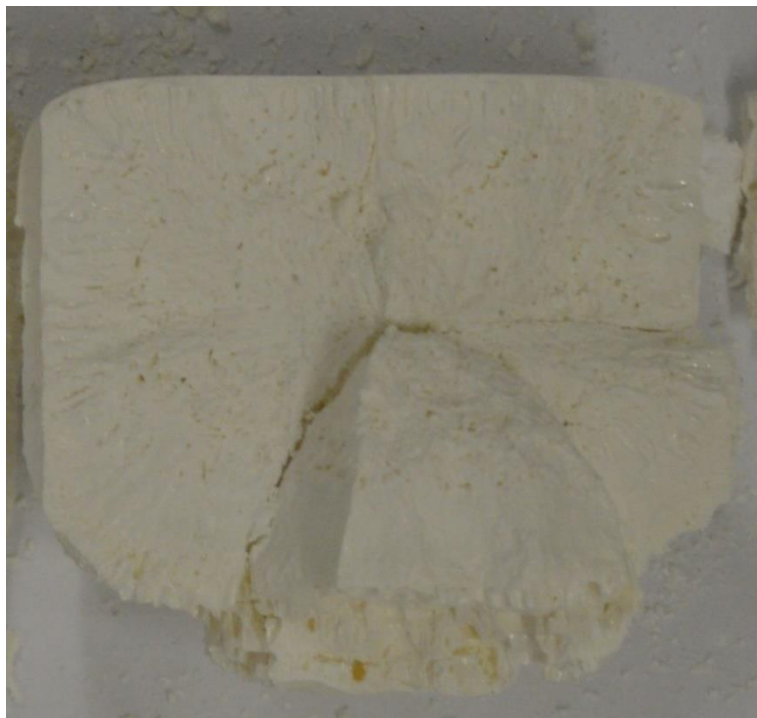
a po ochlazení je možné na nerezky pozorovat změnu barvy části, která byla ponořena do tavenin (Obr. 4), tato změna barvy je způsobena vznikem tenké vrstvy oxidů na povrchu nerezové tyče vlivem velmi vysoké teploty a atmosférického prostředí. Aby měření výšky bylo dostatečně přesné je tato tyč vyfotografována a změna barvy a vzdálenost je zpracovávána softwarově. K tomuto účelu byl vyvinut software, který na základě kalibrace velikosti pixelů změří počet pixelů, u kterých došlo ke změně barvy.



Obr. 4: Příklad změny barvy na nerezových vzorcích.

2.2. VÝPOČET OBJEMU TAVENINY

Ve chvíli, kdy máme změřenou výšku taveniny je nezbytné spočítat její objem. Ačkoliv rozměry studeného kelímku známe s přesností výrobních tolerancí (Obr. 5), nestačí nám tuto výšku vynásobit s podstavou. Během tavení ve studeném kelímku dochází ke tvorbě „skullu“, což je tenká vrstva pevného materiálu, z materiálu taveného, který funguje jako izolant a zároveň zabraňuje rozlítí taveniny ze studeného kelímku. Tento materiál nesmí být zahrnut v objemu taveniny a je nezbytné ho odečíst. Za tímto účelem bude na několika místech změřena tloušťka „skullu“ a z objemu studeného kelímku bude tento objem odečten. Měření tloušťky „skullu“ bude opět provedeno pomocí softwaru. Odlišit tuto vrstvu od taveného materiálu je velmi snadné, neboť struktura v pevné fázi této vrstvy je odlišná a rozeznatelná lidským okem (Obr. 5). Na dně kelímku poté dochází k tvorbě tlustší vrstvy neroztaveného materiálu vlivem většího přestupu tepla skrz měděné dno. Tuto vrstvu je nezbytné znát pouze pro výpočet hmotnosti taveniny. Vnitřní strana „skullu“ je kruhová, což nám mění výpočet objemu taveniny na jednoduchý objem válce. Z tohoto objemu válce však je ještě nezbytné odečíst objem vzorkovací tyče ponořené do taveniny, jejíž rozměry ale přesně známe.



Obr. 5: Příklad rozbitého ingotu a jeho „skull“ vrstvy.

2.3. VÝPOČET HMOTNOSTI TAVENINY

K výpočtu hustoty nám v tuto chvíli chybí už pouze poslední informace, a to hmotnost taveniny. Prvním krokem k určení hmotnosti taveniny je zvážení celého ingotu. Hmotnost ingotu v sobě zahrnuje i hmotnost neroztavené části takzvaného „skullu“. Abychom tuto hmotnost odečetli využijeme již změřeného objemu této vrstvy a měření hustoty v pevném stavu.

Pro určení hustoty „skull“ vrstvy jsme zvolili pyknometrické měření v kapalině [5]. V prvním kroku je krustu na několika místech po stranách a na dně odseparovat od samotného ingotu. Takto připravené vzorky jsou podrobeny pyknometrickému měření. Pyknometrické měření bude provedeno ve standardním 100 ml pyknometru. Díky tomu, že směsi Al_2O_3 a ZrO_2 jsou ve vodě prakticky nerozpustné není nutné používat výrazně dražší plynový pyknometr. K výpočtu hustoty pevné fáze potřebujeme znát hmotnost prázdného pyknometru m_1 , která bude stejně jako všechny hmotnosti vážena na analytických vahách, hmotnost pyknometru s pevným vzorkem (hmotnost m_2), hmotnost pyknometru s pevným vzorkem a kapalinou o známé hustotě, která je doplněna do přesného objemu pyknometru (hmotnost m_3) a poslední hmotností je hmotnost pyknometru pouze s referenční kapalinou doplněnou na definovaný objem (hmotnost m_4). Hustota „skull“ vrstvy je poté vypočítána podle vzta- hu (1).

$$\rho_{skull} = \frac{(m_2 - m_1)}{m_4 - m_3 - m_1 + m_2} (\rho_l - \rho_A) + \rho_A \quad (1)$$

kde ρ_l je hustota srovnávací kapaliny, a ρ_A je hustota vzduchu.

Z těchto měření bude poté vypočítána průměrná hustota „skullu“. Z již dříve změřených objemů pak můžeme vypočítat hmotnosti samotné taveniny.

3. ZÁVĚR

Po provedení všech kroků měření je již snadné vypočítat hustotu taveniny z její známé hmotnosti a objemu pomocí základního vztahu $\rho = \frac{m}{V}$. Následně bude určena nejistota měření, která bude klíčová k rozlišování hustoty při různých teplotách taveniny. Výsledky z měření hustoty budou porovnány s daty z literatury [6]. Kde však měření hustoty končí na hranici teploty likvidu. V našich experimentech se tato teplota bude brát jako výchozí a rádi bychom doplnili hustoty taveniny až do teploty likvidu + 500 K. V prvním kroku bude měření prováděno na směsích ZrO₂ a Al₂O₃ v různých poměrech, ale primárním cílem je vyvinout metodiku použitelnou na materiálech účastnících se těžkých jaderných havárií jako je corium nebo směsi coria s konstrukčními materiály a obětním materiálem.

PODĚKOVÁNÍ

Tento příspěvek vznikl v rámci projektu Centra výzkumu Řež IPNOP DeDe.

LITERATURA

- [1] Pozniak, I., Pechenkov, A., Shatunov, A.: Electrical Conductivity Measurement of Oxides Melts. In: International Scientific Colloquium Modelling for Material Processing. Riga, 2006, s. 155-160, ISBN 9984783855
- [2] Nacke, B., et al.: Induction heating technologies, St. Petersburg: Publishing house of ETU, 2013, ISBN 978-5-7629-1404-8
- [3] Rudnev, V., Totten, G.E.: ASM Handbook Volume 4C Induction Heating and Heat Treatment, Materials Park: ASM International, 2014, ISBN 978-1-62708-012-5
- [4] Higginson, R. L., Jackson, C. P., Murrell, E. L., Exworthy, P. A. Z., Mortimer, R. J., Worrall D. R., Wilcox, G. D. : Effect of thermally grown oxides on colour development of stainless steel. *Materials at High Temperatures*, 2015, **32**, s 113-117
- [5] Davidson, S., Perkin M. : An investigation of density determination methods for porous materials, small samples and particulates. In: *IMEKO 2010 TC3, TC5 and TC22, Conference*, 2010, s. 69-72, ISBN: 978-1-61839-021-9
- [6] Griščenko, D. V.: Kompleks metodov issledovanija svojstv rasplavov sistěmy ZrO₂ - Al₂O₃, Sankt-Petěrburgskij gosudarstvennyj těchnologičeskij institut (Těchničeskij universitět), Sankt-Petěrburg 2008

Analýza vlastností ATF pomocou kódu FEMAXI-6

Peter Mičian

E-mail: xmicia01@vutbr.cz

Fakulta elektrotechniky a komunikačných technológií VUT v Brně,
Technická 3058/10, Brno, 616 00, Česká republika

Abstrakt: Práca sa zaoberá ATF (Accident tollerant fue/Advanced technology fuel) palivám, čiže palivám so zvýšenou odolnosťou alebo palivá s využitím pokročilých technológií. Práca je venovaná predovšetkým výpočtovému programu FEMAXI-6, jeho predstaveniu, uvedeniu jeho možností ale aj obmedzení a následné ukážky jednotlivých výpočtov. V práci sú prezentované výpočty paliva pre reaktory VVER 440/V213, presne palivo typu Gd_2M. Sú diskutované niektoré z možných výstupov a tiež použitie tohto výpočtového programu pre analýzy ATF palív.

Kľúčové slová: FEMAXI-6, ATF palivá, tepelná vodivosť, palivo Gd_2M, VVER 440/V213

1. ÚVOD

Hoci sú v dnešnej dobe skôr podporované zdroje obnoviteľné, ako slnečná a veterná energia, vývoj v oblasti jadrovej energetiky je určite stále potrebný a nutný. Výskumníci a vývojári sa snažia aj v oblasti jadrovej energetiky čo najviac vylepšiť, zrenovovať a posunúť vpred technológie týkajúce sa výroby elektrickej energie z tohto zdroja. Neoddeliteľnou súčasťou výskumu a vývoja je aj tlak a požiadavky na zvyšovanie bezpečnosti jadrových zariadení. Tento tlak je vyvíjaný či už zo strany štátnych orgánov, ale aj zo strany verejnosti. Zvyšovanie bezpečnosti je a vždy bude hlavnou prioritou.

K efektívnejšiemu a bezpečnejšiemu využívaniu jadrovej energie určite pomáha vývoj v oblasti základnej jednotky jadrového reaktora, ktorou je palivo. Táto práca sa venuje predovšetkým tzv. ECO fuels, čo v preklade znamená palivá so zvýšenou tepelnou vodivosťou. V tomto prípade sa zvýšená tepelná vodivosť dosahuje, prídávaním rôznych druhov zlúčenín do samotnej matrice paliva, alebo jeho modifikáciou. Výsledok, ktorý chceme dosiahnuť je, aby sa znížila teplota uprostred peletky paliva. K tomu pomôže zvýšená tepelná vodivosť materiálu paliva. To bude viesť k zvýšenej efektívite a tiež bezpečnosti paliva. Avšak vyskytuje sa tu mnoho otázok, ako sa napríklad bude palivo chovať.

Preto je nutné využiť výpočtové programy, aby sme vedeli predpokladať a určiť, ako sa bude daný materiál v palive chovať. Je nutné vysvetliť a pochopiť, ako pracuje program FEMAXI-6, načo sa dá použiť a ako sa dajú jednotlivé výstupy interpretovať a využiť. Aby sa ukázali všetky výhody ale aj obmedzenia tohto programu.

2. POUŽITÝ VÝPOČTOVÝ PROGRAM FEMAXI

Na výpočty jadrového paliva a jeho vlastností sa využívajú rôzne výpočtové programy, ako napríklad FRAPCON, TRANSURANUS, ENIGMA alebo FEMAXI. Tým že dnešný trend v jadrovej energetike je predlžovať kampane a čas, ktorý je palivo zavezené v reaktore a tým zvyšovať jeho využitie, musia sa jednotlivé programy zaoberať týmto trendom. Chovanie takéhoto paliva s vyššou mierou vyhorenia, zaujíma fyzikov pri navrhovaní palivových súborov a pri preukázaní ich spoľahlivosti. Preto sú vytvárané výpočtové programy ktoré presne analyzujú chovanie paliva pri vysokých hodnotách vyhorenia, aby sa zabezpečila ich spoľahlivosť a bezpečnosť. Bolo preto nutné aby sa zaviedli do výpočtov nové modely a analýzy, pretože chovanie pri vysokých vyhoreniach okolo 50 GWd/t sa veľmi líši od bežných, menej vyhorených palivových súborov. Hlavné rozdiely

sú v zmene tepelnej vodivosti počas života, vnútornej štruktúry a materiálových zmenách na obvode paliva. Tieto zmeny môžu veľmi ovplyvniť celkové chovanie palivového súboru.

Práca sa zamerala na program FEMAXI, konkrétne verzia FEMAXI-6. Tento výpočtový program sa začal vyvíjať v roku 1974 v japonskom JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute) a vo vývoji sa pokračuje dodnes. Bolo vytvorených už 7 verzií tohto programu. Program FEMAXI sa široko využíva aj vo svete, najviac pre licencovanie palív pre ľahkovodné reaktory, akými sú aj naše reaktory VVER 440/V213. Tiež sa využíva pri predikciách rôznych experimentov a pre lepšie pochopenie chovania paliva. Program je limitovaný iba na jeden palivový prútik, čiže sa nedá zadefinovať napríklad geometria reaktora, profilovanie kazety a iné vplyvy, ktoré môžu zmeniť výsledné vlastnosti.

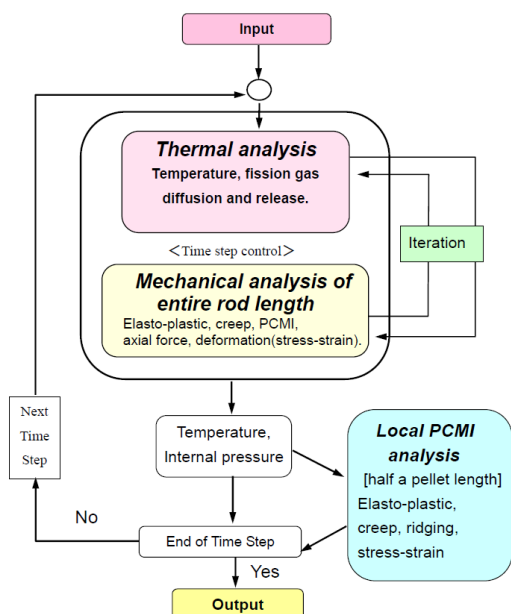
Pre výpočty v tejto práci bola použitá verzia výpočtového programu FEMAXI-6. Verzie programu pred použitou verziou 6, FEMAXI-IV a V boli predovšetkým zamerané na stredné vyhorenie paliva. Pri novej verzii boli poznatky prebraté z predošlých verzií, štruktúra bola revidovaná a boli začlenené nové funkcie. Verzia ktorá bola použitá bola vytvorená pre detailnejšie skúmanie vysokého vyhorenia palivových súbor pri prevádzkových podmienkach. Táto verzia nie je určená pre havarijne podmienky ako napríklad LOCA havária. Stavala na základoch predošlých verzií s tým že pribudli vylepšenia a rozšírenia. Táto verzia ponúka mnoho nových zatiaľ nezahrnutých materiálov a ich vlastností, ako napríklad pre MOX palivá, palivá s vyhoriavajúcim absorbátorom gadolínium a iné. Program sa dokáže vysporiadať s ustálenými stavmi ale tiež s očakávanými prechodnými javmi.

FEMAXI-6 ponúka kompletnú tepelnú a mechanickú analýzu, tiež predpoveď vývoja medzery medzi palivom a pokrytím. Medzi ďalšie nové modely patria aj produkcia štiepných plynov a tiež detailnejšie analýzy v oblasti vyhoriavania. Hlavné oblasti analýzy verzie FEMAXI-6 sú rozdelené do dvoch častí. Prvá je tepelné procesy ktoré určujú rozloženie teploty a procesy súvisiace s mechanickými zmenami. Podrobný popis čo do jednotlivých častí patrí nájdete v tab. 1. Program vytvára analýzy iba pre jeden palivový súbor počas ustálenej prevádzky alebo očakávaných prechodných stavoch.

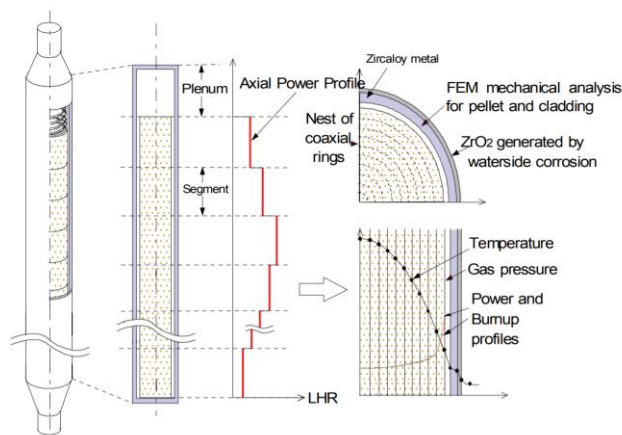
Tab. 1 Hlavné oblasti analýzy programu FEMAXI-6 [1]

| | Tepelné procesy | Mechanické procesy |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Paletka | Tepelná vodivosť Rozdelenie tepelného toku Produkcia štiepných plynov | Tepelné rozpínanie Elasticita, plasticita, tečenie, praskanie, premiestňovanie, napúchanie, zahusťovanie |
| Pokrytie | Tepelná vodivosť Korózia | Tepelné rozpínanie, elasticita, plasticita, tečenie, radiačný rast |
| Prútik | Tepelná vodivosť medzery (plyny, dotyk, radiácia) Prenos tepla povrchom Pohyb plynov v medzere | Mechanická interakcia medzi paletkou a pokrytím, trenie, spojovanie |

Ako bolo už spomenuté, program pozostáva z dvoch hlavných častí, a to časť venujúca sa teplotnej analýze a mechanickej analýze. Štruktúra s ktorou program pracuje je znázornená na obr. 1, kde je uvedený priebeh výpočtu pomocou diagramu. V tepelnej časti analýzy prebieha výpočet pozdĺž celého palivového prútika, ktorý môže byť rozdelený maximálne na 40 axiálnych častí. Rozdelenie teplôt je počítané ako jednorozmerný osový súmerný problém v radiálnom smere. Pomocou týchto teplôt sa ďalej počíta tvorba štiepných plynov, tok štiepných plynov a ich vplyv na tepelnú vodivosť medzery medzi palivom a pokrytím. Tiež sa berie do úvahy vzájomné ovplyvňovanie axiálnych častí medzi sebou, pokiaľ nie sú krajné. Toto rozdelenie je znázornené na obr. 2.



Obr. 1: Štruktúra kódu FEMAXI-6 [1]



Obr. 2: Geometria pre analýzu palivového prútika [2]

Pri mechanických analýzach si používateľ môže vybrať či bude uvažovaná celá dĺžka prútika alebo len jedna palivová peletka. Pri výpočtoch je používaná metóda FEM (finite element method), čiže metóda konečných prvkov. Ako už bolo spomenuté, program počíta iba polovicu peletky kvôli tomu že sa uvažuje ako symetrická.

Pri mechanických analýzach sa ako prvé vypočítajú hodnoty tepelnej rozťažnosti, zhustovania a premiestňovania, ktoré spôsobujú namáhanie peletky. S využitím týchto hodnôt sa ďalej počítajú hodnoty praskania, elasticity/plasticity a tečenia peletky. Potom sa ďalej výpočet presúva na výpočet hodnôt namáhania kontaktu medzi peletkou a pokrytím. Ak sa zmení kontakt medzi peletkou a pokrytím, výpočty prebehnú znova s novými hodnotami okrajových podmienok. Pri analýze po celej dĺžke palivového prútika sa berú do úvahy aj axiálne sily, ktoré pôsobia na jednotlivé priľahlé segmenty. Tiež je vyhodnocovaná aj celková deformácia palivového prútika pozdĺž jej celkovej výšky. Pomocou metódy konečných prvkov však môžeme obmedziť celkový počet stupňov voľnosti.

Tepelná časť analýzy po celej dĺžke palivového prútika je previazaná s mechanickými analýzami. Toto previazanie teplôt a deformácií je dosiahnuté iteráciou v každom kroku. Toto je najvýznamnejšia zmena v štruktúre programu FEMAXI-6 oproti jeho predchodcovi FEMAXI-V, v ktorom bola mechanická analýza zjednodušená a nebola dostatočne previazaná s časťou teplotnej analýzy. [1][2][3][4]

3. VSTUPNÉ DÁTA

Výpočtový program FEMAXI-6 funguje so starším typom programovacieho jazyka fortran. Vstupný súbor sa dá pomyslene rozdeliť do 4 častí, ako je aj znázornené na obr. 3. V prvých troch častiach sa pomocou priradenia hodnoty daným premenným určujú parametre výpočtu. V poslednej časti sú predovšetkým už presné hodnoty.

