

Vilniaus universitetas

Fizikos fakultetas

Bendrosios fizikos ir spektroskopijos katedra

Tomas Mirinavičius

**PERTVARKYTO Pu-Be ŠALTINIO NEUTRONŲ SRAUTO IR ENERGINIO
PASISKIRSTYMO ĮVERTINIMAS BEI KALIBRAVIMAS NAUDOJANT NEUTRONŲ
AKTYVACINĖS ANALIZĖS BEI MCNP6 MODELIAVIMO METODUS**

Pagrindinių studijų baigiamasis darbas

Energetikos fizikos studijų programa

Studentas

Tomas Mirinavičius

Darbo vadovas

dr. Rita Plukienė

Recenzentas

dr. Marina Konstantinova

Katedros vedėjas

prof. dr. (HP) Valdas Šablinskas

Vilnius 2017

Turinys

Išvadas.....	4
Darbo tikslas	5
Darbo uždaviniai	5
1. Literatūros apžvalga	6
1.1 Neutronų srauto charakterizavimas	6
1.2 Neutronų šaltiniai.....	6
1.3 Neutronų sąveika su medžiaga.....	9
1.4 Neutronų aktyvacinė analizė	11
1.5 Gama spektrometrija.....	14
1.6 Kompiuterinio modeliavimo metodai.....	19
2. Tyrimo metodika	20
3. Rezultatai	25
Išvados.....	31
Literatūra	34

Santrumpos

MCNP – Monte Karlo neutronų transporto programa (angl. Monte Carlo N-Particle transport code)

NAA – Neutronų aktyvacinė analizė (angl. Neutron Activation Analysis)

HPGe det. – švaraus germanio detektorius (angl. High Purity Germanium detector)

GEANT – dalelių sąveikos su medžiaga modeliavimo programa (angl. Geometry And Tracking)

Ivadas

Izotopinio (Pu-Be) neutronų šaltinio konteinerio kanalų medžiaginė sudėtis daro įtaką apšvitos neutronų srauto parametrams – neutronų energinam pasiskirstymui bei neutronų srauto intensyvumui. Tyrimo objektas - izotopinis (Pu-Be) neutronų šaltinis yra patalpintas apsauginiame konteineryje. Anksčiau kursinio darbo metu buvo ištirtos konteinerio konstrukcinės medžiagos – pakeistas centrinio kanalo vamzdis, parenkant neįtakojančias neutronų srauto medžiagas – švarus bepriemaišinis polietilenas, modeliuojant įvertinti pertvarkyto konteinerio neutronų srauto parametrai. Šiame darbe papildomai perdaryta neutronų šaltinių laikymo dėžutė: pozicionavimo, šaltinių atskyrimo (3 stacionarūs ir vienas mobilus neutronų šaltiniai) – srauto reguliavimo tikslais. Pasitelkus MCNP kompiuterinio modeliavimo įrankius įvertinti neutronų srauto parametrai esant skirtingoms šaltinių konfigūracijoms (tik stacionarūs šaltiniai arba stacionarūs šaltiniai ir mobilus šaltinis, tik mobilus šaltinis organinio stiklo dėžutėje).

Tokie konstrukciniai izotopinio Pu-Be neutronų šaltinio pertvarkymai pakeitė (biologinių, medžiagotyros, detektorių testavimo) bandinių apšvitos sąlygas. Siekiant sukurti optimalias apšvitos sąlygas būtina įvertinti neutronų srauto intensyvumą bei energinį pasiskirstymą bandinyje. Pasaulyje neutronų srauto charakterizavimas atliekamas pasitelkiant modeliavimo bei eksperimentinius NAA metodus.

Neutronų aktyvacinė analizė – analitinis metodas, kuris taikomas siekiant išsiaiškinti kiekybinę bandinių sudėtį, tačiau naudojant žinomos sudėties bandinius, galima spręsti atvirkštinį uždavinį – analizuoti neutronų srauto parametrus. Neutronų aktyvacinė analizė atliekama apšvitinant tiriamą bandinį neutronais iš atitinkamo neutronų šaltinio. Bandinio atomai sugeria neutronus, sudarydami radioaktyvius izotopus, kurie skildami skleidžia charakteringos energijos gama spinduliuotę. Naudojant gama detektorių, pagal spinduliuotės energiją ir intensyvumą galima kiekybiškai nustatyti bandinio sudėtį, bei apskaičiuoti, izotopinio neutronų šaltinio.

Šiame darbe atlikti neutronų aktyvacinės analizės eksperimentai naudojant izotopinį Pu-Be neutronų šaltinį ir skirtingas medžiagas bei atliktas apšvitos modeliavimas MCNP kodu siekiant charakterizuoti neutronų srauto parametrus. MCNP – JAV Los Alamos nacionalinėje laboratorijoje sukurta programinė įranga leidžia sumodeliuoti į tiriamą bandinį patenkančius neutronus. Tokiu būdu galima įvertinti realaus konteinerio charakteristikas bei charakterizuoti neutronų srautą esant pertvarkytai konteinerio konfigūracijai.

Darbo tikslas

Charakterizuoti izotopinio Pu-Be neutronų šaltinio parametrus bei apšvitos sąlygas centriniame bei šoniniuose neutronų konteinerio kanaluose.

Darbo uždaviniai

1. Suprojektuoti Pu-Be neutronų šaltinių laikymo dėžutę įgyvendinant šaltinių pozicionavimo centriniame kanale bei šaltinių atskyrimo (3 stacionarūs ir vienas mobilus neutronų šaltiniai) galimybes - srauto reguliavimo tikslais.
2. MCNP6 kodu sumodeliuoti neutronų srauto pasiskirstymą esant skirtingoms šaltinių konfigūracijoms (tik stacionarūs šaltiniai, stacionarūs šaltiniai ir mobilus šaltinis organinio stiklo dėžutėje) centriniame bei šoniniuose kanaluose.
3. Eksperimentiškai – neutronų aktyvacinės analizės metodu – nustatyti izotopinio neutronų šaltinio spinduliuotės intensyvumą bei energinį pasiskirstymą centriniame bei šoniniuose neutronų konteinerio kanaluose.

1. Literatūros apžvalga

1.1 Neutronų srauto charakterizavimas

Norint efektyviai bei saugiai naudoti neutronų šaltinį, būtinas tinkamas jo parametrų charakterizavimas. Izotopinių šaltinių spektras priklauso nuo neutronams gauti naudojamų izotopų, konteinerio medžiagų. Matuojant jonizuojančiąją spinduliuotę detektoriais, spektrui įtaką daro ir atstumas iki detektoriaus bei medžiagos, esančios tarp šaltinio ir detektoriaus. Plačiausiai naudojami izotopiniai neutronų šaltiniai yra izotopų mišiniai (išimtis – ^{252}Cf izotopas, naudojamas grynas, kadangi savaiminio dalijimosi metu spinduliuoja neutronus).

Kadangi neutronai – krūvio neturinčios ir Kuloniškai nesąveikaujančios dalelės, jos yra sunkiai tiesiogiai matuojamos. Dažnai, ypač medicininių neutronų šaltinių atvejais, atliekami kompiuteriniai modeliavimai, kurių pagalba galima tiksliai nustatyti neutronų srauto parametrus [1]. Taip pat pasitelkiama neutronų aktyvacinė analizė (NAA) – apšvitinant bandinius ir vėliau matuojant skilimo produktus galima nustatyti srauto intensyvumą bei energinį pasiskirstymą.

1.2 Neutronų šaltiniai

Jonizuojančioji spinduliuotė, paveikusi atomą, esant pakankamai energijai gali išlaisvinti atomo elektroną (elektronus), taip paversdama jį jonu. Keletas spinduliuočių vadinamos jonizuojančiomis dėl jų sukeltų efektų; tai gali būti α , β (dalelių), γ (elektromagnetinė) spinduliuotės, sunkieji jonai, dalijimosi produktai (skeveldros). α ir β yra tiesiogiai jonizuojančios, nes turi krūvį. Kita vertus, neutronų kuriami jonizacijos efektai nėra tiesioginiai dėl neutrono elektrinio neutralumo. Taigi, nors neutronų poveikį galima laikyti jonizuojančiuoju, reikia prisiminti, jog jonizacinį poveikį medžiagoje sukelia atsiradusios antrinės spinduliuotės, t.y. neutronų sąveikos su medžiaga padariniai.

Neutronai, sąveikaudami su medžiaga, sukelia skirtingas branduolines reakcijas, priklausančias nuo neutronų energijos. Pagal energijų spektrą neutronus glaustai galima klasifikuoti į:

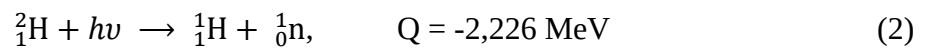
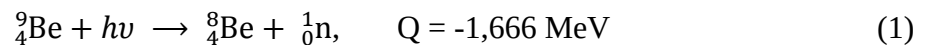
- Terminius ($E < 0.5 \text{ eV}$);
- Vidutinius ($0.5 \text{ eV} < E < 10 \text{ keV}$);
- Greituosius ($10 \text{ keV} < E < 10 \text{ MeV}$);
- Reliatyvistinius ($E > 10 \text{ MeV}$) [2].

Ši energija atitinkamai priklauso nuo neutrono „prigimties“ – atsiradimo iki sąveikos su medžiaga. Šią prigimtį galima suskirstyti į keturis laisvų neutronų atsiradimo būdus:

- Savaiminis (spontaninis) branduolių dalijimasis (izotopinis šaltinis);
- fotoneutronų šaltinis;
- greitintuvai arba neutronų generatoriai;
- $(\alpha, n)/(\gamma, n)$ radiozotopinis šaltinis [3].

Savaiminio branduolių dalijimosi šaltinis yra kone paprasčiausiai pasiekiamas neutronų šaltinis, kadangi nereikalingi jokie įrenginiai neutronų srautui kurti. Tokie šaltiniai – radioaktyvūs izotopai, skylant išspinduliuojantys vieną ar daugiau neutronų. Vienas plačiausiai naudojamų izotopų – ^{252}Cf . Izotopo $T_{1/2} = 2,645$ m., pagrindinis – alfa skilimas (96,91 % – α skilimas, 3,09 % – savaiminis dalijimasis [4]) [5]. Neutronų srautas – $2,314 \times 10^6 \text{ s}^{-1} \mu\text{g}^{-1}$ [4]. Neutronų energijos: didžiausia tikima energija – 0,7 MeV (spekto smailė – tarp 0,5 MeV ir 1 MeV, galimi ir sąlyginai reikšmingi kiekiai iki 10 MeV [3]), vidutinė – 2,1 MeV [4]. Pagrindinis tokių šaltinių privalumas – sąlyginai mažas dydis (pvz., naudojami šaltiniai gali būti apie 5 cm ilgio, 1 cm skersmens), masė – iki 50 mg, tačiau dauguma šaltinių naudoja μg eilės kiekį aktyvios medžiagos [4] [3]. Taigi, tokio šaltinio matmenys daugiausiai diktuoja reikiamo apvalkalo (indo) matmenys.

Fotoneutronų šaltiniai gaunami, kai tam tikras taikiny yra švitinamas gama-spindulio. Sugėręs reikiamos energijos gama kvantą, branduolys yra sužadinas ir yra išspinduliuojamas neutronas. Tik du izotopai – ^9Be ir ^2H – yra praktiškai reikšmingi fotoneutronų šaltiniai [3] [6]. Reto izotopinio gama spindulių šaltinio fotonai gali viršyti 3 MeV energijos barjerą, todėl tik reakcijos su beriliu ($Q = -1,666$ MeV) ir deuteriu (2,225 MeV) yra įvertinamos [6]. Reakcijos šiems izotopams (kuriant fotoneutronus) yra:



[3]. $(-)Q$ – minimali energija, kurią turi turėti fotonas, kad, pagautas branduolio, sukeltų neutrono išspinduliavimą. Tokio šaltinio privalumas – gaunamas monoerginis neutronų srautas, kadangi jam gauti naudojama monoenerginė gama spinduliuotė.

