

## Анотація

*Улибкін О.Л.* Емісійний внутрішньозонний детектор нейтронів на основі металевого гафнію. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття ступеня доктора філософії за спеціальністю 105 – Прикладна фізика та наноматеріали (Галузь науки 10 – Природничі науки). – Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти і науки України, Харків, 2024.

Дисертаційна робота присвячена дослідженню металевого гафнію з метою його використання у якості матеріалу емітера безінерційного (комптонівського) нейтронного детектора для активної зони ВВЕР-1000. Одним із найбільш ефективних способів збільшення вигоди від використання ядерного реактора є подовження строку служби внутрішньозонних матеріалів та підвищення потужності, що, в свою чергу, призводить до підвищення дози радіаційного впливу на матеріали та збільшення температури в активній зоні. Будь-яке підсилення жорсткості умов експлуатації в плані радіаційно-термічного впливу негативно впливає на показники безпеки. У результаті, одночасно із зростанням дозового та температурного навантажень, потрібно вживати заходів щодо збереження або збільшення надійності та безпеки реактора. Одним із таких заходів є модифікація вимірювальних систем, зокрема, система контролю потужності та нейтронного потоку. Ідея використання металевого гафнію якраз і ґрунтується на необхідності модифікації вимірювальних систем ядерного реактора та розробки і пошуку нових матеріалів, що підходять для використання в нових, більш жорстких експлуатаційних умовах. Підвищення показників економічності ядерного реактора включає у собі також і процес удосконалення безпеки реактора,

зокрема, це стосується систем, що відповідальні за моніторинг та управління полем виділення енергії в активній зоні.

Розглянуто загальні тенденції розвитку атомної енергетики, з яких видно, що розробники намагаються кожен наступний проект реактора зробити більш безпечним. Але одночасно із розробкою новітніх ядерних реакторів існує також і процес постійного вдосконалення реакторів, що вже знаходяться в роботі. Зокрема, одним з таких варіантів є модифікація контрольно-вимірювальної системи.

У реакторах типу ВВЕР використовуються сотні  $\beta$ -емісійних нейтронних детекторів, і нові тенденції ставлять під сумнів їх здатність забезпечити усіма необхідними даними про стан нейтронного потоку через властиву їм затримку сигналу. У зв'язку з цим важливо розглянути можливість додаткового застосування і безінерційного (комптонівського) детектора. Тому пропонується також використовувати ще й безінерційні нейтронні детектори, зокрема, з емітером із металевого гафнію. Застосування детектора із таким матеріалом емітера є надзвичайно вигідним як з огляду на його ядерно-фізичні властивості, так і в плані вартості металу. Однак важливо з'ясувати, як саме поводитиметься  $\text{Hf}$  емітер в умовах активної зони, тому й впливає необхідність оцінки його працездатності, а також порівняння з іншими потенційними кандидатами. При цьому, звичайно, слід враховувати специфічні властивості всіх кандидатів та характеристики робочого середовища.

В рамках роботи детально розглянуто першопричини затримки сигналу  $\beta$ -емісійного детектора, а також оцінено проміжок часу, необхідний для вирівнювання сигналу у разі раптових змін величини нейтронного потоку в активній зоні (розглянуто кілька різних ситуацій, що включають як режим підвищення величини потоку, так і його зменшення). Оцінку часу затримки було проведено за допомогою т.з. розв'язку Бейтмана для лінійних ланцюгів

перетворень нуклідів. Проведено оцінку того, чому існуючий комптонівський детектор з емітером із  $\text{HfO}_2$  не може бути використаний в реакторі ВВЕР. Це було реалізовано через оцінку інтенсивності вигоряння нуклідів гафнію в залежності від величини жорсткості нейтронного спектру (також до уваги було взято різницю величин атомних концентрацій нуклідів гафнію у складі металу та оксиду  $\text{HfO}_2$ ).