V prvej časti sa okrem iného určujú napríklad jednotlivé jednotky, v ktorých sa budú hodnoty či už zadávať alebo budú vo výstupoch, ako sú napríklad jednotka vyhorenia (zadané MWd/tU) alebo jednotky času (zadané dni). Tiež sa tu zadávajú niektoré počiatočné hodnoty napríklad veľkosť zrn alebo pokojová teplota. V druhej časti sa vyberajú rôzne rovnice so širokej škály pre výpočty alebo rôzne matematické modely. Ide napríklad o modely výpočtu tepelnej vodivosti, ktoré nás najviac zaujímajú, ďalej modely pre napúchanie alebo pre oxidáciu pokrytia. V tretej časti sú predovšetkým zadávané výstupy, ktoré chceme sledovať. Jednotlivé výstupy sú rozdelené do viacerých sekcií, kvôli ich veľkému počtu až okolo 500 možných výstupov. V poslednej štvrti

19. MIKULÁŠSKÉ SETKÁNÍ MLADÉ GENERACE ČNS 4. - 6. 12. 2019

časti sa nachádzajú hlavné číselné hodnoty. Najskôr sa zadávajú hodnoty palivového prútku ako sú rozmery, geometria, obohatenie, hustota. Ďalej sa zadávajú hodnoty axiálneho rozloženia výkonu a k jednotlivým hodnotám vyhorenia sa priraduje po-prútkový výkon v jednotkách W/cm. Tiež sa zadáva tlak, množstvo a vstupná teplota chladiva, je tu aj možnosť priradenia neutrónového toku.

```
1 ***** FWR-type Rod Sample Case | *****
2 &INPUT IBUNP=1, IDAY=1, IRH=1, TROOM=295.1, DTPL=0.0, ICORRO=2, EX=99.0,
3 PITCH=1.6, IFUGH=1, TLLM=1000., IFLX=-2, INPRD=2, RCORRO=0.3,
4 IRIM=1, RFGFAC=1.0, FRELOC=0.30, EPSRLZ=5.D-3, IFSNT=1, FAIW=5.E11,
5 IGRAIN=0, GR=10.0, GRWF=1.5, LBU=1, IPRO=0, R1=1.0, R2=1.0, ICAGRW=1,
6 IHOT=1, BETAX=0.02, ISPH=1, ICFI=1,
7
8 IFEMRD=1, IFEMOP=2, IDSELM=1, IDENSF=0, DMAX=2.0, FDENSF=0,
9 IPEXT=14, IDCNST=1, IPTHCN=4, IFSWEL=4, ICPLAS=2,
10 IBOND=0, IGAPCN=5, BDX=100000., ALBD=0.7, FBONDG=10., SBONDG=0.01,
11 MAT3=2, FACT2=0.1, 0.1, 0.1, 100., 0.1,
12 CRPEQ=0, CRFAC=1.0, IPCRP=2, FCRFAC=1.0, IPTHEX=3, ATHEX=3.561D-6,
13 IRM=0, MESH=0, MOXP=0, IPLYG=1, IZYG=1, TCS=1773.15, IZCX=1, IST=1,
14
15 IPRINT=1,1,0,0,1, IPLOFT=5, DEBU=500.,
16 IWTHE=1,0,0,1,9*0,1,3*0, 3*1,
17 IWROD(1)=3*1, 8*0, 3*1, 0,0,0,1,0,0,
18 IDNO(1)=8*1, 6*0, 5*1, 20*0,
19 IDNO(41)=10*1, 0,1,1,0,1, 3*0,1, 4*0,1,1,0,1,1,5*0,1,3*0,1,0,1
20 IDNO(81)=1, 19*0,
21 IDNO(101)=1,0, 3*1,0,1, 3*0,1,0,1,1,0,1, 6*0,1, 8*0,1,1,0,0, 1,13*0,
22 IDNO(151)=2*0, 6*1, 3*0,1,1,0,1,0,1, 3*0,1,0,0,1,1, 4*0,1, 21*0,
23
24 &END
25      10      6
26      1      0.88      0.97
27      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
28      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
29      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
30      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
31      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
32      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
33      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
34      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
35      2      0      0.0      0.82      1.0      0.04      0.95      10.
36      0.6218      0.021      0.0
37      8.0      1.0      1.0      0.0      0.0      0.0      550.0      0.0
38      10
39      0.0      .01      558.15      15.4      1      3.04
40      .620      .865      1.000      1.149      1.190      1.163      1.005      0.931
41      .786      .541
42      10.0      114.5
43      15000.0      250.0
44      20000.0      270.0
45      25000.0      290.0      1
46      28000.0      270.0
47      30000.0      260.0
48      30500.0      100.0
49      30501.0      1.0      1
50      59900.0      110.0      558.15      15.4      1      3.04
51 STOP
```

Obr. 3: Príklad vstupného súboru

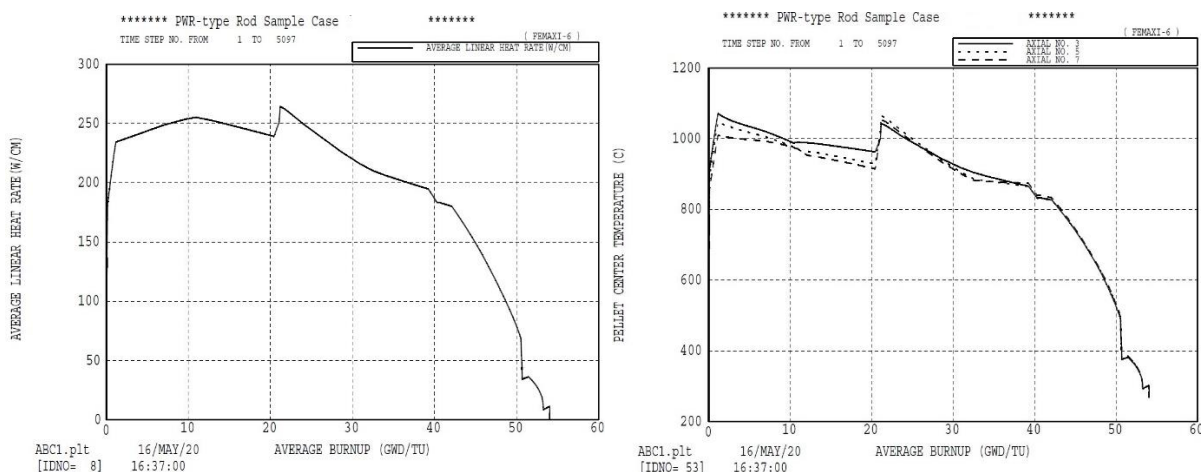
Do vstupov boli dosadené hodnoty, ktoré sú reálne pre blok reaktora typu VVER 440/V213. Bola použitá kazeta typu Gd_2M. Ide o profilovanú kazetu so stredným obohatením 4,38 % a vyhorelým absorbátorom gadolínium. Kazeta bola zavezená v reaktore 5 rokov. Z tejto kazety bol vybratý prútk číslo #28. Bol volený kvôli jeho polohe približne v strede výkonového profilu kazety. Jeho obohatenie je 4,6 % ^{235}U a neobsahuje vyhorelým absorbátor. Do vstupu bolo nutné dosadiť po-prútkové výkony v závislosti na vyhorení kazety a tiež axiálne rozloženia týchto výkonov. Program FEMAXI-6 ponúka aj možnosť počítania s vyhorelým absorbátorom. V našom výpočte sme ju však nevyužili. Následne po správnom zadaní všetkých parametrov, hodnôt a modelov sa môže program spustiť. Čas za ktorý program počíta sa mení podľa zadanej podrobnosti výpočtu a množstva zadaných bodov jednotlivých výkonov počas celej doby, po ktorú je prútk zavezený v aktívnej zóne. [5][6][7]

Do programu je možné pridávať alebo meniť rôzne ďalšie materiálové modely, s ktorými by mohol program počítať. Je možné napríklad pridať modely v oblasti tepelnej rozťažnosti, praskania, napúčania, bodu tavenia, tvorbe štiepných plynov a mnoho ďalších. Pridať sa dajú aj modely tepelnej vodivosti paliva. Funkcia PTHCON, ktorú je možné nájsť v zdrojovom kóde programu, sa používa pri pridávaní modelov tepelnej vodivosti paliva. Túto funkciu definuje viacero premenných ako napríklad teplota, relatívna hustota, vyhorenie, množstvo gadolína a iné. Celkový prehľad jednotlivých modelov je uvedený v literatúre [1] a [2].

4. VÝSLEDKY SIMULÁCIÍ

S pomocou programu FEMXI-6 je možné získať veľké množstvo rôznych výstupov. Vo vstupnom súbore pre vykreslenie grafov je možné zadať veľké množstvo rôznych parametrov, ktoré môžu byť vo výstupnom súbore vykreslené. Rozobratých tu bude iba niekoľko príkladov pre utvorenie obrazu, aké možno dosiahnuť výstupy. Všetky zhodnotené výstupy sú v tejto práci závislé na vyhorení, samozrejme je možné určiť aj inak.

Prvý výstup je zobrazenie lineárneho po-prúťkového výkonu, ktorý sme zadali. Tento priebeh je vidieť na obr. 4 vľavo. Je vidieť zobrazenú priemernú hodnotu na celú dĺžku prútika. Prvé roky sa kazeta posúvala smerom do stredu aktívnej zóny, čiže môžeme vidieť najskôr nárast výkonu a zmeny jeho hodnôt pri presune. Tiež je pozorovateľné že čím výkon klesá s pribúdajúcimi rokmi, tak kazeta za jeden rok menej vyhorí ako pri vyšších výkonoch. Posledné dva roky vyhorí približne za rok iba 5 000 MWd/tU, čo je približne jedna desatina z celkového vyhorenia.

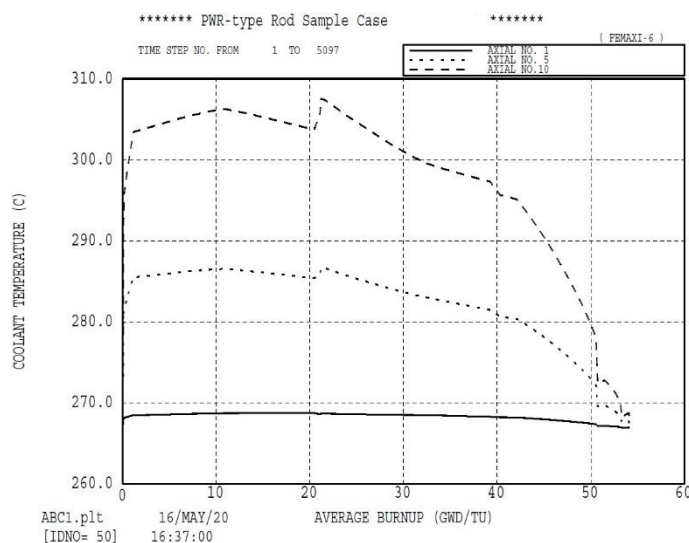


Obr. 4: Závislosť priemerného lineárneho po-prúťkového výkonu (vľavo) a teploty uprostred peletky (vpravo) na vyhorení

V ďalšom výstup ktorý je zobrazený na obr. 4 vpravo, je možné vidieť ako sa v priebehu života kazety mení teplota v centre palivovej peletky. Sú zobrazené hodnoty pre 3, 5 a 7 segment, pričom model je rozdelený na 10 axiálnych segmentov. Rozdiely medzi jednotlivými segmentami sú veľmi malé. Priebeh teploty skoro kopíruje priebeh výkonu. Avšak hlavný zreteľ je kladený na hodnoty týchto teplôt. Pri najvyššom výkone sa teplota dostane na hodnotu 1050 – 1080 °C v centre peletky. Tento výstup je dôležitý hlavne pre ATF, čiže aj palivá so zvýšenou tepelnou vodivosťou, ktorých cieľom je znížiť túto centrálnu teplotu. Tým by sa dalo palivo viacej využiť, využívať pri vyšších teplotách a bolo by bezpečnejšie. Obmedzením je teplota tavenia paliva, ktorú nesmie palivo dosiahnuť v žiadnom prípade pri bežnej prevádzke. Pri haváriách by táto zlepšená tepelná vodivosť mohla viesť k lepšiemu zvládnutiu havarijnej situácie.

Na ďalšom obr. 5 je priebeh teplôt chladiva počas priebehu celej doby využívania kazety a jednotlivo zobrazené krivky pre dané axiálne segmenty. Ide o začiatkový, stredný a koncový segment, čiže môžeme pozorovať ako sa vyvíja teplota na výstupe. Môžeme povedať že ide o vstup, stred a výstup z reaktora. Teplota na výstupe sa približne rovná hodnotám s reálnymi hodnotami zo štvrtého bloku Dukovian. Vidieť približne ohriatie chladiva o $\Delta T=30$ °C. Pri posledných dvoch rokoch je značne vidieť pokles teplôt z dôvodu menšieho výkonu kazety tým že je viac vyhoretá a je umiestnená na okraj aktívnej zóny. Teplota chladiva je závislá na mnohých faktoroch. Tými faktormi sú napríklad prestup tepla z pokrytia do chladiva, tepelná vodivosť pokrytia, tepelná vodivosť medzery medzi palivovými peletkami a pokrytím, prestupy tepla z peletky do medzery a následne do pokrytia a nakoniec samostatná tepelná vodivosť peletiek. Z iných výstupov programu je tiež vidieť ako teplota pokrytia v tomto prípade je skoro po celý čas 340 °C. Tu vidieť tepelný odpor prechodu medzi pokrytím a chladivom. Graf z obr. 5 je tiež dôležitý ukazovateľ, aby voda v reaktore nepresiahla teplotu, pri ktorej by za daného tlaku primárneho okruhu mohla začať vriť, čo je pri tlakovodných reaktoroch nežiadúci stav. Dochádzalo by k obnaženiu paliva a tým pádom k jeho zlému chladeniu, až taveniu. Tiež je nutné venovať pozornosť pri

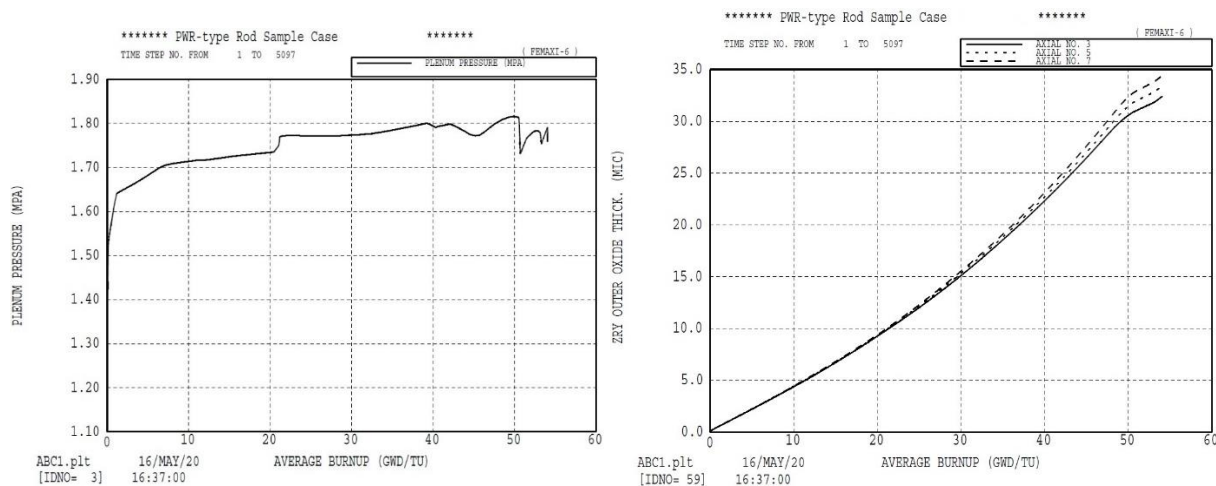
teplote aj zmene hustoty chldiva, čiže aj zmenu hustoty kyseliny boritej v primárnom okruhu a následne zmenám v absorpcii neutrónov touto kyselinou.



Obr. 5: Závislosť teploty chladiva na vstupe/strede/výstupe reaktora na vyhorení

Ďalší výstup zobrazuje tlak v prútku, ktorý môžeme vidieť na obr. 6 vľavo. Pri vyššom výkone sa tlak zvyšuje rýchlejšie ako pri menších. Je to spôsobené uvoľňovaním štiepných plynov z paliva, a tiež geometrickými zmenami palivových peletiek ako napríklad ich napúčanie, tečenie, praskanie a podobné procesy. Napúčanie je takmer lineárne a v našom výpočte dosiahlo približne 8-9 %. Závisí veľmi na obsahu pórov a dutín v palive. Prútk je už mierne natlakovaný pri výrobe héliom na 700 kPa. V priebehu vyhorevania sa toto zloženie samozrejme mení ako aj tlak. Medzera medzi peletkou a pokrytím spolu s priestorom nad palivovým stĺpcom kde je umiestnená pružina, slúži na kompenzovanie týchto zmien tlakov a slúži tiež na hromadenie štiepných plynov. Ich množstvo závisí hlavne na teplote. Táto závislosť sa začína prejavovať pri teplote 600 °C. Približne pri teplote 1 700 °C sa uvoľnia z paliva všetky štiepne plyny, pri teplotách pod 1 700 °C je to približne 50 %. Podiel plynných štiepných produktov je známy, je to na 100 rozštiepených ťažkých jadier pripadá 27 atómov plynu. [3]

Na obr. 6 vpravo je priebeh rastu zoxidovanej vrstvy na povrchu pokrytia palivového prútku. Vo výpočte bola použitá zliatina Zircaloy, ktorá je charakteristická pre západné typy paliva. Program neponúka použiť pokrytie východného typu, kde je pokrytie tvorené zliatinou zirkónia a nióbu, s obsahom nióbu 1 %. Pre obálku palivovej kazety sa používa tá istá zliatina ale s obsahom nióbu 2,5 %. Teplota tavenia pre túto zliatinu je 1860 °C a pre Zircaloy 4 je 1825 °C, ale je rozdielna pre jednotlivé formy Zircaloy. Zoxidovaná vrstvička má tiež vplyv na prestup tepla. Narastajúca vrstvička však chráni samotné pokrytie. Táto analýza by sa dala využiť pri skúmaní nových materiálov pokrytia, ktoré by sa dali pridať do knižnice materiálov pre pokrytie. Ako je vidieť na obrázku na jednotlivých axiálnych segmentoch sa oxidácia zvyšuje smerom k vyšší segmentom veľmi málo.



Obr. 6: Závislosť tlaku v prútku (vpravo) a zoxidovanej vrstvy na pokrytí (vľavo) na vyhorení

5. ZÁVER

Hlavnými cieľmi tejto práce bolo, sa čo najdetailnejšie zoznámiť s výpočtovým programom FEMAXI, konkrétne s verziou FEMAXI-6, a zistiť jeho schopnosti pri budúcich analýzach ATF palív. Program je zameraný prioritne už na vyššie hodnoty vyhorenia paliva, čo je veľká výhoda. Zatiaľ sa program vie vysporiadať s prevádzkovými podmienkami, čo je žiaľ ešte nedostatok v rámci analýzy ATF palív, kde by bolo vhodnejšie aby program vedel vypočítať aj havarijne stavy. Výhodou je už mnoho zadefinovaných nových materiálov a ich vlastností. V práci bol uskutočnený výpočet vo výpočtovom programe FEMAXI-6. Tiež sa uskutočnilo detailné zoznámenie s jeho funkčnosťou, schopnosťami a obmedzeniami. Program vykonáva mechanické a tepelné analýzy daného problému, a tieto analýzy vzájomne prepája.

Bol vytvorený základný vstup pre palivo štvrtého bloku jadrovej elektrárne Dukovany, konkrétne palivo pre reaktory typu VVER 440 s kazetami Gd_2M. Následne boli výstupy v grafickej podobe zhodnotené a okomentované jednotlivé vplyvy, ktoré zasahovali do výsledkov. Konkrétne popisy výsledkov a ich vysvetlenia sa nachádzajú v kapitole 4. Výsledky simulácií.

Pomocou programu FEMAXI-6 by bolo možné počítať nové typy paliva pre rôzne typy reaktorov. Je však nutné veľmi dobre pochopiť prácu programu aj do hĺbky. Výpočty by mohli byť dobrým podkladom pri rozhodovaní, akým smerom by sa mal uberať experiment v danej tematike.

LITERATÚRA

- [1] SUZUKI, Motoe a Hiroaki SAITOU. Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-6: Detailed Structure and User's Manual. Japan Atomic Energy Agency, 2005.
- [2] SUZUKI, Motoe a Hiroaki SAITOU, UDAGAWA Yutaka a NAGASE Fumihisa. Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-7: Model and Structure. Japan Atomic Energy Agency, 2013.
- [3] HEŘMANSKÝ, Bedřich. *TERMO-MECHANIKA JADERNÝCH REAKTORU*. Praha: TISK, knižni výroba, 1986.
- [4] LAHODA, Edward J., Lars HALLSTADIUS, Frank BOYLAN a Sumit RAY. What should be the objective of Accident Tolerant Fuel? *Transactions of the American Nuclear Society*. Nevada: Reno, 2014, (Vol. 110): 733–736.

- [5] BURKET, Daneš. *Palivové vsázky se zdokonaleným palivem na Jaderné elektrárně Dukovany*. Dukovany, 2003. Dizertační práce. ČVUT v Praze. Vedoucí práce Prof. Ing. Karel Matějka, CSc.
- [6] URBAN, Peter. Skúsenosti s novým jadrovým palivom v EMO [online]. In: . Č.Papiernička: SE a.s. - EMO, 2013, 2013-04-18, s. 32 [cit. 2015-12-13]. Dostupné z: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/44/128/44128902.pdf
- [7] MIKOLÁŠ, Pavel a Pavel VESELÝ. VVER-440 Fuel Cycles with Increased Enrichment and Fuel Mass. In: 21st Symposium of AER: Information about AER WG A. Dresden, Germany, 2011, s. 54-72.

Vplyv gama žiarenia na vlastnosti systémov pre separáciu Ln(III)/An(III) využívajúce lipofilné extrakčné činidlo CyMe₄-BTBP

Miriam Mindová, Petr Distler

E-mail: mindomi1@fjfi.cvut.cz

Katedra jaderné chemie, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, ČVUT v Praze, Břehová 7, 115 19 Praha 1

Abstrakt: Pri vývoji procesov pre separáciu trojmocných lantanoidov a aktinoidov pri prepracovaní ožiareného jadrového paliva je potrebné zohľadniť veľa aspektov, medzi ktoré patrí podrobná znalosť rádiolytickej stability použitých chemikálií, pretože rozpúšťadlo bude dlhšiu dobu v kontakte s rádioaktívnymi látkami. Degradácia rozpúšťadla a extrakčných činidiel môže viesť k produkcii nežiadúcich degradačných produktov, zníženiu koncentrácie ligandu a zmenám viskozity rozpúšťadla, ako aj k zmene separačných parametrov. V tejto práci bola skúmaná zmena chovania systému obsahujúceho fluórované rozpúšťadlo BK-1 s extrakčnou molekulou CyMe₄-BTBP v závislosti na absorbovanej dávke γ -žiarenia.

KLúčové slová: extrakčné systémy, aktinoidy, lantanoidy, vplyv ožarovania

1. ÚVOD

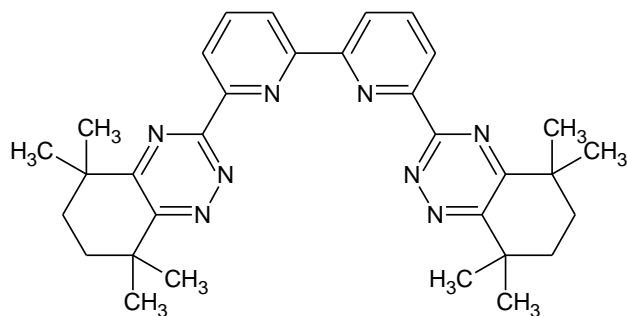
Najúčinnjším zdrojom energie v tejto dobe sú jadrové elektrárne, ktoré zároveň neprodukujú žiadny CO₂. Ich nevýhodou je produkcia rádioaktívneho odpadu, ktorého osud je buď uloženie do hlbinného úložiska alebo prepracovanie. Nakladanie s jadrovým odpadom sa v súčasnosti zakladá na procese PUREX (Plutonium Uranium Redox Extraction), v ktorom sa takmer všetok urán a plutónium oddeľuje od vyčerpaného paliva. Zvyškový vysokoaktívny kvapalný odpad obsahuje zvyšné štiepne produkty a transurány, vrátane minoritných aktinoidov (Np, Am a Cm) [1]. Na separáciu minoritných aktinoidov (proces SANEX - Selective Actinide Extraction) bolo vyvinutých niekoľko metód. V súčasnosti je najpoužívanejšia kvapalinová extrakcia, ktorá používa určité rozpúšťadlo a extrakčnú molekulu (ligand). Tá musí vykazovať dostatočnú selektivitu voči aktinoidom, dobrú rozpustnosť v organickej fáze, musí byť rezistentná voči hydrolýze a rádiolýze a všetky vzniknuté problematické produkty degradácie musia byť v procese eliminované [2].

Stabilita extrakčnej molekuly je jednou z najdôležitejších vlastností, čo je hlavný kameň úrazu. V procese extrakcie, pri ktorom sa využíva vyhorené jadrové palivo, bude organická fáza nevyhnutne vystavená vysokým dávkam rádioaktivity a nastane rádiolytická degradácia. Rádiolýza vedie k rozpadu extrakčnej molekuly a k tvorbe produktov rádiolýzy, ktoré zvyčajne negatívne ovplyvňujú účinnosť rozpúšťadla [3].

2. METODOLÓGIA: POUŽITÉ MOLEKULY A ROZPÚŠŤADLO

2.1. EXTRAKČNÁ MOLEKULA

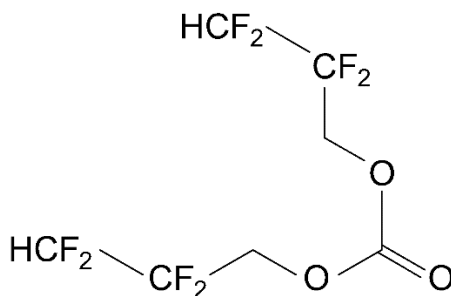
V tejto práci bola použitá extrakčná molekula CyMe₄-BTBP, ktorá je v súčasnosti vybraná ako európska referenčná molekula pre separáciu minoritných aktinoidov [4]. Štruktúra tejto extrakčnej molekuly je zobrazená na obrázku 1.



Obr. 1: Štruktúra extrakčnej molekuly CyMe₄-BTBP

2.2. ROZPÚŠŤADLO

Ako rozpúšťadlo v tejto práci bolo použité polárne fluórované rozpúšťadlo BK-1 [5]. Štruktúra rozpúšťadla je zobrazená na obrázku 2. Výhodou tohto rozpúšťadla je jeho chemická stabilita a vysoká polarita. Polárne rozpúšťadlá zvyšujú nosnosť organickej fázy a znižujú pravdepodobnosť vzniku tretej fázy.



Obr. 2: Štruktúra rozpúšťadla BK-1

3. PRÍPRAVA ROZTOKOV

Cieľom bolo ožarovať jednak samotnú organickú fázu, ale taktiež aj organickú fázu v kontakte s vodnou. Organická fáza pozostávala z fluórovaného rozpúšťadla BK-1, v ktorom bola rozpustená extrakčná molekula CyMe₄-BTBP, pričom koncentrácia roztoku bola 1mM. Organickú fázu reprezentovala 1M kyselina dusičná.

