ХАРКІВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ ім. В.Н. КАРАЗІНА МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису

Улибкін Олександр Леонідович

УДК 621.039(043.5)

ДИСЕРТАЦІЯ

ЕМІСІЙНИЙ ВНУТРІШНЬОЗОННИЙ ДЕТЕКТОР НЕЙТРОНІВ НА ОСНОВІ МЕТАЛЕВОГО ГАФНІЮ

Спеціальність 105 – Прикладна фізика та наноматеріали

(Галузь науки 10 – Природничі науки)

Подається на здобуття ступеня доктора філософії.

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело.

Олександр УЛИБКІН

Наукові керівники:

Кузнєцов Пилип Едуардович,

Кандидат фіз.-мат. наук, Доц. каф. фізики ядра та високих енергій ім. О.І. Ахієзера.

Володимир Васильович Ганн,

Доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут»

ХАРКІВ – 2024

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. способів Одним із найбільш ефективних збільшення вигоди від використання ядерного реактора € 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 β -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 Hf емітер в умовах активної зони, тому й випливає 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 β-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 HfO₂ 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 HfO₂).

У Розділі 2 сформульовано основні критерії, за якими можна оцінити придатність матеріалу якості його використання В ЯК емітера комптонівського нейтронного детектора. Пропонується проводити оцінку на базі таких характеристик, як: баланс концентрацій та перерізів реакції (n, γ); нуклідний/елементний склад; здатність до поглинання нейтронів; наведена активність; ступінь відгуку на потоки опромінення (нейтрони та фотони). На прикладі ланцюга перетворень Нf природного складу було розглянуто особливості застосування розв'язку детально 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 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 € поглинання У резонансній області.

Розглянуто базові фізичні процеси, що протікають у детекторі. Зокрема, наведено особливості послаблення γ-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, γ) радіаційного поглинання нейтрону, знаходиться в межах діапазону 0,5...3,5 MeB, 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 BBEP-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 Нf 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 γ -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, γ) поглинання нейтрона в матеріалі емітера.

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

Ключові слова: гафній, детектор, нейтрони, фотони, ү-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 being already used. In particular, one of these options is the modification of the control and measurement system. Hundreds of β -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 β -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 HfO₂ 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 HfO₂ 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, γ) -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 γ -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, γ) 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 γ -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, γ) 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 γ -radiation affected on the detector; the part of photons generating into the detector due to (n, γ) reaction is significantly smaller compared to photons of reactor origin, and their number is going down in time, however, this type of γ -quanta flux are converted into the electrons more effectively in comparison with photons of the reactor origin.

Key words: hafnium, detector, neutrons, photons, γ -quanta, charge, reactor, irradiation, radiation, Monte-Carlo simulation, modelling.

Список публікацій здобувача за темою дисертації

Наукові роботи, в яких опубліковано основні результати дисертації:

1. B.A. Shilyaev, **A.L. Ulybkin**, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, A.O. Pudov, K.V. Kutny. Compton detector of neutrons for the energy yield control in the active zone of WWER. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2017. Vol. 108, Iss. 2. P. 75–82.

URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2017_2/article_2017_2_75</u>.pdf/.

Особистий внесок здобувача: аналіз літературних даних, компоновка ланцюжка перетворень, розрахунок нуклідних перетворень, написання тексту статті та робота з рецензентами.

2. B.A. Shilyaev, **A.L. Ulybkin**, K.V. Kovtun, A.V. Rybka, V.E. Kutny, A.O. Pudov. Hafnium in Nuclear Power Industry: The Evolution of Increasing of the Economic Indicators and the Operation Safety of Pressurized Water Nuclear Reactors. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2018. Vol. 113, Iss. 1. P. 43–50.

URL: https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2018_1/article_2018_1_43 .pdf/.

Особистий внесок здобувача: аналіз літературних даних, обговорення ідеології роботи, розрахунки змін здатності поглинання нейтронів, написання тексту статті та робота з рецензентами.

3. **A.L. Ulybkin**, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, V.N. Voyevodin, A.O. Pudov. Compton-emissive hafnium detector of neutrons for in-core monitoring. *Nuclear Physics and Atomic Energy*. 2018. Vol. 19, Iss. 3. P. 237–243. URL: <u>http://jnpae.kinr.kiev.ua/19.3/html/19.3.0237.html</u>. DOI: <u>10.15407/jnpae2018.03.237</u>/.

Особистий внесок здобувача: аналіз літературних даних, розробка основної ідеї роботи, розрахунки та аналіз результатів, написання тексту статті та робота з рецензентами.

4. A. Ulybkin, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov,
R. Azhazha. Radiation-induced transformation of Hafnium composition. *Nuclear Engineering and Technology*. 2019. Vol. 51, Iss. 8. P. 1964–1969.

URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573318309690</u>. DOI: <u>10.1016/j.net.2019.06.007/</u>.

Особистий внесок здобувача: аналіз літератури, розробка задач та ідеології статті, аналітичні розрахунки нуклідних перетворень гафнію в умовах BBEP-1000, написання тексту статті та робота з рецензентами.

5. **A. Ulybkin**, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov, R. Azhazha, E. Bogdan, Compton (Prompt-Response) Neutron Detectors: Comparison of Emitter Materials Through the Nuclear Transmutation Model. *Sensors International*. 2020. Vol. 1, 100020, ISSN 2666-3511.

URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2666351120300206</u>. DOI: <u>10.1016/j.sintl.2020.100020</u>/.

Особистий внесок здобувача: аналіз літератури, розрахунки, аналіз отриманих результатів, написання тексту статті та робота з рецензентами.

6. R. Azhazha, E. Bogdan, V. Gann, K. Kovtun, V. Kutny, O. Pudov, A. Rybka, S. Soldatov, **A. Ulybkin**. The Compton neutron hafnium detector: Electric charge generation. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2022. Vol .138, Iss. 2. P. 102–108.

URL: https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2022_2/article_2022_2_10 2.pdf. DOI: 10.46813/2022-138-102/.

Особистий внесок здобувача: аналіз літератури, визначення основних задач роботи, моделювання в програмі MCNPX, розрахунки, написання тексту статті та робота з рецензентами. 7. Vladimir Gann, Pylyp Kuznietsov, **Alexander Ulybkin**, The burn-up profile of the Compton neutron detector Hf-emitter in the WWER-1000 reactor. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2023. Vol. 148, Iss. 6. P. 116–121. URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2023_6/article_2023_6_11</u> <u>6.pdf</u>. DOI: <u>10.46813/2023-148-116/.</u>

Особистий внесок здобувача: аналіз літератури, розрахунок нуклідних перетворень гафнію в умовах ВВЕР-1000 у програмі МСNPX, написання тексту статті та робота з рецензентами.

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації:

1. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів миттєвої дії для контролю рівня енерговиділення в активній зоні реактора ВВЕР-1000. *12-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 16–18 листопада 2016 р.: тези доп. Харків, 2016. С. 16.

2. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів з емітером із металічного гафнію для контролю енерговиділення в активній зоні реактора ВВЕР. *11-а Міжнародна конференція «Ядерна та радіаційна фізика»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Алмати, Республіка Казахстан, 2017. С. 245.

3. Б.А. Шиляєв, **О.Л. Улибкін**, К.В. Ковтун, О.В. Рибка, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, А.А. Васил'єв. Чистий гафній – матеріал найважливіших елементів конструкцій ядерних реакторів. *4-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Харків. С. 12.

4. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, О.В. Рибка, І.Н. Шляхов, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов. Радіаційні характеристики комптонівського ДПЗ з емітером із гафнію при опроміненні нейтронами та гама-квантами. *13-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих*

вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики», 18–20 жовтня 2017 р.: тези доп. Харків, 2017. С. 33–34.

5. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Радіаційні зміни нуклідного складу гафнію. *14-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 14–16 листопада 2018 р.: тези доп. Харків., 2018. С. 12.

6. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Порівняння емітерів комптонівських детекторів нейтронів. *5-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»,* 10–13 вересня 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 97.

7. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Комптонівські детектори нейтронів: порівняння матеріалів емітерів по моделі ядерних перетворень. *15-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 10–13 листопада 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 21.

8. В.В. Ганн, С.А. Солдатов, **О.Л. Улибкін**, Є.А. Богдан, Р.В. Ажажа, А.О. Пудов, В.М. Воєводін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній. Комптонівський нейтронний детектор з емітером із металічного гафнію. *6- а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»*, 13–15 вересня 2021 р.: тези доп. Харків, 2021. С. 38.

9. Р.В. Ажажа, Є.О. Богдан, В.В. Ганн, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, О.В. Рибка, С.А. Солдатов, **О.Л. Улибкін**. Роль матеріалу емітера для процесу утворення електричного заряду емісійного нейтронного детектора. *29-а щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України*, 26–30 вересня 2022 р.: тези доп. Київ, 2022. С. 123-124.