Dar vienas galimas neutronų šaltinis – jonų greitintuvas. Greitintuvai naudoja elektromagnetinius (kartais – elektrostatinius) laukus įgreitinti ir nukreipti krūvį turinčių dalelių srautą. Norint dalelių

greitintuvu gauti neutronų srautą, naudojami lengvų atomų jonai – pvz., H, D, T, Li, Be. Galimų reakcijų pvz.:

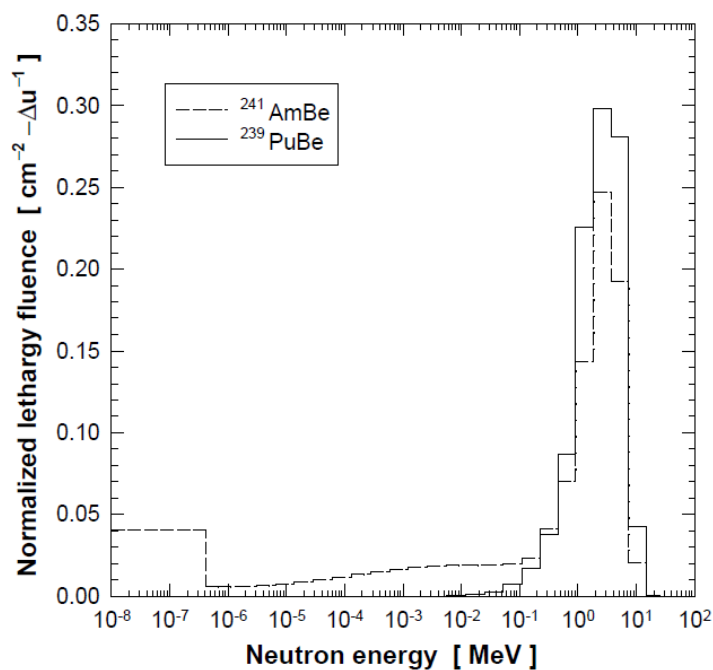
- $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{Be}$, $Q = 4,36 \text{ MeV}$,
- $^7\text{Li}(d,n)^8\text{Be}$, $Q = 15,03 \text{ MeV}$
- $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$
- $^7\text{Be}(p,n)^7\text{B}$ [7].

Tačiau (pagal [3]) plačiausiai naudojamos reakcijos yra

$$\text{D}(d,n)^3\text{He}, \text{ kur } Q = 3,26 \text{ MeV} \quad (3) \text{ bei}$$

$$\text{D}(t,n)^4\text{He}, \text{ kur } Q = 17,6 \text{ MeV} \quad (4).$$

Šioms reakcijoms reikalingi mažesni (100-300 kV) potencialai, taigi jos gali būti gaunamos ir mažesniais greitintuvais – neutronų generatoriais [3]. Tokio šaltinio (pvz. geofizinių tyrimų įrenginyje naudojamas neutronų generatorius) aktyvumas yra $\sim 100 \text{ kBq}$, neutronų srautas 10^8 n/s . Neutronų generatorius veikia impulsiniu režimu. Pagal (3) ir (4) reakcijas, sukurti neutronai dažniausiai bus didesnių energijų (greitieji). Greitintuvų privalumas – šaltinis gali būti išjungiamas, kai neutronų srautas nereikalingas, arba naudojamas impulsais [6].



Pav. 1 Skirtingų (Am-Be ir Pu-Be) šaltinių neutronų energijos ir srauto palyginimas (horizontalioji ašis – neutronų energija, MeV; vertikalioji ašis – normuotas neutronų įtekis letargijos intervalui) [8].

Sąlyginai paprastas pagaminti ir prižiūrėti yra izotopinis neutronų šaltinis. Toks šaltinis panašus į spontaninio dalijimosi (pvz., ^{252}Cf) šaltinius, tačiau šiuo atveju naudojamas alfa arba gama spinduočiai kartu su lengvo elemento taikiniu, kur taikinyje sugerta spinduliuotė gali išlaisvinti neutroną (tai (α, n) bei (γ, n) reakcijos). Taigi, toks šaltinis yra aktyvacinis, komplektuojamas kaip mišinys hermetiškame inde arba metalų lydinys. Alfa spinduliais gali būti ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{226}Ra , ^{227}Ac (skylant pastariesiems dviems izotopams susidaro nemažai dukterinių izotopų, kurie nors ir gali būti papildomais alfa šaltiniais, taip pat sukuria stiprų gama spindulių foną). 1 pav. pavaizduotas dviejų skirtingų izotopinių neutronų šaltinių (Am-Be ir Pu-Be) neutronų srautų spektrų palyginimas.

1.3 Neutronų sąveika su medžiaga

Iš galimų lengvųjų branduolių (pvz. B, F, Li), berilis yra naudojamas dažniausiai (didelis reakcijos skerspjūvis) [6]. Todėl



reakcija yra labiausiai tikėtina. Didžiausia neutrono energija gaunama, kai neutronas išleikia ta pačia kryptimi, kaip ir reakciją sukėlusį alfa dalelę, pataikiusi į branduolį. Dažniausia alfa spindulių alfa dalelės energija yra maždaug 5,5 MeV. Taigi, maksimali energija bus

$$E_\alpha + Q = 5,5 \text{ MeV} + 5,7 \text{ MeV} = 11,2 \text{ MeV} \quad (6).$$

Tačiau nors čia 11,2 MeV yra neutrono ir kinetinės ^{12}C branduolio energijų suma, neutronas turi beveik visą dalį šios energijos (nes neutronas žymiai lengvesnis už ^{12}C branduolį), taigi maksimali energija vis tiek bus maždaug 11 MeV. Jei neutronas išleikia priešinga kryptimi, nei alfa dalelės, jo energija bus apie 6 MeV. Energijos spektras gali pasiskirstyti platesniame intervale, nes:

- Alfa dalelė, išlėkusi iš spindulio, gali prarasti skirtingus energijos kiekius prieš pasiekdama taikinį ir sukeldama reakciją (taigi, alfa dalelės energija gali kisti nuo 0 MeV iki ~5,5 MeV);
- Kinta kampas tarp alfa dalelės krypties ir neutrono krypties po reakcijos, taigi kinta ir jo energija;
- ^{12}C po reakcijos gali likti sužadinta, todėl išlėkusio neutrono energija gali būti mažesnė.

Tačiau didesniuose šaltiniuose prie spektro pasiskirstymą darančių įtaką aplinkybių prisideda ir:

- Neutronų sklaida šaltinio viduje;

- (n,2n) reakcijos berilyje;
- (n,dalijimosi) reakcijos alfa spindulyje (aktinoide) [3].

Taigi, vienu iš aptartų metodų išlaisvintas neutronas laboratorinėmis sąlygomis (išskyrus didžiųjų greitintuvų vakuumą) kontaktuoja su medžiaga, ir nors neutroninė spinduliuotė yra itin skvarbi, tik kai kurios reakcijos turi reikšmingus skerspjūvius. Taip yra todėl, jog laisvas neutronas gali egzistuoti (prieš skildamas) šiek tiek daugiau, nei 10 min., t.y. per šį laiko tarpą ne vakuume esantis neutronas būtinai sąveikaus su medžiaga. Neutronas skyla į protoną, elektroną ir antineutrino. Kadangi neutronai neturi krūvio, sąveikaujant su medžiagos atomais yra neveikiami Kulono jėgų, ir galimi šie trys procesai:

- Tamprioji sklaida;
- Netamprioji sklaida;
- Neutrono sugertis.

Šių reakcijų tikimybės priklauso nuo neutrono energijos, ir kuo ji didesnė, tuo neutrono pagava yra mažiau tikėtina (pvz. (n,α) ir kitos reakcijos turi slenkstines vertes). Taigi norint apsisaugoti nuo neutronų spinduliuotės ar ją detektuoti (ne neutronų detektoriais, o matuojant neutronus sugėrusių branduolių spinduliuotes), neutronai yra lėtinami, kol, pasiekus terminę energiją, gali būti sugeriami.

Tamprioji sklaida yra tiesioginis neutrono ir branduolio susidūrimas, po kurio branduolio vidinė energija nesikeičia, t.y., pakinta tik susidūrusių dalelių kinetinės energijos – neutronas dalį energijos perduoda branduoliui. Tokią sąveiką galima aprašyti

$$E_b = \alpha \cdot E_n \cdot \cos^2 \varphi \quad (7)$$

lygtimi. Čia E_n – neutrono energija, E_b – atatrakos branduolio energija, o $\alpha = \frac{4A}{(A+1)^2}$. Branduolio atatrakos energija mažėja, didėjant A. Maksimali energija gaunama, kai atatrakos kampas $\varphi=0$, o susiduriama su protonu, t.y. $A=1$. Tuomet galima daryti išvadą, jog minėtam neutronų lėtinimui labiausiai tinka maži branduoliai (iš kurių vienas dažniausiai naudojamų – berilis) arba molekulės, pvz., vanduo.

Netamprioji sklaida, kitaip nei tampriosios sklaidos atveju, neutronui pataikius į branduolį keičia jo vidinę energiją – jį sužadina. Yra tam tikras energijos slenkstis – pirmosios branduolio sužadintos

būsenos energija, kurią neutronas turi viršyti, kad sužadintų minėtąjį branduolį. Kai branduolys sužadinamas, jis išspinduliuoja gama kvantą (arba sunkesnę dalelę) ir vėl grįžta į pagrindinę būseną.

Neutrono sugertis, dar vadinama neutrono pagava, dažniausiai vyksta su terminiais neutronais. Sugertis gali vykti keliomis galimomis reakcijomis: (n,γ) , $(n,\text{dalijimosi})$, (n,α) , (n,p) , $(n,2n)$. Kai kurios šios reakcijos turi energinį slenkstį. Vykstant $(n,\text{dalijimosi})$ reakcijai branduolys, pagavęs neutroną, skyla į skeveldras, išlaisvindamas didžiulį energijos kiekį (didžioji šios energijos dalis virsta kinetine skeveldrų energija) ir kelis (dažniausiai 2-3) neutronus. Šie neutronai vėl gali būti pagauti ir sukelti dalijimosi reakciją kituose branduoliuose. Tokios reakcijos yra esminis branduolinės energijos panaudojimo mechanizmas.

(n,γ) reakcijos dažniausiai naudojamos moksliniuose tyrimuose, tačiau taip pat naudojamos ir elementų transmutavimui, taigi ir kai kuriuose (pvz., „breeder“¹) reaktoriuose, kadangi šių reakcijų metu branduolys, pagavęs neutroną, išspinduliuoja tik gama kvantą – sukuriamas naujas branduolio izotopas. Tokia reakcija dažnai naudojama bandinių kokybinės sudėties analizei, dar vadinamai neutronų aktyvacine analize.

1.4 Neutronų aktyvacinė analizė

Neutronų aktyvacinė analizė naudojama medžiagų kokybinėje analizėje. Įvykus eutrono pagavai branduolyje, naujai susidaręs izotopas būna sužadintas ir, priklausomai nuo izotopo, gali relaksuoti išspinduliuodamas gama kvantą. Kiekvienas dėl pagauto neutrono naujai susidaręs izotopas turi unikalų pusamžį bei gama spindulių energijas, pagal kurias nustatomi pirminiai, neutroną pagavę, branduoliai. Pagal branduolių aktyvumą nustatomas medžiagos kiekis. Pagal tai, kiek laiko po pagavos praeina, kol izotopai relaksuoja ar skyla, analizę galima skirstyti į

- Momentinių gama spindulių neutronų aktyvacinę analizę (angl. *Prompt gamma-ray neutron activation analysis*), ir
- Vėluojančių gama spindulių neutronų aktyvacinę analizę (angl. *Delayed gamma-ray neutron activation analysis*) [9].

¹ Angl. Breeder reactor – reaktorius, kuriame reaktoriaus neutronų srautas naudojamas apšvitinti nedalų kurą (pvz. ²³²Th) paverčiant jį dalium (pvz. ²³³U).

Pirmuoju atveju, neutronus pagavę branduoliai turi itin trumpus pusamžius ir pradeda relaksuoti ir/ar skilti, spinduliuodami gama kvantus iškart po reakcijos. Tokiu atveju detektuoti gama spindulius reikia tuo pačiu metu, kai vykdoma neutroninė apšvita. Tokią metodiką geriausia naudoti elementams, kurių neutronų pagavos skerspjūvis itin didelis, pvz. B, Cd, Sm, Gd, lengviems elementams, arba tokiems, kurių gama spinduliuotės intensyvumas mažas [9].