Roztoky boli ožiarené šiestimi rôznymi dávkami, a to 50, 100, 150, 200, 250 a 300 kGy. Ožarovalo sa γ -žiarením pochádzajúcim z kobaltového zdroja (⁶⁰Co), v konzervačnom ožarovacom pracovisku v Roztokoch u Prahy.

4. VÝSLEDKY

Po ožarení bol odobraný z každej vzorky rovnaký objem organickej fázy, ku ktorej bolo pridané rovnaké množstvo čerstvej vodnej fázy (1M kyselina dusičná) s obsahom trojmocných kovov – amerícia (²⁴¹Am), euróпия (¹⁵²Eu) a curia (²⁴⁴Cm). Následne takto zmiešané fázy boli trepané jednu hodinu pri 1800 otáčkach za minútu. Po dotrepaní boli jednotlivé fázy od seba odseparované pre meranie na alfa a gama spektrometri.

Z nameraných četností impulzov jednotlivých nuklidov boli doložené ich distribučné koeficienty (D):

$$D(M) = \frac{c_{M,org}}{c_{M,aq}} \cong \frac{I_{org}}{I_{aq}} \quad (1)$$

kde $c_{M,org}$, resp. $c_{M,aq}$ je koncentrácia nuklidu M v organickej, resp. vo vodnej fáze a I_{org} , resp. I_{aq} je počet nameraných impulzov v organickej, resp. vo vodnej fáze. Separačné faktory (SF) delených kovov boli vypočítané podľa nasledujúceho vzťahu:

$$SF = \frac{D(M_1)}{D(M_2)} \quad (2)$$

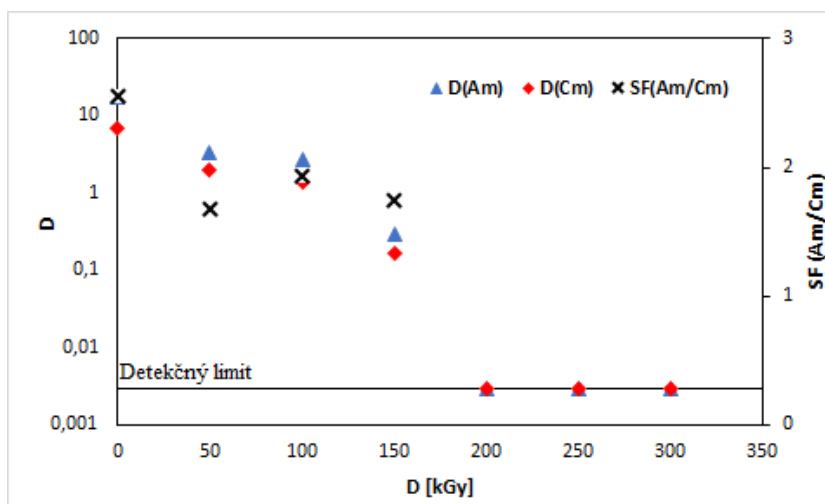
kde $D(M_1)$ a $D(M_2)$ sú distribučné koeficienty dvoch rôznych kovov (nuklidov).

4.1. OŽAROVANÁ ORGANICKÁ FÁZA SPOLU S VODNOU FÁZOU

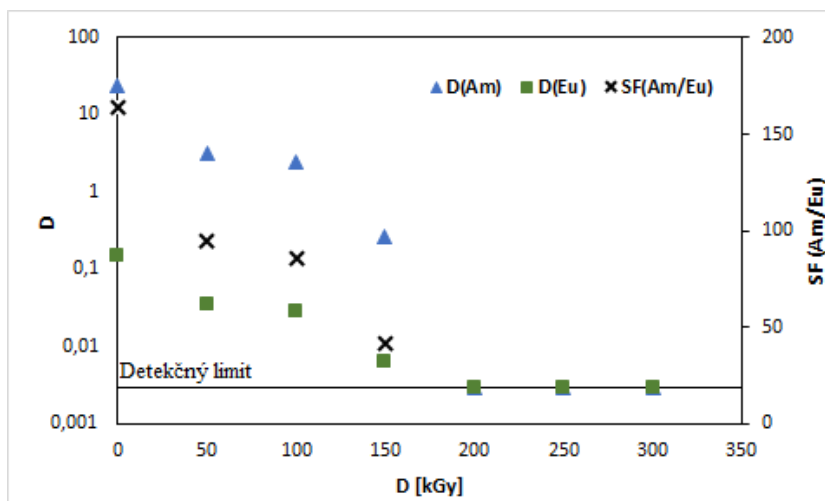
Z vypočítaných hodnôt D a SF boli zostrojené grafy v závislosti na absorbovanej dávke. Výsledky z merania sú zobrazené na obrázku 3 (extrakcia Am(III) a Cm(III)) a na obrázku 4 (extrakcia Am(III) a Eu(III)). Z týchto grafov je vidieť, že CyMe₄-BTBP v BK-1 je schopné extrahovať do absorbovanej dávky 150 kGy. Hodnoty $SF(\text{Am/Cm})$ sa v rozmedzí 0 – 150 kGy pohybovali okolo 2. Distribučný koeficient vykazoval mierne klesajúci charakter, a to pre amerícium od hodnoty 17,36 pri dávke 0 kGy po hodnotu 0,30 pri dávke 150 kGy a pre curium to bolo od hodnoty 6,82 pri dávke 0 kGy po hodnotu 0,17 pri dávke 150 kGy. Pre separáciu amerícia a európie sa hodnoty $SF(\text{Am/Eu})$ pohybovali od hodnoty 164 pre 0 kGy až po hodnotu 41 pri dávke 150 kGy. Distribučné koeficienty sa chovali obdobne ako pri separácii Am/Cm. Dosahovali hodnoty pre amerícium 24 pre 0 kGy až po hodnotu 0,26 pri absorbovanej dávke 150 kGy. Pre európium to boli hodnoty od 0,15 pri dávke 0 kGy po hodnotu 0,006 pri dávke 150 kGy.

Pri dávke 150 kGy distribučné koeficienty skúmaných nuklidov nepresahujú hodnotu 1. Ukazuje sa tu trend, že so zvyšujúcou sa absorbovanou dávkou extrakčná molekula menej extrahuje a to len do určitej dávky, pretože pri dávkach rovných a vyšších ako 200 kGy už neextrahuje nami skúmané trojmocné nuklidy.

Po preskúmaní predchádzajúcich prác možno usúdiť, že rozpúšťadlo BK-1 je menej stabilné voči žiareniu, ako napríklad 1-oktanol, v ktorom je možné ešte pri dávke 300 kGy pomocou CyMe₄-BTBP extrahovať skúmané nuklidy [6]. Výsledky z tejto práce ukazujú, že distribučný koeficient pri dávke 300 kGy dosahoval skoro rovnakú hodnotu ako hodnotu pri neožiarenej vzorke.



Obr. 3: Graf závislosti distribučných koeficientov a separačného faktoru pre amerícium a curium na absorbovanej dávke žiarenia, kde bola ožarovaná organická fáza spolu s vodnou. Zloženie vodnej fázy: 1M HNO₃, zloženie organickej fázy: 1mM CyMe₄-BTBP v BK-1. Hodnoty z alfa merania.



Obr. 4: Graf závislosti distribučních koeficientov a separačního faktoru pre amerícium a európium na absorbovanej dávke žiarenia, kde bola ožarovaná organická fáza spolu s vodnou. Zloženie vodnej fázy: 1M HNO₃, zloženie organickej fázy: 1mM CyMe₄-BTBP v BK-1. Hodnoty z gama merania.

4.2. OŽAROVANÁ SAMOTNÁ ORGANICKÁ FÁZA

Namerané hodnoty na alfa aj gama spektrometri pre jednotlivé nuklidy boli pod detekčnou hranicou ($D_{\min} = 0,003$). Týmto bolo zistené, že keď sa ožaruje samotná organická fáza, tak extrakčná molekula nie je schopná extrahovať už ani pri absorbovanej dávke 50 kGy, pričom, keď je organická fáza v kontakte s vodnou pri ožarovaní, tak vodná fáza „chráni“ organickú pred žiarením. Obdobný výsledok bol pozorovaný pre systém CyMe₄-BTBP v 1-oktanele, extrakcia bola možná do absorbovanej dávky 100 kGy [7]. Z týchto výsledkov vidieť, že rozpúšťadlo BK-1 je menej odolné voči žiareniu ako 1-oktanol, či sa jedná o samotné ožarovanie organickej fázy alebo organickej spolu s vodnou fázou.

5. ZÁVER

Bola skúmaná radiačná stabilita extrakčného systému CyMe₄-BTBP vo fluórovanom rozpúšťadle BK-1 po absorbovaní šiestich rôznych dávok žiarenia. V rozpúšťadle bola rozpustená perspektívna extrakčná molekula CyMe₄-BTBP. Ožarovali sa dve sady vzoriek. Prvá sada bola čistá organická fáza a druhá bola organická fáza v kontakte s vodnou fázou (kyselina dusičná) v pomere 1:1.

Z nameraných četností impulzov vo vzorkách a následne dopočítaných hodnôt distribučních koeficientov a separačních faktorov bolo zistené, že systém, v ktorom sa ožarovala organická fáza s vodnou fázou extrahuje skúmané trojmocné nuklidy do absorbovanej dávky 150 kGy. Pri vyšších dávkach sa už extrakčná molekula rozloží alebo vzniknú adukty a nie je schopná ďalej extrahovať.

V systéme, kde bola ožarovaná samotná organická fáza nebolo nič namerané ani na gama a ani na alfa spektrometri. Z toho vyplýva, že už dávka 50 kGy spôsobila zmeny v štruktúre extrakčného činidla, ktoré tým stratilo schopnosť separovať testované kovy.

POĎAKOVANIE

Tento výskum bol podporený Grantovou agentúrou ČVUT, grant č. SG18/192/OHK4/3T/14 a Grantom Európskej Únie H2020 EURATOM – Program GENIORS, grant č. 730227.

LITERATÚRA

- [1] Nuclear Energy Agency/Organisation For Economic Co-Operation And Development. *Nuclear energy data 2007: Données sur l'énergie nucléaire 2007*. Paris: NEA/Organisation for Economic Co-operation and Development, 2007. ISBN 9789264034532
- [2] Muller, J. M.; Berthon, C.; Couston, L.; Zorz, N.; Simonin, J.-P.; Berthon, L.: Extraction of Lanthanides(III) by a Mixture of a Malonamide and a Dialkyl Phosphoric Acid. *Solvent Extraction and Ion Exchange*. 2016, **34**(2), 141-160
- [3] Magnusson, D.; Christiansen, B.; Malmbeck, R.; Glatz, J. P.: Investigation of the radiolytic stability of a CyMe₄-BTBP based SANEX solvent. *Radiochimica Acta*. 2009, 97(9)
- [4] Bremer, A.; Whittaker, D. M.; Sharrad, C. A.; Geist, A.; Panak, P. J.: Complexation of Cm(iii) and Eu(iii) with CyMe₄-BTPhen and CyMe₄-BTBP studied by time resolved laser fluorescence spectroscopy. *Dalton Trans*. 2014, **43**(6), 2684-2694
- [5] Babain, V. A.; Alyapyshev, M. Y.; Voronaev, I. G.; Logunov, M. V.; Voroshilov, Y. A.; Trefilov, I. G.: *Экстракционная смесь для извлечения актинидов из азотнокислых растворов*. Rusko, Sankt-Peterburg. 2017
- [6] Schmidt, H.; Wilden, A.; Modolo, G.; Švehla, J.; Grüner, B.; Ekberg, Ch.: Gamma radiolytic stability of CyMe₄BTBP and the effect of nitric acid. *Nukleonika*. 2015, **60**(4), 879-884
- [7] Schmidt, H.; Wilden, A.; Modolo, G.: Gamma Radiolysis of the Highly Selective Ligands CyMe₄BTBP and CyMe₄BTPhen: Qualitative and Quantitative Investigation of Radiolysis Products. *Procedia Chemistry*. 2016, **21**, 32-37

Studium vlivu záření na vlastnosti systémů pro separaci Ln(III)/An(III) využívající hydrofilní maskovací činidla při extrakci do TODGA

Jan Šebesta¹, Petr Distler¹, Jan John¹

E-mail: sebesja6@jfifi.cvut.cz

¹Katedra jaderné chemie. Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, České vysoké učení technické v Praze, Břehová 7, Praha, 11519

Abstrakt: Oddělení minoritních aktinoidů od lanthanoidů, spojené s následnou deaktivací jader aktinoidů, je fundamentálním základem Partitioning and Transmutation metody, jejímž cílem je snížení radiotoxicity ozářeného jaderného paliva. Chemická podobnost trojmocných lanthanoidů a aktinoidů separační proces značně komplikuje. Ve svém příspěvku se zaměřuji na separaci minoritních aktinoidů a lanthanoidů metodou kapalinné extrakce s využitím O-donorového extrakčního činidla společně s maskovacím činidlem. V těchto systémech je zkoumán vliv absorbované dávky na separační vlastnosti testovaných systémů.

Klíčová slova: Hydrofilní BTPPhen sloučeniny, kapalinná extrakce, minoritní aktinoidy, lanthanoidy, maskovací činidla, TODGA, i-SANEX

1. ÚVOD

V ozářeném palivu je pestré zastoupení radionuklidů vzniklých nejenom štěpením jader. Většina hmotnostních procent těchto radionuklidů je tvořena uranem, významný hmotnostní podíl přísluší rovněž produktům štěpení, plutoniu a 0,1 hm. % připadá na minoritní aktinoidy. Mezi minoritní aktinoidy, zodpovědné za dlouhodobou aktivitu ozářeného jaderného paliva, se řadí americium, curium a neptunium. [1]

Pokud je ozářené jaderné palivo po vyjmutí z reaktoru skladováno a chlazeno, resp. uloženo do hlubinného uložistiště, jedná se o otevřený palivový cyklus. Opakem je uzavřený palivový cyklus, který je založen na přepracování jaderného paliva a jeho znovupoužití. Porovnáme-li důležité aspekty při výrobě jaderné energie mezi uzavřeným a otevřeným cyklem, za předpokladu, že oba cykly vyrobí stejné množství energie, pak hlavní výhody přepracování ozářeného jaderného paliva jsou: snížení produkce skleníkových plynů, atmosférického znečištění, znečištění vody a toxicity. Dalším významným faktorem je snížení produkce objemu vysoce radioaktivního odpadu, kterého je v otevřených cyklech generováno 3,4× více. Naopak nezanedbatelnou výhodou otevřeného palivového cyklu je jeho ekonomická stránka věci při současných cenách a zásobách uranu. [2], [3]

V tomto příspěvku jsou uvedeny základní poznatky z technologických principů postupů rafinace ozářeného jaderného paliva. V závislosti k i-SANEX (innovative Selective ActiNide EXtraction) procesu jsou dále přiblíženy jednotlivé složky tohoto systému, zaměřeného na separaci minoritních aktinoidů od lanthanoidů. V praktické části je věnován prostor konkrétnímu systému, kde jsou minoritní aktinoidy reprezentovány Am³⁺, a lanthanoidy, reprezentované Eu³⁺, separovány metodou kapalinné extrakce s využitím O-donorového extrakčního činidla TODGA společně s maskovacím činidlem TS-BTPPhen. V těchto systémech je zkoumán vliv absorbované dávky na separaci studovaných kovů.

2. TEORETICKÁ ČÁST

2.1. RADIOTOXICITA OZÁŘENÉHO JADERNÉHO PALIVA

Po vyjmutí z reaktoru jsou za většinu radiotoxicity ozářeného paliva zodpovědné produkty štěpení, nicméně po dostatečně dlouhé době (270 let) je majoritní množství radiotoxicity generováno aktinoidy a jejich dceřinými produkty. S takto ozářeným jaderným palivem je nutné nakládat v závislosti na příslušných legislativních normách. A to až do té doby, dokud celková radioaktivita neklesne pod úroveň, kdy bude v rovnováze s radioaktivitou takového množství uranové rudy, která byla potřebná k vytvoření paliva. [4]

Jelikož doba, za kterou klesne radioaktivita minoritních aktinoidů pod tuto úroveň je velmi dlouhá (řádově 100 000 let), je transmutace minoritních aktinoidů v rámci zpracování ozářeného jaderného paliva jednou z metod, jak tuto dobu významně zkrátit.

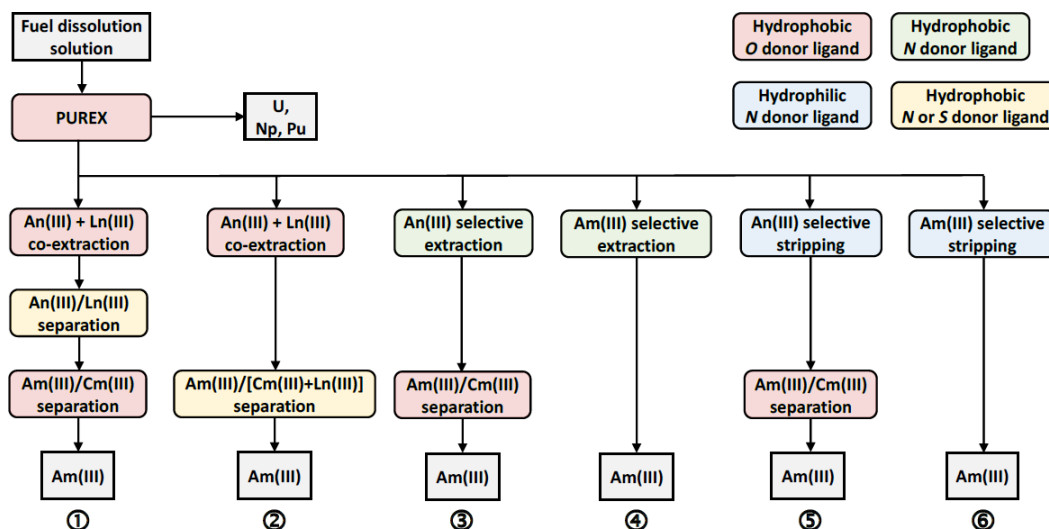
2.2. SANEX A DALŠÍ VÝZNAMNÉ PROCESY PRO RAFINACI OZÁŘENÉHO JADERNÉHO PALIVA

Během rafinace ozářeného jaderného paliva jsou po jednotlivých krocích separovány prvky, či skupiny prvků, které mají podobné chemické vlastnosti.

Vzhledem k faktu, že metoda SANEX je soustředěna na separaci minoritních aktinoidů od lanthanoidů a její výsledky jsou značně závislé na přítomnosti ostatních radionuklidů, bývá tato metoda na konci procesu přepracování ozářeného jaderného paliva. Ten je v několika modifikacích, které navazují na PUREX proces (Plutonium Uranium Redox Extraction) schematicky znázorněn na Obr. 1. [5]

V závislosti na jedné ze šesti metod uvedených na Obr. 1, je SANEX metoda dále rozdělena na i-SANEX, 1c-SANEX (1-cycle) a r-SANEX (regular). Důvodem tohoto rozdělení jsou rozdílné mechanismy extrakcí, způsobené např. výběrem fází, či selektivitou extrakčních činidel. [5]

Vzhledem k tomu, že výsledky v tomto příspěvku jsou věnovány extrakčním vlastnostem i-SANEX, je detailnější popis věnován právě jemu.



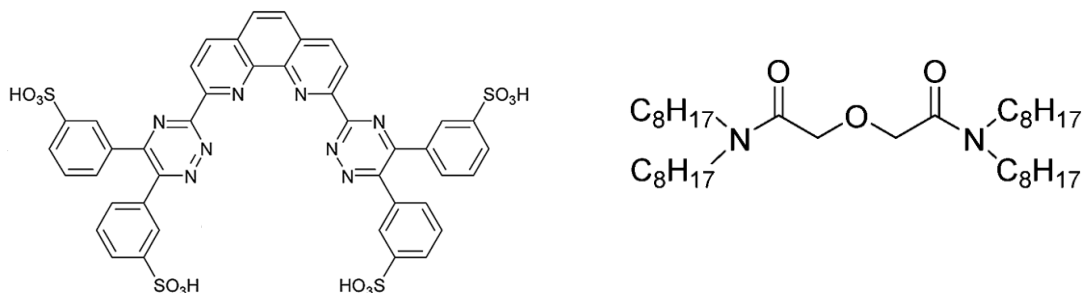
Obr. 1: Schematický přehled rozdílných separačních metod během rafinace ozářeného jaderného paliva. [5]

i-SANEX je na Obr. 1 znázorněn číslem pět. Metoda je založena na použití vhodného inertního rozpouštědla, např. dodekanu nebo kerosenu, společně s 5 v/v% oktan-1-olem, který je přítomný z důvodu prevence tvorby třetí fáze, ve které je rozpuštěn 0,2 M tetraoktyldiglykolamid (TOGDA), vizte Obr. 2. [6] Do tohoto systému jsou extrahovány Am^{3+} a Cm^{3+} společně s lanthanoidy, zatímco štěpné produkty zůstávají v kyselém PUREX rafinátu. Následně je tato organická fáze kontaktována s vodnou fází, okyselenou kyselinou dusičnou, ve které je rozpuštěné hydrofilní maskovací činidlo. Takovýto systém může selektivně extrahovat $\text{Am}^{3+} > 99,8\%$, resp. $\text{Cm}^{3+} > 99,4\%$ s minimální kontaminací štěpných produktů. [7][8][9]

3. PRAKTICKÁ ČÁST

3.1. POSTUP

Byly připraveny vodné vzorky o různých koncentracích HNO_3 (0,25; 0,50; a 0,75 M) obsahující 10 mM maskovacího činidla TS-BTPhen, jehož strukturní vzorec je uveden na Obr. 2. Z takto připravených roztoků bylo odpipetováno 550 μl do skleněných ampulí, které byly určeny k ozařování. Tyto ampule byly zataveny



Obr. 2: Strukturní vzorec TS-BTPhen (vlevo) a TODGA (vpravo)

Pro ozařování ampulí bylo použito gama záření, zdrojem byl ^{60}Co . Cílem bylo udělit vzorkům dávky ve výši 100, 200, 300 kGy a jeden vzorek zůstal neozařen.

Po ozaření byla k 400 μl vodných fází přidána stopová množství Eu^{3+} , Am^{3+} a 400 μl čerstvě připravené organické fáze (0,2 M TODGA v 5% oktan-1-ol v kerosenu). Organická fáze byla připravena rozpuštěním TODGA v kerosenu. Kerosen byl před rozpuštěním TODGY smíchán s oktan-1-olem tak, aby výsledný poměr objemů obou rozpouštědel byl 95:5.

Následně byly tyto extrakční systémy umístěny na třepačku Heidolph, Multi Reax Shaker, kde byly třepány po dobu 60 minut při teplotě 22 ± 1 $^\circ\text{C}$ a frekvenci 1800 min^{-1} .

Po skončení třepání byla plastová ampule každého extrakčního systému umístěna na centrifugu Hettich, EBA 20 po dobu dvou minut při 6000 otáčkách za minutu. Posléze bylo z každé fáze odpipetováno $2 \times 150 \mu\text{l}$ do dvou plastových ampulí. U těchto dvou vzorků byla následně změřena četnost záření gama.