3MICT .	•••••		•••••	••••		
YMOBH	П ПО	ЗНАЧЕННЯ.			••••••	
ВСТУП	•••••					
Розділ	1.	контроль	ВИДІЛЕІ	ЯНЯ	ЕНЕРГІЇ -	- СПОСІБ
підвиі	цені	ня безпеки	ТА ЕКОНО	ОМІЧН	IOCTI AEC	
1.1. Te	нденц	ції розвитку су	часної атом	ної ене	ергетики	
1.1.1	. Покс	оління АЕС та	задачі атомн	ої енер	гетики	
1.1.2	. Удос	коналення реа	кторів та рів	ень без	пеки АЕС	
1.1.3	. Підв	ищення теплов	зого навантах	кення.	•••••	
1.1.4	. Шля	хи підвищення	ефективнос	ri AEC		
1.2. M	оніто	ринг та упра	вління виді	ленням	м енергії в а	ктивній зоні
ядерно	ого ре	актора	•••••	•••••		
1.2.1	. Задач	чі контролю та	управління.	•••••		
1.2.2	. Спос	оби контролю	потужності	га розп	оділу енергії.	
1.3. П _I	робле	ма використа	ння інерцій	них де	текторів та м	южливість її
виріш	ення з	за допомогою	комптонівсі	ького Д	цетектора	
1.3.1	. Особ	бливості утвор	ення сигналу	β-еміс	ійного детекто	opa45
1.3.2	. Затр	имка сигналу	3-емісійного	детект	ора відносно з	міни густини
ПОТО	ку ней	ітронів		•••••	••••••	
1.4. 3a	стосуі	вання Hf в си	стемах упра	вління	та захисту ре	актора 52
1.4.1	. Гафн	ій в атомній п	ромисловост	i	••••••	
1.4.2	. Гафн	ій в ролі еміте	ра нейтронно	ого дет	ектора	
Висно	вки д	о Розділу 1		•••••		
Розділ	2. Φ	ІЗИЧНІ ОСН	ЮВИ РОЗІ	РОБКИ	і комптон	НВСЬКОГО
НЕЙТР	онно	ого детект	TOPA TA M	іетод	(И РОЗРАХУ	нку його
ХАРАК	ТЕРИ	СТИК		••••	•••••	61
2.1. F	Срите	рії вибору	матеріалів	внутр	ішньозонного) детектора
нейтро	онів	•••••		•••••		

3MICT

2.2.	Спосіб	розрахунку	у елемент	ного (складу	матеріалу,	що
опро	мінюєтьс	я нейтронам	1И		•••••		66
2.3.	Фізичні	процеси,	що забезпо	ечують	роботу	безінерції	йного
детен	стора ней	тронів			•••••		70
2.3	1. Поглин	ання нейтро	ну. Вплив ре	езонансі	в та k·T		74
2.3	2. Процес	с послаблення	я потоку ү-к	вантів у	матеріал	i	78
2.3	3. Походу	кення фотоні	В				82
2.4. N	Лодель ко	омптонівськ	ого детекто	ра в акт	гивній зо	оні реактора	a 85
2.4.	1. Комп'н	отерний код.			•••••	•••••	85
2.4.	2. Опис д	етектора і мо	делі		•••••		87
Висн	овки до Н	Розділу 2			•••••		91
Розділ	3. 1	робочий	РЕСУРС	ГАФ	PHIEBO	ΓΟ ΕΜΙ	ГЕРА
в ум(ЭВАХ АК	ТИВНОЇ ЗС	ОНИ РЕАКТ	FOPA B	BEP-100	0	.93
3.1.	Трансфор	эмація скла	ду Нf в п	отоці н	ейтроніі	з активної	зони
реак	гора ВВЕ	P-1000			•••••		94
3.1.	1. Ланцю	г перетворен	ь та зміна ск	ладу Hf	••••••		94
3.1	2. Вплив	ізомерії на ді	инаміку змін	и нуклі	дного скл	ıаду Hf	101
3.2. P	оль тран	смутантів у	поглинанні	і нейтро	нів гафн	пем	103
3.3.	Порівнян	ня матеріа	лів, що є	загалы	ноприйн	ятими в я	кості
еміте	ера компт	онівського Д	детектора		•••••		105
3.3.	1. Ланцю	ги перетворе	нь		•••••		106
3.3.	2. Елемен	тний склад			•••••		109
3.3.	3. Здатніс	сть поглинати	и нейтрони.	Наведен	а активн	ість	111
3.4. I	Ірофіль в	игоряння ем	літера		•••••		113
Висн	овки до р	озділу З			•••••		120
Розділ	4. EBO.	люція зд	ATHOCTI	ГЕНЕР	АЦІЇ ЕЈ	іектричн	ЮГО
ЗАРЯД	ЈУ В КО М	ИПТОНІВС	ькому де	стектс)РІ НЕЙ	TPOHIB	122
4.1.	Розділен	ня реакторн	их факторіі	В			123
4.2.	Потоки н	нейтронів і ф	ротонів, що	опромі	нюють д	етектор	126
4.3.	Інтенсив	ність утворо	ення заряду				131

4.4. Порівняння з іншими дослідженнями	
Висновки до Розділу 4	
ВИСНОВКИ	
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	
ДОДАТОК А	
ДОДАТОК Б	
ДОДАТОК В	

УМОВНІ ПОЗНАЧЕННЯ

AEC	Атомна електростанція	
СУЗ	Система управління та захисту	
СВРК	Система внутрішньо-реакторного контролю	
ДПЗ	Детектор прямого заряду	
ЯПЦ	Ядерний паливний цикл	
ВЯП	Відпрацьоване ядерне паливо	
КВВП	Коефіцієнт використання встановленої потужності	
BBEP	Водо-водяний енергетичний реактор	
TB3	Тепловиділяюча збірка	
ΜΑΓΑΤΕ	Міжнародне агентство атомної енергетики	
INPRO	International Project on Innovative Nuclear Reactors and	
	Fuel Cycles	
EPR	Evolutionary Pressurized Reactor	
BWR	Boiled Water Reactor	
PWR	Pressurized Water Reactor	
APR	Advanced Power Reactor	
ККД	Коефіцієнт корисної дії	
СКЕ	Система контролю енергорозподілом	
ТΠ	Термоелектричний перетворювач	
ТО	Термометр опору	
КНВ	Канал нейтронних вимірювань	
РВПК	Реактор великої потужності канальний (рос. «РБМК»)	
PHWR	Pressurized Heavy-Water Reactor	
CANDU	Canada Deuterium Uranium – Канадський важководний	
	реактор із водою під тиском	
LWGR	Light Water Graphite Reactor	
GCR	Gas-Cooled reactor	
SPD	Self-Powered Detector	

ENDF	Evaluated Nuclear Data File
ACTL	Activation Library
PP	Радіаційний ресурс

ВСТУП

Обґрунтування вибору теми дослідження. З самого зародження атомної енергетики спостерігається постійне зростання вимог щодо покращення показників безпеки та економічності енергетичних установок. Підвищення безпеки та експлуатаційних характеристик, зниження впливу на природу та людство – основні завдання, які прагнуть вирішити розробники. Одним із найбільш популярних способів збільшити вигоду від використання ядерного реактора є збільшення температури в активній зоні та подовження терміну служби внутрішньозонних матеріалів, що, в свою чергу призводить до росту дози радіаційного впливу. Але, так чи інакше, будь-які способи, пов'язані з підсиленням жорсткості умов експлуатації в плані радіаційно-термічного впливу негативно впливають на показники безпеки. У результаті, одночасно із ростом 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. У реакторах типу ВВЕР використовуються сотні βемісійних нейтронних детекторів, і нові тенденції ставлять під сумнів їх здатність забезпечити усіма необхідними даними про стан нейтронного потоку через притаманну їм затримку сигналу. У зв'язку з цим важливо розглянути можливість додаткового застосування і безінерційного (комптонівського) детектора. Пропонується використовувати детектор з емітером із металевого гафнію. Використання даного металу вигідне як з позицій його ядерно-фізичних властивостей, так і з точки зору вартості. Однак важливо з'ясувати, як саме поводитиметься емітер з Hf в умовах активної зони, тому й випливає необхідність оцінки його працездатності, а також порівняння з іншими потенційними кандидатами. При цьому,

звичайно, слід враховувати специфічні властивості кандидатів та характеристики робочого середовища.

Метою дисертаційної роботи є встановлення закономірностей протікання фізичних процесів у матеріалі емітера (Hf) комптонівського нейтронного детектора, що перебуває під впливом реакторних факторів (температура, потоки n та γ); проведення розрахунків з метою оцінки ролі матеріалу емітера на тлі впливу реакторних факторів.

З цією метою в роботі було визначено низку завдань, серед яких:

• розробити критерії, за якими можна оцінити придатність того чи іншого матеріалу як емітера комптонівського детектора;

• провести оцінку Hf та інших потенційних кандидатів на роль емітера з позицій оцінок швидкості вигоряння атомів, зміни здатності поглинати нейтрони, зміни наведеної активності;

• оцінити роль матеріалу емітера в генерації електричного заряду детектора на тлі впливу потоків реакторних фотонів та нейтронів;

• визначити, як у часі змінюється здатність емітера генерувати електричний заряд.

Об'єкт дослідження – макет комптонівського нейтронного детектора, призначеного для використання в активній зоні BBEP-1000.

Предмет дослідження – процеси за участю нейтронів, фотонів та електронів у моделі комптонівського нейтронного детектора.

Методи дослідження. При вирішенні поставлених завдань використовувалися добре відомі методи радіаційної та ядерної фізики, а також методи чисельного моделювання. Дослідження транспорту частинок здійснено за допомогою комп'ютерного коду MCNPX.

Наукова новизна одержаних результатів. У дисертаційній роботі вперше отримано такі результати:

1) Розроблено підхід для оцінки придатності матеріалу для роботи в умовах активної зони реактора у ролі емітера емісійного детектора. 2) Виявлено, що метастабільні стани з ланцюжка перетворень гафнію мають незначний вплив на динаміку зміни концентрацій вихідних ізотопів і трансмутантів, що накопичуються в результаті опромінення нейтронами. Ізомер з найбільшим перерізом утворення призводить до зміщення кривої зміни концентрації в часі лише на величину < 1% ат.

3) Запропоновано підхід, що дає можливість оцінити роль матеріалу емітера в генерації електричного заряду на фоні впливу реакторних нейтронів та фотонів.

4) Для Нf детектора розраховано потоки та енергетичнi спектри випромінювань, якi визначають його роботу в активній зонi реактора ВВЕР-1000 протягом t = 0...5 років. Виявлено, що на тлi загальної деградації емісійних властивостей матеріалу емітера, потік γ -квантів, якi виникають у реакції (n, γ) більш ефективно послаблюється у (γ , е)-процесі у порівнянні із потоками γ -квантів реакторного походження.