Antruoju atveju, gauti izotopai pradeda skilti vėliau. Šis matavimo būdas įgyvendinamas paprasčiau, nes, priklausomai nuo izotopo pusamžio, skirtingu metu matomi įvairūs izotopai. Tam nereikia papildomos ekranuojančios įrangos apsisaugoti nuo trumpaamžių konstrukcinių elementų aktyvacijos, paprastesnė gama spektrų analizė. Per pasirinktą apšvitos laiką apšvitinus bandinį, bandinys perkeltas iš neutronų šaltinio prie gama detektoriaus. Tuomet atliekami gama spinduliuotės matavimai. Pagrindinis trūkumas – bandinyje esant didelio intensyvumo gama spinduliui, gali būti neregistruojami mažesnio intensyvumo elementai, tačiau palaukus tiek, kad šie (itin aktyvūs) izotopai galutinai suskils ir jų spinduliuotės intensyvumas sumažės ir nebeužgoš minėtųjų silpnesnio intensyvumo izotopų, galima sėkmingai išmatuoti reikiamus, ilgaamžiškesnius izotopus.

Kadangi šiame darbe naudojama vėluojančių gama spindulių aktyvacinė analizė (toliau – NAA), aptariama plačiau. NAA tyrimo metu bandinys apšvitinamas neutronų šaltiniu ir kaip įmanoma greičiau yra perkeltas iš apšvitinimo kanalo į gama spindulių detektorius. Kokybiškai bandinyje esančius elementus naudojant NAA apibūdina spinduliuojamų gama kvantų energija E_γ ir spinduliuojančio izotopo pusamžis $T_{1/2}$. Kiekybiškai izotopus apibūdina gama spinduliuotės intensyvumas I_γ (detektuotų gama kvantų skaičius per tam tikrą laiko tarpą).

Naudojant neutronų aktyvacinę analizę:

- kokybiškai įvertinama bandinio sudėtis daugeliui elementų vienu metu (skirtingai nei įvairios cheminės analizės);
- tai nedestruktyvus tyrimas – jį atlikus, bandinys nesuardomas, taigi išlieka galimybė bandinį apdoroti chemiškai ir tirti kitais metodais;
- natūraliai gausiai paplitę elementai (tokie kaip H, C, N, O) neįtraukiami NAA², taigi gali būti naudojami bandinių matricių/konteinerių sudėtyje;
- dėl gama spindulių medžiaginės skvarbos analizei galima naudoti ir sąlyginai nemažus bandinius.

² Šie elementai, kai sužadinti, skyla β spinduliuote, labai greitai pereina į stabilų branduolį, nespėjant užregistruoti jų γ linijų, arba jų γ linijos persikloja su kitomis bandinyje sužadintų elementų linijomis.

Bandiniui esant greitųjų neutronų sraute yra didesnė tikimybė, kad aktyvacija vyks (n,n), (n,2n), (n,p), (n, α), (n,f) reakcijų metu. Šiluminių neutronų sraute aktyvacija (n, γ) procesų metu tipiška yra proporcinga 1/v. Problemų interpretuojant NAA rezultatus gali kilti, jeigu bandinyje yra keli izotopai, aktyvacijos metu nulemiantys to paties dukterinio izotopo susidarymą skirtingų reakcijų kanalais. Dažnai tokių nepageidaujamų reakcijų skerspjūviai ties greitų neutronų energijomis yra gerokai mažesni, nei ties lėtų neutronų energijomis. Taip pat į (trukdžių ir antrinių reakcijų) interferenciją atsižvelgti reikia tik tuomet, kai interferuojančio elemento kiekis bandinyje daug didesnis, nei dominančio elemento [10].

Bandinyje esant N stabilaus izotopo branduolių, vykstant (n, γ) reakcijai jo produkto branduolių pastovaus formavimosi sparta bus $N\phi\sigma$. Jei šis produktas – radioaktyvus izotopas, jo branduoliai bandinyje dalinsis λN^* sparta, čia λ – šio izotopo skilimo konstanta, N^* – šio radioaktyvaus izotopo branduolių skaičius bet kuriuo metu. Taigi, bet kuriuo metu, esant stabiliai bandinio apšvitai, tokių radioaktyvių produkto branduolių kūrimo sparta dN^*/dt bus lygi $N\phi\sigma - \lambda N^*$. Integravus šią lygtį gaunama paprasta NAA lygtis:

$$A_0 = -(dN^*/dt)_0 = N\phi\sigma(1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (8).$$

Čia t_i – apšvitos trukmė, A_0 – produkto radioizotopo aktyvumas (bekereliais, Bq) iškart po apšvitos; skilimo konstanta λ yra lygi $\ln 2/T$, arba $0.69315/T$, kur T yra izotopo pusamžis. Lygtis (8) tinka visiems izotopams bandinyje, sukurtiems (n, γ) reakcijos. $(1 - e^{-\lambda t_i})$ išraiška (8) lygtyje apibūdina svarbų parametą neutronų aktyvacinėje analizėje – soties faktorių S . Tai bedimensinis dydis, galintis įgyti reikšmes nuo 0 iki 1: 0 reiškia jokios bandinio apšvitos (arba labai trumpą apšvitą, lygintiną su pusamžiu T); 1 reiškia be galo ilgą apšvitą, ar bent tokią apšvitą, kad $t_i \gg T$. Pvz. jei $t_i = 10T$, $S=0.999$ [11]. Taip pat aktyvumą po apšvitos galima skaičiuoti lygtimi

$$A_0 = \frac{\sigma m N_A \phi \alpha S}{M} \quad (9),$$

čia m – bandinio masė, M – atominė masė, N_A – Avogadro skaičius, α – taikinio izotopo gamtinio pasiskirstymo dalis (pvz. bandinyje esant vario, vykstant reakcijai $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$, α bus lygu 0,69 kadangi 69% vario gamtoje sudaro ^{63}Cu izotopas), S – soties faktorius [12].

Bandinių tyrimams taikant neutronų aktyvacinę analizę svarbus parametras – reakcijos sparta (angl. *Reaction Rate*, žym. RR). Neutronų srautui apibūdinti naudojamas neutronų įtekis (angl. *Fluence*, žym. Φ). Tai neutronų srautas ϕ , integruotas laike (matavimo vienetai cm^{-2}):

$$\Phi = \int \varphi(t)dt \quad (10).$$

Žinant neutronų srautą φ bei reakcijų skerspjūvius σ galima apskaičiuoti reakcijų spartą. Reakcijų sparta RR (matuojama $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$):

$$RR = N\sigma = \varphi(N\sigma) = \varphi\Sigma \quad (11),$$

čia N – neutronų skaičius, Σ – makroskopinis reakcijos skerspjūvis (visų taikinio branduolių efektinis plotas, cm^{-1}). Norint žinoti reakcijų skaičių per sekundę, RR reikia dauginti iš tūrio, kuriame vyksta reakcijos. Reakcijų skaičių N_r galima apskaičiuoti panaudojus neutronų įtekį vietoje neutronų srauto [13]:

$$N_r = \Sigma \Phi \quad (12).$$

Medžiagos, naudojamos sąveikai su neutronais, turi būti kiek įmanoma švaresnės (kuo mažiau priemaišų) ir parenkamos atsižvelgiant į neutronų sąveikos skerspjūvius. Norint lėtinti neutronus, naudojami lengvi elementai ar junginiai (pvz., vanduo). Uždaruose šaltiniuose (pvz. ^{252}Cf) parenkamos tokios medžiagos, kurios neutronų srautui daro kiek įmanoma mažiau įtakos, tačiau sulaiko alfa ir gama spinduliuotes, kad šios nepatektų į aplinką iš šaltinio konteinerio. Izotopiniuose šaltiniuose (Pu-Be, Am-Be, Ra-Be ir kt.) reikia, kad iš alfa spindulio (aktinoido) alfa dalelės pasiektų taikinį (Be), taigi tokie šaltiniai dažnai būna patalpinami taip, kad būtų apgaubti taikinio medžiagos. Atitinkamai, izotopinis šaltinis turi būti apsaugotas, kad spinduliuotė nekenktų aplinkai. Toks sudėtinis šaltinis yra patalpinamas į konteinerius, šulinius, kuriuose naudojami jonizuojančiąją spinduliuotę sugeriančių medžiagų sluoksniai, o pats konteineris uždengiamas švinu.

1.5 Gama spektrometrija

Identifikuoti bandinyje susidariusius radioizotopus neutronų aktyvacinėje analizėje naudojama gama spektroskopija. Gama spektrometras detektuoja gama kvantus, spinduliuojamus bandinyje esančių sužadintų elementų. Gaunamas gama spinduliuotės spektras: sugerties smailių aukštis proporcingas izotopo aktyvumui, o jų išsidėstymas ant X ašies atitinka spinduliuotės energiją. Neutronų aktyvacinėje analizėje gama spektrometrijai gali būti naudojami ir blyksimieji, ir puslaidininkiniai gama detektoriai.

Blyksimieji gama detektoriai veikia tokiu principu: jonizuojančioji spinduliuotė darbinėje detektoriaus medžiagoje išlaisvina elektronus, kurie sugeriami ir sukelia švytėjimą, blyksnius (liuminescencija).

Medžiagos, pasižyminčios šia savybe, vadinamos liuminoforais. Tuomet blyksnio fotonai patenka į fotokatodą, kuriame išmušami fotoelektronai. Šie elektronai patenka į fotodaugintuvą, kuriame sukuriama elektronų nukreipiantis elektrinis laukas. Elektriniu lauku elektronų srautas kreipiamas į dinodus – šių medžiaga tokia, kad pataikę elektronai sukelia antrinių elektronų emisiją. Fotodaugintuve esantys keletas dinodų sustiprina elektronų srautą keliomis eilėmis. Tuomet šis sustiprintas srautas patenka į anodą, kur varžoje sukuriama įtampa ir taip registruojamas signalas.

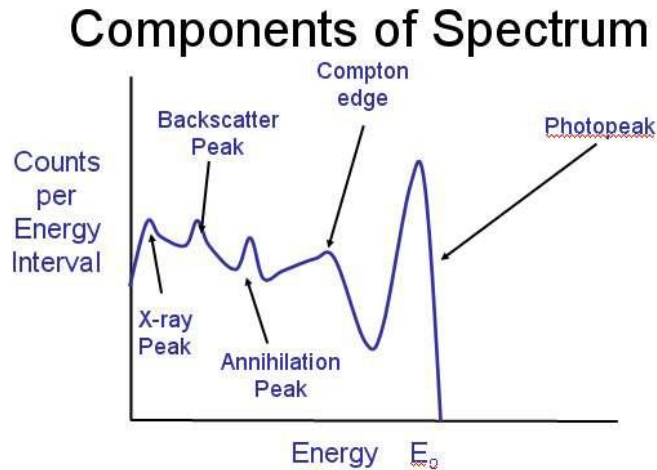
Puslaidininkinis gama detektorius taip pat negali detektuoti gama spinduliuotės tiesiogiai. Jame taip pat gama kvantai turi išlaisvinti antrinius elektronus, kurie gali būti detektuojami. Tam, kad kuo daugiau šių elektronų būtų detektuojama, detektoriaus matmenys turi būti daug didesni už didžiausios energijos elektronų siekius medžiagoje.

Skirtingų energijų gama kvantai gali sukelti skirtingas sąveikas su medžiaga:

- Esant mažai gama kvanto energijai, iki kelių šimtų keV, vyrauja fotoefektas (gama kvantas sugeriamas, išspinduliuojamas elektronas: $E = hf - \epsilon_r$, čia ϵ_r – išlaisvinto elektrono ryšio energija atome).
- Ties aukštesne, tarpine energija, iki kelių MeV, pasireiškia Komptono sklaida (gama kvantas smūgiu perduoda dalį energijos, išlaisvindamas elektroną. Kvantas sklaidomas kampu Θ . Jei elektroną traktuosime kaip bangą, kurios ilgis λ , Komptono sklaidą galima aprašyti: $(\lambda - \lambda_0) = \frac{h}{mc} (1 - \cos \Theta)$, kur $E_\gamma = hf = \frac{hc}{\lambda}$).
- Kai gama kvanto energija siekia 5-10 MeV ir daugiau, vyrauja elektrono ir pozitrono porų kūrimas (gama kvantas išnyksta sukurdamas elektroną ir pozitroną, tačiau pozitronas anihiliuoja su medžiagos elektronu, ir abu išnykdami virsta fotonais. Ši sąveika galima tik kai gama kvanto energija viršija $2m_0c^2 = 1,02$ MeV. Tuomet elektrono ir pozitrono energijų suma bus $E_+ + E_- = hf - 2m_0c^2$).