Rozdělovací poměr D_M , byl vypočten:

$$D_M = \frac{c_{M, \text{org}}}{c_{M, \text{aq}}} \approx \frac{I_{M, \text{org}}}{I_{M, \text{aq}}} \quad (1)$$

kde $c_{M, \text{org}}$ a $c_{M, \text{aq}}$ jsou celkové analytické koncentrace rozpuštěného kovu v organické, resp. ve vodné fázi. $I_{M, \text{org}}$, resp. $I_{M, \text{aq}}$ jsou četnosti impulzů daného kovu naměřené v organické, resp. ve vodné fázi. Separační faktor SF_{M_1/M_2} byl vypočten na základě získaných hodnot rozdělovacích poměrů D_M jednotlivých kovů jako:

$$SF_{M_1/M_2} = \frac{D_{M_1}}{D_{M_2}} \quad (2)$$

3.2. VÝSLEDKY

Při dávce 100 kGy byl nejvyšší $SF_{\text{Eu}/\text{Am}} > 66,3$ naměřen pro $c(\text{HNO}_3) = 0,25 \text{ M}$, což je v souladu s neozařenými systémy, kde byl pro tuto koncentraci naměřen $SF_{\text{Eu}/\text{Am}} > 337$. V ostatních ozařených extrakčních systémech byl $SF_{\text{Eu}/\text{Am}}$ vždy menší. Jak je z Obr. 3 patrné, $SF_{\text{Eu}/\text{Am}}$ klesal s udělenou dávkou a platí tedy, že $SF_{\text{Eu}/\text{Am}}$ je nejvyšší v systémech, kterým nebyla udělena dávka. Jednotlivé separační faktory a rozdělovací poměry jsou uvedeny v Tab. 1.

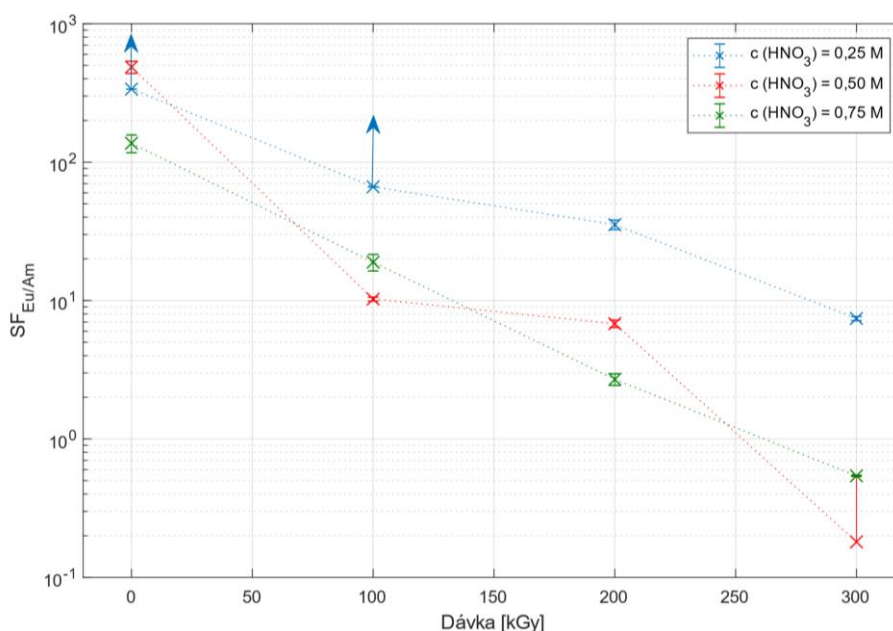
Obecným trendem pro extrakční systémy, kterým byla udělena radiační dávka je nárůst D_{Am} . V ozářených systémech jsou ionty Am^{3+} v menší míře vázány s maskovacím činidlem a dochází k jejich extrakci při kontaktu s organickou fází, výjimku tvoří systém s $c(HNO_3) = 0,75 M$, kde po obdržení dávky 200 kGy vzrostl

$D_{Am} = 4,51 \pm 0,10$, zatímco při dávce 300 kGy je $D_{Am} = 1,39 \pm 0,03$. Při dané dávce byla i vyšší hodnota D_{Eu} , než bylo očekáváno z dostupných trendů.

Tab. 1: Naměřené hodnoty extrakce Am^{3+} a Eu^{3+} z roztoku kyseliny dusičné o různé koncentraci HNO_3 v přítomnosti TS-BTPPhen (0,01 M) organickou fází 0,2 M TODGA/5% oktan-1-ol v kerosenu jako funkce dávky. Doba třepání: 60 min / 1800 RPM, teplota: 22 °C ± 1 °C.

| Dávka [kGy] | D_{Am} | D_{Eu} | $SF_{Eu/Am}$ |
|---------------------|-------------------|-----------------|------------------|
| $c(HNO_3) = 0,25 M$ | | | |
| 0 | < 0,003 | $0,69 \pm 0,02$ | > 337 |
| 100 | < 0,003 | $0,19 \pm 0,01$ | > 66,3 |
| 200 | $0,038 \pm 0,003$ | $1,33 \pm 0,02$ | $35,4 \pm 2,8$ |
| 300 | $1,25 \pm 0,02$ | $9,28 \pm 0,27$ | $7,42 \pm 0,26$ |
| $c(HNO_3) = 0,50 M$ | | | |
| 0 | $0,032 \pm 0,002$ | $15,4 \pm 1,0$ | 486 ± 49 |
| 100 | $0,134 \pm 0,004$ | $1,37 \pm 0,02$ | $10,25 \pm 0,34$ |
| 200 | $0,58 \pm 0,01$ | $7,36 \pm 0,20$ | $6,81 \pm 0,42$ |
| 300 | $6,69 \pm 0,18$ | $37,4 \pm 2,2$ | $5,58 \pm 0,36$ |
| $c(HNO_3) = 0,75 M$ | | | |
| 0 | $0,61 \pm 0,02$ | $83,5 \pm 12,1$ | 137 ± 20 |
| 100 | $1,30 \pm 0,02$ | $24,6 \pm 3,4$ | $19,0 \pm 2,6$ |
| 200 | $4,51 \pm 0,10$ | $24,4 \pm 1,1$ | $2,69 \pm 0,26$ |
| 300 | $1,39 \pm 0,03$ | $2,56 \pm 0,05$ | $1,85 \pm 0,06$ |

Analýzou změn D_{Eu} , bylo zjištěno, že trend je podstatně odlišný, než tomu je u D_{Am} . Jediným systémem, kde lze najít úměru poklesu/růstu D_{Eu} s dávkou je systém, kde $c(HNO_3) = 0,75 M$, avšak i zde je změna hodnoty během dávek 100 a 200 kGy ne zcela jednoznačně interpretovatelná. V tomto systému klesl $D_{Eu} = 83,5 \pm 12,1$ na $D_{Eu} = 2,56 \pm 0,05$. V systémech, kde $c(HNO_3) = 0,25 M$, resp. $c(HNO_3) = 0,50 M$ je spatřen nejprve pokles D_{Eu} po udělení dávky, nicméně tato počáteční hodnota je posléze převýšena při dávkách 200 kGy, resp. 300 kGy, navzdory těmto zvláštnostem je ale spatřován pokles $SF_{Eu/Am}$.



Obr. 3: Závislost extrakce Am^{3+} a Eu^{3+} z roztoku kyseliny dusičné o různé koncentraci (0,25; 0,50 a 0,75 M HNO_3) v přítomnosti TS-BTPhen (0,01 M) organickou fází – 0,2 M TODGA/5% oktan-1-ol v kerosenu jako funkce dávky. Doba třepání: 60 min / 1800 RPM, teplota: $22 \text{ }^\circ\text{C} \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$.

4. ZÁVĚR A DISKUZE

Z dalších výsledků, které navazovali na tento experiment bylo vyvozeno, že trend klesajících separačních faktorů je ve sporu s výsledky v publikaci [8], kde v rozsahu dávek 0 – 174 kGy zůstaly hodnoty D_{Am} , resp. D_{Eu} téměř konstantní. Je však nutné podotknout, že v publikaci [8] byl v organické fázi rozpouštědlem zvolen dodekan namísto kerosenu, koncentrace maskovacího činidla byla 0,018 M namísto 0,01 M a vodná fáze byla tvořena roztokem HNO_3 o koncentraci 0,35 M.

V závislosti k získaným výsledkům jsou již následné experimenty ve fázi přípravy. Další oblastí zkoumání bude kinetika, termodynamika a vliv dávkového příkonu na extrakční vlastnosti. Také budou analyzovány radiací produkty, které vznikají radiolýzou maskovacích činidel, které v těchto systémech vystupují.

PODĚKOVÁNÍ

Tento výzkum byl podpořen Grantovou agenturou ČVUT, grant č. SGS18/192/OHK4/3T/14 a Grantem Evropské Unie H2020 EURATOM – Program GENIORS, grant č. 730227.

LITERATURA

- [1] Fuel Cycle Stewardship in a Nuclear Renaissance, The Royal Society Science Policy Centre Report 10/11, The Royal Society, London, 2011. ISBN: 978-0-85403-891-6
- [2] Poinssot, Christophe & Stéphane, Bourg & Ouvrier, N. & Combernoux, N. & Rostaing, Christine & Vargas, Marcial & Bruno, Jordi. (2014). Assessment of the environmental footprint of nuclear energy systems. Comparison between closed and open fuel cycles. Energy. 69. 10.1016/j.energy.2014.02.069.
- [3] Moniz, Ernest. (2003). The future of nuclear power - An interdisciplinary MIT study (INIS-XA--653). International Atomic Energy Agency (IAEA)

- [4] International Atomic Energy Agency, Division of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology, Vienna (Austria) (2009). Status of Minor Actinide Fuel Development. International Atomic Energy Agency (IAEA): IAEA.
- [5] Joly, Pierre & Boo, Eva. ROADMAP: Actinide separation processes 2015; SACSESS: 2016. 77.
- [6] Geist, Andreas & Modolo, Giuseppe. (2009). TODGA process development: An improved solvent formulation. Proceedings of International Conference GLOBAL 2009. 1022-1026.
- [7] McLachlan, Fiona & Taylor, Robin & Whittaker et al. (2016). Modelling of Innovative SANEX Process Maloperations. Procedia Chemistry. 21. 109-116. 10.1016/j.proche.2016.10.016.
- [8] Peterman, Dean & Geist, et al. (2016). Performance of an i-SANEX System Based on a Water-Soluble BTP under Continuous Irradiation in a γ -Radiolysis Test Loop. Industrial & Engineering Chemistry Research. 55. 10.1021/acs.iecr.6b02862.
- [9] Modolo, Giuseppe & Wilden, Andreas et al. (2014). Development and demonstration of innovative partitioning processes (i-SANEX and 1-cycle SANEX) for actinide partitioning. Progress in Nuclear Energy. 72. 107-114. 10.1016/j.pnucene.2013.07.021.

Validácia Monte Carlo výpočtu aktivácie betónovej šachty reaktora JE V-1

Michal Šnirer, Kristína Krištofová, Gabriel Farkas, Peter Hausner, Vladimír Slugeň

michal.snirer@stuba.sk

*Slovenská technická univerzita v Bratislave, Fakulta elektrotechniky a informatiky,
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva, Ilkovičova 3, 812 19 Bratislava, Slovenská republika*

Abstrakt: Cieľom tejto práce bolo vytvoriť model reaktora VVER-440/V-230 a jeho blízkeho okolia pomocou kódu MCNP, vykonať výpočet indukovanej aktivity a validovať získané výsledky. Z prieskumu prevádzkovej histórie JE V1 vyplynulo, že po 12 kampaniach boli do aktívnej zóny zavedené tieniace kazety čím sa znížila hustota toku neutrónov v oblasti vonkajšieho tienenia reaktora. Na základe toho boli pre dané obdobia stanovené reprezentatívne kampane. Bol vytvorený model reaktora V1 na úrovni aktívnej zóny. Výpočet indukovanej aktivity betónovej šachty reaktora sa následne uskutočnil pomocou kódu MCNP5 s účinnoprierezovou knižnicou ENDF/B-VII.1. Boli stanovené aktivity vybraných rádionuklidov, na základe ktorých bolo možné overiť správnosť výsledkov vzhľadom na merania vzoriek vykonané spoločnosťou Wood Nuclear Slovakia s.r.o. a ÚJFI FEI STU. Zhoda vypočítaných hodnôt s nameranými hodnotami potvrdila správnosť výpočtového modelu a zároveň jeho validáciu pre výpočet indukovanej aktivity komponentov reaktora JE V1.

Kľúčové slová: Indukovaná aktivita, Monte Carlo, MCNP, VVER-440/V-230

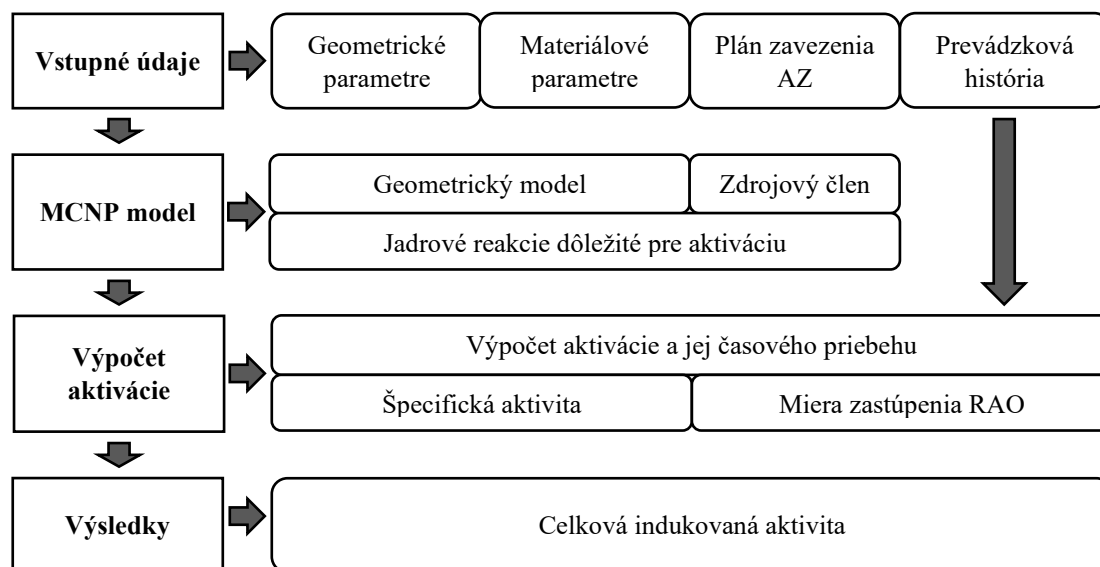
1. ÚVOD

V súčasnosti sa vo svete nachádza, podľa štatistík [5] 449 prevádzkovaných jadrových reaktorov pričom 305 z nich, približne 68 %, už dosiahlo dobu prevádzky väčšiu ako 30 rokov. Je možné konštatovať, že pri značnej časti svetových reaktorov už došlo k predĺženiu plánovanej životnosti. Napriek tomu je vyradovanie reaktorov a jeho plánovanie aktuálnou témou jadrovej energetiky

Pre plánovanie bezpečného vyradovania jadrovej elektrárne z prevádzky je dôležité poznať mieru indukovanej aktivity v rôznych konštrukčných materiáloch reaktora, aby bolo možné správne implementovať stratégie vyradovania a naplánovať nakladanie s týmito materiálmi. Na stanovenie úrovne indukovanej aktivity je najčastejšie využívaný Monte Carlo N-Particle transportný kód. Proces výpočtu si vyžaduje poznať materiálové zloženie, geometrické parametre a prevádzkovú históriu. Pre overenie výpočtového modelu a získaných výsledkov je potrebné porovnať výsledky výpočtu s experimentálnymi údajmi a výpočtový kód validovať.

2. METODOLÓGIA

Vzhľadom na komplikovanú geometriu reaktora VVER-440 je možné spoľahlivý výpočet transportu neutrónov realizovať iba pomocou techniky, ktorá umožňuje spracovanie komplexnej trojrozmernej geometrie. Z toho dôvodu bol pre realizáciu výpočtu zvolený výpočtový kód MCNP5, verzia 1.60 s použitím knižnice účinných prierezov pre spojité energetické spektrum neutrónov ENDF/B-VII.1. Všeobecný postup výpočtu aktivácie je zobrazený na Obr.1.



Obr. 1 Metodika výpočtu aktivácie JE V1

Pre správne ohodnotenie vplyvu rôznych charakteristík aktívnej zóny na priestorovú a energetickú distribúciu hustoty toku neutrónov na hraniciach záujmových oblastí bolo potrebné na základe práce [1] zvoliť, vzhľadom na prevádzkovú históriu elektrárne, dve rôzne usporiadania aktívnej zóny (AZ). AZ bez tieniacich kaziet a redukovaná AZ s tieniacimi kazetami. Na základe prevádzkovej histórie prvého bloku JE V1 boli z celkového počtu kampaní t.j. 27 vybrané dve, Tab. 1.

Tab. 1 Zvolené reprezentatívne kampane.

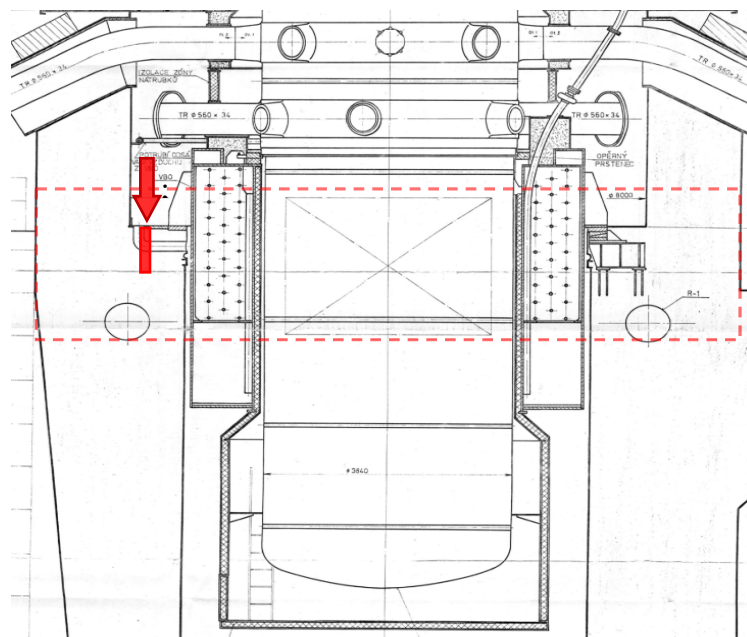
| Označenie kampane | Typ palivovej kazety | Použitie tieniacich kaziet | Obohatenie | Hrúbka povlaku PK | Materiál rozpernej mreže |
|-------------------|----------------------|----------------------------|------------------|-------------------|--------------------------|
| U1C12 | Neprofilovaná | Nie | 1.6%, 2.4%, 3.6% | 2.1 mm | Fe |
| U1C21 | Neprofilovaná | Áno | 2.4%, 3.6% | 1.5 mm | Zr |

3. GEOMETRICKÝ A MATERIÁLOVÝ MODEL

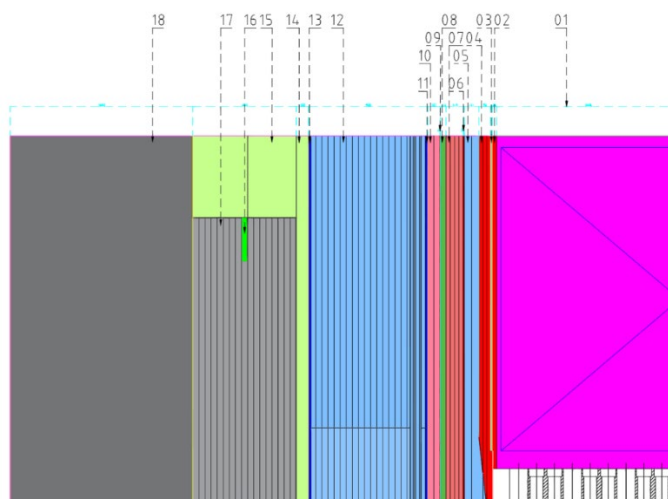
Pre potreby výpočtu indukovanej aktivity v objeme záujmovej oblasti, v betónovej šachte reaktora v oblasti AZ bolo potrebné vytvoriť model reaktora jadrovej elektrárne (JE) V1, VVER -440/V-230, v ktorom sú zahrnuté vnútro-reaktorové komponenty, tlaková nádoba reaktora (TNR) a aj časti vonkajších tienení reaktora. Na základe komplikovanosti geometrických štruktúr reaktora bolo použité zjednodušenie, ktoré pozostáva z tvorby výpočtového modelu iba na výškovej úrovni aktívnej zóny. Výber modelovanej oblasti a umiestnenie vzorkovacieho objemu betónovej šachty reaktora je zobrazené na Obr. 2.

Modelované časti reaktora mimo samotnej AZ zobrazené na Obr. 2 predstavujú: šachtu reaktora, zostupný prstenec H₂O, TNR, vzduchové medzery, tepelnú izoláciu, vodnú biologickú ochranu a betónovú šachtu reaktora.

Podrobný popis jednotlivých častí geometrie zobrazených na Obr. 3: 01 – AZ, 02 – Kôš AZ, 03 – Medzipriestor 02-04, 04 – Šachta reaktora, 05 – Zostupný prstenec H₂O, 06 – Návar TNR, 07 – TNR, 08 – Vzduchová medzera, 09 – Plášť Tepelnej izolácie, 10 – Tepelná izolácia, 11 – VBO prepážka, 12 – VBO, 13 – VBO prepážka, 14 - Vzduchová medzera, 15 - Vzduchová medzera nad BŠR, **16 – Vzorkovací objem BŠR 1**, 17 – BŠR 1, 18 - BŠR 2.



Obr. 2 Prierez reaktora VVER 440/V-230 so zaznačením modelovanej oblasti a vzorkovacieho objemu.



Obr. 3 Bočný prierez výpočtového modelu MCNP reaktora V1 – AZ spolu s mimo reaktorovými časťami a vonkajším tienením.

4. VÝPOČET INDUKOVANEJ AKTIVITY

Po dokončení transportných výpočtov bolo možné vypočítať indukovanú aktivitu vo vzorkovanom objeme betónovej šachty na základe získaných reakčných rýchlostí a známej prevádzkovej histórie. Samotný výpočet indukovanej aktivity sa uskutočnil použitím rovnice (1) pre výpočet aktivity, pričom boli zohľadnené všetky okrajové podmienky JE V1.

V ktorom: V – vzorkovaný objem, λ – konštanta premeny, s – počet štípení prebehnutých na dodanie energie rovnaj 1 W za 1 sekundu, r – relatívna hodnota reakčnej rýchlosti získaná MCNP výpočtom, $\bar{\nu}_f$ – priemerný počet neutrónov vzniknutý na jeden akt štípenia, P – stredná hodnota výkonu kampane, t_{prev} – doba prevádzky kampane, t_{odst} – doba odstávky kampane.

$$A_k[Bq] = V\lambda_k S \left\{ \begin{array}{l} r_{k,U1C12}\bar{v}_{f,U1C12} \left[\sum_{i=1}^{m=12} P_i t_{i,prev} (1 - e^{-\lambda_k t_{i,prev}}) \right] e^{-\lambda_k \sum_{i=1}^{n=27} t_{i,odst}} \\ + \\ r_{k,U1C21}\bar{v}_{f,U1C21} \left[\sum_{j=m+1}^{n=27} P_j t_{j,prev} (1 - e^{-\lambda_k t_{j,prev}}) \right] e^{-\lambda_k \sum_{j=m+1}^{n=27} t_{j,odst}} \end{array} \right\} \quad (1)$$

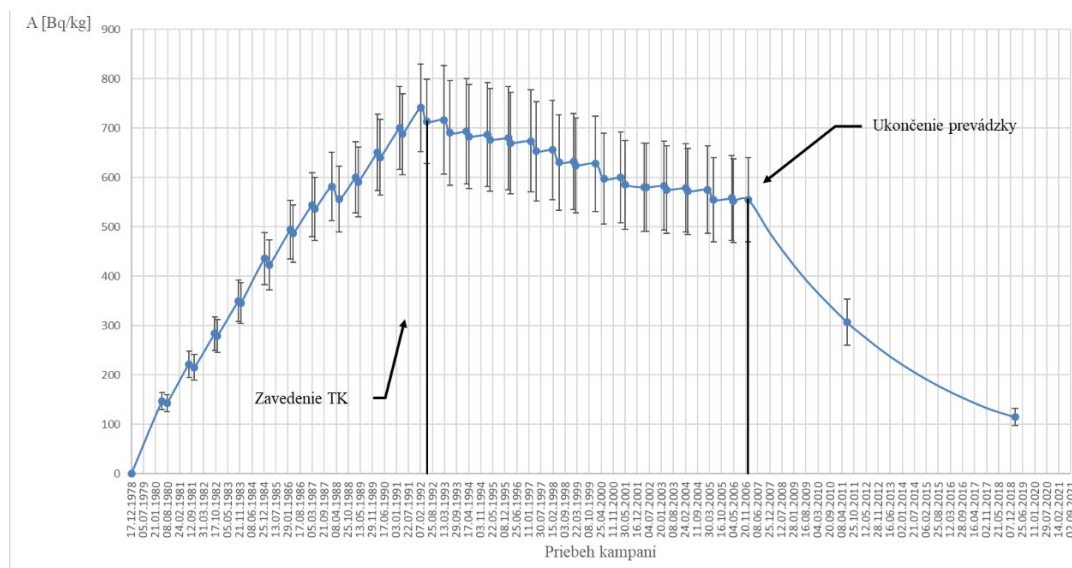
Výpočet bol realizovaný v programe Microsoft Excel 2016 na základe rovnice (1). a všetkých údajov potrebných k výpočtu indukovanej aktivity vo zvolenom čase od ukončenia prevádzky JE V1. Tabuľka 2 zobrazuje najdôležitejšie aktivačné reakcie stanovené na základe dokumentu MAAE [2], pričom zvýraznené nuklidy sú významné z hľadiska validácie výsledkov.