У Розділі 2 сформульовано основні критерії, за якими можна оцінити придатність матеріалу в якості його використання як емітера комптонівського нейтронного детектора. Пропонується проводити оцінку на базі таких характеристик, як: баланс концентрацій та перерізів реакції  $(n, \gamma)$ ; нуклідний/елементний склад; здатність до поглинання нейтронів; наведена активність; ступінь відгуку на потоки опромінення (нейтрони та фотони). На прикладі ланцюга перетворень  $\text{Hf}$  природного складу було детально розглянуто особливості застосування розв'язку Бейтмана (зокрема, роль розгалужень). При розрахунках нуклідного складу було використано математичний апарат, у якому окремо розглядались процеси поглинання нейтронів у резонансному та тепловому діапазоні енергій. Для нуклідів  $\text{Hf}$  було проведено порівняння зазначених процесів і виявлено, що для більшості нуклідів гафнію, як вихідних, так і тих, що утворюються в процесі опромінення нейтронами, домінантним є поглинання у резонансній області.

Розглянуто базові фізичні процеси, що протікають у детекторі. Зокрема, наведено особливості послаблення  $\gamma$ -випромінювання в матеріалі та аналітичний спосіб оцінки генерації електричного заряду при розсіюванні фотонів в матеріалі. Наведено дані, які демонструють, що найбільше число фотонів, випромінюваних внаслідок протікання реакції  $(n, \gamma)$  радіаційного поглинання нейтрону, знаходиться в межах діапазону  $0,5 \dots 3,5$  MeV, де переважає комптонівське розсіювання.

Наведено комп'ютерну модель, яку було використано в роботі для оцінки інтенсивності відгуку детектора на випромінювання. У якості параметрів нейтронного детектора використано геометрію та склад матеріалів реального макету, який було виготовлено в ННЦ ХФТІ в рамках однієї з робіт із співавторами. У якості робочого середовища було взято частину моделі активної зони ВВЕР-1000, розроблену у Центрі проектування активних зон Науково-технічного комплексу «Ядерний паливний цикл» ННЦ ХФТІ. Також розглянуто основні особливості комп'ютерного коду MCNPX, який було використано для проведення розрахунків.

У Розділі 3 наведено результати розрахунків для нуклідного складу гафнію та інших потенційних кандидатів на роль емітера комптонівського детектора. Також для цих матеріалів у порівнянні із гафнієм наведено наступне: детальні ланцюги перетворень; величини поперечних перерізів поглинання нейтронів; здатність до поглинання нейтронів; наведена активність. За допомогою розв'язку Бейтмана розглянуто, як на динаміку зміни нуклідного складу гафнію впливає наявність метастабільних (ізомерних) станів (це зроблено на прикладі включення у ланцюг перетворень одного з найбільш вірогідних ізомерів). Також оцінено вклад трансмутантів у зміну здатності гафнію поглинати нейтрони. При цьому зроблено порівняння, як розрахована поглинаюча здатність корелює із літературними даними. Також за допомогою програми MCNPX розраховано зміни нуклідного складу Hf емітера на протязі 4-х паливних кампаній.

Розділ 4 повністю присвячений розрахунку у комп'ютерній програмі MCNPX та отриманим результатам. Для визначення ролі самого детектора на тлі впливу потоків реакторних фотонів та нейтронів запропоновано прийом, що дає можливість за допомогою опцій коду скомпонувати принципово різні розрахунки. Компонування умов можливе завдяки маніпуляціям з опцією «importance» та можливістю задати штучний матеріал, що має зручні для

розрахунку характеристики. В результаті задача відгуку детектора вирішувалась у декількох комбінаціях, але все було зведено до того, що зовнішні параметри (кількість та потужність джерел n- та  $\gamma$ -випромінювання, а також температура середовища) є незмінними, а враховується лише модифікація складу матеріалу емітера (модифікації складів інших матеріалів при цьому ігноруються). Отже, для комптонівського детектора з емітером із металевого Hf вдалось визначити поведінку наступних характеристик: потік та енергетичний спектр нейтронів в емітері; потік та енергетичний спектр фотонів реакторного походження в емітері; потік та енергетичний спектр фотонів з реакції (n,  $\gamma$ ) поглинання нейтрона в матеріалі емітера.