Практичне значення одержаних результатів. Завдання оцінки та прогнозування поведінки тих чи інших матеріалів в умовах активної зони ядерного реактора є важливою складовою ядерної науки та техніки. Врахування тенденцій щодо підвищення рівня безпеки та економічності призводить до перегляду ефективності та доцільності використання як традиційних, так і нових матеріалів, що мають потенціал. У цьому контексті для металевого гафнію виникають нові перспективи ролі емітера внутрішньозонного безінерційного нейтронного детектора. Проведене в цій роботі дослідження демонструє, що: для активної зони ВВЕР-1000 металевий Hf може бути використаний як матеріал комптонівського детектора; значно розширено відомості про зміну ядерно-фізичних властивостей гафнію під опроміненням. Результати, отримані в рамках дисертації, використовуються як основа для розробки детектора в ННЦ ХФТІ. Запропоновані у роботі підходи можуть бути використані для дослідження поведінки будь-якого матеріалу, для якого необхідно дослідити поведінку відгуку на вплив опромінення.

Особистий внесок здобувача є у всіх опублікованих роботах [1–16], відповідно до поставлених керівником завдань, а саме: аналіз літературних даних; проведення всіх необхідних розрахунків; спільно зі співавторами аналіз отриманих результатів; опрацювання результатів; підготовка матеріалів для публікації, написання статей та тез доповідей на конференціях з теми дисертації.

У статті [1] дисертантом розглянуто особливості формування сигналу β-емісійного детектора нейтронів, і у порівнянні показано, що застосування безінерційного детектора з емітером із металевого Hf є доцільним. Для Hf скомпоновано ланцюжок перетворень нуклідів та трансмутантів. розраховано концентрації корисних У статті [2] дисертантом розраховано зміни здатності поглинання нейтронів із часом для умов активної зони ВВЕР-1000. У роботі [3] дисертантом проведено розрахунок, у якому видно, що використання детектора з емітером із HfO₂ в активній зоні BBEP-1000 є недоцільним, на відміну від застосування металевого Hf. В статті [4] дисертантом отримано поперечні перерізи реакції (n, γ) для вихідних нуклідів і трансмутантів Hf, в яких було розділено і порівняно інтенсивності поглинання в резонансному та тепловому діапазоні. Також дисертантом було проведено оцінку того, як наявність ізомерних станів у ланцюжку перетворень Нf впливає на його динаміку вигоряння. У цій роботі було показано роль трансмутантів Та і W у зміні властивостей гафнію поглинати нейтрони. У роботі [5] дисертантом проведено комплексне порівняння Hf з іншими металами, які також мають перспективи використання у якості матеріалу емітера комптонівського детектора для активної зони реактора ВВЕР. У процесі порівняння було скомпоновано ланцюжки перетворення для всіх металів, розраховано їх нуклідний склад, здатність поглинати нейтрони, наведена активність, а також аналітично оцінений відгук матеріалів на n і у випромінювання. В статті [6] дисертант спільно із співавторами розробив комп'ютерну модель, за допомогою якої можна відокремити роль матеріалу емітера у генерації

електричного заряду на тлі впливу реакторних потоків п і у. Дисертант розрахував поведінку інтенсивності генерації заряду в детекторі в залежності від часу. У роботі [7] спільно з авторами аспірант провів розрахунки нуклідного складу матеріалу емітера в умовах активної зони BBEP-1000 на протязі 4-х паливних кампаній. Також оцінено темпи деградації поглинаючої здатності матеріалу емітера. І нуклідний склад, і поглинаючу здатність розраховано для аксіальних шарів, з метою з'ясувати ступінь впливу процесів самоекранування депресії та нейтронного потоку.

Апробація результатів дисертації. Основні результати та положення дисертації були представлені та отримали позитивні відгуки на міжнародних конференціях та форумах, серед яких:

- 12-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики». (16-18 листопада 2016 р.) [8];
- 11-а Міжнародна конференція «Ядерна та радіаційна фізика». (12-15 вересня 2017 р. Алмати, Республіка Казахстан) [9];
- 4-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості». (12-15 вересня 2017 р. Харків) [10].
- 13-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики». (18-20 жовтня 2017 р.) [11].
- 14-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики». (14-16 листопада 2018 р.) [12].
- 5-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості». (10-13 вересня 2019 р. Харків.) [13].

- 15-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики». (10-13 листопада 2019 р.) [14].
- 6-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості. (13-15 вересня 2021 р. Харків) [15].
- З-й Міжнародний круглий стіл-конференція «Перспективи впровадження інновацій у атомну енергетику». 24 вересня 2021 р., Інституті газу НАН України (Київ, вул. Дегтярівська, 39).
- 29-а щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України (Київ, 26 - 30 вересня 2022 року) [16].

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дисертаційна робота виконана як частина досліджень, що проводились в Інституті фізики твердого тіла матеріалознавства і технологій Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України. Робота є складовою частиною наступного проекту:

• Вивчення фізичних механізмів радіаційно-індукованої деградації функціональних властивостей матеріалів діючих та перспективних атомногенеруючих комплексів нового покоління для забезпечення енергетичної безпеки України. 2016-2020. № держреєстрації 0116U005094.

Дослідження впливу структурного стану на оптимізацію мікроструктурної еволюції та підвищення радіаційної стійкості конструкційних матеріалів сучасної і майбутньої ядерної енергетики. 2021-2025. № держреєстрації 0121U108779.

У 2018-2022 pp. робота над дисертацією проводилася в аспірантурі Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України.

Публікації. Результати, що представлені в дисертаційній роботі, опубліковані у 7 статтях [1–7] у профільних журналах, а також у 9 тезах доповідей [8–16] у збірниках робіт наукових конференцій.

Структура та об'єм роботи. Дисертаційна робота складається із вступу, чотирьох розділів, висновків, списку використаних літературних джерел із 101 найменувань на 12 сторінках та трьох додатків. Загальний обсяг дисертації складає 160 сторінок. Загалом у роботі 43 рисунки та 6 таблиць.

Розділ 1. КОНТРОЛЬ ВИДІЛЕННЯ ЕНЕРГІЇ – СПОСІБ ПІДВИЩЕННЯ БЕЗПЕКИ ТА ЕКОНОМІЧНОСТІ АЕС

Перший розділ містить огляд загальних тенденцій до підвищення безпеки та економічності реакторів в атомній енергетиці (п. 1.1 і 1.2), а також наслідки цих тенденцій – виникнення цілого ряду фізико-технічних задач, що присвячені пошуку нових матеріалів та удосконаленню внутрішньозонного обладнання і все з метою зберегти чи підвищити надійність та безпеку роботу ядерного реактора. В п. 1.3 розглянуто проблему використання нейтронних детекторів із затримкою сигналу, а також наведено задачу щодо оцінки часу затримки β-емісійного детектора у разі різкої зміни величини потоку нейтронів. Робиться висновок про те, що за сучасних вимог до підвищення рівня безпеки та економічності реактора використання тільки інерційного детектора є недостатнім з точки зору безпеки і надійності вимірювальних систем, через притаманну такому типу детекторів затримку сигналу. Пропонується разом із інерційним детектором нейтронів використовувати цей детектор без затримки сигналу з емітером із металевого гафнію. Пункт 1.4 присвячений короткому огляду історії використання гафнію в атомній енергетиці. Також у цьому пункті проведено порівняння ефективності використання металевого гафнію та оксиду гафнію як матеріалів емітера в активній зоні ВВЕР.

1.1. Тенденції розвитку сучасної атомної енергетики

1.1.1. Покоління АЕС та задачі атомної енергетики

Атомна енергетика – гарант довгострокового видобутку електроенергії, необхідна умова для подальшого сталого розвитку країн, а також невід'ємна складова безвуглецевої енергетики майбутнього. З самого свого зародження ця галузь безперервно розвивається, і це проявляється як у еволюції конструкцій енергетичних установок, що зараз знаходяться на стадії будівництва, так і у модифікації та оптимізації тих, що вже існують.

Розвиток світової ядерної енергетики простежується через проекти реакторів різних поколінь (Generation I–IV), а також міжнародний проект МАГАТЕ з інноваційних ядерних реакторів та паливних циклів (INPRO) [17].

На практиці, а також історично склалось, що безпека AEC має найбільший пріоритет у порівнянні з будь-яким іншим показником. Поділ реакторів на покоління має місце головним чином саме завдяки різним умовам безпеки.

Під категорію покоління І підпадають перші реактори 1950-х та 1960-х рр. Як паливо в них переважно використовувався природний або низько збагачений уран (оксид урану, UOX); сповільнювачами служили графіт, H₂O та D₂O, теплоносіями – H₂O та CO₂. Були також розроблені реактори-розмножувачі на швидких нейтронах з натрієвим перші теплоносієм: у США – EBR-1 (1951), EBR-2, Enrico Fermi (1968); у Франції - Rapsodie, Phoenix (1974); у СРСР - БОР-60, БН-350 (1973); у Великій Британії – PFR (1974). Це стало базою для розробки в майбутньому реакторів IV покоління. Все це було першими спробами забезпечити сталий розвиток ядерної енергетики (наприклад, за рахунок оптимізації використання природних ресурсів та переробки опроміненого палива з метою подальшого вилучення з нього U та Pu). Під «сталим розвитком», звісно, варто мати на увазі «розвиток, що задовольняє потреби сьогодення, без шкоди для можливості майбутніх поколінь задовольняти власні потреби» [18].

До покоління II відносяться промислові реактори, що введені в експлуатацію після нафтової кризи початку 1970-х р. (1970-2000 р., близько 30 країн). Переважно це легководні реактори, що діляться на дві основні групи: з теплоносієм, що кипить (BWR); з теплоносієм під тиском (PWR). Реактори покоління II добре зарекомендували себе щодо безпеки, ефективності та надійності експлуатації. Але все ж таки громадський тиск на атомну промисловість та прагнення більш раціонального/вигідного використання ядерних технологій послужили мотивацією до створення реакторів наступного покоління III. Підвищення рівня безпеки, покращення експлуатаційних параметрів, зниження рівня впливу на довкілля – основні показники, яких тепер прагнуть розробники.