Tab. 2 Najdôležitejšie aktivačné reakcie uvažované v betónových konštrukciách

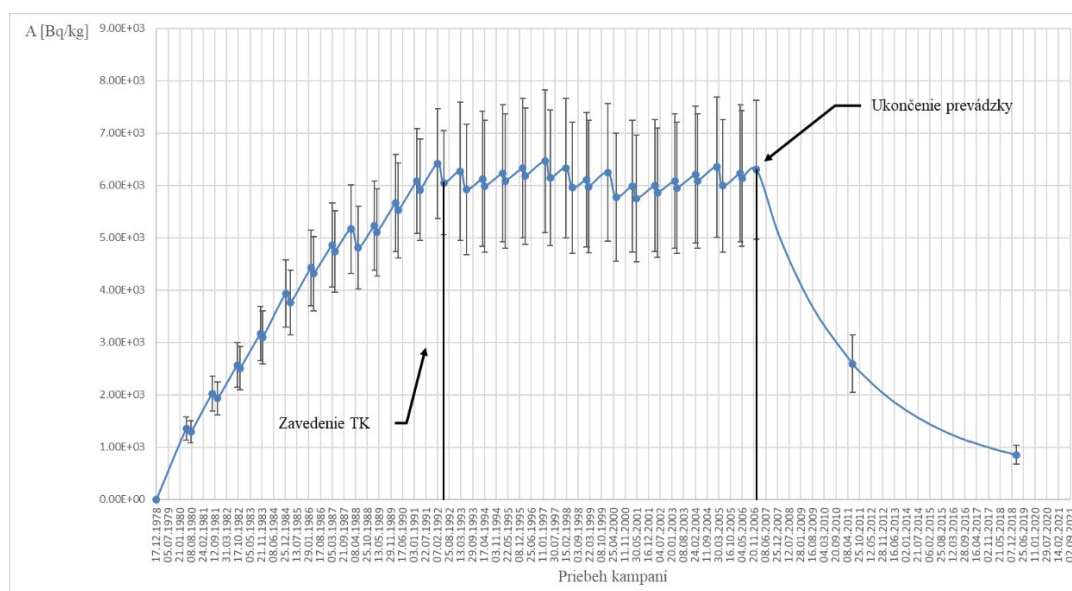
| Rodičovský nuklid | Jadrová reakcia | Aktivačný produkt | Doba pol-premeny [rok] | Prírodné zastúpenie rodičovského nuklidu [%] |
|-------------------|--------------------------|-------------------|------------------------|----------------------------------------------|
| 1-H-2 | (n, γ) | 1-H-3 | 1,232E+01 | 0,0115 |
| 7-N-14 | (n,p) | 6-C-14 | 5,715E+03 | 99,632 |
| 11-Na-23 | (γ ,n) (n,2n) | 11-Na-22 | 2,602E+00 | 100 |
| 19-K-39 | (n, α) | 17-Cl-36 | 3,010E+05 | 93,2581 |
| 19-K-39 | (n,p) | 18-Ar-39 | 2,690E+02 | 93,2581 |
| 20-Ca-44 | (n, γ) | 20-Ca-45 | 4,452E-01 | 2,086 |
| 24-Cr-50 | (n, γ) | 24-Cr-51 | 7,585E-02 | 4,345 |
| 26-Fe-54 | (n,p) | 25-Mn-54 | 8,548E-01 | 5,845 |
| 26-Fe-54 | (n, γ) | 26-Fe-55 | 2,744E+00 | 5,845 |
| 26-Fe-58 | (n, γ) | 26-Fe-59 | 1,218E-01 | 0,282 |
| 27-Co-59 | (n, γ) | 27-Co-60 | 5,271E+00 | 100 |
| 37-Rb-85 | (n, γ) | 37-Rb-86 | 5,104E-02 | 72,17 |
| 51-Sb-123 | (n, γ) | 51-Sb-124 | 1,648E-01 | 42,79 |
| 55-Cs-133 | (n, γ) | 55-Cs-134 | 2,065E+00 | 100 |
| 63-Eu-151 | (n, γ) | 63-Eu-152 | 1,352E+01 | 47,81 |
| 63-Eu-153 | (n, γ) | 63-Eu-154 | 8,601E+00 | 52,19 |

5. VÝSLEDKY A VALIDÁCIA

Obr. 4 zobrazuje vypočítaný časový vývoj indukovanej aktivity vybraného gama nuklidu dôležitého pre validáciu výsledkov. Obr. 5 zobrazuje celkový časový vývoj indukovanej aktivity počas prevádzky a po konečnom odstavení vzhľadom na rádionuklidy monitorované vo vzorkách betónovej šachty reaktora. V grafe pre rádionuklid Co-60 je možné pozorovať významnú zmenu v časovom vývoji indukovanej aktivity po zavedení tieniacich kaziet do AZ. Pokles aktivity je spôsobený výrazným znížením hustoty toku neutrónov v oblasti betónovej šachty. Za týchto zmenených podmienok má indukovaná aktivita tendenciu dosiahnuť novú saturovanú hladinu zodpovedajúcu danej hustote toku neutrónov. Časový vývoj Cs-134 a Eu-152 mal podobné trendy, ako je znázornené na Obr. 4. Neistota výpočtu uvedená vo výstupnom súbore MCNP pre reprezentatívnu kampaň bez tieniacich zostáv, t.j. U1C12, sa stabilizovala na 14%. Pri reprezentatívnej kampani U1C21 s tienými kazetami sa dosiahlo 18%.



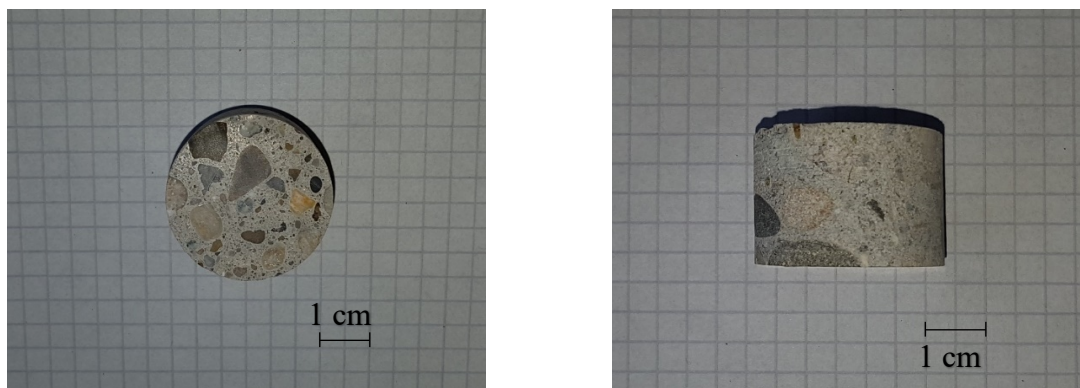
Obr. 4 Priebiech aktivity Co-60 vo vzorkovacom objeme BŠR.



Obr. 51 Celkový priebeh aktivity rádionuklidov, uvedených v Tab. 2, vo vzorkovacom objeme.

Za účelom stanovenia presnosti výpočtu aktivácie vzorkovaného objemu betónu šachty reaktora a celkovej presnosti geometrického modelu bolo potrebné vykonať overenie stanovených hodnôt indukovanej aktivity referenčných rádionuklidov. Overenie bolo urobené pomocou dvoch nezávislých meraní betónových vzoriek. Na základe správy z odberu vzoriek aktivovaných stavebných častí šachty reaktora 1. a 2. bloku JE V-1, dokument [3], ktorý bol realizovaný v období od 23.05.2011 do 08.06.2011, boli vzorky odobraté pomocou konvenčných vrtných zariadení. Priemer odobratých vzoriek bol približne 35 mm a hĺbka odberu vzoriek bola 20 až 40 cm. Valcová vzorka sa potom rozdelila na disky s hrúbkou približne 20 mm v období 26.05.-08.07.2011 a podrobila sa gama spektroskopickému analýze vo Wood Nuclear Slovakia s.r.o. (WNS). Vzorky sú zobrazené na Obr.6.

Porovnanie nameraných a vypočítaných hodnôt prepočítané vzhľadom na podiel meraných vzoriek z celkového množstva vzoriek ku dňu 22.02.2019 je zobrazené v Tab. 3. Dosažitá presnosť stanovených hodnôt zodpovedá náročnosti a komplexnosti výpočtu. Keďže neboli v rámci počiatočných podmienok známe presné materiálové zloženia bolo potrebné ísť cestou kvalifikovaného odhadu. Vzhľadom na vysokú citlivosť výpočtu na počiatočné zastúpenie jednotlivých nuklidov ako v sledovanom materiáli tak aj celkovo v celom geometrickom a materiálovom modeli nebolo možné použitými metódami dosiahnuť presnejšie výsledky.



Obr. 6 Horný a bočný pohľad segmentu vzorky betónu šachty reaktora

Tab. 3 Porovnanie nameraných a vypočítaných hodnôt k 22.02.2019.

| Nuklid | Aktivita [Bq/kg] | | |
|--------|-------------------------|-------------|---------------|
| | Merania na ÚJFI FEI STU | Merania WNS | Výpočet MCNP5 |
| Co-60 | 28,72 | 30,27 | 50,90 |
| Cs-134 | 1,64 | 0,91 | 0,66 |
| Eu-152 | 364,75 | 377,80 | 278,16 |

6. ZÁVER

Na základe navrhutej metodiky bol vykonaný výpočet aktivácie betónovej šachty reaktora JE V1 v mieste vzorkovaného objemu pomocou stochastického výpočtového kódu MCNP5 verzie 1.6. Aktivity vybraných rádionuklidov boli stanovené a porovnané s experimentálnymi údajmi z meraní vzoriek vykonaných spoločnosťou Wood Nuclear Slovakia a overené meraniami vykonanými na ÚJFI FEI STU. Vypočítané hodnoty indukovanej aktivity ukazujú relatívne presnú zhodu s nameranými hodnotami, napriek nepresnostiam v chemickom zložení betónu na úrovni stopových prvkov, ako sú napríklad: nuklidy Co-59, Cs-133 a Eu-151. Zhoda vypočítaných hodnôt s meraniami preukazuje správnosť navrhovanej metodológie a vytvoreného výpočtového modelu. Týmto spôsobom sa dosiahla validácia modelu MCNP na výpočet indukovanej aktivity komponentov reaktora JE V1.

POĎAKOVANIE

Táto práca vznikla za podpory VEGA 1/0104/17.

LITERATÚRA

- [1] Krištofova, K., at al., Comparison of determined MCNP neutron source terms for VVER-440/V230 decommissioning, Slovak University of Technology, 26th Symposium of AER on VVER Reactor Physics and Reactor Safety, October 2016, Finland.
- [2] International Atomic Energy Agency, Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes, IAEA TRS No. 389, Vienna, October 1998.
- [3] Rapant. T., at all, Report on categorization of activated components, BIDSF B6.4 Decommissioning database, B6.4-Del12.1, Jaslovske Bohunice 2011.
- [4] Šnírer, M., Diploma thesis on Validation of Monte Carlo Activation Calculation for V1 NPP Reactor Concrete Shaft (in Slovak), INPE FEI SUT, Bratislava 2019.
- [5] The Power Reactor Information System, Dostupné na: <https://pris.iaea.org/pris/>

Chování palivového pokrytí při vysokoteplotní oxidaci v prostředí obsahující vzduch

Pavel Vrbka¹, Jakub Krejčí², Jitka Kabátová², František Manoch², Jan Kočí², Věra Vrtílková²

E-mail: pavel.vr@seznam.cz

¹Katedra jaderných reaktorů, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, ČVUT v Praze, V Holešovičkách 2, Praha 8, 180 00, Česká republika

²UJP PRAHA a.s., Nad Kamínkou 1345, Praha – Zbraslav, 156 10, Česká republika

Abstrakt: Práce se zabývá chováním palivového pokrytí ze ZrNb slitiny E110 při vysokoteplotní oxidaci na vzduchu a v jeho směsích s párou. Je zkoumán vliv okrajových podmínek na oxidaci, jako je teplota, složení oxidační atmosféry, vliv průtoku a výchozího stavu vzorků. Byl sledován hmotnostní přírůstek, mikrostruktura a mechanické vlastnosti zoxidovaných vzorků. Výsledkem práce je zejména prediktivní vztah zahrnující zkoumané vlivy v teplotním intervalu 800–1200 °C.

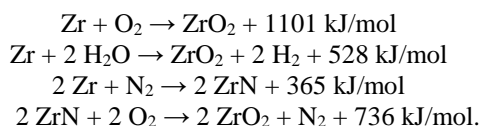
Klíčová slova: zirkoniové pokrytí, oxidace, směs vzduchu a páry, těžká havárie, korelace

1. ÚVOD

Palivové pokrytí je jedna z fyzických bariér bránící úniku radioaktivních látek do životního prostředí. V tlakovodních reaktorech se vyrábí ze zirkoniové slitiny, protože zirkonium má vhodné vlastnosti uspokojivě splňující požadavky vyplývající z podmínek, ve kterých se pokrytí za provozu vyskytuje. Zejména, aby bylo pokrytí neutronicky průhledné, neaktivovalo se, dostatečně korozivzdorné, mechanicky pevné a dostatečně těžké. Především chemická odolnost ve vodném prostředí primárního okruhu má zásadní vliv na těsnost palivových proutků, neboť zeslabuje stěnu pokrytí a zhoršuje mechanické vlastnosti. Koroze je velmi závislá na teplotě. Za provozu je teplota na vnějším povrchu pokrytí 300–330 °C. Riziko vysokoteplotní oxidace palivového pokrytí hrozí při těžkých haváriích na jaderných elektrárnách v důsledku ztráty dostatečného odvodu tepla, kdy teplota na povrchu pokrytí může vzrůst až vysoce nad 1000 °C. Při některých z nich může dokonce dojít k vysušení palivového článku a k průniku vzduchu k palivovému pokrytí. Za takto vysokých teplot je oxidace pokrytí párou a vzduchem výrazná a degradace materiálu velmi rychlá. Uvažují se zejména tři havarijní scénáře, kdy může k tomuto fenoménu dojít:

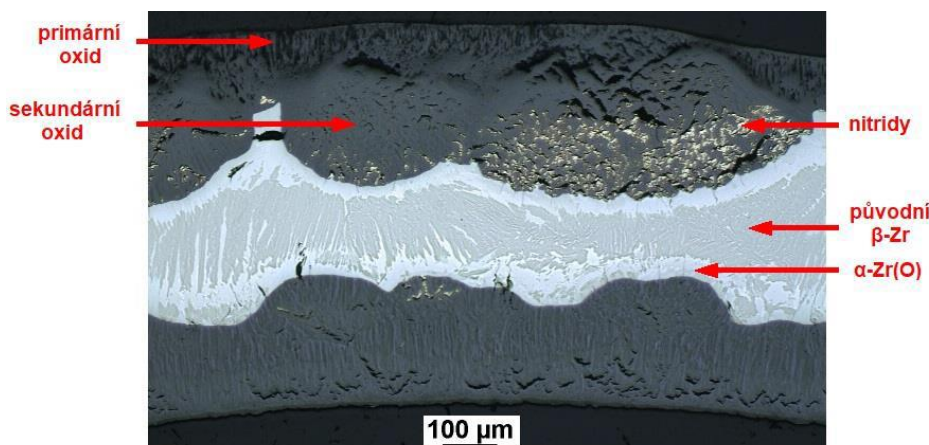
- nezvládnutá havárie typu LOCA s následným protavením AZ reaktorovou nádobou a průnik vzduchu ke zbylým částem AZ
- ztráta nuceného odvodu tepla z BSVP s následným snižováním hladiny a odhalení skladovaných PS
- narušení integrity transportního nebo skladovacího kontejneru s VJP

Chemické interakce pokrytí s vodou, resp. vzduchem, lze popsat následujícími chemickými rovnicemi:



Ve všech případech se jedná o exotermické reakce. Uvolňované teplo podporuje další růst teploty povrchu pokrytí, a negativně tak ovlivňuje průběh případné havárie. Afinita kyslíku k zirkoniu je výrazně vyšší než afinita dusíku, tudíž z nitrinací a formaci nitridů dochází výrazně méně. Přesto je role dusíku velmi stěžejní. Drobná zrna nitridů mají jinou krystalickou strukturu, jiný molární objem a způsobují lokálně ve vrstvě vznikajícího

oxidu nerovnoměrné pnutí. Toto pnutí se po překonání meze pevnosti vrstvy v daném místě uvolňuje jejím praskáním. Vzniklé trhliny usnadňují přístup molekul oxidujícího plynu na rozhraní oxid-kov, kde se chemická reakce odehrává. Při větší koncentraci těchto trhlín se oxidace zrychluje, na rozdíl od čistě parní atmosféry, kde k uvedenému zrychlení nemusí vůbec dojít. Nitridy vznikají výrazně při nedostatku kyslíku. Nový přísun kyslíku, který difunduje skrz stěnu oxidu způsobuje reoxidaci těchto nitridů. Uvolněný dusík pak může vést k další nitridaci. Takto sekundárně vzniklý oxid má odlišnou – porézní – strukturu oproti oxidu vzniklého přímou oxidací. Jev lokální nitridace spojený se vznikem trhlín se označuje jako lokální napadení dusíkem. Kyslík se zirkoniem netvoří pouze oxidy, ale také se rozpouští v intersticiálních polohách v krystalické mřížce kovu a stabilizuje α fázi zirkonia. Tato kyslíkem stabilizovaná fáze je na metalografických výbrusech dobře patrná. Kromě uvedených rovnic dochází ještě k difuzi vznikajícího vodíku do stěny pokrytí. Při jeho vyšších koncentracích může docházet k precipitaci zrn hydridů zpravidla protáhlých a souhlasně orientovaných v závislosti na mechanickém namáhání proutku. Produkty chemické interakce pokrytí se vzduchem jsou na následujícím obrázku Obr. 1.



Obr. 1: Metalografický výbrus vzorku palivového pokrytí ze slitiny E110 po oxidaci na vzduchu

Chování pokrytí za vysokých teplot se zkoumá experimentálně. Provádí se dva typy experimentů. Za prvé tzv. „separate effect“ experimenty, které zkoumají samostatné jevy. Jde zpravidla o izotermickou oxidaci krátkých vzorků pokrytí v dané atmosféře, při kterých se zkoumá jeho hmotnostní přírůstek v čase, mikrostruktura a mechanické vlastnosti. Naměřená data hmotnostního přírůstku, resp. tloušťky, slouží pro vytvoření korelace, kterými lze predikovat na zkoumaném intervalu teplot degradaci pokrytí. V minulosti již byla provedena celá řada takovýchto experimentů oxidace na vzduchu a v jeho směsích s párou se slitinami Zircaloy-4, ZIRLO, M5 a E110, například KIT [7], ANL [3], IRSN [1], AEKI [5],[6], JAEA [4]. Korelace jsou pak implementovány do výpočetních kódů. Za druhé integrální experimenty prováděné na velkých standech. Na svazku palivových tyčí se simuluje průběh reálné havárie. Tyto experimenty slouží pro validaci výpočetních kódů, tedy ověřují aplikovatelnost korelací v nich implementovaných. Integrální experimenty zaměřené na vysokoteplotní oxidaci na vzduchu byly provedeny například v německém KIT – QUENCH-10, QUENCH 16, maďarském AEKI – CODEX AIT-1, CODEX AIT-2, ruském FSUE SRI SIA – PARAMETER SF-4, přehledově viz [8].

Rychlost oxidace, tj. reakční rychlost k , lze matematicky popsat pomocí Arrheniovy rovnice:

$$dWG^m/dt = k = A.exp(-B/T) \quad (1)$$

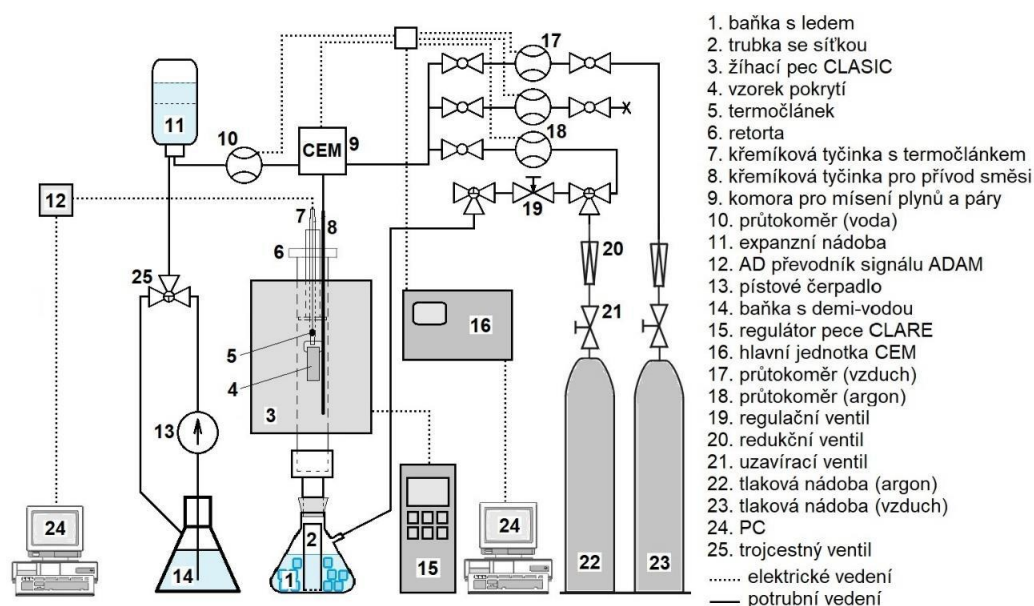
kde A , B , m jsou konstanty a WG označuje hmotnostní přírůstek v jednotce g/m^2 . Protože se na povrchu formuje vrstva oxidu, která brání difuzi molekul oxidující atmosféry, rychlost oxidace se v čase zpomaluje. Z teorie oxidace kovů plyne, že tato oxidace se chová podle Wagnerova parabolického zákona ($m = 2$). Předpokladem tohoto zákona je rovnoměrná a souvislá vrstva, což není v praxi v důsledku zmíněného vzniku trhlín splněno, a tak se oxidace pokrytí od tohoto zákona méně či více odchyluje a oxidace probíhá s obecným exponentem m . Autoři se obecně shodují, že oxidace na vzduchu má dvě odlišné oblasti s rozdílnou kinetikou oxidace – oblast před a oblast za přechodem. Při přechodu přitom dochází k popraskání vrstvy oxidu v důsledku lokálního napadení dusíkem a urychlení kinetiky. Autoři se dále shodují, že v oblasti před přechodem je kinetika parabolická.

V oblasti za přechodem se přístupy liší. Zpravidla bývá brána jako lineární ($m = 1$), například při experimentech v KIT [7]. Mezi teplotami 1000–1100 °C se přechod vytrácí a oxidace má charakter podobný parabolickému.