Šių sąveikų tikimybė (vienos kitų atžvilgiu) priklauso nuo atomo Z , o fotoefekto tiesiog proporcinga Z^5 . Fotoefekto metu gama kvantas yra sugeriamas, ir išspinduliuojamas elektronas. Tačiau Komptono sklaidos ir porų kūrimo atveju atsiranda ir antrinė gama spinduliuotė. Ši antrinė spinduliuotė atitinkamai gali išlaisvinti daugiau elektronų. Kadangi ir krentantieji į medžiagą, ir antriniai gama kvantai juda šviesos greičiu, laikas nuo pirmo gama kvanto pataikymo į medžiagą iki paskutinio antrinio gama kvanto sugėrimo daug mažesnis už detektoriaus atsako trukmę. Tačiau pilnutinė antrinių elektronų energija proporcinga į medžiagą pataikiusio pirminio gama kvanto energijai. Idealiu atveju,

visa ši energija lieka detektoriuje, ir detektoriaus atsako funkcijoje gaunama visiškos sugerties smailė. Realiau atveju, gama kvantams krentant į detektoriaus darbinės medžiagos paviršių, dėl porų kūrimo ir Komptono sklaidos antriniai elektronai ir gama kvantai gali išlėkti iš detektoriaus [14].



Pav. 2 Gama spektro komponentai. Horizontali ašis: energija; vertikali ašis: detektuotų dalelių skaičius energijos intervale [15].

Pav. 2 pavaizduota pavyzdinė galima realaus detektoriaus atsako funkcija. Čia matoma:

- (Charakteringosios) Rentgeno spinduliuotės smailė (angl. *X-ray peak*) – matoma, kai jonizuoto atomo elektronai peršoka į žemesnį lygmenį užpildydami vakansiją ir spinduliuoja Rentgeno spindulius.
- Atgalinės sklaidos smailė (angl. *Backscatter peak*) – gama kvantas gali būti sklaidomas maždaug 180° kampu detektoriaus arba šaltinio korpuse ir vis tiek būti detektuojamas.
- Anihiliacijos smailė (angl. *Anihilation peak*) – gama kvantai, atsiradę anihiliuojant pozitronui su elektronu.
- Komptono sklaidos kraštas (angl. *Compton edge*) – matoma, kai sklaidos kampas $\Theta=180^\circ$, o išsklaidytas Komptono sklaidas gama kvantas išlekia iš detektoriaus.
- Fotoefekto smailė (angl. *Photopeak*).

Paprastai HPGe (didelio grynumo germanio, angl. *High Purity Germanium*) spektroskopijos sistema susideda iš HPGe detektoriaus, aukštos įtampos šaltinio, priešstiprintuvio, stiprintuvo, signalo keitiklio (analoginio į skaitmeninį, angl. *Analogue to Digital Converter – ADC*) ir daugiakanalio analizatoriaus. Sistema veikia tokiais žingsniais: fotonas sąveikauja su detektoriaus darbine medžiaga (kristalu), išlaisvinami elektronai; prijungta įtampa nukreipia elektronus kristale; elektronų kuriama srovė suformuoja signalo impulsą; impulsas sustiprinamas priešstiprintuvio; impulsas toliau stiprinamas ir

formuojamas stiprintuvu; impulso intensyvumas paverčiamas skaitine verte naudojant signalo keitiklį; skaitinės vertės siunčiamos į daugiakanalį analizatorių. Tam, kad vizualiai pateikti ir analizuoti gautą spektrą dažniausiai naudojamas kompiuteris.

Detektoriaus naudingumas ε nusako santykį tarp įvykių detektoriuje N ir šaltinio išspinduliuotų gama kvantų skaičiaus A :

$$\varepsilon = \frac{N}{A} \quad (13).$$

Yra keli naudingumo (efektyvumo) apibrėžimai:

- Absoliutus: detektoriaus registruotų impulsų ir šaltinio išspinduliuotų gama kvantų santykis;
- Būdingasis (angl. *Intrinsic efficiency*): detektoriaus registruotų impulsų ir gama kvantų, pataikiusių į detektorius, santykis;
- Lyginamasis (angl. *Relative efficiency*): HPGe detektorius lyginamas su blyksimuoju NaI(Tl), 3×3 colių detektoriumi, 25 cm atstumu nuo šaltinio iki detektoriaus, esant 1,33 MeV kvantų energijai (lyginant jų fotoefekto, arba pilnos energijos, smailes);
- Pilnos energijos smailės (angl. *Full-energy Peak/Photopeak efficiency*): detektoriaus naudingumas kuriant tik pilnos energijos (fotoefekto) smailes.

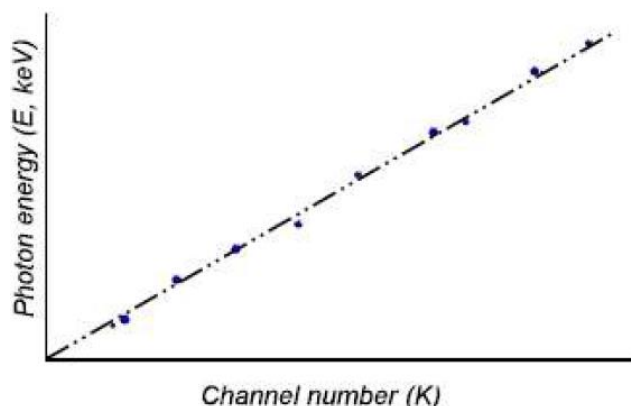
Detektoriaus naudingumas priklauso nuo jo dydžio, matuojamos spinduliuotės kvantų energijos bei korpuso medžiagų. Paprastai kuo detektoriaus darbinė medžiaga didesnė, tuo daugiau kvantų bus sugerta, tačiau taip pat išauga ir jo kaina. Naudingumas mažėja, didėjant spinduliuotės energijai (tiesiog proporcinga $E_\gamma^{-0,5}$), o didžiausias yra ties energijomis, kai pasireiškia fotoefektas. Detektorius laikomas vakuume, žemoje temperatūroje. Korpusas paprastai būna plienas (dėl tvirtumo). Detektuojamos spinduliuotės apatinė energinės skyros riba yra maždaug 80 keV, tačiau galima pasiekti ir 30 keV ribą vietoje plieno korpusui naudojant aliuminį bei detektoriaus angai naudojant berilį.

Gama spinduliuotės detektoriaus kalibracija susideda iš trijų žingsnių:

1. energinė kalibracija (E = kanalo numerio funkcija);
2. efektyvumo kreivės nustatymas ($\ln(\text{eff}) = \ln(E)$ funkcija);
3. rezoliucijos kalibracija ($(\text{FWHM})^2 = \text{energijos funkcija}$).

Energinė detektoriaus kalibracija vykdoma naudojant gama spinduliuotės šaltinį, kurio energijos spektras žinomas. Tuomet skirtingoms energijoms priskiriami atitinkami daugiakanalio analizatoriaus

kanalai. Kaip pavaizduota Pav. 3, užregistruojamos kelios energijos vertės, pagal kurias detektoriaus programinė įranga nubrėžia atitinkančią tiesę. Pagal šią tiesę įranga taip pat nustato pilną plotį ties puse maksimumo (toliau – FWHM, angl. *Full Width at Half Maximum*) ir viršūnių, kaip fotono energijos funkcijos, parametrus. Šie parametrai išsaugomi, ir pagal juos vertinamos nežinomo spindulio gama kvantų energijos.



Pav. 3 Vertikali ašis: fotono energija, keV; horizontali ašis: kanalo numeris [15].

Jei matuojamas bandinys, spinduliuojantis vienos energijos gama kvantus (pvz. ^{137}Cs , 661 keV), teoriškai visi registruojami pilnos energijos kvantai turėtų būti tame pačiame aukštyje. Tačiau realiai šios vertės pasiskirsto siaurame kanalų diapazone. Šį impulsų spektro viršūnės pasiskirstymą nusako FWHM. Detektoriaus rezoliuciją, arba gebą atskirti atskiras spektro viršūnes, taip pat nusako FWHM. Rezoliuciją, kaip atskirą parametą, nusako santykis tarp FWHM ir E_0 (energijos vertė ties spektro viršūne, kuriai ir taikomas FWHM).

Efektyvumas ε – svarbiausias detektoriaus parametras, nusakantis, kokia dalis šaltinio spinduliuojamų kvantų bus matoma kaip energijos spektro viršūnė. ε priklauso nuo šaltinio – dydžio, tankio ir atstumo iki detektoriaus. Taip pat ε skirtingas kiekvienai skirtingai energijos vertei.

$$\varepsilon = \frac{\text{Plotas spektre (energijos)}}{(\text{Matavimo trukmė})(\text{Aktyvumas})(\text{lėigė})} \quad (14),$$

čia aktyvumas matavimo metu, Bq. Pagal (14) sukuriamos efektyvumo vertės kiekvienai energijai. Paprastai reikia patikslinti šaltinio aktyvumą pagal (15) dėl jo natūralaus skilimo.

$$A = A_0 e^{-\frac{\ln(2) \cdot t}{T_{1/2}}} \quad (15),$$

čia A – realus bandinio aktyvumas, A_0 – bandinio aktyvumas pagal sertifikatą, t – bandinio skilimo laikas (nuo sertifikato), $T_{1/2}$ – pusamžis [15].

1.6 Kompiuterinio modeliavimo metodai

Įvairiuose branduoliniuose tyrimuose norint charakterizuoti neutronų srautą, įvertinti galimas metodikos ir įrangos paklaidas naudojamas kompiuterinis modeliavimas, leidžiantis nustatyti norimus parametrus, juos keisti, ir stebint teorinius rezultatus palyginti su eksperimentais ir realiais stebėjimais. MCNP – kompiuterinio modeliavimo programa, pradėta vystyti dar šeštajame dešimtmetyje JAV, Los Alamos nacionalinėje laboratorijoje, o jos tobulinimas vyksta iki dabar. Ji naudojama modeliuoti įvairioms branduolinėms reakcijoms ir elektronų, fotonų, neutronų pernašos, ilginės energijos perdavos bei reakcijų spartų skaičiavimams medžiagoje. Alternatyvi dalelių sąveikos su medžiaga modeliavimo programa GEANT (trumpinys angl. *GEometry AND Tracking*) sukurta CERN, 1974 m., dabar naudojama ir kitose šakose.

MCNP6 – naujausia MCNP versija. Monte Karlo (angl. *Monte Carlo*) metodas, kitaip nei įprasti deterministiniai skaičiavimai (kur skaičiuojama vidurkinė dalelės elgsena), simuliuoja kiekvienos individualios dalelės elgesį, ir pateikia tam tikrų parametrų rezultatų vidurkius (energija, srautas). Taip pat deterministiniu metodu gaunami rezultatai plačiai erdvei, visam uždaviniui. Monte Karlo statistinius įvykius suvidurkina simuliuodama pavienius atvejus vieną po kito. Atsitiktiniams parametrų simuliacija naudoja atsitiktinius (angl. *random*) skaičius, analogiškai lošimo kauliukų metimui kazino (iš čia ir atsirado pavadinimas Monte Karlo – pagal kazino, esančio Monake, pavadinimą).

MCNP – universalus modeliavimo įrankis, leidžiantis aprašyti atskirų ar kombinuotų fotonų, neutronų, elektronų transportą/judėjimą. Galimos energijos:

- Neutronams – nuo 10^{-11} MeV iki 20 MeV visiems izotopams, kai kuriems – iki 150 MeV;
- Fotonams – nuo 1 keV iki 100 GeV;
- Elektronams – nuo 1 keV iki 1 GeV [16].

Taip pat yra galimybė skaičiuoti k_{eff} sistemoms, kur vyksta dalijimosi reakcijos. Simuliacija vykdoma apibrėžiant geometriją; apibūdinant medžiagas bei parenkant reakcijų skerspjūvių įverčius; neutronų, fotonų arba elektronų šaltinio padėtis ir charakteristikos; išvedimui pasirenkami dominantys rezultatai (angl. *tally*).