Проекти деяких реакторів покоління III знаходяться на стадії будівництва або вже збудовані: EPR (компанії AREVA, Фінляндія, Франція, Китай); AP-1000 виробництва Toshiba-Westinghouse (удосконалений PWR) у Китаї; BBEP-1000 (ОКБ «ГІДРОПРЕС»), BBEP-1200 (проект «AEC-2006», OKБ «ГІДРОПРЕС»), та APR-1400 (Advanced Power Reactor виробництва КЕРСО) в Абу-Дабі [19, 20].

Базовими параметрами, які при виробництві енергії визначають ефективність технології використання реакції поділу, є температура активної зони реактора та доза радіаційного пошкодження матеріалів та палива. На даний момент найбільш ефективно поєднання цих двох характеристик представлено у проектах реакторів покоління IV.

Розробка реакторів покоління IV передбачає впровадження заходів, що забезпечать переробку (рециклювання) ядерного палива. Це, своєю чергою, сприятливо позначиться на ефективності розвитку ядерної енергетики в межах «сталого розвитку» [17, 18]. Ця тенденція може бути реалізована завдяки наступному:

• утворення мінімальних об'ємів відходів ядерного палива;

• модифікація паливного циклу;

• покращення показників безпеки AEC (аварійне розхолодження активної зони реактора; «пасивні» стрижні; пастки розплаву активної зони; внутрішньо властива безпека – призупинення протікання ланцюгової ядерної реакції; захист від впливу землетрусів; можливість витримати удар важкого об'єкта, наприклад, літака) (Рис. 1.1).



Рис. 1.1. Ядерна енергетика в рамках «сталого розвитку»

Українська атомна енергетика нині базується на 4-х AEC з енергоблоками типу BBEP (13 блоків – BBEP-1000 та 2 блоки – BBEP-440). Починаючи з 2014 р., виробництво електроенергії на цих AEC перевищує 50% загального виробітку. Ця ситуація виникла у зв'язку з цілим комплексом факторів, що призвели до зниження видобутку енергії тепловими станціями. Враховуючи, що більшість блоків введено в експлуатацію до 1990 р. (при плановому терміні служби 30 років), – одночасне будівництво достатньої кількості нових енергоблоків поки що не є можливим. Саме з цієї причини оптимізація блоків, що вже знаходяться в експлуатації, є надзвичайно важливою задачею.

1.1.2. Удосконалення реакторів та рівень безпеки АЕС

Еволюція конструкцій активних зон легководних ядерних реакторів демонструє, що покоління III має високі експлуатаційні параметри та гранично високий рівень безпеки ~ 10⁻⁷ 1/(реактор·рік), (наприклад, АЕС «Тяньвань» (Китай) та «Куданкулам» (Індія)) (Рис. 1.2) [2]. Реактор ВВЕР-1000 представлений на цьому рисунку проектом В-320.



Задачі підвищення безпеки та економічності ядерних енергоблоків призводять до необхідності подальшого вдосконалення конструкцій їх активних зон та ТВЗ. Основними завданнями цих модифікацій є:

1) підвищення ступеня вигоряння палива;

2) розробка та впровадження більш ефективних та безпечних способів управління/контролю виділенням енергії;

3) використання палива, що має достатній коефіцієнт розмноження K (K визначає запас реактивності $\rho = (K - 1)/K$ та забезпечує роботу палива на протязі заданого проміжку часу при номінальній потужності);

4) забезпечення надійного охолодження за номінальної потужності в будь-яких можливих режимах експлуатації;

5) забезпечення можливості компенсувати надлишкову реактивність (ρ_{3an}) на початку кампанії палива, а також управління реактором при зменшенні запасу реактивності (у ситуації, коли ізотоп ²³⁵U, що ділиться, вигоряє, а за рахунок ²³⁸U з'являються ²³⁹Pu и ²⁴¹Pu), а також при отруєнні та шлакуванні ядерного палива (утворення коротко- та довгоживучих ізотопів, що поглинають нейтрони).

1.1.3. Підвищення теплового навантаження

Нейтронно-фізичні властивості паливної решітки та характер їх змін у разі коливань технологічних параметрів (температура, тиск теплоносія), а також безпека та економічність експлуатації ядерних реакторів визначені конструкціями активних зон та твелів [21]. Коефіцієнт розмноження нейтронів *К* залежить від параметрів конструкції зони та складу матеріалів (поперечних перерізів поглинання нейтронів). Характер залежності полягає у збереженні балансу між процесами народження та поглинання нейтронів. Без цього балансу підтримання ланцюгової реакції поділу ядер атомів палива стане неможливим [22]. Визначення інших параметрів реактора та його активної зони має сенс лише після забезпечення потрібної величини коефіцієнта *К*. Очевидно, що вибір матеріалів для зони реактора має відбуватися на підставі таких властивостей як:

- корозійна стійкість в умовах впливу радіаційного впливу;
- висока теплопровідність;
- геометрична стабільність.

Інтенсивність тепловиділення ТВЗ у ядерних реакторах теоретично не має обмеження. Ця особливість використовується для вибору величини максимального допустимого питомого тепловиділення (енерговиділення) *q* із запасом на можливі відхилення від номінального рівня:

$$q \le q_{\text{крит.}} - q_{3\text{ап.}}. \tag{1.1}$$

Теплове навантаження *q* на поверхні твелів є важливим параметром та визначається наступним: конструкція твелів; концентрація ізотопів палива, які діляться; густина потоку нейтронів.

Температура та її градієнти в шарі теплоносія, що охолоджує твел, залежить від *q*. Критичне теплове навантаження *q*_{крит.} визначає рівень енерговиділення твела, у якому починається криза теплопередачі. При цьому, найнебезпечніша стадія, коли бульбашкове кипіння теплоносія на поверхні твела переходить у плівкове (так звана, криза бульбашкового кипіння) [23–25]. Вище температури початку поверхневого кипіння густина теплоносія зменшується через утворення в ньому бульбашок пари. У разі поверхневого кипіння бульбашки можуть «об'єднуватися», і на межі «твел–теплоносій» сформується шар, що складається із водяної пари. Це значною мірою підвищує інтенсивність корозійних процесів, позначаючись на довговічності та надійності твелів.

Поверхневе кипіння є важливим у зв'язку з ініціюванням більш раннього розтріскування (втрати герметичності) оболонок та виходу продуктів поділу ядерного палива в контур теплоносія. Останнє значною мірою збільшує питому активність теплоносія, що може призвести до ситуації, коли експлуатація реактора стане неможливою. Виникнення бульбашок змінює густину теплоносія, яка впливає і на коефіцієнт уповільнення нейтронів. При цьому амплітуда коливань густини теплоносія суттєво зростає, що призводить до зміни умов протікання ланцюгової реакції та збільшення «шумів» в енергетичному спектрі нейтронів (через нестабільність середовища, в якому уповільнюються нейтрони) [26].

В результаті всього вище зазначеного виникає просторова нестабільність енерговиділення, яку слід обов'язково усунути або зробити керованою. Саме з цієї причини підтримання необхідного рівня безпеки реактора та його надійна експлуатація неможливі без систем контролю та управління процесами, що протікають у активній зоні.

1.1.4. Шляхи підвищення ефективності АЕС

Головна задача будь-якої енергетичної установки – надійне та безпечне вироблення енергії з якомога меншою вартістю. Основними факторами, що визначають вигоди від використання ядерного реактора, є [27]:

- гарний інженерний розрахунок;
- раціональне використання ядерного палива;
- вартість та доступність ядерного палива;
- вартість переробки відходів палива.

У зв'язку з вище наведеним, виникає низка надзвичайно важливих проблем ядерної енергетики [28, 29]:

- відносно низька величина ККД (не вище 35%);
- поводження з ВЯП;

• небезпека виникнення аварій з виходом радіоактивних речовин в біосферу;

- необхідність підвищення потужності;
- необхідність подовження паливної кампанії;
- необхідність підвищення КВВП.



Рис. 1.3. Основні задачі, що потребують вирішення для одночасного забезпечення безпеки та економічності ядерного реактора

Саме завдяки тому, що світова спільнота намагається вирішити наведені проблеми, ядерна енергетика й рухається вперед. Доказом цього є лінійка проектів реакторів різних поколінь (див. п. <u>1.1.1.</u>), а також зусилля щодо організації замкненого паливного циклу. Отже, існує безліч способів,

як зробити використання ядерного реактора більш ефективним і безпечним (Рис. 1.3).

Завдання, пов'язані з модифікацією конструкцій активних зон реакторів, варто розглянути більш детально.

Поліпшення чи модифікації – це, головним чином, внесення певних змін (конструкційних/інженерних рішень) в енергетичних установках, що вже працюють. Це має велике значення, бо дає можливість змінювати робочі характеристики реактора в частині підвищення ефективності та безпеки. Такі тенденції чудово демонструються тим, як були модифіковані Українські ВВЕР. Якщо говорити про зміни, які сприяють позитивному зростанню безпеки та економічності реактора, то зазвичай йдеться про наступне [28, 29]: паливо; ТВЗ; поглиначі; блочне будівництво; системи безпеки.

У плані палива маються на увазі насамперед підвищення вмісту ²³⁵U, а також нарощення кількості палива в активній зоні (за рахунок збільшення числа паливних таблеток у ТВЕЛі).

Зараз збагачення по ²³⁵U складає ~ 5%, хоча в минулому було 3,3 та 4,4%. Зростання рівня збагачення дає змогу збільшити «ресурс» (запас) використання палива та зменшити кількість його перевантажень. Сумарно, з урахуванням інших чинників, початковий проектний рівень вигоряння ядерного палива, рівний 20–30 МВт діб/кг, тепер змінився до 50– 55 МВт·діб/кг. В нових АЕС проектне вигоряння дорівнює 60 – 70 МВт·діб/кг [19].

Щодо систем безпеки, звичайно, маються на увазі вже нові проекти AEC, де проектувальники намагаються реалізувати пасивні системи безпеки, що не потребують втручання чи присутності персоналу. Наявність пасивних засобів захисту позначається і на загальних економічних показниках, тому що в результаті виключається безліч різних систем.