2. METODIKA PROVEDENÍ EXPERIMENTU

Pro experimenty byly připraveny vzorky pokrytí 9,1 x 7,93 x 30 mm (vnější průměr x vnitřní průměr x délka) ze slitiny E110 vyrobené z houbového zirkonia. Zkoumány byly i jiné varianty slitiny E110 odlišné způsobem výroby zirkonia a množstvím příměsí. Vzorky byly nařezány z dlouhého kusu pokrytí, hrany obroušeny a očištěny v lihu, acetonu a destilované vodě. Pro zkoumání vlivu před-oxidace byly některé sady vzorků před-oxidovány v různém prostředí (autokláv – pára 425 °C/10,7 MPa/5 a 9,2 μm; VT pec – 800–1200 °C/0,1 MPa/10–130 μm).

Pro vysokoteplotní oxidaci ve směsi vzduchu a páry byla sestavena experimentální aparatura dle následujícího schématu Obr. 2.



Obr. 2: Experimentální aparatura pro vysokoteplotní oxidaci palivového pokrytí ve směsi vzduchu a páry

Oxidace vzorku probíhala ve VT peci (3). Oxidující směs je připravována ve směšovací jednotce CEM firmy Bronkhorst (9), kde se mísí ohříváná demineralizovaná voda se směsí argonu a technického vzduchu. Průtoky dílčích složek jsou řízeny průtokoměry (10,17,18) pro docílení požadovaného objemového podílu vzduchu ve směsi s párou. Nastavení průtokoměrů bylo prováděno prostřednictvím dodaného softwaru. Byly použity podíly a jim příslušející průtoky dílčích složek uvedené v následující matici na Tab. 1.

Tab. 1: Matice pro vysokoteplotní oxidaci vzorků pokrytí ze slitiny E110 v původním stavu (s před-oxidací) ve směsi vzduchu a páry

| objemový podíl vzduchu | 0 % | 10 % | 30 % | 50 % | 70 % | 90 % | 100 % |
|------------------------|----------------------------------------|------|------|------|------|------|-------|
| průtok páry [g/h] | 75,0 | 72,3 | 56,3 | 40,2 | 24,1 | 8,0 | 0 |
| průtok vzduchu [l/h] | 0 | 10 | 30 | 50 | 70 | 90 | 100 |
| 800 °C | 2; 4; 6; 10; 14; 18; 38 (38) h | | | | | | |
| 1000 °C | 6; 9; 15; 30; 45 (30; 45; 60; 120) min | | | | | | |
| 1200 °C | 1,5; 3; 9; 15; 45 (15; 30; 45) min | | | | | | |

Argon sloužil jako plyn pro udržování dostatečného průtoku. Jeho průtok byl pro všechny podíly shodný 50 l/h. Oxidace probíhala po předepsanou dobu expozice. Před zahájením oxidace byl vzorek zavěšen na tyčinku

s termočlánkem (7) a vsunut do pece. Z pracovních prostor pece byl vytěsněn atmosférický vzduch průtokem argonu přes regulační ventil (19) o přibližném průtoku asi 10 l/min. Poté byl vzorek vsunut do pece. Na konci oxidace byl vzorek shozen do ledové lázně v baňce pod pecí (1), vyjmut a vysušen v sušárně.

Pro oxidaci na vzduchu byla použita aparatura zjednodušená o některé části oproti aparatuře na schématu na Obr. 2. Nebyla zde použita směšovací jednotka CEM s celou větví dopravující vodu a směs argonu a vzduchu proudila skrze baňku (1) přímo do pece. V této baňce se nenacházela ledová lázeň. Pracovní průtok směsi byl 18 l/h technického vzduchu + 6 l/h argonu. Byly však zkoumány i nižší (6 l/h + 2 l/h) a vyšší (30 l/h + 10 l/h) průtoky. Před oxidací byl vytěsněn atmosférický vzduch argonem o průtoku přibližně 10 l/min a tímtež průtokem byl vzorek na konci oxidace po jeho sundání do dolní části baňky ochlazen. Chlazení vzorku je důležité pro zachování vnitřní struktury materiálu. Oxidace byla provedena pro teploty v rozmezí 700–1200 °C pro různé doby expozice. Pro každou teplotu a pro každý podíl vzduchu a páry ve směsi v případě experimentů v předchozím odstavci bylo nutné určit axiální rozložení teplot v peci a stanovení tzv. teplotního pásma, v němž je teplota požadované hodnoty s rozptylem maximálně plus mínus 3 °C.

Po oxidaci byl vzorek podroben dalšímu experimentálnímu zkoumání. Byl zvážen pro určení hmotnostního přírůstku, změřen pro určení axiálního prodloužení a vyfocen. Následně byl rozřezán na několik prstýnků, z nichž jeden byl zalit do pryskyřice pro zkoumání metalografie pod optickým mikroskopem, měření tloušťek vrstev oxidu, α -Zr(O) fáze a kovu a měření mikrotvrdosti podle Vickerse. Další dva prstýnky tloušťky 7 mm byly podrobeny prstýnkové tlakové zkoušce (RCT) při teplotě 20 °C, příp. i při 135 °C, pro stanovení maximální síly zatížení a tažnosti materiálu. K měření obsahu vodíku posloužily další dva prstýnky tloušťky 0,5 mm.

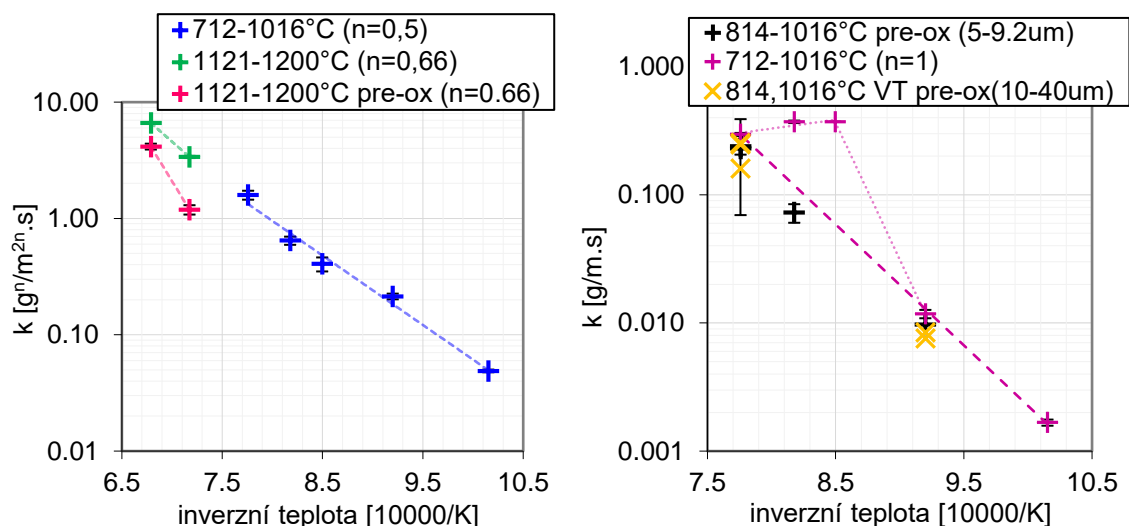
Naměřené hmotnostní přírůstky byly vyneseny do grafu v závislosti na době expozice. Ve všech zkoumaných případech byla z naměřeného hmotnostního přírůstku odečtena tzv. nulová hodnota. Vzorek po vsunutí do pece se oxiduje již při ohřevu na zkoumanou teplotu, při jejímž dosažení (přesněji při překročení hodnoty minus 3 °C od požadované hodnoty) je spuštěno měření doby expozice. Stanovení nulového hmotnostního přírůstku bylo provedeno měřením na jednom referenčním vzorku, u kterého byla oxidace ihned po ohřevu na uvedenou mez ukončena. Pro každou teplotu byly na těchto grafech identifikovány oblasti s charakteristickou kinetikou. Pro teploty menší než 1100 °C to byly oblasti před a za přechodem, pro teploty 1100 °C a výše nebyl přechod pozorován. Na daných oblastech byla data proložena funkcí (1). Fitovanými parametry byly koeficienty A , B . Vzhledem k malému počtu dat byl exponent m v oblasti před přechodem zvolen 2 a v oblasti za přechodem 1. Pro případy, v nichž se přechod nevyskytuje, byl m stanoven jako 1,5. Hodnota vychází jako vážený průměr z hodnot tohoto exponentu, které byly získány fitováním příslušných případů funkcí (1), kde exponent m byl jedním z fitovaných parametrů. Fitování bylo provedeno v programu Gnuplot.

3. VÝSLEDKY

Naměřená experimentální data byla zpracována, vynesena do grafu a srovnávána s výsledky jiných experimentů. Takto vyhodnocených výsledků je velké množství, protože byly provedeny pro všechny zkoumané teploty, sady vzorků, oxidační atmosféry, typy slitin a vzájemně srovnávány. Kompletní výsledky grafů hmotnostních přírůstků, vizuální inspekce, metalografických výbrusů, mechanických vlastností aj. je možné najít v práci [9]. V tomto článku jsou uvedeny pouze nejdůležitější poznatky z měření se zaměřením na formulaci prediktivních vztahů oxidace a diskuzi faktorů ovlivňujících oxidaci.

3.1. OXIDACE NA VZDUCHU

Při oxidaci na vzduchu bylo zjištěno, že s rostoucí teplotou výrazně roste rychlost oxidace, jak je patrné na Obr. 3. Na levém grafu je vynesena reakční rychlost oxidace v oblasti před přechodem plus rychlost dvou nejvyšších teplot 1121 °C a 1200 °C, kde se už přechod nevyskytuje, a na pravém obrázku rychlost v oblasti za přechodem.



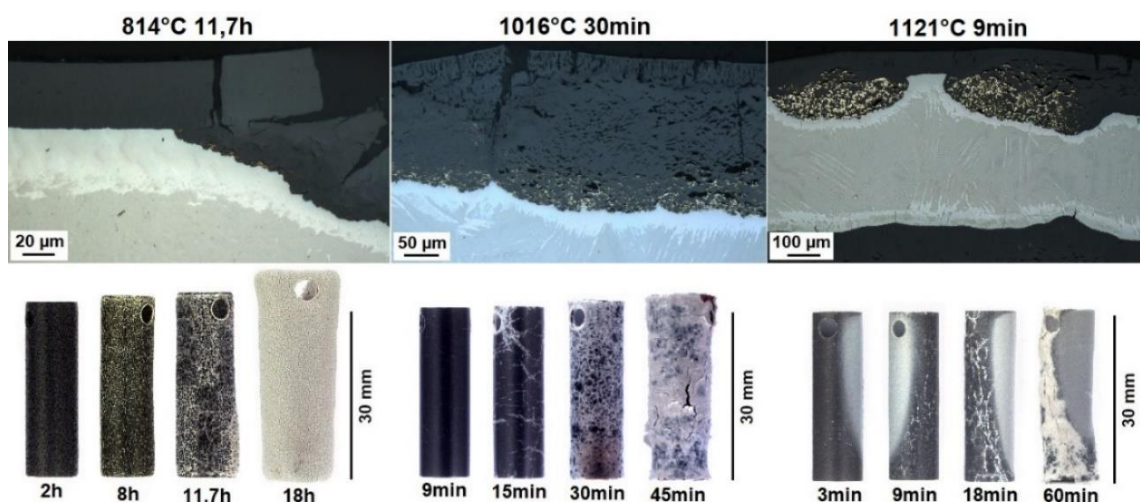
Obr. 3: Závislost rychlostní konstanty k na inverzní teplotě při oxidaci na vzduchu vzorků pokrytí ze slitiny E110 v oblasti před (vlevo) a za (vpravo) přechodem

Vzorky v původním stavu

Při oxidaci vzorků v původním stavu byla pozorována oblast kritických teplot v intervalu 814–1016 °C (na pravém grafu tečkovaně), ve kterých došlo k rychlému přechodu a výraznému nárůstu rychlosti oxidace. Bylo pozorováno, že při teplotách 904 °C a 950 °C byla rychlost oxidace v oblasti za přechodem podobná v rámci chyby měření jako pro teplotu 1016 °C. V korelaci byla tato kritická oblast zohledněna korekčním součinitelem ε_{cr} , definovaný jako odchylka naměřené reakční rychlosti od predikované (podíl reakčních rychlostí tečkované a čárkované čáry na pravém grafu Obr. 3).

$$\varepsilon_{cr} = \exp(1,268 \cdot (T_0 - T) / (T_0 - 1223)) \quad (2)$$

kde T_0 je 1087 K na intervalu 814–904 °C a 1289 K na intervalu 904–1016 °C. Rozdíly v mikrostruktuře jsou dobře patrné na metalografických výbrusech, viz Obr. 4.



Obr. 4: Nodule na metalografickém výbrusu (vlevo) a vizuální srovnání vzorků pokrytí (vpravo) po oxidaci na vzduchu při teplotě 814 °C a 1121 °C

Při nízkých teplotách jsou zrna nitridů patrná jen při větším zvětšení a koncentrují se výhradně u hranice oxid-kov. S rostoucí teplotou jsou větší a větší, jejich koncentrace narůstá a vyskytují se v širším pásmu vrstvy oxidu. Fáze α -Zr(O) má při nízké teplotě podobu souvislé vrstvy na hranici oxid-kov, pro vyšší teploty se stále

více objevuje v podobě jehlicovitých zrn napříč celou vrstvou kovu. Vizualně je patrné, že s rostoucí dobou expozice se zvyšuje četnost trhlin v důsledku lokálního napadení dusíkem. Charakter oxidu se s teplotou mění. Obecně ale platí, že na hranách se postupně formuje bílý rozpraskaný stechiometrický oxid z původně černého nestechiometrického souvislého oxidu. Axiální prodloužení, jak je z obrázku patrné, je závislé nejen na hmotnostním přírůstkem, resp. době expozice (roste s rostoucím přírůstkem, resp. dobou), ale značně na teplotě. Pro nízké teploty je prodloužení výrazné i nad 10 %, zatímco pro vysoké teploty zřídka dosahuje 4 %. Jev je důsledkem oxidačního creepu a fázové transformace zirkonia $\alpha \rightarrow \beta$.

Vliv před-oxidace

Ve všech zkoumaných případech před-oxidace byl potvrzen její protektivní charakter, tj. zpomaluje rychlost oxidace. Pouze u teploty 814 °C nebyly patrné rozdíly. To je také patrné z reakčních rychlostí na Obr. 3. U před-oxidovaných vzorků nebyl pozorován prudký nárůst oxidace v oblasti kritických teplot. Protektivní charakter je znatelný vizualně i na mikrostruktuře. Na výbrusech byl viditelný pokles obsahu nitridů, naopak silnější vrstva α -Zr(O) fáze. Vzorky byly pevnější (vyšší maximální síla zatížení při RCT), ale méně tažné, což je důsledek také vyššího obsahu vodíku pocházejícího z před-oxidace. Zvláště křehké byly vzorky před-oxidované vysokoteplotně, a to především kvůli vysokému zastoupení α -Zr(O) fáze.

Do prediktivního vztahu byl vliv před-oxidace zahrnut pomocí korekčního součinitele ε_{PO} .

$$\varepsilon_{PO} = \exp(-0,049 \cdot \delta_{OX}) \quad (3)$$

Ukázalo se, že reakční rychlost nezávisle na teplotě klesá úměrně tloušťce oxidu δ_{OX} . V semilogaritmickém měřítku je tato úměra lineární. Tento trend platí pouze do tloušťky oxidu 10 μm a nízkoteplotní před-oxidaci v autoklávu. Pro vyšší tloušťky i jiných forem před-oxidace je doporučeno vzít konzervativně hodnotu součinitele odpovídající tloušťce 10 μm .

Korelace pro oxidaci na vzduchu

Prediktivní vztah oxidace vzorků v původním stavu a s před-oxidací má tvar vztahu (1) s následujícími parametry A, B pro příslušné případy oxidace v Tab. 2. V případě vzorků v původním stavu v oblasti kritických teplot, nebo vzorků s před-oxidací je vztah (1) nutné násobit příslušným korekčním součinitelem (2), resp. (3).

Tab. 2: Parametry korelace kinetiky oxidace na vzduchu zkoumané slitiny E110 pro uvedené případy

| výchozí stav | t [°C] | oblast | m [-] | A [$\text{kg}^m/\text{m}^2\text{s}$] | B [$10^3 \cdot \text{K}$] | ε_{cr} [-] | ε_{PO} [-] |
|---------------------------------------|-----------|----------|-------|----------------------------------------|-----------------------------|------------------------|------------------------|
| původní | 712–814 | před př. | 2 | $0,07 \pm 0,05$ | $14,0 \pm 0,6$ | 1 | 1 |
| | | za př. | 1 | 6 ± 2 | $21,7 \pm 0,3$ | 1 | 1 |
| | 814–1016 | před př. | 2 | $0,07 \pm 0,05$ | $14,0 \pm 0,6$ | 1 | 1 |
| | | za př. | 1 | 6 ± 2 | $21,7 \pm 0,3$ | (2) | 1 |
| | 1121–1200 | - | 1,5 | $0,9 \pm 0,6$ | $17,5 \pm 0,9$ | 1 | 1 |
| před-oxidace ($<10 \mu\text{m}$) | 814–1016 | před př. | 2 | $0,07 \pm 0,05$ | $14,0 \pm 0,6$ | 1 | 1 |
| | | za př. | 1 | 6 ± 2 | $21,7 \pm 0,3$ | 1 | (3) |
| | 1121–1200 | - | 1,5 | $0,9 \pm 0,6$ | $17,5 \pm 0,9$ | 1 | (3) |

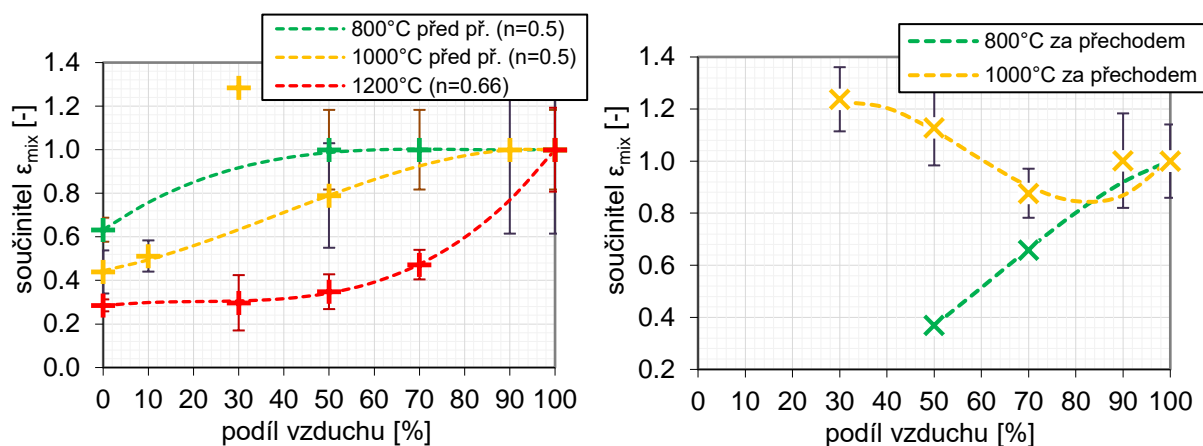
3.2. OXIDACE VE SMĚSI VZDUCHU A PÁRY

Měřením hmotnostního přírůstku bylo zjištěno, že s rostoucím podílem vzduchu v oxidující atmosféře rostla jeho hodnota. V oblasti před přechodem s rostoucím podílem rostla rychlostní konstanta oxidace. Výjimkou byl pouze případ 30 % vzduchu 1000 °C, kde byla zjištěna neobjasněná výrazně vyšší reakční rychlost. Tuto anomálii je nutné ověřit novým měřením. Do podílu 10 % není přechod pozorován a oxidace je podobná oxidaci v čisté páře. Naopak pro podíly 90 % a výše je oxidace v rámci chyby shodná s oxidací na vzduchu. V oblasti za přechodem k rostlo s podílem vzduchu pouze pro nízkou teplotu 800 °C. U teploty 1000 °C nejsou v rámci chyby měření patrné rozdíly mezi jednotlivými podíly. Stejný závěr o růstu k platí i pro 1200 °C. Kvalitativní zjištění je ve shodě také s vizuálním hodnocením a mikrostrukturou. S rostoucím podílem vzduchu rostla koncentrace

nitridů. Zajímavý poznatek přineslo měření vodíku. Výrazně vyšší obsah byl pozorován pro podíly 30–70 % a u teploty 1000 °C dosahoval hodnot 200–1200 ppm. Vysoký obsah výrazně snížil tažnost vzorku. Také při těchto experimentech se ve všech zkoumaných případech potvrdil protektivní charakter před-oxidace pokrytí. Rozdíl hmotnostního přírůstku byl výrazný u teploty 1000 °C. U 1200 °C byly rozdíly značně nižší.

Korelace pro oxidaci ve směsi vzduchu a páry

Při rozboru hodnot rychlostní konstanty, resp. fitovaných parametrů A , B , nebyl zjištěn žádný charakteristický trend oproti zkoumání vlivu teploty na oxidaci na vzduchu, kde je tento trend v semilogaritmickém měřítku lineární, viz Obr. 3. Než stanovovat pro každý diskretní zkoumaný podíl vlastní korelaci, ukázalo se účelné zavést opravný součinitel ϵ_{mix} . Tento součinitel koriguje hodnotu vypočtenou ze vztahu (1) s parametry A , B dle Tab. 2 pro oxidaci na vzduchu. Pro každý zkoumaný podíl součinitel představuje podíl reakční rychlosti oxidace v dané směsi a reakční rychlosti oxidace na vzduchu při stejné teplotě. Diskretní hodnoty součinitele ϵ_{mix} byly pro všechny zkoumané teploty vyneseny do grafu, viz Obr. 5, a proloženy polynomem třetího stupně.

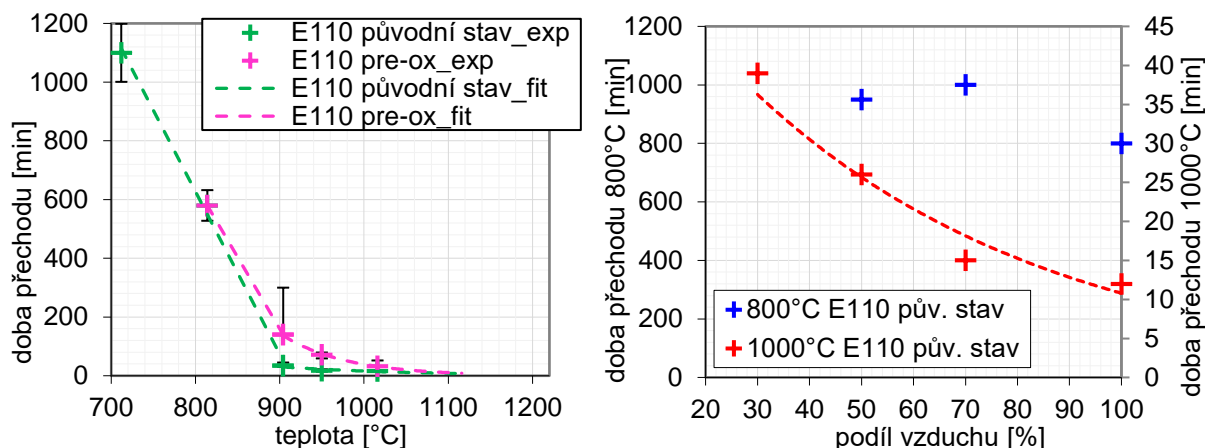


Obr. 5: Závislost korekčního součinitele ϵ_{mix} na podílu vzduchu při oxidaci vzorků pokrytých ze slitiny E110 v původním stavu ve směsích vzduchu a páry pro oblast před (vlevo) a za (vpravo) přechodem

Pro určení hodnoty součinitele ϵ_{mix} byly stanoveny také matematické vztahy, nicméně s ohledem na přesnost měření je při ručním výpočtu vhodnější použití výše uvedených grafů. Odečet hodnoty pro teplotu oxidace, jež nebyla zkoumána, je možné použít lineární interpolaci. Je však důležité zmínit, že jde o hrubý odhad, neboť součinitel očividně na teplotě lineárně nezávisí. Ukázalo se, že pro nízké teploty je rychlost oxidace před přechodem od cca 50% podílu totožná s oxidací na vzduchu, naopak pro vysoké teploty je do cca 50% podílu totožná s oxidací v páře. Vychýlený bod 30 % 1000 °C je zmíněná pozorovaná anomálie.