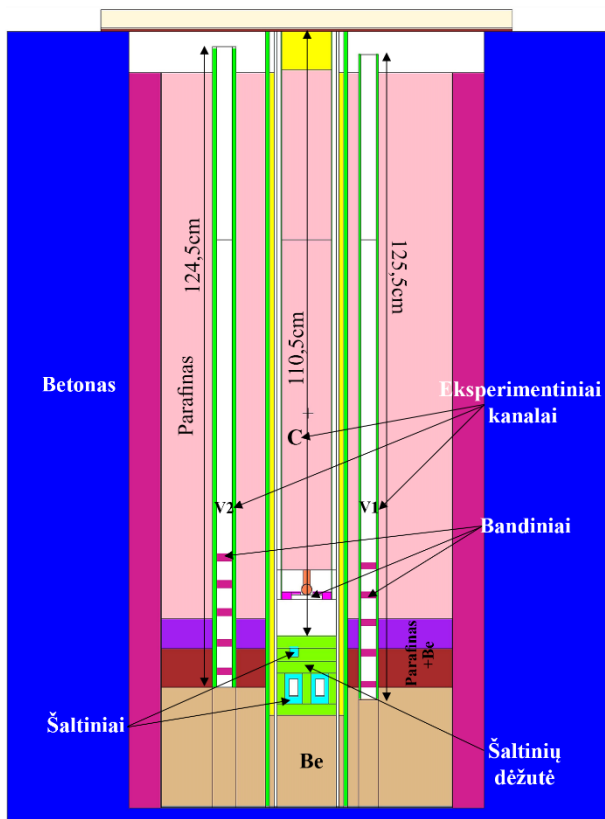
2. Tyrimo metodika

Neutronų srauto pasiskirstymui modeliuoti naudota MCNP6. Detalus konteinerio modelis parodytas pav. 4. Tai – betoninis žiedas, užpildytas parafinu, kuriame įmontuoti trys cilindro formos eksperimentiniai kanalai – centrinis ir du šoniniai, esantys skirtingu atstumu nuo centrinio. Centrinio kanalo dugne įtaisytas neutronų šaltinis. Neutronų šaltinių kapsulės yra konteineryje, padėtame ant berilio plokštės. Šaltinių saugojimo dėžutėje yra 4 atskiri šaltiniai (kapsulės) – $^{238}\text{Pu-Be}$, aktyvumas $2,06 \times 10^7$ n/s, $^{239}\text{Pu-Be}$, aktyvumas $1,74 \times 10^7$ n/s, $^{238}\text{Pu-Be}$, aktyvumas $1,88 \times 10^7$ n/s, ir vienas mažo aktyvumo ($1,0 \times 10^5$ n/s) ^{239}Pu šaltinis. Bendras šių šaltinių aktyvumas – $4,5 \times 10^7$ n/s. Neutronų šaltinio saugykla užpildyta berilio ir parafino mišiniu. Norint bandinį apšvitinti neutronų srautu, jis talpinamas į vieną iš trijų (C – centrinį, V1, V2 – šoninius) kanalų. V2 – toliausiai nuo šaltinio (16 cm). V1 yra 12 cm nuo šaltinio. Šaltinis yra centriniame kanale.

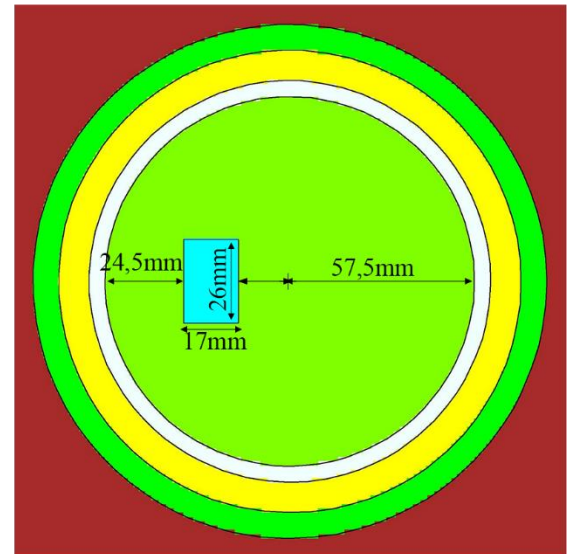
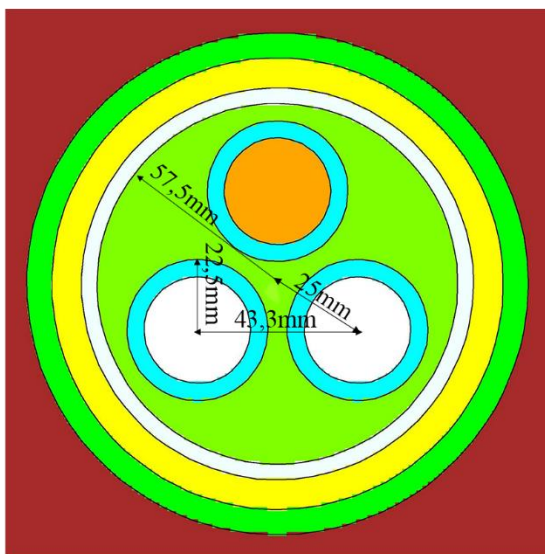
Pertvarkant neutronų konteinerį atlikti tokie pakeitimai :

- PIXE bei RBS analizės metodais ištyrus centrinio vamzdžio sudėtį ir nustčius didelę sugeriančių priemaišų (11,5% atomų sudėties yra Cl, kurio neutronų pagava ties terminių neutronų energija yra $\sim 10^3$ barnų) koncentraciją, nuspręsta jį pakeisti nauju. Prieš keičiant atlikta naujo vamzdžio cheminė analizė parodė, kad priemaišų koncentracija yra toleruotina (Cl - 0,0029 % atomų) – t.y. senas kanalo PVC vamzdis pakeistas švairiu, bepriemaišiniu polietilenu.
- Kadangi keičiant vamzdį ištraukiamas neutronų šaltinis – tuo pat metu nuspręsta patobulinti Pu-Be neutronų šaltinių laikymo dėžutę, įgyvendinant šaltinių pozicionavimo centriniame kanale (geometriškai orientuoti ^{238}Pu ir ^{239}Pu šaltinius) bei šaltinių atskyrimo (3 stacionarūs ir vienas mažo aktyvumo mobilus neutronų šaltinis) galimybes srauto reguliavimo tikslais (didžiausias aktyvumas gaunamas naudojant visus šaltinius, mažiausias – naudojant vieną ištraukiamą ^{239}Pu šaltinį).
- Suprojektuota bei sumodeliuota ir ištekinata organinio stiklo dėžutė 3 stacionariems neutronų šaltiniams, bei mažesnė organinio stiklo dėžutė, dedama ant stacionarių šaltinių viršaus, skirta mažo aktyvumo ištraukiamam neutronų šaltiniui (žr. pav. 4 dėžutės MCNP modelis su matmenimis).

Modeliavimui MCNP naudojamos branduolinių ir atominių duomenų bibliotekos. Galimos daugiau nei 836 neutronų sąveikos skerspjūvių lentelės apie 100 skirtingų izotopų bei elementų.



Pav. 4a Bendras neutronų šaltinių šulinio vaizdas (kairėje); organinio stiklo (žalia) šaltinių dėžutė (dešinėje).

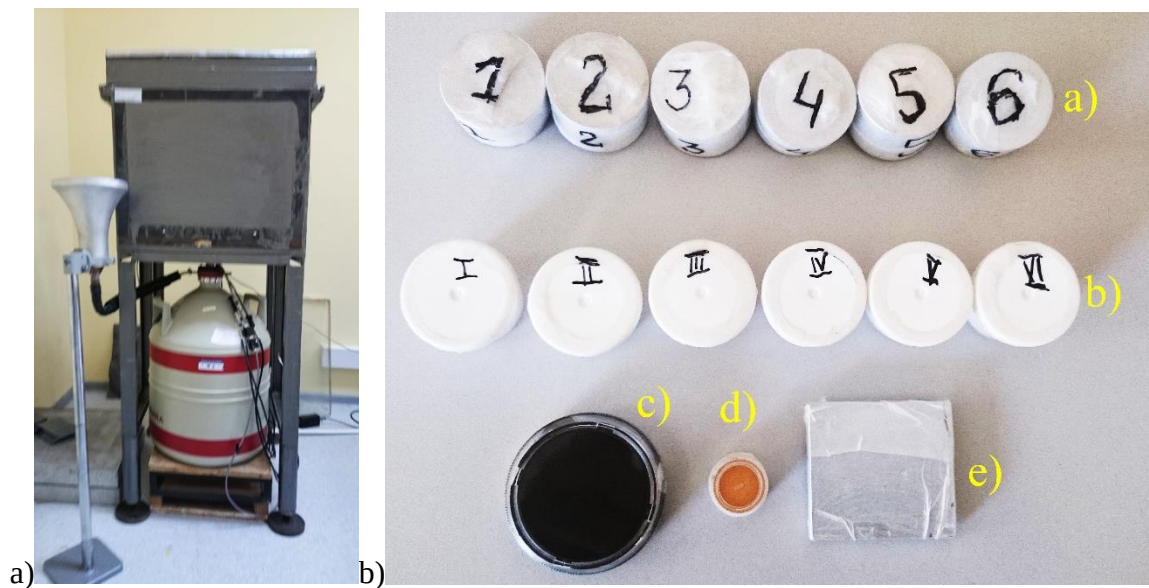


Pav. 4b Organinio stiklo šaltinių dėžutė, pjūvis iš viršaus. Trys stacionarūs šaltiniai (kairėje); mobilus šaltinis (dešinėje).

MCNP modeliuoja kiekvieno neutrono galimas trajektorijas celėse. Trajektorijos, kertančios ribojančius paviršius, naudojamos skaičiuoti srautui, įtėkiui arba impulso aukščiui – energijos

perdavimui. Trajektorijos, kuriose vyksta susidūrimai, naudojamos neutronų dauginimui arba kritiškumui vertinti. Modeliavime skaičiuoti neutronų srautai bandinio erdvėje (celėje) bei neutronų sąveikos reakcijų spartos bandinyje. MCNP išvedimo faile (angl. *Output file*) pateikia vidutinį neutronų, patekusių į tiriamą celę (angl. *type 4 tally*), kiekį sunormuotą vienam pradiniam šaltinio neutronui, taip pat jų energinį pasiskirstymą bei tiriamų reakcijų spartas bandinyje. Rezultatai pateikiami $1/\text{cm}^2$.

Gama spektrometrijos matavimai atlikti naudojant Canberra GC2520 HPGe detektorių (pav. 5 a), Canberra DSA1000 daugiakanalį analizatorių bei Genie-2000 gama spektroskopijos programinę įrangą (Canberra Industries, JAV). Energinė skyra ties 121,78 keV (^{152}Eu) – 1,1 keV; ties 1332,5 keV (^{60}Co) – 2 keV. Detektoriaus efektyvumas sukalibruotas kiekvienai aktyvacijos bandinio (Al, V, Mn, Na) gama spinduliuotės energijai.



Pav. 5 a) Canberra GC2520 HPGe gama detektoriaus korpusas su aušalo talpykla. b) Eksperimento bandiniai: a) 6 Al band., masės ~26g; b) 6 $\text{MnO}_2 + \text{KNO}_3$ band., masės – $3 \times \sim 4,7\text{g}$ ir $3 \times \sim 3\text{g}$; c) MnO_2 band., masė – 6,2994g; d) V_2O_5 band., masė – 0,1807g; e) Al band., masė – 14,958g.

Izotopo aktyvumas gali būti nustatytas pagal impulsų skaičių ties gama spektro fotosmaile. Gama spinduliuotės spektras registruojamas Δt , tai yra užtektinai ilgai, kad duomenys po fotosmaile būtų patikimi. Tai paprastai trunka bent vieną izotopo pusamžį. Matuotas aktyvumas A_m gali būti nustatomas pagal formulę

$$A_m = \frac{\Sigma_p / \Delta t - \Sigma_b / \Delta t}{\eta \cdot \epsilon_t} \quad (16),$$

čia Σ_p yra impulsų skaičius po fotosmaile, Σ_b – fonas matavimo periode Δt , η – gama kvantų išeiga, ε_t – absoliutus detektoriaus efektyvumas.