Отримані результати дали змогу зробити ряд висновків, важливих для подальшої розробки детектора: реакторні фотони мають найбільший вклад у сумарному  $\gamma$ -випромінюванні, що пронизує детектор; частина фотонів, що з'являються в детекторі за рахунок реакції (n,  $\gamma$ ) суттєво менша у порівнянні з фотонами реакторного походження і вона поступово зменшується в часі, але, при цьому, потік таких  $\gamma$ -квантів більш ефективно конвертується в електрони ніж  $\gamma$ -кванти реакторного походження.

*Ключові слова: гафній, детектор, нейтрони, фотони,  $\gamma$ -кванти, заряд, реактор, опромінювання, радіація, Монте-Карло симуляція, моделювання.*

## **Abstract**

*Oleksandr Ulybkin.* Emissive in-core neutron detector based on metallic hafnium. – Qualifying scientific paper, manuscript copyright.

The Thesis for the Doctor of Philosophy degree in specialty 105 – Applied Physics and Nanomaterials (Science 10 – Natural Sciences). – Karazin Kharkiv National University of the Ministry of Education and Science of Ukraine, Kharkiv, 2024.

The thesis is devoted to the study of metallic Hf in order to use it as an emitter material of the inertialess (Compton) neutron detector for the core of WWER-1000. One of the most effective ways to increase the benefit from the nuclear reactor using is to extend the service life of in-core materials and an increase of the reactor power, which, in turn, leads to go up both the radiation dose and the temperature in the core. Any strengthening of the operating conditions in terms of radiation and thermal exposure has a negative effect on safety indicators. As a result, simultaneously with the increase of dose and temperature, it is necessary to take measures to preserve or increase the reliability and safety of the reactor. One of these measures is the modification of measurement systems, in particular, the power and neutron flux control system. The idea of using Hf is based on the necessity to modify the measurement systems of the nuclear reactor and to develop new materials suitable for using in new, harsher operating conditions. Increasing reactor efficiency also includes the process of the improving the reactor safety, in particular, the systems responsible for a control and a monitoring of the energy release field in the nuclear power plant.

The general trends in the development of atomic energy are considered, from which it can be seen that the developers are trying to make each subsequent reactor project safer than a previous one. But, at the same time, with the development of the newest nuclear reactors, there is also a process of continuous improvement of

reactors that have been already used. In particular, one of these options is the modification of the control and measurement system. Hundreds of  $\beta$ -emission neutron detectors are used in reactors of the WWER type, and the new trends lead us to a question about their ability to provide all the necessary information about the behavior of the neutron flux due to their inherent signal delay. In this regard, it is important to consider the possibility of additional application of an inertialess (Compton) detector. Therefore, it is suggested to use also inertialess neutron detectors, in particular, a Compton detector with an emitter made of metallic Hf. The use of a detector with such an emitter material is extremely advantageous both in terms of its nuclear-physical properties and in terms of the cost. However, it is important to find out exactly how the Hf emitter will behave in reactor core conditions, which is why it is necessary to evaluate its performance, as well as compare it with other potential candidates. At the same time, of course, the specific characteristics of the candidates and the characteristics of the working environment should be taken into account.

As part of the study, the initial reasons of the  $\beta$ -emission detector delay were considered in details, and the time amount required for the signal stabilization at the sharp changes of the neutron flux value in the core was estimated. Several various cases which include both an increasing and a decreasing of the neutron value flux are considered. The estimation of the delay time was carried out using the so-called Bateman's solution for linear chains of nuclide transformations. An assessment was made as to why the existing Compton detector with  $\text{HfO}_2$  emitter cannot be used in a WWER. This was realized by evaluating the intensity of hafnium nuclides burning-out depending on the hardness of the neutron spectrum (the difference in atomic concentrations of hafnium nuclides in the composition of the metal and  $\text{HfO}_2$  oxide was also taken into account).