3.3. DOBA DO PŘECHODU

Bylo pozorováno, že doba expozice, při které dochází k přechodu, tj. změně kinetiky z parabolické na lineární, se s rostoucí teplotou zkracuje, jak je patrné na levém grafu Obr. 5. U před-oxidovaných vzorků se ukázalo, že pro danou teplotu je doba do přechodu delší, což podporuje zjištěnou skutečnost, že před-oxidace působí protektivně, neboť oddaluje přechod. Doba do přechodu se za hodnotou 1000 °C limitně blíží nule, což podporuje skutečnost, že pro teploty 1100 °C a vyšší nebyl přechod pozorován. Při experimentech ve směsi vzduchu a páry klesá doba do přechodu s rostoucím podílem vzduchu ve směsi. Hodnota pro 50 % podílu vzduchu 800 °C je nepřesná a zatížena nedostatečným počtem experimentálních dat a za přechod byl vzat poslední měřený bod, kde byla oxidace ještě očividně parabolická.



Obr. 6: Doba do přechodu vzorků pokrytí ze slitiny E110 v původním stavu a s před-oxidací při oxidaci na vzduchu při různých teplotách (vlevo) a při oxidaci ve směsi vzduchu a páry při různých podílech (vpravo)

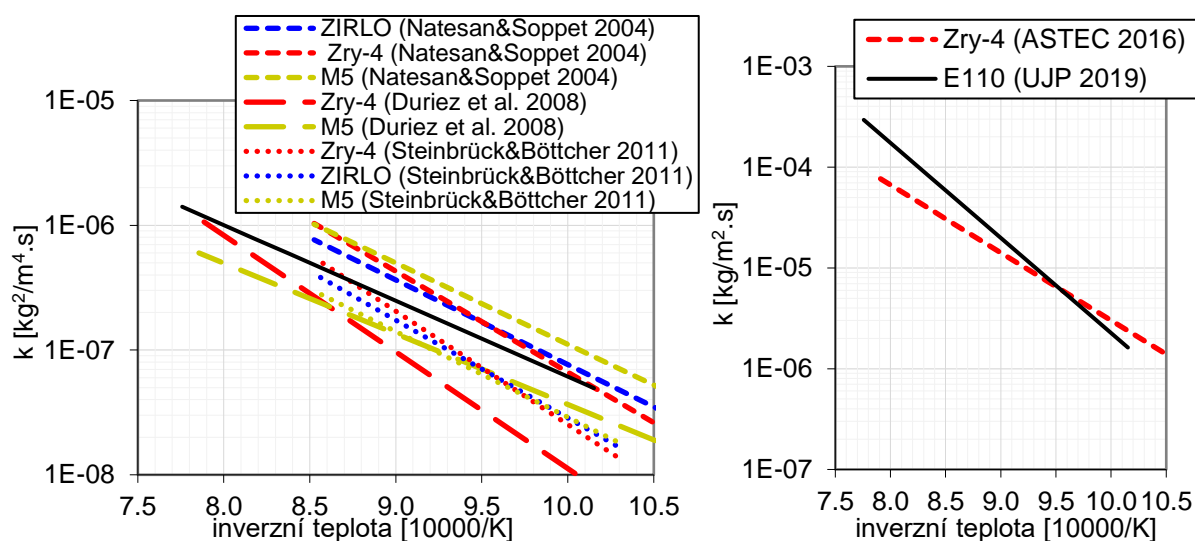
V grafu vynesené hodnoty byly proloženy vhodnými funkcemi a stanoveny jejich rovnice jakožto prediktivní vztahy pro stanovení doby do přechodu.

$$\begin{aligned}
 \text{E110 v pův. stavu: } & \tau(T) = -5,5 \cdot T + 6542 \quad T < 1173 \text{ K}; & \tau(T) = 1,36 \cdot 10^6 \cdot \exp(-0,009 \cdot T) \quad T \geq 1173 \text{ K} \\
 \text{E110 s před-oxidací: } & \tau(T) = -5,2 \cdot T + 6256 \quad T < 1173 \text{ K}; & \tau(T) = 1,56 \cdot 10^8 \cdot \exp(-0,0121 \cdot T) \quad T \geq 1173 \text{ K} \\
 \text{směs vzduch-pára: } & \tau(\varphi_{vz}) = 61 \cdot \exp(-0,017 \cdot \varphi_{vz}) & 30 \% \leq \varphi_{vz} \leq 100 \% \text{ a } T = 1273 \text{ K}
 \end{aligned}$$

Z hlediska kritického hmotnostního přírůstku, při kterém k přechodu dochází, byl při oxidaci na vzduchu pozorován klesající trend od 80 g/m² do 50 g/m² mezi teplotami 712–1016 °C. Pouze pro kritické teploty vzorků v původním stavu se pohyboval mezi 30–40 g/m². Jedinou výjimkou je opět teplota 904 °C a vzorky s před-oxidací 5 μm, kde nedošlo k přechodu ani při 130 g/m². U směsi vzduchu a páry závisí na teplotě – pro 800 °C rostl na intervalu 70–100 g/m² a pro 1000 °C rostl na intervalu 40–60 g/m².

3.4. SROVNÁNÍ S KORELACEMI JINÝCH SLITIN

Získaná korelace pro zkoumanou slitinu E110 byla srovnána s korelacemi jiných slitin, které byly získány při experimentech v ANL [3] (korelace Natesan&Soppet), KIT [7] (korelace Steinbrück&Böttcher) a IRSN [1] (korelace Duriez et al.). Srovnání pro oblast před a za přechodem je na Obr. 7.



Obr. 7: Srovnání korelací pro oxidaci zirkoniových slitin Zircaloy-4, ZIRLO, M5 (graf vpravo) s korelací pro oxidaci zkoumané slitiny E110 v oblasti před (vlevo) a za (vpravo) přechodem pro teploty 712–1016 °C

V oblasti před přechodem srovnání závisí na korelaci. Korelace Natesan&Soppet predikuje pro všechny na zkoumaném teplotním intervalu vyšší rychlostní konstantu než u zkoumané E110. U korelací Steinbrück&Böttcher a Duriez et al. je naopak nižší. Z hlediska závislosti na teplotě bylo pozorováno, že rychlostní konstanta roste u zkoumané E110 nejméně ze všech slitin, srovnatelně se ZrNb slitinou M5. V oblasti za přechodem byla ke srovnání k dispozici pouze korelace uvedená ve zdroji [2], použitá ve výpočetním kódu ASTEC a vytvořená na základě experimentů se slitinou Zircaloy-4. Dle této korelace je rychlostní konstanta u slitiny Zircaloy-4 při nízkých teplotách vyšší než u E110. Od teploty 800 °C se toto pořadí otáčí a slitina E110 oxiduje rychleji. Navíc je nutné připomenout, že vynesená korelace platí pro slitinu E110 s před-oxidací. V oblasti kritických teplot byly bodově pozorovány zřetelně vyšší hodnoty k kolem $3,7 \cdot 10^{-4} \text{ kg/m}^2 \cdot \text{s}$.

4. ZÁVĚR

Oxidace ve směsích obsahujících vzduch může sehrát významnou roli při některých těžkých haváriích a výrazně ovlivnit rozsah poškození palivových elementů. Významnou roli přitom hraje dusík, který lokálně napadá pokrytí zejména při vysokých teplotách a nedostatečných průtocích směsi. U vzorků v původním stavu byla pozorována oblast kritických teplot 814–1016 °C. Přestože nárůst oxidace byl poprvé pozorován až při teplotě 904 °C, lze očekávat, že k výchylce od predikovaného trendu došlo již někde mezi teplotami 814–904 °C, a proto je v korekčním součiniteli na tuto oblast konzervativně zahrnut i tento teplotní interval. Byl pozorován protektivní charakter před-oxidace, ať už byla provedena jakýmkoli způsobem. Nicméně vzorky s před-oxidací kolem 10 μm a vyšší, zejména pak ty s vysokoteplotní před-oxidací, byly poměrně křehké. Na nízké tažnosti má vliv vysoký obsah vodíku nebo vysoký podíl α -Zr(O) fáze.

Byla vytvořena korelace pro predikci hmotnostního přírůstku slitiny E110, která je platná na intervalu teplot 814–1200 °C (pro původní stav 712–1200 °C). Korelace je aplikovatelná pro oxidaci na vzduchu a je doplněna korekčními faktory pro zahrnutí vlivu před-oxidace a kritické oblasti teplot. S použitím opravného součinitele ϵ_{mix} lze korelaci rozšířit i na případ oxidace ve směsi vzduchu a páry o různých poměrech. Použití korelace má následující nedostatky:

- V intervalu teplot 1016–1121 °C se vytrácí přechod a exponent v korelaci se mění z $m = 2$ na $m = 1,5$, což korelace neumí popsat.
- Pro případ před-oxidace v autoklávu 5 μm 1121 °C byla pozorována anomálie v tom, že oxidace v čase probíhá bez přechodu, nicméně s exponentem $m = 2$. Korelace však na tomto intervalu teplot předpokládá exponent nižší, což vede ke konzervativnímu výsledku.
- Hodnota predikovaného hmotnostního přírůstku za přechodem je silně závislá na přesnosti určení doby do přechodu. Pokud reálně dojde k přechodu dříve, může být predikovaná hodnota i výrazně nižší a naopak. Rozdílná doba do přechodu byla při experimentech několikrát pozorována. Při vytváření prediktivního vztahu byla snaha vzít konzervativně tu nejnižší.
- Vztah je určen na základě experimentů, které probíhali při jednotném průtoku. Při experimentech však bylo prokázáno, že průtok může mít nezanedbatelný vliv na hmotnostní přírůstek. Zatímco při nízkých teplotách, pozorováno pro 814 °C, s rostoucím průtokem klesá hmotnostní přírůstek (nižší lokální napadání dusíkem), při vysokých teplotách, pozorováno pro 1200 °C je tomu naopak (vyšší průtok znamená menší oblast zasaženou globálním nedostatkem kyslíku, který jinak vede k výrazně nižší oxidaci v jím zasažené části vzorku). Ke stanovení opravného součinitele na rychlost obtékání pokrytí bylo však provedeno malé množství experimentů pro získání věrohodného vztahu. Ukázalo se však, že průtok má vliv především v oblasti před přechodem a tím i na době do přechodu, při které je dosaženo kritického hmotnostního přírůstku.
- Experimentů na oxidaci ve směsi vzduch pára nebylo provedeno takové množství jako na oxidaci na vzduchu. Nedostatek dat obecně tak může vést k nepřesným hodnotám opravného součinitele. Navíc korelace neumí jeho vyčíslení pro libovolnou teplotu, neboť nebyla nalezena věrohodná závislost na teplotě.
- Korelace byla odvozena pro specifickou slitinu E110 z houbového zirkonia. Ukázalo se však, že stačí vzít slitinu vyrobenou například z elektrolytického zirkonia, nebo shodně z houbového s mírně odlišnými koncentracemi příměsí, a oxidace je pro stejné okrajové podmínky odlišná. Jedná se především o jinou dobu do přechodu.

Získaná korelace byla porovnána s naměřenými daty a toto srovnání statisticky vyhodnoceno. Relativně přesná (směrodatná odchylka 5–25 %) je korelace pro oxidaci na vzduchu s výjimkou kritických teplot (40–60 %). Pro zkoumané teploty a podíly vzduchu a páry ve směsi se směrodatná odchylka pohybovala mezi 5–25 %. Ze srovnání korelace s jinými slitinami vyplynulo, že závisí na podmínkách konkrétního experimentu, na jejichž základě byla korelace vytvořena. Pro stejnou slitinu tak mohou být získány odlišné výsledky.

PODĚKOVÁNÍ

Celá práce vznikla a byla financována firmou UJP PRAHA a. s. pod vedením pana Ing. Jakuba Krejčího, Ph.D. Dále děkuji Ing. Jitce Kabátové za hodnocení metalografie a měření mikrotvrdosti, Františku Manochovi za provedení tlakových zkoušek a měření obsahu vodíku, Jaroslavu Šustrovi za dělení vzorků, Janu Kočímu za přípravu výbrusů a pořízení jejich snímků, Antonínu Příbylovi za pořízení makrofotografií vzorků a dalším lidem z UJP PRAHA, a. s. za spolupráci.

LITERATURA

- [1] DURIEZ, C., DUPONT, T., SCHMET, B. a ENOCH, F. Zircaloy-4 and M5® high temperature oxidation and nitriding in air. *Journal of Nuclear Materials* [online]. 2008, 380(1-3), 30-45 [cit. 2019-03-25]. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.07.002. ISSN 00223115.
- [2] [20] STEMPNIEWICZ, M.M. Air oxidation of Zircaloy, Part 1 – Review of correlations. *Nuclear Engineering and Design* [online]. 2016, 301, 402-411 [cit. 2019-03-21]. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2016.02.042. ISSN 00295493.
- [3] NATESAN, K.; SOPPET, W.K. Air Oxidation Kinetics for Zr-Based Alloys. *NUREG/CR-6846 ANL-03/32* [online]. 2004. 108 s. [cit. 2013-04-27]. Dostupné z: <https://www.nrc.gov/docs/ML0419/ML041900069.html>.
- [4] NEGYESI, M. a AMAYA, M. Oxidation kinetics of Zry-4 fuel cladding in mixed steam–air atmospheres at temperatures of 1273–1473 K. *Journal of Nuclear Science and Technology* [online]. 2017, 54(10), 1143-1155 [cit. 2018-12-18]. DOI: 10.1080/00223131.2017.1344583. ISSN 0022-3131.
- [5] PEREZ-FERÓ, E., NOVOTNÝ, T. a HORVÁTH, M. Recent studies on the air oxidation of pre-oxidised E110G and E110 alloys. Presentation presented at: [*Seminar on Cladding Oxidation by Air Under Severe Accident Conditions in a Nuclear Reactor*; 2016 Jun 14-15; Budapest; Hungary].
- [6] PEREZ-FERÓ, E., NOVOTNÝ, T., HORVÁTH, M., et. al. Oxidation of E110G and E110 claddings in steam-air mixtures. Presentation presented at: [*Seminar on Cladding Oxidation by Air Under Severe Accident Conditions in a NPP*; 2015 Jun 9; Paris; France].
- [7] STEINBRÜCK, M., STEGMAIER, U. a ZIEGLER, T. Prototypical Experiments on Air Oxidation of Zircaloy 4 at High Temperatures. *FZKA 7257* [online]. Karlsruhe, 2007 [cit. 2019-02-16]. Dostupné z: <https://publikationen.bibliothek.kit.edu/270067262>.
- [8] STUCKERT, J., HÓZER, Z., KISELEV, A. a STEINBRÜCK, M. Cladding oxidation during air ingress. Part I: Experiments on air ingress. *Annals of Nuclear Energy* [online]. 2016, 93, 4-17 [cit. 2018-05-18]. DOI: 10.1016/j.anucene.2015.12.034. ISSN 03064549.
- [9] VRBKA, P. *Chování palivového pokrytí při vysokoteplotní oxidaci v prostředí obsahujícím vzduch*. Praha, 2019. Diplomová práce. České vysoké učení technické v Praze. Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská. Vedoucí práce Jakub KREJČÍ.

Studium vlastností cementových materiálů

Iana Zamakhaeva¹

E-mail: zamakian@fjfi.cvut.cz

¹České vysoké učení technické v Praze, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, Břehova 78/7, Praha 1, 115 19, Česko

Abstrakt: *Bakalářská práce se zabývá studiem obecných vlastností cementových materiálů s důrazem na minerální fázi C-S-H, problematikou ukládání radioaktivních odpadů a vyhořelého jaderného paliva a sorpcí kationtů na inženýrské bariéry hlubinného úložiště. Část práce je věnována syntéze C-S-H fáze v laboratorních podmínkách, a to dvěma různými způsoby. Tato bakalářská práce je součástí evropského projektu CEBAMA (CEment BAsed MAterials) a Výzkumné podpory pro bezpečnostní hodnocení hlubinného úložiště, Transport radionuklidů z úložiště / Transport radionuklidů přes materiály na bázi cementu zadávaného SÚRAO, které jsou řešeny na Katedře jaderné chemie FJFI ČVUT.*

Klíčová slova: *Cementové materiály, C-S-H, radioaktivní odpady, hlubinné úložiště, sorpce stroncia*

1. ÚVOD

Při provozování jaderných elektráren vzniká vyhořelé jaderné palivo (VJP), které je v současné době po vyjmutí z reaktoru ukládáno do bazénu za účelem chlazení po dobu minimálně 3 let, poté je uloženo v povrchových meziskladech u jaderných elektráren Dukovany a Temelín. Dalším vysoce aktivním odpadem (VAO) bude odpad vznikající během vyřazování jaderných elektráren. Kromě VJP, VAO a dalších radioaktivních odpadů (RAO) vznikajících při provozu jaderných elektráren jsou produkovány další RAO, jejichž původci jsou výzkum, medicína, průmysl, zemědělství apod. – tyto RAO se nazývají institucionální. Pro VJP a všechny jmenované typy RAO je třeba nalézt vhodný způsob jejich depozice. Jeden z neefektivnějších a ekonomicky nepřijatelnějších způsobů je vybudování trvalých hlubinných úložišť (HÚ). Izolace RAO a VJP od okolí je realizována systémem bariér HÚ, jejichž nezbytnou součástí jsou cementové materiály.

Rešeršní část práce je věnována obecným vlastnostem cementu, zejména teoretickému popisu důležité složky cementových materiálů – C-S-H fázi (hydratovaný křemičitan vápenatý, „calcium silicate hydrate“), zahrnuje popis projektu HÚ v ČR a teoretický výzkum věnovaný problematice sorpce kationtů kovů na cementové materiály. Experimentální část práce se zabývá přípravou C-S-H fáze v laboratorních podmínkách, charakterizací této fáze a sorpčními experimenty, jejichž cílem bylo určit míru interakce hydratovaných cementových past (HCP) s roztokem obsahujícím kationty $^{85}\text{Sr}^{2+}$.

2. TEORETICKÁ A EXPERIMENTÁLNÍ ČÁST

Teoretická část práce obsahuje popis vlastností cementových materiálů, minerální fáze C-S-H, nakládání s RAO včetně konceptu budoucího HÚ v ČR a problematiky sorpce kationtů na C-S-H fázi na příkladu kationtů Sr^{2+} . Experimentální část se zaměřuje na přípravu C-S-H fáze a provedení sorpčních experimentů, ve kterých byla sledována sorpce stroncia na nadrcené HCP (z časových důvodů nebyla sorpce provedena na C-S-H fázi).

2.1. CEMENTOVÉ MATERIÁLY

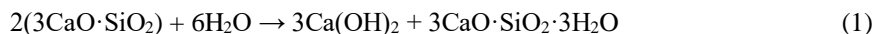
Cement je jemně mletý anorganický materiál, který po smíchání s vodou vytváří homogenní směs (hydratovanou cementovou pastu). Díky hydratačním procesům směs tuhne. Cementy se dělí do 5 skupin podle složení:

vyrábí se z křemičitanového slínku a sádrovce a mohou obsahovat různé příměsi, např. vysokopecní strusku, křemičitý úlet, pucolány apod. Slínek se vyrábí při teplotě 1350–1450 °C z homogenizovaných surovin obsahujících převážně oxid vápenatý CaO, oxid křemičitý SiO₂, oxid hlinitý Al₂O₃ a oxid železitý Fe₂O₃. Po vypálení a ochlazení slínek obsahuje minerální fáze alit, belit a celit. Při kontaktu slínku s vodou probíhá rozpouštění slínku a precipitace hydratovaných minerálních fází, např. C-S-H fáze a hydroxidu vápenatého Ca(OH)₂. Proces hydratace je exotermický. [1]

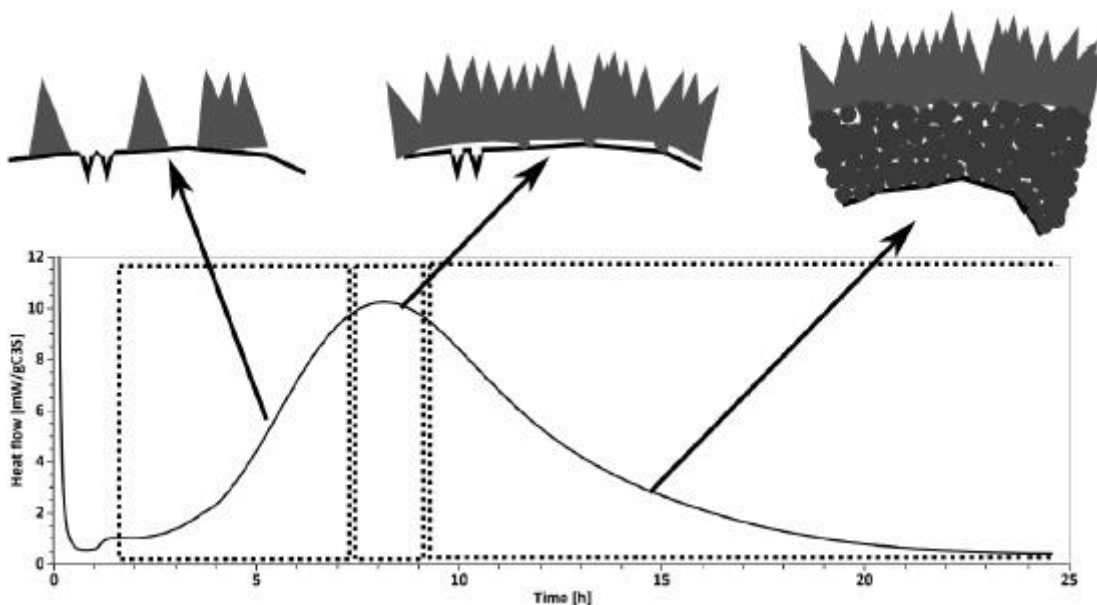
Dlouhodobá interakce již vytvrdlé cementové pasty s vodou způsobuje její tzv. degradaci – změnu fyzikálních a chemických vlastností materiálu. Při tomto ději dochází k rozpouštění některých minerálních fází a uvolňování zásaditých složek cementu do kapalně fáze – tvorbě výluhu s vysokou hodnotou pH. Tento proces může negativně ovlivnit vlastnosti inženýrských bariér v HÚ, proto byly vyvinuty cementové materiály poskytující výluh s menší hodnotou pH. [2]

2.2. C-S-H FÁZE

C-S-H je zkratka, ve které „C“ značí CaO, „S“ znamená SiO₂, „H“ je označení H₂O. Gelová C-S-H fáze je v cementu hlavním pojivovým komponentem, vzniká během hydratace minerálních fází a má velmi proměnlivé chemické složení, které lze popsat obecným vzorcem $m\text{CaO} \cdot n\text{SiO}_2 \cdot p\text{H}_2\text{O}$. Vznik C-S-H v reakční směsi slínku a vody dostatečně přesně popisuje rovnice (1). [1]