Bandinio aktyvumas taip pat mažėja dėl jo radioaktyvaus skilimo matavimo trukmės Δt metu, į tai taip pat turi būti atsižvelgta:

$$A_0 = \frac{A_m \Delta t}{(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \quad (17);$$

bandinio aktyvumas matavimo pradžioje:

$$A_0 = A \cdot e^{-\lambda t_{v\acute{e}l}} \quad (18),$$

kur $t_{v\acute{e}l}$ – vėlavimo trukmė nuo apšvitos pabaigos iki matavimo pradžios.

Iš šių lygčių gaunama lygtis nustatyti bandinio aktyvumui po apšvitos:

$$A = \frac{A_m \Delta t \cdot e^{\lambda t_{v\acute{e}l}}}{(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \quad (19).$$

Apskaičiuotas izotopų aktyvumas buvo panaudotas apskaičiuojant neutronų srautą eksperimentiniuose kanaluose.

Neutronų aktyvacinė analizė vykdyta bandinius (pav. 5 b) aktyvuojant konteinerio (pav. 4) C, V1 ir V2 kanaluose. Apšvitinus bandinius, šie pernešti ir patalpinti gama detektoriuje. Lentelėje 1 pateikta informacija apie reikšmingus izotopus ir jų relaksacijos reakcijas. Lentelėje 2 pateikta bandinių informacija.

1 lentelė. Izotopų duomenys bei jų relaksavimo reakcijos.

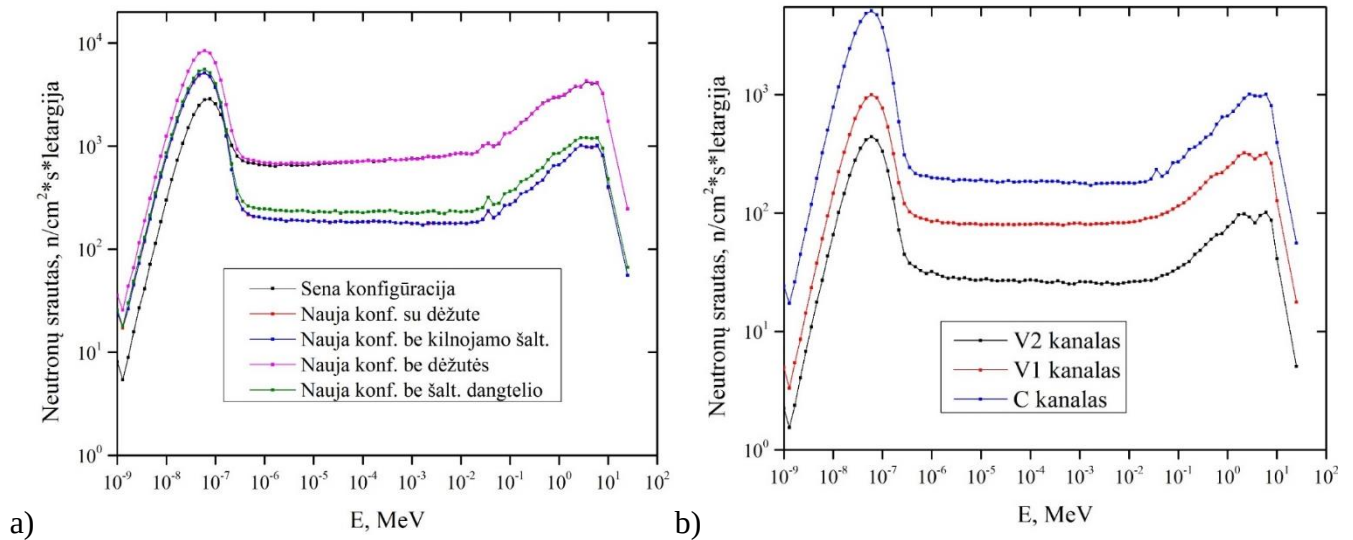
Reakcija	E, keV	$T_{1/2}$	Tikimybė, %
$^{27}\text{Mg}(\beta^-) \gamma \rightarrow ^{27}\text{Al}$	843	9,46 min	85
$^{56}\text{Mn}(\beta^+) \gamma \rightarrow ^{56}\text{Fe}$	846	2,58 h	98,85
$^{27}\text{Mg}(\beta^-) \gamma \rightarrow ^{27}\text{Al}$	1085	9,46 min	28
$^{24}\text{Na}(\beta^-) \gamma \rightarrow ^{24}\text{Mg}$	1368	14,96 h	98,9
$^{52}\text{V}(\beta^-) \gamma \rightarrow ^{52}\text{Cr}$	1434	3,74 min	20,7
$^{28}\text{Al}(\beta^-) \gamma \rightarrow ^{28}\text{Si}$	1778	2,24 min	20,7
$^{56}\text{Mn}(\beta^+) \gamma_2 \rightarrow ^{56}\text{Fe}$	1810	2,58 h	26,9
$^{56}\text{Mn}(\beta^+) \gamma_1 \rightarrow ^{56}\text{Fe}$	2113	2,58 h	14,3
$^{24}\text{Na}(\beta^-) \gamma_1 \rightarrow ^{24}\text{Mg}$	2574	14,96 h	100

2 lentelė. Bandinių, naudotų neutronų aktyvacinėje analizėje, duomenys.

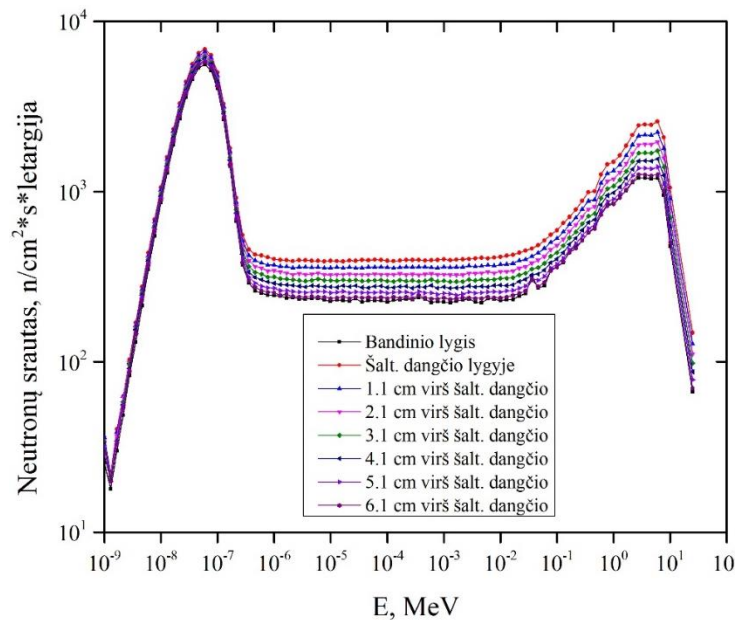
Bandinys	m, g	Aktyvacijos trukmė, s	Aktyvacijos pozicija	Dukteriniai izotopai
V ₂ O ₅ (milteliai plastikiniame indelyje)	0,574	2277	C	⁵² V
V ₂ O ₅ (milteliai plastikiniame indelyje)	0,181	3300	V1	⁵² V
V ₂ O ₅ (milteliai plastikiniame indelyje)	0,181	3540	V2	⁵² V
MnO ₂ (milteliai plastikiniame indelyje)	0,217	80115	C	⁵⁶ Mn
MnSO ₄ ·H ₂ O (milteliai plastikiniame indelyje)	1 – 0,855; 2 – 0,864; 3 – 0,858	85380	V1	⁵⁶ Mn
MnSO ₄ ·H ₂ O (milteliai plastikiniame indelyje)	1 – 0,104; 2 – 0,102; 3 – 0,106	85380	V2	⁵⁶ Mn
Al (grynas, stačiakampis)	14,96	81679	C	²⁷ Mg, ²⁴ Na, ²⁸ Al
Al (grynas, stačiakampis)	1 – 26,46; 2 – 26,08; 3 – 26,20	88500	V1	²⁷ Mg, ²⁴ Na, ²⁸ Al
Al (grynas, stačiakampis)	1 – 26,12; 2 – 26,55; 3 – 26,38	81480	V2	²⁷ Mg, ²⁴ Na, ²⁸ Al

3. Rezultatai

Atlikus neutronų srauto modeliavimą, nustatytas neutronų srauto energinis pasiskirstymas centriniame šulinio kanale. Pav. 6 a) palyginami srautai skirtingais atvejais – prieš ir po šulinio pertvarkymo, su ir be naujos šaltinių dėžutės. Čia matyti, jog pertvarkytame šaltinių šulinyje be organinio stiklo dėžutės šaltiniams neutronų srautas centriniame kanale yra didžiausias. Taip pat matoma, jog esant dabartinei pertvarkyto šaltinio konfigūracijai, terminių neutronų srautas padidėjo 40%, tačiau 44% sumažėjo epiterminių ir greitų neutronų srautas (lyginant su sena konfigūracija).



Pav. 6 a) Modeliuotas neutronų srauto energinis pasiskirstymas centriniame kanale, esant skirtingoms konfigūracijoms. b) Modeliuotas neutronų srauto energinis pasiskirstymas visuose eksperimentiniuose kanaluose, esant pertvarkytam šuliniui.



Pav. 7 Modeliuotas neutronų srauto energinis pasiskirstymas skirtingame aukštyje virš bandinių dėžutės, kai nėra dėžutės dangčio.

Pav. 6b matomas neutronų srauto energinis pasiskirstymas visuose trijuose eksperimentiniuose kanaluose. Didžiausias $5,92 \times 10^4$ n/cm²/s neutronų srautas gautas centriniame kanale, kadangi neutronų šaltiniai yra šiame kanale. V1 kanalas yra 12 cm atstumu nuo centrinio kanalo, jame srautas 3,7 karto mažesnis lyginant su centriniu kanalu. V2 kanalas yra 16 cm atstumu nuo centrinio, jame neutronų srautas mažiausias – 9,7 karto mažesnis, lyginant su centriniu kanalu (daugiau informacijos 4 lentelėje).

Pav. 7 pavaizduotas neutronų srautas sumodeliuotas skirtinguose aukščiuose nuo neutronų šaltinių. Matoma, jog ties terminių neutronų energija, srautas beveik nekinta ties skirtingais aukščiais – didžiausią įtaką neutronų lėtinimui turi organinio stiklo dėžutė bei aplink esantis parafinas. Didėjant neutronų energijai, šis skirtumas didėja – lėti neutronai yra sugeriami parafine, o greitieji ir epiterminiai - sulėtinami.

Siekiant atvaizduoti tolygų neutronų energinį pasiskirstymą tiesinėje skalėje naudota neutronų letargija. Letargija (u) – tai bedimensinis dydis, apibūdinamas kaip pasirinktos tam tikros (referencinės) neutronų energijos (E_M) ir jų energijos (E) po tam tikro įvykio (dažniausiai, sklaidos) santykio natūrinis logaritmas. Kaip referencinė energija dažniausiai naudojama maksimali neutronų, gautų iš šaltinio, energija. Letargija:

$$u = \ln\left(\frac{E_M}{E}\right) \quad (16).$$

3 lentelė. Terminių, epiterminių ir greitųjų neutronų dalies sraute palyginimas esant skirtingoms neutronų šulinio konfigūracijoms.

Neutronų srauto parametrai	Neutronų srautas C kanale, %			
	Senas vamzdis	Naujas vamzdis	Naujas vamzdis be mažo šaltinio	Naujas vamzdis be organ. stiklo dėžutės
Π Terminiai	27	68	68	47
Π Epiterminiai	18	9	9	13
Π Greitieji	54	23	23	40
Neutronų srautas, n/cm ² /s	$1,14 \times 10^5 \pm 80$	$5,92 \times 10^4 \pm 60$	$5,98 \times 10^4 \pm 60$	$1,56 \times 10^5 \pm 90$

6 lentelėje pateikti neutronų srauto pokytis, esant skirtingoms neutronų šulinio konfigūracijoms. Didžiausias galimas srautas gaunamas, kai nėra organinio stiklo dėžutės šaltiniams, tačiau terminių neutronų srautas sudaro 47% viso srauto. Neutronų srautas dabartinėje konfigūracijoje (su organinio

stiklo šaltinių dėžute) centriniame kanale mažesnis 38%, tačiau terminiai neutronai sudaro 68% viso srauto, taigi tokia konfigūracija labiausiai pageidautina. Terminų neutronų sąveikos skerspjūviai su medžiaga yra dažniausiai keliomis eilėmis didesni [17] lyginant su greitais neutronais, todėl plačiausiai naudojami biologinių, medžiagotyros, detektorių testavimo tyrimuose.