Блокове будівництво передбачає економію часу під час будівництва АЕС. Це можливо за рахунок виконання значного обсягу робіт з конструювання, перевірки та тестування певних систем ще до початку будівництва реактора.

У рамках «стійкого розвитку» створення замкнутого ЯПЦ з використанням натрієвих і теплових реакторів є досить перспективним. Вивчення перспектив та проведення відповідних досліджень – ось ті завдання, що виникли у країнах з розвиненою атомною енергетикою та промисловістю [29].

Замкнутий ЯПЦ передбачає проведення переробки відпрацьованого ядерного палива (ВЯП) із вилученням з нього урану та трансуранових елементів (Pu, Np, Cm, Am) та поверненням їх у цикл у вигляді палива.

Рециклування передбачає створення дворівневої енергетики. Така система включає реактор на теплових нейтронах з урановим паливом (UO₂) (або з 30% завантаженням його MOX-паливом) та реактор на швидких нейтронах.

Організація рециклювання палива – на даний момент єдиний шлях запобігання надмірному накопиченню РАВ та зниження екологічних ризиків, що супроводжують їх зберігання. Замикання паливного циклу значно знизить потребу в природному урані, а також ефективно вирішить питання знищення актиноїдів.

Для української атомної галузі ініціативи щодо вирішення проблем пошуку (або розробки) нових матеріалів та перекомпонування елементів активної зони (заміна детекторів, регулюючих елементів тощо) є дуже перспективними, і добре вписуються у загальні світові тенденції щодо модифікації реакторів (нове паливо, покращення ТВЗ, подовження кампанії тощо) [29, 30].

Першочергові завдання, які необхідно вирішувати в атомній енергетиці, – це підвищення безпеки та економічності АЕС. Економічність реактора насамперед характеризується ефективністю використання ядерного палива, і може бути підвищена за рахунок наступного:
1) досягнення екстремальних параметрів теплоносія (підвищення температури, тиску та витрати);

2) підвищення коефіцієнта використання встановленої потужності за допомогою організації більш тривалого циклу палива в реакторі.

При цьому, поряд з матеріалознавчими проблемами (терміни служби твелів та конструкцій ТВЗ), виникають також і труднощі, пов'язані із виснаженням (вигорянням) матеріалів детекторів, які відповідають за моніторинг та управління нейтронним полем.

У зв'язку зі зростанням дозового навантаження на всі елементи активної зони, потрібне застосування (розробка та пошук) матеріалів, здатних зберігати свою працездатність протягом 5 і більше років.

Обидва згадані шляхи підвищення ефективності згубно позначаються на рівні безпеки АЕС, і причинами цього є:

1) втрата ефективності управління виділенням енергії (через зростання «шумів» в енергетичному спектрі нейтронів);

2) підвищене радіаційне навантаження на матеріали.

У подібних умовах нерівномірність виділення енергії в активній зоні реактора зростає, а задача оперативного (миттєвого) контролю та управління нейтронним потоком стає суттєвою на тлі ініціатив підвищення рівня безпеки AEC.

1.2. Моніторинг та управління виділенням енергії в активній зоні ядерного реактора

1.2.1. Задачі контролю та управління

Інтенсивний розвиток ядерної енергетики та прагнення до нарощування потужностей енергетичних установок ставлять задачу безпечної, надійної та економічної експлуатації реакторів. Гарантія «регульованості» процесів, розвиток систем контролю, управління та захисту – найважливіші засоби розв'язання такої задачі.

В активній зоні реактора є надлишок ядерного палива проти його критичної маси, тому необхідно забезпечити придушення (компенсацію) надлишку, а також унеможливити безконтрольний процес наростання потужності та пов'язане з ним перевищення допустимого рівня іонізуючих випромінювань (забезпечення ядерної безпеки). У разі відхилень від лімітів та умов безпечної експлуатації ядерного реактора ланцюгова реакція поділу має бути припинена, а реактор заглушений [31].

Наявність сильних радіаційних полів у місцях розташування різних управління елементів контролю, та захисту суттєво ускладнює експлуатацію та ремонт реакторного обладнання. Наприклад, тривале використання нейтронних детекторів В рівнів умовах високих погіршення випромінювання призводить ДО ïχ експлуатаційних характеристик (рівень сигналу, опір ізоляції тощо) і навіть виводить детектор з робочого стану.



Рис. 1.4. Схема установки з примусовою циркуляцією рідкого теплоносія у первинному контурі з зовнішнім теплообмінником

Ядерний реактор на перший погляд дуже простий за своєю конструкцією (Рис. 1.4) [27]. Проте, будь-яка ядерна енергетична установка характеризується важливими особливостями у порівнянні з об'єктами інших галузей науки й техніки. І ці особливості пред'являють високі вимоги до систем управління та захисту та до надійності всіх їх елементів.

На тлі популярної тенденції підвищення рівня вигоряння ядерного палива (збільшення питомої потужності) неминуче відбувається наближення технологічних параметрів, що відповідають нормальній експлуатації твелів та інших елементів активної зони, до критичних (граничних, порогових) значень, прийнятих для запобігання ушкоджень (насамперед, твелів) у різних умовах роботи (цей процес прийнято називати «зменшення запасів»).

Саме у зв'язку з цим виникає потреба у точних та оперативних вимірюваннях, а також регулюванні розподілу енергії по об'єму активної зони. Тільки моніторинг та управління можуть забезпечити необхідний рівень безпеки та економічності у разі мінімально допустимих «запасів» в активній зоні реактора.

Надійність управління ядерним реактором забезпечує СУЗ, головні її функції:

• контроль потужності (інтенсивність ланцюгової реакції поділу; кількість поділів в одиницю часу);

• управління ланцюговою реакцією;

 придушення ланцюгової реакції та утримання реактора в підкритичному стані.

Моніторинг та управління розподілом енергії по об'єму активної зони ядерного реактора здійснюється за допомогою системи контролю енергорозподілу (СКЕ) та органів (елементів) регулювання, що входять до складу СУЗ (у літературі СКЕ також називають системою внутрішньореакторного контролю СВРК). Залежно від призначення та типу ядерного реактора, засоби контролю, управління та захисту можуть різнитися, але для більшості реакторів існує безліч схожих чи аналогічних завдань та рішень. До складу таких рішень входять:

 детектори для вимірювання нейтронного потоку та технологічних параметрів (температура теплоносія та сповільнювача, витрата теплоносія, тиск у контурі теплоносія тощо);

• електронні підсилювачі, перетворювачі та формувачі сигналів, які надають інформацію оператору та автоматичним системам;

• виконавчі механізми;

• елементи впливу на умови протікання ланцюгової реакції поділу.

Перераховане вище має задовольняти гарантіям безпеки у всіх режимах роботи реактора. При цьому обов'язковою є реалізація таких вимог як:

• виключення втрати контролю та управління ланцюговою реакцією;

 гарантія здатності засобів захисту зупиняти ланцюгову реакцію у разі виникнення будь-яких відхилень від меж та умов безпечної експлуатації ядерного реактора [31].

Підвищення економічності ядерного реактора вимагає експлуатації конструкційних матеріалів та палива при параметрах, що мають мінімальні «запаси» порівняно з граничними. Коректність підтримки цих запасів залежить, передусім, від точності, оперативності та надійності систем контролю та управління. Отже, сучасний ядерний реактор не може безпечно та економічно експлуатуватися без використання високоточної та надійної системи контролю та управління.

1.2.2. Способи контролю потужності та розподілу енергії

В основу управління більшості енергетичних реакторів покладено вимірювання нейтронного потоку, ЩО відповідає принцип даній потужності, та порівняння його із заданою величиною (уставкою потужності). Величина та знак неузгодженості визначають подальші дії системи автоматичного регулювання. Можливе також автоматичне регулювання потужності за допомогою вимірювання температури теплоносія на виході та порівнянні його із заданою величиною.

Використання густини потоку нейтронів, як параметра, що контролюється, для управління реактора неодмінно пов'язане із розробкою та використанням надійних детекторів, здатних відчувати нейтрони на тлі інших видів випромінювань, які виникають в реакторі.

Як відомо, нейтрони не мають заряду та безпосередньо не викликають іонізації в речовині. Для їх реєстрації використовують викликані (спровоковані; активовані) ними ядерні реакції, що супроводжуються виходом частинок іншого сорту. Енергію іонізуючого випромінювання, що виникає, за допомогою детекторів перетворюють у зручну для подальших вимірювань форму (в електричний сигнал).

Для реєстрації іонізуючих випромінювань використовують різні методи, що базуються на вимірюванні результату взаємодій з речовиною. Однак, у реакторі, що працює, надзвичайно важливо реєструвати як нейтронне, так і γ-випромінювання. Саме з цієї причини практична кількість методів виявляється обмеженою.

При керуванні ядерним реактором також потрібний досить високий рівень електричного сигналу детектора. На додаток до цього, сигнал детектора повинен бути ще й пропорційним потоку обраного типу випромінювання, і практично миттєво або за заздалегідь відомому закону слідувати за зміною цього потоку.

Перелічені умови зменшують кількість типів детекторів, які можна використовувати в ядерному реакторі.

Детектори в системі аварійного захисту повинні бути дуже надійними та безінерційними. А у сигналів детекторів системи контролю та управління діапазон пропорційності потоку випромінювань повинен бути досить широким (тобто детектор повинен мати достатній рівень чутливості до нейтронного потоку).



Рис. 1.5. Класифікація внутрішньозонних детекторів [32, 33]

Вимірювальні засоби, що використовуються в активній зоні ядерного реактора, можна класифікувати, виходячи з їх призначення та особливостей експлуатації [32, 33] (Рис. 1.5):

 класифікація за типом фізичних полів, які треба вимірювати (нейтрони, γ-кванти, тепло);

 класифікація за способом формування фізичних полів (активація, іонізація, випромінювання, калориметрія);

• класифікація за технічними способами реалізації вимірювальних засобів (іонізаційні камери, детектори прямого заряду, активаційні детектори, камери поділу, нейтронні термоелементи, гама-камери, гама-термометри, калориметричні детектори).