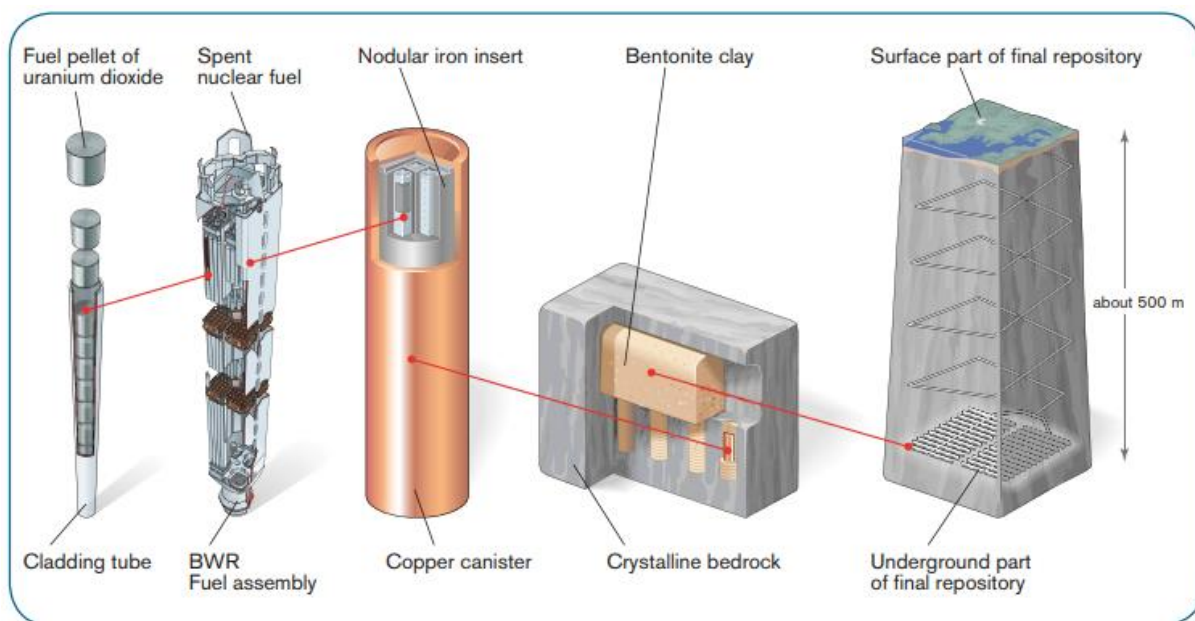
Struktura C-S-H sestává ze spojených amorfních nanočástic ve formě jehlovitých útvarů, které vyrůstají z tzv. „zrn“ minerální fáze alitu. Proces hydratace je na začátku charakterizován rychlou reakcí mezi alitem a vodou a uvolněním velkého množství tepla – probíhá tzv. růst vnějšího produktu („outer-product grow“). V okamžiku, kdy je veškerý povrch částice alitu pokryt nově vytvořenými „jehlami“ C-S-H, teplo se přestává uvolňovat rychlým tempem. C-S-H se dále tvoří jiným způsobem – tvoří se tzv. „inter-product“ (vnitřní produkt). Výše popsaný proces znázorňuje Obr. 1. Další stadium hydratace alitu začíná přibližně 24 h po zamíchání a vyvíjí se během něj 75 % veškeré pevnosti cementu.[3]



Obr. 1: Proces tvorby vnější a vnitřní vrstvy C-S-H a vývin těchto reakcí v závislosti na čase během prvních 24 h po zamíchání. [3]

2.3. HLUBINNÉ ÚLOŽIŠTĚ

Pro trvalé uložení VJP a některých typů RAO se na rok 2050 plánuje zahájení výstavby HÚ. V současné době je VJP ukládáno v meziskladech v Dukovanech a Temelíně, k ukládání RAO se používá 4 úložišť: Richard u Litoměřic, Bratrství u Jáchymova, Hostim (uzavřeno a monitorováno) a úložiště Dukovany v areálu jaderné elektrárny. RAO a VJP je potřeba izolovat od životního prostředí ideálně na tak dlouhou dobu, dokud v nich obsažené radionuklidy nepřestanou být nebezpečné. Navrhovaný multibariérový systém hlubinného úložiště zahrnuje přírodní bariéry a inženýrské bariéry projektované člověkem. Cementové materiály jsou nezbytnou součástí těchto inženýrských bariér, např. jako matrice pro cementaci kapalných RAO nebo součást konstrukce úložiště a ukládacích souborů (např. betonovo-ocelová zátka vrtu). Projekty areálů HÚ v ČR byly navrženy na základě modelu KBS-3V vyvíjeného švédskou společností SKB. Schéma daného modelu je představeno na Obr. 2. [4]



Obr. 2: Schéma budoucího HÚ a jeho součásti navrhované společností SKB. [4]

2.4. INTERAKCE CEMENTOVÝCH MATERIÁLŮ V ÚLOŽIŠTI

Cementové materiály v HÚ mohou plnit i funkci dodatečné bariéry zamezující migraci radionuklidů do okolního prostředí a bránit průniku vody do úložiště. Např. některé kapalně RAO (institucionální odpad, jehož ukládání do HÚ je plánováno po zaplnění úložiště Richard) se solidifikují metodou cementace – je to výhodný způsob stabilizace kapalných RAO vzhledem k nízkým finančním nákladům, stabilitě konečného produktu a vysoké schopnosti samostínění. Nevýhodou této metody je zejména vysoká vyluhovatelnost. Radionuklidy přítomné v RAO a VJP mohou interagovat se samotnou cementovou matricí. Při interakci s podzemní vodou může dojít k již zmíněnému vyluhování radionuklidů a následné migraci radionuklidů cementovými materiály řízené difúzí a sorpcí. [2]

Rozlišujeme sorpci chemickou (chemisorpci) a fyzikální. V případě cementových materiálů se velmi často sleduje sorpce kationtů na hydratované minerální fázi jako je C-S-H, vzhledem k velké hodnotě jejich měrného povrchu a vysoké sorpční schopnosti. [2]

Často používanou empirickou charakteristikou sorpčního procesu je distribuční (rozdělovací) koeficient K_d a sorpční izotermy (Langmuirova a Freundlichova). Distribuční koeficient je poměr hmotnostní koncentrace látky sorbované na pevnou fázi (C_s , mol kg^{-1}) k objemové koncentraci látky rozpuštěné ve vodní fázi (C_w , mol dm^{-3}), a je popsán rovnicí (2):

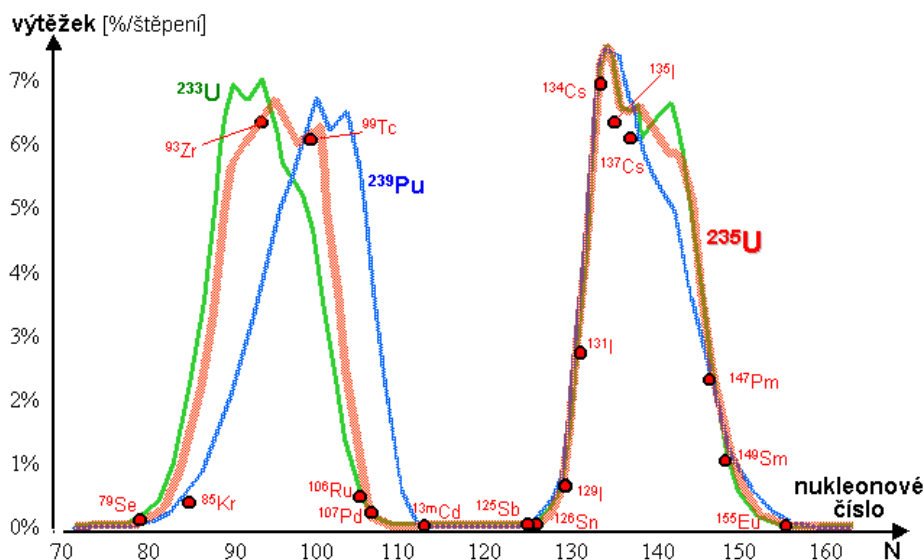
$$K_d = C_s / C_w \quad (2)$$

Zadržování látek cementovými materiály může probíhat např. na základě iontové výměny (složky cementového materiálu poskytují místo pro kationty a anionty rozpuštěných radioaktivních látek obsažených v kapalně fázi), může dojít k tvorbě komplexní sloučeniny na povrchu cementového materiálu apod. Díky své struktuře gelová C-S-H fáze poskytuje místo pro sorpci. [5]

2.5. STRONCIUM

Izotop uranu ^{238}U , hlavní komponenta VJP, je mateřským nuklidem uran-radiové přirozené rozpadové řady. Členem této řady je izotop radia ^{226}Ra , jehož poločas rozpadu je přibližně 1602 let. Dceřiným produktem ^{226}Ra je izotop radonu ^{222}Rn (poločas 3,8 d), což je jediný prvek v rozpadových řadách v plynném stavu. Izotopy radonu jsou tedy schopny tvořit tzv. radioaktivní depozit: produkty radioaktivní přeměny radonu se usazují na površích, na nichž se rozpadají na další dceřiné produkty. Daný jev znamená určitou míru nebezpečí kvůli rozšíření dceřiných produktů radonu na dostupné povrchy.

Stroncium je považováno za chemický analog radia. Izotop ^{90}Sr s poločasem rozpadu okolo 29 let je také jedním z nejdůležitějších štěpných produktů izotopu ^{235}U vzhledem ke skutečnosti, že se tvoří během provozu reaktoru v poměrně velkých množstvích (viz Obr. 3: izotop Sr s nukleonovým číslem 90 patří mezi radionuklidy na prvním píku). Z těchto dvou důvodů je stroncium dlouhodobě studováno na Katedře jaderné chemie FJFI ČVUT.



Obr. 3: Křivky štěpných výtěžků radionuklidů ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu [6]

Rozpad izotopu ^{90}Sr probíhá β^- přeměnou na izotop yttria ^{90}Y , poté v důsledku další β^- přeměny vzniká stabilní izotop ^{90}Zr (viz rovnice 3):

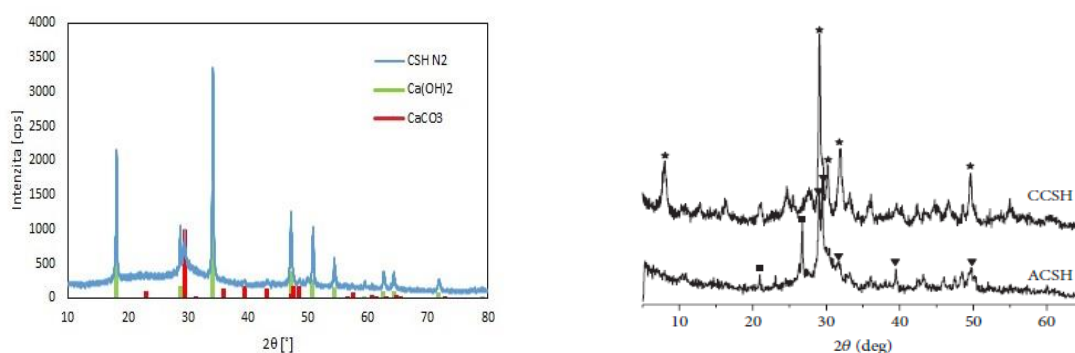


Sorpce stroncia probíhá na C-S-H fázi, a to iontovou výměnou vápenatých kationtů Ca^{2+} za strontnaté kationty Sr^{2+} . Daný proces znázorňuje rovnice 4. [5]



2.6. PŘÍPRAVA A CHARAKTERISTIKA C-S-H FÁZE

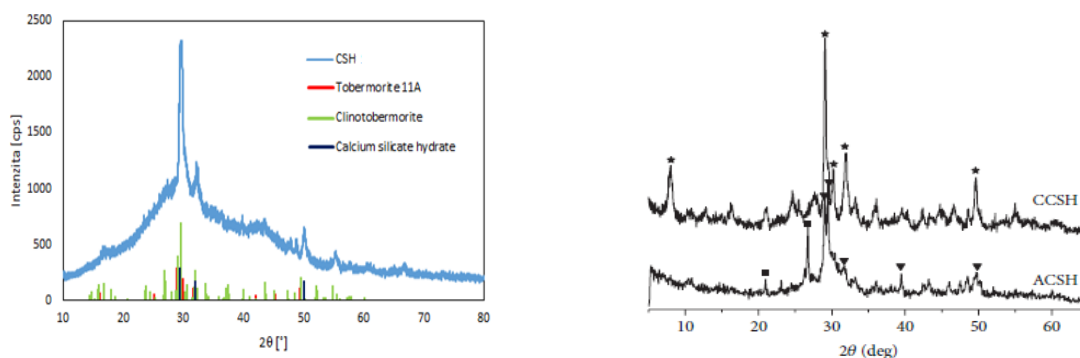
Syntéza C-S-H byla provedena 2 způsoby. První způsob spočíval v hydrotermální syntéze v autoklávu za zvýšené teploty a tlaku [7]. Byly získány 3 vzorky: CSH_{N_2} , CSH_{EtOH} a $\text{CSH}_{\text{nestab.}}$. Pro všechny vzorky bylo provedeno měření měrných povrchů, TG/DTA (termogravimetrická a diferenční termická analýza) a XRD analýza (rentgenová difrakční analýza). Výsledky XRD analýzy prokázaly, že produkt neobsahoval C-S-H fázi. Místo toho byla zjištěna přítomnost $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a CaCO_3 . Všechny vzorky poskytly stejný výsledek (viz Obr. 4).



Obr. 4: XRD analýza vzorku CSH_{N_2} a spektra identifikovaných sloučenin (nalevo). XRD analýza krystalické C-S-H (CCSH) a amorfní C-S-H (ACSH), převzato z [8] (napravo).

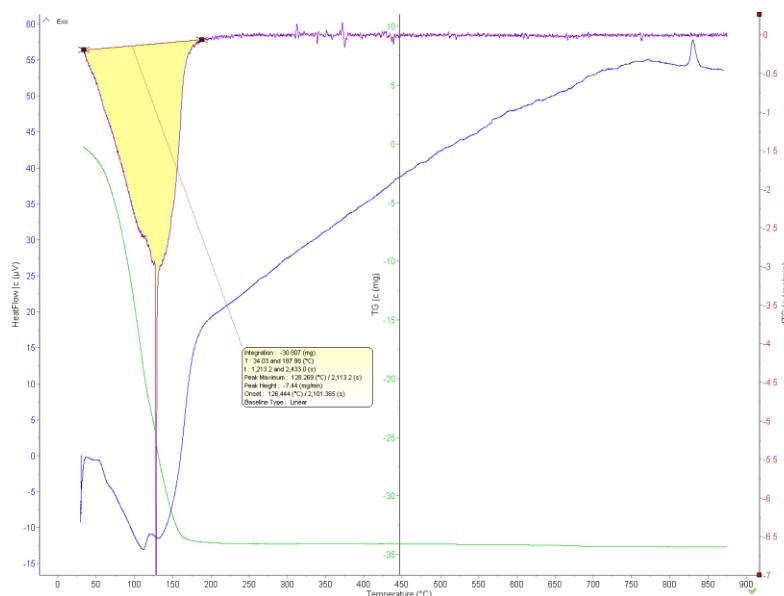
TG/DTA rovněž prokázala přítomnost $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a CaCO_3 . Syntéza v autoklávu se nepodařila.

Další syntéza C-S-H byla provedena v rukavicovém boxu za laboratorní teploty v inertní atmosféře podle [5]. Byl získán 1 vzorek CSH. Hodnota měrného povrchu vzorku byla $9 \pm 1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$. Provedená XRD analýza prokázala úspěšnost syntézy (viz Obr. 5). Vzorek obsahoval některé modifikace C-S-H, $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a CaCO_3 nebyly identifikovány.



Obr. 5: XRD analýza vzorku CSH a spektra identifikovaných sloučenin (nalevo). XRD analýza krystalické C-S-H (CCSH) a amorfní C-S-H (ACSH), převzato z [8] (napravo).

Při provedení TG/DTA bylo pozorováno pouze odpaření vody a potvrzena absence Ca(OH)_2 a CaCO_3 ve vzorku (Obr. 6).



Obr. 6: TG/DTA vzorku CSH

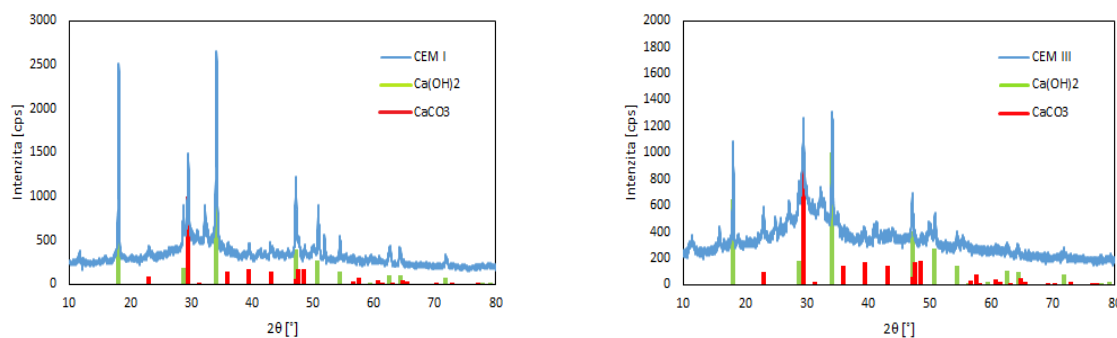
2.7. SORPCE STRONCIA NA HYDRATOVANÉ CEMENTOVÉ PASTY

Byly studovány sorpční vlastnosti kationtů Sr^{2+} na HCP. Byl použit izotop ^{85}Sr (poločas rozpadu cca 65 d) a 2 typy HCP: CEM I 42,5 (portlandský cement, součást betonu používaného v ÚJV Řež, a.s. při nakládání se solidifikovanými odpady) a CEM III B/32,5 (vysokopecní síranuvzdorný cement, součást betonu používaného v úložišti Richard). Metodika sorpce byla navržena v práci [9]. Před provedením sorpčních experimentů bylo provedeno stanovení měrných povrchů (Tab. 1), XRD analýza (Obr. 7) a TG/DTA daných HCP. V obou HCP byly identifikovány Ca(OH)_2 a CaCO_3 .

Tab. 1: Hodnoty měrného povrchu HCP

| Vzorek | $S_m \pm s$ [$\text{m}^2 \text{g}^{-1}$] |
|---------|--------------------------------------------|
| CEM I | 11 ± 1 |
| CEM III | 22 ± 1 |

Hodnota S_m pro CEM I byla téměř dvakrát menší než S_m pro CEM III.



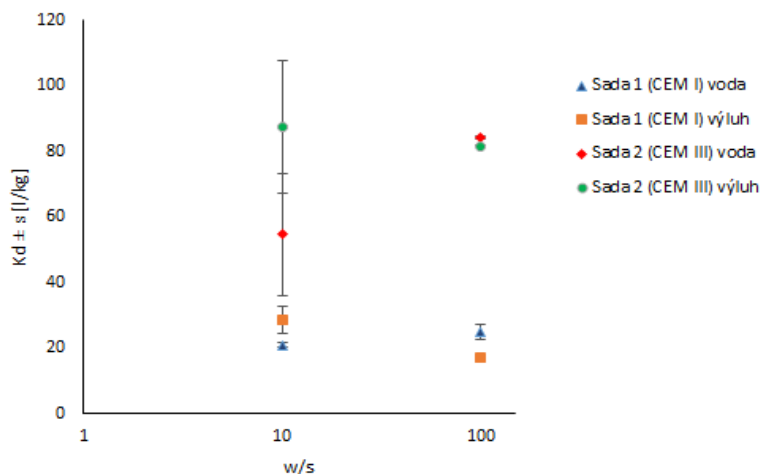
Obr. 7: XRD analýza HCP typu CEM I (nalevo) a CEM III (napravo).

Byl sledován vliv různých faktorů na sorpci: poměru w/s (poměr hmotnosti kapalně fázi ku hmotnosti pevné fáze; byly připraveny vzorky s poměrem w/s 10 a 100 $l\ kg^{-1}$), složení kapalně fáze (demineralizovaná voda a cementový výluh) a typu HCP. Výluh byl připraven v poměru fází w/s shodným s poměrem použitým pro experiment, tedy 10 a 100. Přehledný seznam vzorků a použitých materiálů obsahuje Tab. 2.

Tab. 2: Použité materiály a výsledky sorpčních experimentů

| Sada | Kap. fáze | w/s | $K_d [l\ kg^{-1}] \pm s$ |
|---------|------------------|-------|--------------------------|
| CEM I | H ₂ O | 10 | 21 ± 1 |
| | | 100 | 25 ± 2 |
| | Výluh | 10 | 29 ± 4 |
| | | 100 | 17 ± 1 |
| CEM III | H ₂ O | 10 | 55 ± 19 |
| | | 100 | 84 ± 0 |
| | Výluh | 10 | 87 ± 20 |
| | | 100 | 81 ± 1 |

Experiment byl vyhodnocen pomocí distribučního koeficientu K_d (Obr. 8).



Obr. 8: Závislost hodnot K_d na poměru w/s a jejich směrodatné odchylky

Největší vliv na sorpci strontnatých kationtů, pravděpodobně kvůli rozdílným hodnotám měrného povrchu (viz Tab. 1), měl druh použité HCP.

3. ZÁVĚR

Cílem práce byl popis obecných vlastností cementových materiálů s ohledem na jejich využití v hlubinném úložišti radioaktivních odpadů a vyhořelého jaderného paliva. Část práce byla věnována vlastnostem minerální C-S-H fáze, která hraje důležitou roli při sorpci kationtů kovů na cementové materiály. Jednotlivé kapitoly zohledňovaly projekt budoucího hlubinného úložiště v ČR a stručný popis konceptu KBS-3V, na němž je tento projekt založen. V rámci práce byla provedena úspěšná syntéza C-S-H fáze v laboratorních podmínkách a sorpční experimenty, které byly vyhodnoceny pomocí distribučního koeficientu K_d . Výsledky experimentů ukázaly, že sorpce stroncia na CEM I proběhla v podstatně menší míře než na CEM III, pravděpodobně v důsledku velkého rozdílu hodnot měrného povrchu. Jiné faktory (poměr w/s , druh kapalně fáze) příliš neovlivnily výsledky experimentu.

V návaznosti na úspěšnou přípravu C-S-H fáze budou provedeny další experimenty.

PODĚKOVÁNÍ

Děkuji Ing. Barboře Drtinové, Ph.D. za vedení práce a pomoc při vypracování tohoto příspěvku, Ing. Janě Kittnerové za čas, vstřícnost a trpělivost při vypracování této práce, Ing. Janu Bártovi, Ph.D. za pomoc a ochotu při experimentech, a všem ostatním, kteří přispěli radou či pomocí.

LITERATURA

- [1] Večerník P., Drtinová B., Adam R., Baborová L., Brázda L., Filipská H., Havlová V., Kittnerová J., Kozempel J., Podojil A., Vopálka D., Zavadilová A. (2016): Transportní vlastnosti cementových materiálů. Technická zpráva č. 42/2016, SÚRAO, s. 103.
- [2] Filipská H., Adam R., Hofmanová E., Kozempel J., Štamberg K., Vlk M., Vopálka D. (2014): Interakce radia s cementovými materiály. Závěrečná zpráva v rámci plnění smlouvy o dílo mezi ČR – Správou úložišť radioaktivních odpadů a ČVUT – Fakultou jadernou a fyzikálně inženýrskou, s. 34.
- [3] Bazzoni A. (2014): Study of early hydration mechanisms of cement by means of electron microscopy. https://infoscience.epfl.ch/record/200217/files/EPFL_TH6296.pdf [pdf online 30.11.2018]
- [4] The Swedish nuclear fuel and waste management company, SKB (2011): Environmental Impact Statement. Interim storage, encapsulation and final disposal of spent nuclear fuel. https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/43/041/43041459.pdf?r=1&r=1 [pdf online 3.3.2019]
- [5] Tits J., Wieland E., Müller C., Landesman C., Bradbury M. (2006): Strontium binding by calcium silicate hydrates. *Journal of colloid and interface science*, 300, 78–87.
- [6] RNDr. Vojtěch Ullmann, AstroNuklFyzika, Jaderná a radiační fyzika. <http://www.astronuklfyzika.cz/JadRadFyzika3.htm> [online 20.11.2019]
- [7] Wang S., Peng X., Tao Z., Tang L., Zeng L. (2017): Influence of drying conditions on the contact-hardening behaviours of calcium silicate hydrate powder. *Construction and building materials*, 136, 467-470.
- [8] Zeng L., Yang L., Wang S., Yang K.: Synthesis and characterization of different crystalline calcium silicate hydrate: application for the removal of Aflatoxin B1 from aqueous solution. www.hindawi.com/journals/jnm/2014/431925/ [online 19.4.2019]
- [9] Kittnerová J. (2016): Sorpce stroncia na vybrané cementové materiály. Výzkumný úkol, Katedra jaderné chemie, FJFI ČVUT, s. 61.

Nakladatel: Česká nukleární společnost, z. s. (ČSVTS)
V Holešovickách 2
180 00 Praha 8
Jaderná energetika v pracích mladé generace - 2019

Rok vydání: 2020, 1. vydání

Forma vydání: vydáno pouze na CD-ROM

Materiály sestavil: Ing. Jitka Vojáčková

Příspěvky jednotlivých autorů nebyly textově ani jazykově upravovány.

ISBN 978-80-02-02895-6