4 lentelė. Neutronų srautų bei terminų neutronų dalies sraute palyginimas skirtinguose kanaluose (esant pertvarkytam neutronų šuliniiui).

Kanalas	Neutronų srautas, n/cm ² /s	Terminiai neutronai, %
C	$5,9 \times 10^4 \pm 60$	68
V1	$1,6 \times 10^4 \pm 10$	55
V2	$6,1 \times 10^3 \pm 10$	62

4 lentelėje matoma, kad ir terminų neutronų, ir visas neutronų srautas didžiausias centriniame kanale, taigi centrinis kanalas geriausiai tinkamas pageidaujant maksimalios bandinio apšvitos. V1 kanale terminų neutronų srautas mažesnis nei centriniame kanale 13%. Šis kanalas tinkamas tyrimams pageidaujant santykinai didesnio epiterminių ir greitų neutronų srauto bei mažesnės apšvitos.

5 lentelė. Eksperimentiniai neutronų aktyvacinės analizės rezultatai centriniame šulinio kanale. Čia R – reakcijos sparta, A – aktyvumas.

Bandinys	A, Bq	R _{eksp.}	R _{MCNP}	R _{eksp.} /R _{MCNP}
$^{51}\text{V}(n,\gamma)^{52}\text{V}$				
V ₂ O ₅	526±12	$(2,22 \pm 0,35) \times 10^{-3}$	$(5,26 \pm 2,61) \times 10^{-4}$	4,2
$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$				
MnO ₂	506±23	$(2,85 \pm 0,12) \times 10^{-2}$	$(5,75 \pm 0,97) \times 10^{-3}$	4,97
$^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$				
Al	1481±17	$(9,86 \pm 0,17) \times 10^{-5}$	$(8,39 \pm 0,11) \times 10^{-5}$	1,17
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$				
Al	42±2	$(2,62 \pm 0,32) \times 10^{-6}$	$(6,46 \pm 1,70) \times 10^{-8}$	40,5
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$				
Al	9,4±1,0	$(8,97 \pm 2,31) \times 10^{-7}$	$(7,26 \pm 1,4) \times 10^{-9}$	124

5 lentelėje palyginami eksperimentiniai ir modeliavimo rezultatai. V₂O₅, MnO₂ ir $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{28}\text{Al}$ aktyvacijos eksperimentiniai ir modeliavimo rezultatai nesutampa nedaug (atitinkamai 4,2, 4,97 ir 1,17 kartų). Šios reakcijos sukeliamos terminų neutronų. Tačiau $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{27}\text{Mg}$ ir $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ eksperimentiniai

ir modeliavimo rezultatai nesutampa (šios reakcijos sukeltos greitų neutronų) – eksperimentiškai gaunamas didesnis greitų neutronų srautas. Kad ištirti neatitikimus, reikia pakartoti/atlikti papildomus eksperimentus su Al bandiniu pagal aukštį bei koreguoti neutronų šaltinių šulinio teorinį modelį (permatuoti šaltinių/bandinio aukštį centriniame kanale).

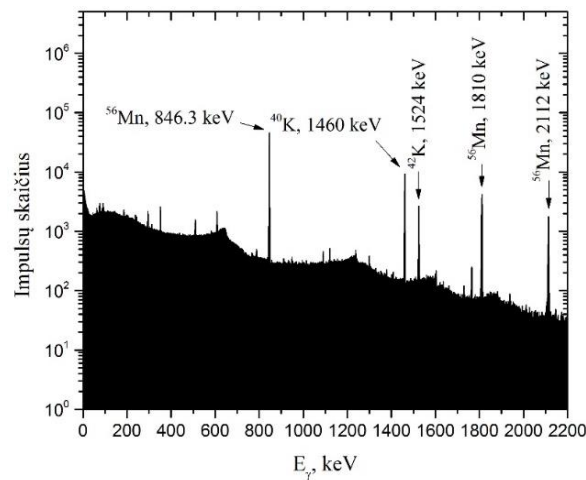
6 lentelė. Eksperimentiniai neutronų aktyvacinės analizės rezultatai šulinio V1kanale. Čia R – reakcijos sparta, A – aktyvumas.

Bandinys	A, Bq	R _{eksp.}	R _{MCNP}	R _{eksp.} /R _{MCNP}
$^{51}\text{V}(\text{n},\gamma)^{52}\text{V}$				
V ₂ O ₅	216±8	$(1,43\pm0,06)\times10^{-2}$	$(2,59\pm0,17)\times10^{-3}$	5,5
$^{55}\text{Mn}(\text{n},\gamma)^{56}\text{Mn}$				
MnSO ₄ ·H ₂ O	1084±20	$(6,11\pm0,03)\times10^{-2}$	$(1,33\pm0,09)\times10^{-2}$	4,94
$^{27}\text{Al}(\text{n},\gamma)^{28}\text{Al}$				
Al	2030±63	$(7,65\pm0,22)\times10^{-5}$	$(2,12\pm0,04)\times10^{-4}$	0,36
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{p})^{27}\text{Mg}$				
Al	34±8	$(1,26\pm0,20)\times10^{-6}$	$(6,11\pm0,34)\times10^{-6}$	0,21
$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$				
Al	6,1±1,0	$(3,38\pm1,18)\times10^{-7}$	$(1,88\pm0,17)\times10^{-6}$	0,18

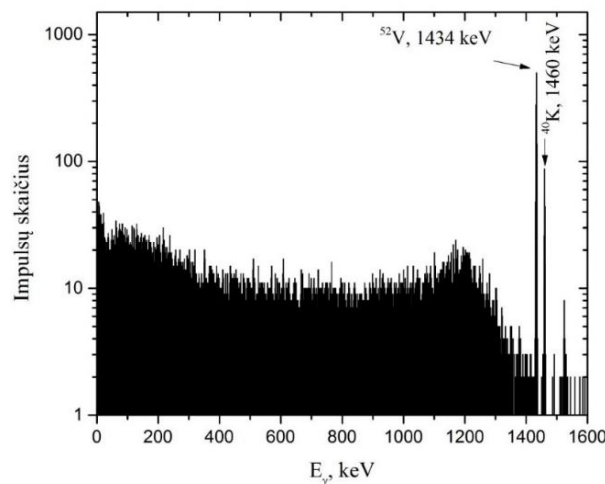
7 lentelė. Eksperimentiniai neutronų aktyvacinės analizės rezultatai šulinio V2 kanale. Čia R – reakcijos sparta, A – aktyvumas.

Bandinys	A, Bq	R _{eksp.}	R _{MCNP}	R _{eksp.} /R _{MCNP}
$^{51}\text{V}(\text{n},\gamma)^{52}\text{V}$				
V ₂ O ₅	92±4	$(1,00\pm0,04)\times10^{-2}$	$(8,42\pm0,97)\times10^{-4}$	7,48
$^{55}\text{Mn}(\text{n},\gamma)^{56}\text{Mn}$				
MnSO ₄ ·H ₂ O	40±3	$(5,98\pm0,19)\times10^{-3}$	$(2,40\pm0,12)\times10^{-3}$	2,49
$^{27}\text{Al}(\text{n},\gamma)^{28}\text{Al}$				
Al	2048±29	$(7,72\pm0,36)\times10^{-5}$	$(3,15\pm1,94)\times10^{-5}$	2,45
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{p})^{27}\text{Mg}$				
Al	11,0±0,3	$(3,99\pm3,32)\times10^{-7}$	$(5,52\pm1,66)\times10^{-7}$	0,72
$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$				
Al	1,1±0,4	$(6,46\pm1,23)\times10^{-8}$	$(1,73\pm0,39)\times10^{-7}$	0,37

6 ir 7 lentelėse palyginami eksperimentiniai ir modeliavimo rezultatai šoniniuose (V1 ir V2) kanaluose. Šiuose kanaluose bandinių aukščiai neutronų šaltinių atžvilgiu įvertinti tiksliau, todėl Al aktyvacijos rezultatai sutampa geriau, bet taip pat skiriasi: gaunamas 1 - 5 kartus mažesnis greitų neutronų srautas pagal ^{27}Mg ir ^{24}Na lyginant su modeliavimu. V_2O_5 bei $\text{MnSO}_4\cdot\text{H}_2\text{O}$ bandinių tyrimo ir teoriniai rezultatai nesutampa nuo 2,5 iki 7,5 kartų, eksperimentiškai gaunamas didesnis terminių neutronų srautas šoniniuose apšvitos kanaluose. Tinkamai įvertinti neutronų srautus šoniniuose kanaluose taip pat reiktų atlikti papildomą seriją matavimų skirtinguose kanalų aukščiuose bei įsitikinti ar neutronų šaltinio ir bandinių padėtis modelyje atitinka.



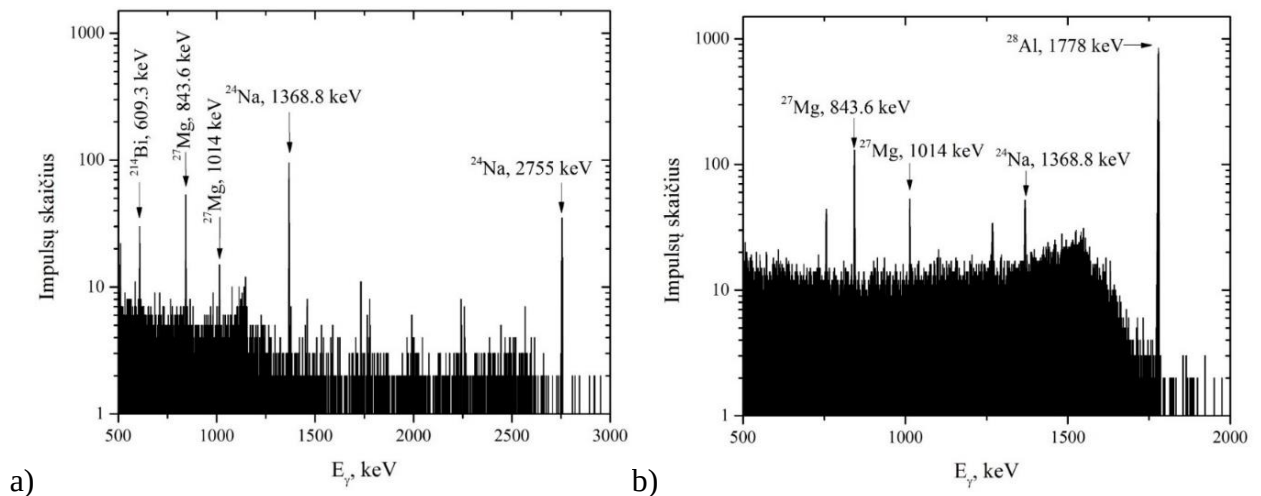
Pav. 8 a) MnO_2 bandinio, apšvitinto centriniame šulinio kanale, gama spektras. Apšvitos trukmė – 80115s, vėlavimo laikas – 28s, matavimo trukmė – 338000s.



Pav. 8 b) V_2O_5 bandinio, apšvitinto centriniame šulinio kanale, gama spektras. Apšvitos trukmė – 2277s, vėlavimo laikas 33s, matavimo trukmė – 2684s.