Поряд із вище сказаним, також має місце класифікація за режимом часового та просторового вимірювання характеристик виділення енергії активної зони реактора (наприклад, розподіл, точковий розподіл, квазірозподіл, випадкова та постійна дія, стаціонарно змонтовані та переміщувані, одиничні детектори та комбіновані збірки) [32, 33].

Дана робота виконана в рамках ланцюга, що виділено на Рис. 1.5 пунктиром: контроль нейтронного поля, який реалізується за допомогою емісійного детектора прямого заряду. Звичайно, мається на увазі нейтронний детектор миттєвої дії (комптонівський), в якому формування сигналу відбувається за рахунок перебігу процесів (n, γ , e) та (γ , e).

Для контролю розподілу поля виділення енергії в активній зоні BBEP-1000 використовуються сигнали таких детекторів, як [34]:

• 448 (7 × 64) родієвих ДПЗ;

• 95 термоелектричних перетворювачів (ТП) типу «хромельалюмель» (тип «К»);

• 16 ТП і 8 термометрів опору (TC) на петлях першого контуру;

• датчики положення елементів регулювання СУЗ, концентрації борної кислоти, тиску, витрати теплоносія та ін.

Розглянемо докладніше β-емісійні ДПЗ з емітером із родію.

Основними перевагами будь-якого ДПЗ є такі характеристики: малий розмір; проста конструкція; відсутність зовнішнього живлення; хороша відтворюваність (повторюваність) параметрів при виробництві та експлуатації; відсутність газового зазору між електродами та необхідності підтримувати сталість густини газу [35].

При розміщенні ДПЗ в активній зоні реактора їх об'єднують у канали нейтронних вимірювань (КНВ) таким чином, що по висоті ТВЗ розташовується сім датчиків. Картограма КНВ в активній зоні реактора ВВЕР-1000 наведена на Рис. 1.6.

До складу ДПЗ входять емітер, колектор та ізолятор, що їх розділяє (Рис. 1.7). В емітері генеруються високоенергетичні електрони, частина їх

проходить ізолятор і збирається в колекторі, створюючи електричний сигнал. Сформований сигнал при оптимальній конструкції пропорційний до локальної густини потоку нейтронів. Чутливість та відношення сигнал/фон ДПЗ залежать від вибору матеріалів емітера та колектору, а також від геометрії системи.



Рис. 1.6. Картограма розташування каналів нейтронного вимірювання в активній зоні реактора BBEP-1000/B-320



Рис. 1.7. Схема електронно-емісійного детектора нейтронів

Критеріями під час вибору матеріалу емітера ДПЗ є:

• переріз поглинання нейтрона;

• енергія випромінювання, що виникає внаслідок поглинання нейтронів ядром атома мішені;

 період напіврозпаду ізотопу, який утворюється в результаті активації ядер матеріалу емітера, крім того, важливі ще й його дочірні продукти;

• теплові, механічні та технологічні властивості, а також радіаційна стійкість.

Як емітер ДПЗ, в активній зоні реактора ВВЕР використовується родій $^{103}_{45}$ Rh. Цей детектор набув широкого поширення, головним чином завдяки лінійності свого сигналу. Однак цьому детектору, як і будь-якому іншому β-емісійному, властива інерція (затримка) сигналу, оскільки його період напіврозпаду після поглинання нейтрону дорівнює 42 с.

В даний час за допомогою програмних засобів ДПЗ з родію все ж таки можливо досить оперативно отримувати інформацію про розподіл густини потоку нейтронів. Однак, у світлі сучасних тенденцій щодо посилення умов експлуатації ядерних реакторів, слід детальніше вивчити особливості та проблеми використання детекторів такого типу.

1.3. Проблема використання інерційних детекторів та можливість її вирішення за допомогою комптонівського детектора

Як було зазначено вище, затримка сигналу загальноприйнятого родієвого детектора – є однією з перешкод, що виникають на шляху підвищення ефективності експлуатації реактора за рахунок збільшення дозового та термічного навантаження. Розглянемо докладніше причини затримки та її наслідки.

1.3.1. Особливості утворення сигналу β-емісійного детектора

Процес утворення сигналу електронно-емісійного детектора з емітером із моноізотопного елемента ¹⁰³₄₅Rh можна простежити за схемою

його перетворення (Рис. 1.8) в радіоактивні нукліди $^{104}_{45}$ Rh (92...93%) та $^{104m}_{45}$ Rh (7...8%) [36]. Вони перетворюються в стабільний ізотоп $^{104}_{46}$ Pd з випускання β -частинок і γ -квантів, що частково конвертуються в електрони.



Рис. 1.8. Схема перетворень $\frac{103}{45}$ Rh

Електричний сигнал родієвого детектора формується із запізненням щодо моменту початку взаємодії нейтронів з атомами емітера (стабільний $^{103}_{45}$ Rh) у реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтрона. Причиною запізнення є наявність періодів напіврозпаду $T_{1/2} = 42,3$ с для $^{104}_{45}$ Rh та $T_{1/2} = 4,34$ хв для $^{104m}_{45}$ Rh. Така затримка сигналу усуває миттєву реакцію СВРК на приводи СУЗ реактора для зміни параметрів, які впливають на величину густини потоку нейтронів.

Стаціонарна величина сили струму емісійного детектора нейтронів пов'язана з двома процесами, що конкурують між собою у процесі «виснаження» атомів:

1) утворення ізомерних станів $^{104m}_{45}$ Rh ($T_{1/2} = 4,34$ xв) і $^{104}_{45}$ Rh ($T_{1/2} = 42,3$ с) в реакціях радіаційного поглинання ядрами атомів $^{103}_{45}$ Rh;

2) радіоактивний β-розпад.

Ці процеси проходять із різними швидкостями та згодом досягають стану динамічної рівноваги.

1.3.2. Затримка сигналу β-емісійного детектора відносно зміни густини потоку нейтронів

Густина потоку нейтронів залежить від зміни параметрів активної зони ядерного реактора, які визначають величину поперечного перерізу поглинання в процесі сповільнення нейтронів поділу (спектр Фермі, параметр жорсткості $k_{\text{рез./тепл.}}$), та впливає на кількість перетворень ¹⁰³/₄₅Rh в ізомери ¹⁰⁴/₄₅Rh і ^{104m}/₄₅Rh. При цьому швидкості радіоактивних розпадів ізомерів залишаються незмінними.

Зміна кількості ядерних реакцій утворення ізомерів призводить до зниження або зростання (нестачі або надлишку) динамічно рівноважного рівня концентрації атомів ізомерів ¹⁰⁴₄₅Rh та ^{104m}₄₅Rh, які відтворюються у згаданих процесах генерація–розпад.

Протягом деякого часу виникає невідповідність густини потоку нейтронів потокам електронів з емітера (тобто виникає невідповідність сигналу детектора та густини потоку нейтронів).

Два диференціальних рівняння пов'язують густину потоку нейтронів Φ і концентрацію N атомів ізомеру. Спільний розв'язок цих двох рівнянь має вигляд:

$$\frac{N}{N_0} = \frac{r_1}{r_2 - r_1} \left(e^{-r_1 \cdot t} - e^{-r_2 \cdot t} \right), \tag{1.2}$$

де r_1 і r_2 – швидкості утворення та зникнення (в даному випадку, радіоактивного розпаду) атомів ізомеру; N_0 – вихідна концентрація атомів стабільного материнського ізотопу родію; t – час [37]. Цей зв'язок

математично описує процес конкуренції утворення атомів ізомеру $^{104}_{45}$ Rh та їх радіаційного розпаду через швидкості процесів r_1 і r_2 .

На Рис. 1.9 представлені результати розрахунку конкуренції процесів утворення та радіаційного розпаду атомів ізомерів ${}^{104}_{45}$ Rh для трьох значень величини густини нейтронного потоку: $\Phi_1 = 5,291 \cdot 10^{13}$ нейтр./(см²·с), $\Phi_2 = \Phi_1/2$ і $\Phi_3 = \Phi_1/10$. Залежності свідчать, що досягнення динамічно рівноважного рівня концентрації атомів ізомеру ${}^{104}_{45}$ Rh a, отже, і стабілізація сигналу детектора відбувається приблизно через 300 с (див. Рис. 1.9) від початку опромінення не залежно від величини густини потоку нейтронів. Співвідношення часу затримки сигналу детектора, необхідного для забезпечення стаціонарної величини електричного струму та такої, що відповідає величині густини потоку нейтронів, дорівнює $t/T_{1/2} = 10$ для всіх трьох випадків.



Рис. 1.9. Формування рівноважних концентрацій $^{104}_{45}$ Rh у реакції $^{103}_{45}$ Rh (n, γ) $^{104}_{45}$ Rh ($T_{1/2} = 42,3$ с) при опроміненні в нейтронному потоці $\Phi_1 > \Phi_2 > \Phi_3$ з урахуванням радіоактивного розпаду

Потік нейтронів, у якому знаходиться ДПЗ, визначає рівень його активації A (пов'язаний із концентрацією N атомів ізомеру $^{104}_{45}$ Rh), потік електронів емісії при радіоактивному розпаді останнього з урахуванням кількості y_i електронів, що випускаються (β-частинок) і, отже, електричний струм і величину сигналу

$$A = N \cdot r \cdot y_{i}. \tag{1.3}$$

При зменшенні густини потоку нейтронів динамічно рівноважна концентрація N атомів ізомеру, що визначає потік електронів емісії на колектор ДПЗ (i, отже, рівень сигналу), повинна відповідати нижчому рівню (див. Рис. 1.9), перехід на який відбувається в процесі радіоактивного розпаду атомів ізомеру та потребує часу. З іншого боку, нейтрони з меншою густиною потоку продовжують генерацію ізомеру $^{104}_{45}$ Rh, створюючи нижчий рівень динамічно рівноважної його концентрації з урахуванням його радіоактивного розпаду в стабільний ¹⁰⁴₄₆Pd. Тому математичний вираз описаних вище процесів ізотоп складається з двох частин:

$$\frac{N}{N_0} = \frac{r_1}{r_2 - r_1} \left(e^{-r_1 \cdot t} - e^{-r_2 \cdot t} \right) + \left(\frac{N}{N_0} \right)_1 \cdot e^{-r_2 \cdot t} .$$
(1.4)

Перший доданок представляє собою процес генерації атомів ізомеру ¹⁰⁴₄₅Rh ($T_{1/2} = 42,3$ с) з урахуванням його радіоактивного розпаду в стабільний ізотоп паладію ¹⁰⁴₄₆Pd (тобто, по суті, це відносна концентрація ¹⁰⁴₄₅Rh (N/N_0)_{2,3}, яка створюється нейтронами із густиною потоку $\Phi_2 = \Phi_1/2$ або $\Phi_3 = \Phi_1/10$).