Section 2 formulates the main criteria by which the suitability of a material as a Compton neutron detector emitter can be assessed. It was proposed to carry out an

assessment on the basis of the following characteristics: the balance of the concentrations and the  $(n, \gamma)$ -reaction cross-sections; the nuclide/element composition; the ability to absorb neutrons; the induced activity; the response on irradiation by neutrons and photons. Using the natural Hf transformations chain, the features of the Bateman's solution application was analyzed in detail (particularly, the meaning of the chain branching was considered). When calculating the nuclide composition, a mathematical apparatus was used, in which the neutron absorption within the resonant and thermal range of energy were considered. For Hf nuclides was carried out a comparison of the mentioned processes, and it was estimated that the neutron absorption within the resonant range was dominant.

The basic physical processes which take place in the detector are considered. In particular, it was about the  $\gamma$ -radiation attenuation in the material and the analytical method of estimating the generation of an electric charge during this process. Data are presented that demonstrate that the largest number of photons emitted as a result of the  $(n, \gamma)$  reaction of a radiative neutron capture is within the range of 0.5...3.5 MeV, where Compton scattering is dominant.

The computer model that was used in the work to estimate the intensity of the response of the detector to radiation is given. As parameters of the neutron detector, the geometry and composition of materials of a real model, which was produced at the NSC KIPT as part of one of the works with co-authors, were used. A part of the WWER-1000 core model, developed at the "Nuclear fuel cycle" Science and technology establishment of the NSC KIPT, was taken as the working environment. The main features of the MCNPX computer code, which was used for calculations, are also considered. The main features of the MCNPX computer code, which was used for calculations, are also considered.

Section 3 shows the results of the nuclide composition calculations for Hf and other potential candidates on the role of the Compton detector emitter. The following are also given for these materials in comparison with Hf: the detailed chains of



transformations; the values of the neutron absorption cross-sections; the ability to absorb neutrons; the induced activity. With the help of Bateman's solution, it was considered how the dynamics of changes in the nuclide composition of hafnium is affected by the presence of metastable (isomeric) states (this is done using the example of including one of the most probable isomers in the Hf chain of transformations). The role of transmutants in changing the ability of Hf to absorb neutrons was also evaluated. At the same time, a comparison is made of how the calculated absorption capacity correlates with literature data. Also via the MCNPX program the nuclide composition changes of the Hf-emitter were calculated for the irradiation during 4 fuel campaigns.

Section 4 is fully devoted to the calculation in the MCNPX computer application and the results obtained. To determine the role of the detector itself against the background of the influence of reactor photons and neutrons fluxes, a method is proposed that allows using code options to compose fundamentally different calculations. Composition of conditions is possible thanks to manipulations with the "importance" option and the ability to set an artificial material that has properties convenient for calculation. As a result, the detector response problem was solved in several combinations, but everything was reduced to the fact that the external parameters (the number and power of n- and  $\gamma$ -radiation sources, as well as the temperature of the environment) were unchanged, and only the modification of the composition of the emitter material was taken into account (other materials composition changes were ignored). Thus, for a Compton detector with an emitter made of metallic Hf, it was possible to determine the behavior of the following characteristics: the flux and energy spectrum of neutrons in the emitter; the flux and energy spectrum of photons with reactor origin in the emitter; the flux and energy spectrum of photons from the (n,  $\gamma$ ) neutron absorption reaction in the emitter material.

The obtained results made it possible to draw a number of conclusions important for the further development of the detector: reactor photons have the largest contribution to the total  $\gamma$ -radiation affected on the detector; the part of photons generating into the detector due to  $(n, \gamma)$  reaction is significantly smaller compared to photons of reactor origin, and their number is going down in time, however, this type of  $\gamma$ -quanta flux are converted into the electrons more effectively in comparison with photons of the reactor origin.

*Key words: hafnium, detector, neutrons, photons,  $\gamma$ -quanta, charge, reactor, irradiation, radiation, Monte-Carlo simulation, modelling.*