Bandinių aktyvumai įvertinti pagal (19) iš jų gama spektrų, jie pateikti pav. 8-9. Pav. 8 a) pateiktas MnO_2 bandinio, apšvitinto centriniame kanale, gama spektras. Aiškiai matomos trys ^{56}Mn smailės –

846,3 keV, 1810 keV ir 2112 keV. Taip pat matomos ir natūraliai gamtoje esančio radioaktyvaus ^{40}K (1460 keV) smailė. Kadangi bandinys – $\text{MnO}_2 + \text{KNO}_3$ mišinys, dėl K apšvitinimo matoma ir ^{42}K smailė (1524 keV). Pav. 8 b) pateiktas V_2O_5 bandinio, apšvitinto centriniame kanale gama spinduliuotės spektras. Matavimo trukmė ~2700s. Matoma aiški ^{52}V smailė ($T_{1/2}=3,74$ min, 1434 keV), taip pat matoma natūraliai gamtoje esančio radioaktyvaus ^{40}K smailė ($T_{1/2}=1,25 \times 10^9$ metų, 1460 keV). Taip pat pateikti du Al bandinio, apšvitinto centriniame kanale gama spektrai: pav. 9 a) pavaizduotas ilgo matavimo (~62000 s) spektras, kuriame matomos sąlyginai ilgo pusamžio ^{24}Na ($T_{1/2}=14,96$ h, 1368,8 keV, 2755 keV) smailės (trumpaamžis ^{28}Al jau suskilęs); pav. 9 b) pavaizduotas sąlyginai trumpo matavimo (~1000 s) spektras, kuriame geriausiai matomos ^{28}Al ($T_{1/2}=2,24$ min, 1778 keV) bei ^{27}Mg ($T_{1/2}=9,46$ min, 843,6 keV, 1014 keV) smailės.



Pav. 9 a) Al bandinio, apšvitinto centriniame šulinio kanale, gama spektras. Apšvitos trukmė – 81679s, vėlavimo laikas 40s, matavimo trukmė – 62105s. b) Al bandinio, apšvitinto centriniame šulinio kanale, gama spektras. Apšvitos trukmė – 81679s, vėlavimo laikas 40s, matavimo trukmė – 993s.

Įvertinus ir palyginus eksperimentinius ir modeliuotus tyrimo rezultatus, aptikti 1-5 kartų neatitikimai terminų neutronų srityje bei dideli neatitikimai (1-120 kartai) greitų neutronų srityje. Labiausiai tikėtina, jog šiems neatitikimams įtaką daro netikslus atstumo parinkimas tarp neutronų šaltinių bei bandinių centriniame bei šoniniuose kanaluose. Tokios priežasties suradimas ir sutvarkymas, bei galutinis teorinio modelio sukalibravimas būtų sekantis neutronų šaltinių šulinio tyrimo etapas. Tam reikia atlikti papildomus eksperimentus su bandiniais pagal aukštį bei atitinkamai koreguoti neutronų šaltinių šulinio teorinį modelį.

Išvados

1. MCNP6 kodu įvertintas neutronų srauto pasiskirstymas esant skirtingoms šaltinių konfigūracijoms (tik stacionarūs šaltiniai, stacionarūs šaltiniai ir mobilus šaltinis organinio tikslo dėžutėse) centriniame bei šoniniuose kanaluose. Galimas neutronų srauto apšvitos diapazonas (be šaltinių dėžutės dangtelio, su visais 4 šaltiniais ir su organiniu stiklu) nuo $5,92 \times 10^4$ iki $6,85 \times 10^4$ n/cm²/s.
2. Eksperimentiškai – neutronų aktyvacinės analizės metodu – nustatytas izotopinio neutronų šaltinio spinduliuotės intensyvumas neutronų šaltinio šulinio centriniame kanale yra apie 4 kartus didesnis nei teoriškai apskaičiuotas, šoniniuose eksperimentiniuose kanaluose atitinkamai 5 (V1) ir 7 (V2).
3. Pertvarkius neutronų šaltinio konteinerį, terminių neutronų srautas centriniame kanale padidėjo 40% lyginant su ankstesne konfigūracija. Eksperimentiškai terminių neutronų srautas yra $4,14 \times 10^4$ n/cm²/s, 68% srauto – terminiai neutronai.
4. Galutiniam teorinio modelio sukalibravimui reikia atlikti papildomus eksperimentus su bandiniais pagal aukštį, bei atitinkamai koreguoti neutronų šaltinių šulinio teorinį modelį.

Santrauka

PERTVARKYTO Pu-Be ŠALTINIO NEUTRONŲ SRAUTO IR ENERGINIO PASISKIRSTYMO ĮVERTINIMAS BEI KALIBRAVIMAS NAUDOJANT NEUTRONŲ AKTYVACINĖS ANALIZĖS BEI MCNP6 MODELIAVIMO METODUS

Tomas Mirinavičius

Šiame tyrime analizuojamas Pu-Be neutronų šaltinių šulinys bei neutronų srautas jame, esantis Fizikos Institute, Vilniuje. Atlikus šulinio pertvarkymą pakeistas centrinio eksperimentinio kanalo vamzdis, kurio sudėtyje rastos padidintos neutronus sugeriančio chloro koncentracijos, jis pakeistas bepriemaišiniu polietileno vamzdžiu; taip pat pakeista organinio stiklo neutronų šaltinių dėžutė, skirta patobulinti/įgalinanti reguliuoti neutronų srautą keičiant neutronų šaltinių skaičių. Atitinkamai perdarytas teorinis MCNP konteinerio modelis. MCNP6 kodu įvertintas neutronų srauto pasiskirstymas esant skirtingoms šaltinių konfigūracijoms (tik stacionarūs šaltiniai, stacionarūs šaltiniai ir mobilus šaltinis organinio tiklo dėžutėse) centriniame bei šoniniuose kanaluose. Galimas neutronų srauto apšvitos diapazonas (be šaltinių dėžutės dangtelio, su visais 4 šaltiniais ir su organiniu stiklu) nuo $5,92 \times 10^4$ iki $6,85 \times 10^4$ n/cm²/s. Atlikti neutronų aktyvacinės analizės eksperimentai, ištirti aktyvuoti Al, Mn, V bandiniai visuose trijuose kanaluose. Iš gama spektrų nustatytas bandinių aktyvumas bei reakcijų spartos realaus neutronų šaltinio sraute. Eksperimentiškai gauti reakcijų spartų rezultatai palyginti su teoriniais. Eksperimentiškai – neutronų aktyvacinės analizės metodu – nustatytas izotopinio neutronų šaltinio spinduliuotės intensyvumas neutronų šaltinio šulinio centriniame kanale yra apie 4 kartus didesnis nei teoriškai apskaičiuotas, šoniniuose eksperimentiniuose kanaluose atitinkamai 5 (V1) ir 7 (V2) kartus vertinant pagal vanadžio aktyvaciją. Įvertinus ir palyginus eksperimentinius ir modeliuotus tyrimo rezultatus, aptikti 1-5 kartų neatitikimai terminių neutronų srityje bei dideli neatitikimai (1-120 kartai) greitų neutronų srityje. Pagal atliktus tyrimus galima teigti, kad pertvarkius neutronų šaltinio konteinerį, terminių neutronų srautas centriniame kanale padidėjo 40% lyginant su ankstesne konfigūracija. Eksperimentiškai nustatytas terminių neutronų srautas yra $4,14 \times 10^4$ n/cm²/s, ~68% terminiai neutronai. Galutiniam teorinio modelio sukalibravimui reikalingi papildomi eksperimentai su bandiniais pagal aukštį bei neutronų šaltinių šulinio teorinio modelio korekcija.

Summary

CALIBRATION AND EVALUATION OF THE NEUTRON FLUX OF A RECONSTRUCTED PU-BE NEUTRON SOURCE USING NAA AND MCNP6

Tomas Mirinavičius

This paper focuses on the Pu-Be neutron source container (Institute of Physics, Vilnius, Lithuania) and problems regarding its neutron flux. During the reconstruction a central experimental channel pipe, containing neutron-absorbing chlorine has been replaced by a clean polyethylene one; also, an organic glass container for the 4 individual neutron sources has been added, improving and enabling to control the neutron flux. The available range of neutron flux with different configurations (no container cover, all sources with the organic glass container) varies from $5,92 \times 10^4$ to $6,85 \times 10^4$ n/cm²/s. Neutron activation analysis experiments were conducted, samples irradiated in all three experimental channels of Al, Mn, V were studied. Activity of the samples reaction rates in the real neutron flux have been determined from their gamma spectra. Experimental results were compared to theoretical ones. By conducting neutron activation analysis of vanadium, experimental results have shown that the real neutron flux of the isotopic neutron source in the central channel is larger by around 4 times, in the side experimental channels is larger 5 (V1) and 7 (V2) times respectively. After comparing theoretical and experimental results, a discrepancy of 1-5 times in the thermal neutron region and large inaccuracies of 1-120 times in the fast neutron region have been determined. According to research done it can be concluded that the thermal neutron flux in the central channel has increased by 40%, compared to the early (pre-reconstructed) configuration. The experimentally determined neutron flux is $4,14 \times 10^4$ n/cm²/s of which ~68% are thermal neutrons. For the final calibration of the theoretical model further experiments with varied sample height in the channel and a correction of the theoretical model are needed.

Literatūra

- [1] P.-E. Tsai, Y.-H. Liu, H.-M. Liu and S.-H. Jiang, "Characterization of a BNCT beam using neutron activation and indirect neutron radiography," *Elsevier*, no. 45, pp. 1167-1170, 2010.
- [2] Z. R. Harvey, Neutron flux and energy characterization of a plutonium-beryllium isotopic neutron source by Monte Carlo simulation with verification by neutron activation analysis, Las Vegas, Nevada: UNLV, 2010.
- [3] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, Third Edition, Ann Arbor, Michigan: John Wiley & Sons, Inc., 2000.
- [4] R. C. Martin, J. B. Knauer and P. A. Balo, Production, Distribution, and Applications of Californium-252 Neutron Sources, Oak Ridge, Tennessee: Oak Ridge National Laboratory, 1999.
- [5] I. W. Osborne-Lee and C. W. Alexander, CALIFORNIUM-252: A Remarkable Versatile Radioisotope, Oak Ridge, Tennessee: Oak Ridge National Laboratory, 1995.
- [6] R. J. Holmes, "GAMMA-RAY AND NEUTRON SOURCES," in *IAEA regional training course: use of nuclear techniques in the mineral industry*, Lucas Heights, IAEA, 1982, pp. 123-136.
- [7] J. I. W. Watterson, A REVIEW OF ACCELERATOR BASED NEUTRON SOURCES AND THEIR APPLICATIONS, Wits, South Africa: IAEA, 2000.
- [8] H. R. Vega-Carillo, E. Manzanares-Acuna, A. M. Becerra-Ferreiro and A. Carillo-Nunez, "Neutron and gamma-ray spectra of PuBe and AmBe," *Applied Radiation and Isotopes*, no. 57, pp. 167-170, 2002.
- [9] L. Hamidatou, H. Slamene, T. Akhal and B. Zouranen, Concepts, Instrumentation and Techniques of Neutron Activation Analysis, Birine, Algeria: Nuclear Research Centre of Birine, 2013.
- [10] S. Pomme, F. Hardeman, P. Robouch, N. Etxebarria and G. Arana, "NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS WITH K0-STANDARDISATION: GENERAL FORMALISM AND PROCEDURE," Nuclear Spectrometry Radiation Protection department - SCK-CEN, 1997.
- [11] IAEA, "Elemental Analysis of Biological Materials. Current Problems and Techniques with Special Reference to Trace Elements," IAEA, Vienna, 1980.
- [12] S.-T. Park and N. H. Jang, "Estimation and Calibration of Thermal Neutron Flux for Neutron Activation Analysis," *Bull. Korean Chem. Soc.*, vol. 27, no. 12, pp. 2061-2063, 2006.
- [13] K. E. Holbert, *Neutron Reactions*, Temple, AZ: Arizona State University, 2009.
- [14] A. Poškus, ATOMO FIZIKA IR BRANDUOLIO FIZIKOS EKSPERIMENTINIAI METODAI, Vilnius, 2008.
- [15] N. Reguigui, *Gamma Ray Spectrometry Practical Information*, 2006.
- [16] L. A. N. Laboratory, MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Los

Alamos National Laboratory, 2003.

- [17] J. Kopecky and et. al., Atlas of Neutron Capture Cross Sections, Alkmaar, NL: IAEA, 1997.
- [18] S. A. E. Johansson and T. B. Johansson, "Analytical Application of Particle Induced X-ray Emission," *Nuclear Instruments and Methods*, no. 137, pp. 473-516, 1976.
- [19] V. Kovalevskij, G. Kandrotas, R. Davidonis, K. Birzul ir M. Gaspariūnas, *Greitintuvas Tandetron 4110A*, Vilnius, Lietuva: Fizikos Institutas, 2006.
- [20] M. Mayer, *Rutherford Backscattering Spectrometry*, Trieste: Max Planck Institut fur Plasmaphysik, 2003.