Другий доданок характеризує радіоактивний розпад залишку динамічно рівноважної концентрації $(N/N_0)_1$ атомів ізомеру $^{104}_{45}$ Rh, утвореного в нейтронному потоці із густиною Φ_1 на момент його переходу до нижчої величини Φ_2 або Φ_3 . Отримані залежності показують, що для досягнення динамічно рівноважного рівня концентрації атомів ізомеру ¹⁰⁴₄₅Rh при переході від потоку Φ_1 до Φ_2 або Φ_3 і утворення стабільного сигналу детектора, що відповідає цим величинам потоку, необхідний проміжок часу на рівні 400 с.

Перехід від нижчої величини густини потоку Φ_2 або Φ_3 до більш високої Φ_1 пов'язаний із додатковою активацією емітера з материнського стабільного ізотопу ¹⁰³/₄₅Rh. Ця активація призводить до того, що концентрація атомів ізомеру ¹⁰⁴/₄₅Rh зростає. Процес росту концентрації ¹⁰⁴/₄₅Rh триває доти, доки не буде досягнуто динамічно рівноважного рівня, що відповідає густині потоку нейтронів Φ_1 . Такий перехід також потребує часу і математично описується виразом, що є аналогічним наведеному вище з урахуванням радіоактивного розпаду вже наявних атомів ¹⁰⁴/₄₅Rh, що відповідають нижчим величинам потоку нейтронів Φ_2 та Φ_3 ,

$$\frac{N}{N_0} = \frac{r_1}{r_2 - r_1} \left(e^{-r_1 \cdot t} - e^{-r_2 \cdot t} \right) + \left(\frac{N}{N_0} \right)_{2,3} \cdot e^{-r_{2,3} \cdot t}.$$
(1.5)

Перший доданок описує процес генерації атомів ізомеру ¹⁰⁴Rh в потоці нейтронів Φ_1 (тобто величину N/N_0 для Φ_1); другий – процес радіоактивного розпаду концентрацій $(N/N_0)_{2,3}$ атомів ізомеру ¹⁰⁴Rh, які утворилися раніше в потоці Φ_2 або Φ_3 . У цьому випадку, на процес досягнення динамічно рівноважного рівня концентрації атомів ізомеру ¹⁰⁴Rh необхідно витратити ~ 280...300 с ($t/T \approx 6,65$ для ¹⁰⁴Rh).

Розраховані величини затримок сигналу не є чимось новим і несподіваним. Ще в ранніх роботах з розробки та використання ДПЗ зазначалося, що «...для контролю та дослідження реакторів необхідно вибирати такі матеріали емітера, щоб величина періоду напіврозпаду ізотопів, що утворюються в них, була не більше 4–5 хв» [38].

Розрахунки, що наведені в цьому розділі, добре узгоджуються з опублікованими в роботах [39, 40] результатами.

Отже, аналіз отриманих результатів призводить до висновку, що через високу інерційність вихідний сигнал β -емісійного ДПЗ адекватно відтворює інтенсивність потоку нейтронів лише у разі його повільної зміни. При зміні величини потоку нейтронів точні вимірювання родієвим детектором можливі приблизно через 300 с як у разі збільшення, так і у разі зменшення густини потоку (див. Рис. 1.9).

Порівняння роботи комптонівського та β -емісійного ДПЗ у реальних умовах демонструє очевидні різницю між цими видами нейтронних детекторів Рис. 1.10. На рисунку представлено порівняння сигналів комптонівського детектора і β -емісійного детектора з емітером з елемента, атоми якого при взаємодії з нейтронами в реакції радіаційного поглинання утворюють радіоактивні ізотопи, що випускають електрони з періодом напіврозпаду $T_{1/2}$ [41], який і визначає затримку утворення стаціонарного сигналу ДПЗ до декількох хвилин при $T_{1/2} \sim 10$ с (див. вище).



Рис. 1.10. Зміна сигналу комптонівського та β-емісійного детекторів у процесі занурення регулюючого стрижня від 0 до 1,8 м та наступного його повернення у початкове положення [41]. Δt = 4,5 с – час руху стрижня; 1 – сигнал комптонівского детектора; 2 – сигнал β-емісійного детектора

регулювання Занурення стрижнів потужності реактора, ЩО поглинають нейтрони, у ТВЗ на глибину від нуля до 1,8 м не впливає на зміну та затримку формування сигналу комптонівського детектора в межах $(\Delta t = 4,5 \text{ c}).$ часу введення та виведення стрижня Час переходу комптонівського детектора з режиму з високою густиною потоку нейтронів в режим з нижчою густиною (і назад) становить 0,2...0,3 с. Інерційність ДПЗ перевірялася в активній зоні ядерного реактора РБМК-1000 за постійної теплової потужності 2900 МВт [41].

1.4. Застосування Нf в системах управління та захисту реактора

1.4.1. Гафній в атомній промисловості

Для атомної промисловості гафній не є новітнім матеріалом [42], – починаючи з кінця 50-х рр. минулого століття його успішно використовували для виготовлення регулюючих елементів реакторів на атомних підводних човнах а також у цілому ряді комерційних водоводяних реакторів [43–46]. Проте, обмеження виробництва, недосконалість технології отримання (а також досягнення «ядерної» чистоти) та висока підсумкова вартість виробів із Нf призвели до тимчасової відмови від цього металу.

У другій половині 60-х. найбільшого поширення як регулюючих елементів отримав сплав Ag-In-Cd (80% Ag; 15% In; 5% Cd) (AIC). Він має порівняну з гафнієм ефективність поглинання нейтронів, високу теплопровідність та практично не розпухає у процесі опромінення. У той же час, сплав AIC має нижчу корозійну стійкість (приблизно в 20 разів), температуру плавлення (~ 1050 °C; у Hf ~ 2200 °C) та невисокі механічні характеристики [43, 44, 47].

Накопичення запасів (через розширення цирконієвих виробництв), ядерно-фізичні характеристики, корозійна та радіаційна стійкість,

удосконалення технології отримання, досвід експлуатації, а також значне подорожчання сплаву АІС знову відродили інтерес до гафнію. Тепер він розглядається як матеріал, здатний конкурувати зі сплавами срібла у комерційних реакторах. У зв'язку з цим, компанією Westinghouse (США) було розроблено програму заміни стрижнів регулювання СУЗ реакторів PWR зі сплаву Ag-In-Cd на сплав 95,3% Hf + 4,5% Zr + 0,2% домішки. Така заміна дозволить залишити без зміни конструкцію кластера стрижнів регулювання TB3. У 90-х роках гафній також використовували для виготовлення дослідної партії органів регулювання на BBEP-1000 Рівненської АЕС (Україна) [48] та на 5-му блоці Нововоронезької АЕС (Росія).

Досвід експлуатації гафнію в сучасних атомних реакторах підводних човнів показав, що цей матеріал є дуже перспективним як елемент СУЗ ВВЕР. Це пов'язано з особливостями конструкцій ТВЗ реакторів ВВЕР, у яких для уран-водних решіток характерне тісне розташування твелів. Така геометрія характеризується недостатньою відстанню для повного сповільнення нейтронів поділу – вони не встигають втратити свою кінетичну енергію до стану теплової рівноваги з атомами сповільнювача. Як результат, у реакторах ВВЕР встановлюється більш жорсткий енергетичний спектр нейтронів, ніж у реакторах на теплових нейтронах інших типів. Крім того, збільшення долі надтеплових нейтронів призводить до збільшення їх поглинань ізотопом ²³⁸U і утворенню ²³⁹Pu та ²⁴¹Ри, що мають більш високі величини поперечних перерізів реакції поділу (n, f) і більшу середню кількість нейтронів v_f на акт поділу, ніж ²³⁵U. Ця обставина ускладнює регулювання ядерного реактора в процесі експлуатації стрижнями СУЗ з карбіду бору В₄С і обмежує завантаження його активної зони змішаним – уран-плутонієвим, МОХ-паливом величиною ~ 30%.

На сьогоднішній день B₄C, звичайно, є тим матеріалом, який практично неможливо замінити, виходячи з економічних міркувань. Однак

наскільки карбід бору буде ефективним в експлуатації за умов підвищення термічного та дозового навантаження, – потребує окремого дослідження. Крім того, поперечний переріз поглинання нейтронів гафнієм в області більш високих енергій (вище резонансної області в діапазоні 1...100 кеВ) в ~ 3,5...4 рази вище, ніж у В₄С та сплаву АІС [47].

1.4.2. Гафній в ролі емітера нейтронного детектора

Нині у світі налічується 441 діючий ядерний енергетичний реактор, на стадії будівництва перебуває понад 53 [49]. Із загальної кількості реакторів, що знаходяться в експлуатації, ~ 83% – з легководним сповільнювачем та теплоносієм (PWR, BWR, BBEP), ~ 11% – реактори з важководним сповільнювачем та теплоносієм (PHWR – наприклад, CANDU), ~ 2,5% – легководні реактори з графітовим сповільнювачем (LWGR, PBПК) і ~ 2,5% – газоохолоджувальні реактори (GCR). Три установки є швидкими реакторами з рідкометалевим теплоносієм.

У всіх енергетичних реакторах на теплових (повільних) і проміжних нейтронах в системах СВРК для вимірювання нейтронних потоків використовуються нейтронні ДПЗ. Задача регулювання виділення енергії може бути вирішена за допомогою управління первинною причиною – розподілом густини нейтронного потоку. Використання, при цьому, загальноприйнятого нейтронного ДПЗ з емітером з родію буде ускладнене з наступних причин:

1) при переході на більш довгі цикли, родієвий ДПЗ досягне експлуатаційної межі ще до закінчення свого терміну служби (3–4 роки);

2) з міркувань безпеки, зі збільшенням коефіцієнтів нерівномірності (зменшення «запасів») енерговиділення активної зони, необхідно, щоб контроль нейтронного поля здійснювався детектором з мінімальним часом відгуку, а β-емісійні інерційні ДПЗ цій умові не відповідають [35, 50]. Виходячи з цього, необхідно застосувати детектор, який за своїми характеристиками (термін служби, час відгуку та ін.) узгоджується з новими більш жорсткими вимогами безпеки.

У внутрішньореакторних вимірювальних гафній системах застосовувався і раніше. У 80-х роках минулого століття розроблено та випробувано нейтронний детектор комптонівського типу з емітером з окису гафнію [Error! Reference source not found.]. Було показано, що за своїми базовими характеристиками (відгук, чутливість, розмірна стабільність) такий детектор можна використовувати в автоматизованих системах контролю, управління та захисту реакторів РВПК. У результаті нейтронний ДПЗ з емітером з окису гафнію застосовується як один з типів детекторів контролю виділення енергії по радіусу реакторів РВПК [35, Error! Reference source not found.].

Вигоряння матеріалу емітера безпосередньо пов'язано з формуванням сигналу детектора. Чим більша кількість атомів (зокрема в одиниці об'єму) здатна взаємодіяти із опроміненням, тим більш інтенсивним буде вторинне γ-випромінювання, і, відповідно, більша кількість електронів, що народжуються в процесах послаблення цього випромінювання в матеріалі. А це означає, що застосування HfO₂ як нейтронно-чутливого матеріалу в реакторах BBEP є недостатньо ефективним через суттєво меншу кількість атомів гафнію, саме які й визначають відгук емітера на опромінення нейтронами та фотонами [3].

Кількість атомів Hf (атомна концентрація) визначає термін служби детектора та його чутливість відповідно до ймовірності радіаційного поглинання нейтрону в реакції (n, γ). Переріз для розрахунку вигоряння атомів має вигляд:

$$\hat{\sigma}_{n\gamma} = \sigma_{kT} + k_{pe3/TeILII} \cdot I_{pe3}, \qquad (1.6)$$

де I_{pe3} – резонансний інтеграл; σ_{kT} – величина перерізу в діапазоні теплової рівноваги із середовищем (врахування $k \cdot T$ і фактора Весткота g) (більш детально див. п. 2.3.1) [52, 53].

Жорсткість $k_{\text{рез/тепл}}$ є характеристикою спектру нейтронів, якими опромінюється матеріал, і демонструє, у якому співвідношенні знаходяться потоки теплових та резонансних нейтронів [53]

$$k_{\text{pe3/Tenn}} = \left(\frac{\Phi_{\text{Tenn.}}}{\Phi_{\text{pe3.}}} \cdot \ln\left(\frac{E_2}{E_1}\right)\right)^{-1}, \qquad (1.7)$$

де $\Phi_{\text{тепл.}}$ – потік теплових нейтронів, $\Phi_{\text{тепл.}}$ – потік резонансних нейтронів, а E_1 та E_2 – величини енергії нейтрона, які визначають діапазон, у якому знаходиться резонанс. Та на практиці більш зручно скористатись іншим підходом. Фактор $k_{\text{рез/тепл}}$ загалом демонструє, у яких конкретних умовах проходить поглинання нейтрону в матеріалі, і може бути виражений наступним чином [52]

$$k_{\text{pes/Tenji}} = \frac{\nu \cdot \overline{\Sigma}_{\text{f}} / \varepsilon}{\xi \cdot \Sigma_{\text{S}} - \nu \cdot \overline{I}_{\text{f}} / \varepsilon}, \qquad (1.8)$$

де v = 2.424 – середня кількість вторинних нейтронів, що виникають під час поділу U-235; $\overline{\Sigma}_{\rm f} = \overline{\sigma}_{\rm f} \cdot N_0$; для $\overline{\sigma}_{\rm f}$ використовується $\sigma_{\rm kT}$ (див. далі формулу (2.13)), де $\sigma_{\rm nry}(E_{\rm n})$ – мікроскопічний переріз поділу U-235 нейтронами з енергією $E_{\rm n} = 0.0253$ еВ і дорівнює $\sigma_{\rm nry}(E_{\rm n}) = 582.6\cdot10^{-24}$ см²; $\varepsilon = V({\rm H}_2{\rm O})/V({\rm UO}_2) = 1.89$ – водо-паливне співвідношення [54]; фактор Весткота для U-235 g(T) = 926 [55]. При збагаченні палива на рівні 3,6% атомна концентрація N_0 урану в UO₂ має величину $N_0 = 8,35\cdot10^{20}$ ат./см³; $\overline{I}_{\rm f} = 275\cdot10^{-24}$ см² [55] – резонансний інтеграл для реакції поділу; $\xi \cdot \Sigma_{\rm S}$ – поглинаюча здатність, що визначена виразом $\xi \cdot \Sigma_{\rm S} = \sum_{\rm j} \xi_{\rm j} \cdot \Sigma_{\rm j}$, де ξ відповідає середній кількості зіткнень нейтрона під час його сповільнення до енергії «теплового» діапазону (або іншими словами – це середня втрата енергії нейтрону в одному акті зіткнення с атомним ядром мішені); $\xi({\rm H}) = 1$, $\xi({\rm O}) = 0,121$; $\Sigma_{\rm j} = \sigma_{\rm j} \cdot N_{0\rm j}$ – макроскопічний переріз розсіювання нейтрону (в даному випадку розглядається взаємодія з атомами водню та кисню), $\sigma_{\rm j}$ та $N_{0\rm j}$ – мікропереріз та атомна концентрація; густина води (сповільнювач) в умовах активної зони ВВЕР-1000 (p = 15,7 МПа, $T \approx 280$ °C) дорівнює equals $\rho(H_2O) = 0,766 \text{ г/см}^3$ [56]; мікроскопічні перерізи водню та кисню – $\sigma_{\rm H} \approx 20,5 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$ та $\sigma_{\rm O} \approx 3,8 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$ [57]. Якщо тепер підставити всі наведені вище параметри у рівняння (1.8), то отримаємо середню величину жорсткості спектру для умов зони ВВЕР-1000 $k_{\rm pe3/тепл} = 0,436$.

Спектр нейтронів в активній зоні реактора РВПК характеризується низькою жорсткістю $k_{\text{рез/тепл}}$, яка знаходиться на рівні 0,12-0,15. Жорсткість нейтронного спектру в активній зоні реакторів ВВЕР набагато вище, наприклад, для ВВЕР-440 вона становить 0,25-0,75.

Число атомів гафнію, що містяться в HfO₂, значно менше у порівнянні з металевим Hf:

$$\frac{N_{\rm Hf}({\rm HfO}_2)}{N_{\rm Hf}({\rm Hf})} \approx 0,62, \tag{1.9}$$

де $N_{\rm Hf}({\rm HfO_2})$ – атомна концентрація Hf в HfO₂; $N_{\rm Hf}({\rm Hf})$ – атомна концентрація Hf у металевому гафнії. У випадку, коли використовується не кераміка, а саме порошок HfO₂ (навіть, спресований), це відношення ще менше (густина матеріалу ізолятора всередині ДПЗ зазвичай знаходиться на рівні 2 г/см³).

Розрахунок показує, що для нейтронного потоку лише на рівні ~ 10^{14} см⁻²·с⁻¹), різна жорсткість спектрів призводить до того, що в умовах реактора ВВЕР вигоряння атомів гафнію відбувається в ~ 2...3 рази швидше, ніж в РВПК (~ 1,15% на рік для РВПК і 2...3,5% на рік для ВВЕР) [3].

В нових умовах експлуатації одним із визначальних факторів є швидкодія детектора, і пропонований комптонівський ДПЗ практично не має затримки. У β-емісійному родієвому детекторі сигнал формується потоком β-часток, що народжуються в процесі радіоактивного розпаду (що і є причиною затримки змін сигналу щодо змін густини нейтронного потоку) [52]. У комптонівському детекторі сигнал формується потоком електронів з (γ , е)-процесів, що проходять за участю різного сорту γ -квантів (миттєві фотони, що виникають при поділі ядер палива; затримані фотони, що виникають при вивільненні енергії збудження ядер продуктів поділу палива; миттєві фотони з реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтронів ядрами нуклідів, що входять до складу матеріалу емітера).

Низькі вигоряння гафнію, хімічного темпи як елемента, забезпечуються що ланцюжок вихідних стабільних ізотопів ТИМ, ¹⁷⁶₇₂ Нf...¹⁸⁰₇₂ Нf закінчується 180-м ізотопом, у якого поперчений переріз поглинання нейтронів досить малий ($\sigma_{n\gamma} = 13,04$ б, $I_{pe3} = 35$ б [57]), і інтенсивність його трансформації в ¹⁸¹₇₂Hf на порядок менше, у порівнянні із вигорянням інших членів послідовності. Тобто темпи утворення атомів $^{180}_{72}$ Hf перевищують темпи суттєво його вигоряння V реакції $^{180}_{72}$ Hf $(n, \gamma)^{181}_{72}$ Hf.

Продовження перетворень ізотопів гафнію в потоці нейтронів призводить до утворення стабільного ізотопу $^{181}_{73}$ Ta, ізотопів $^{182,183}_{73}$ Ta в ізомерному стані ($T_{1/2} = 115$ та $T_{1/2} = 5,1$ діб, відповідно), а також стабільних $^{182,183,184}_{74}$ W [58]. Всі ці елементи є такими ж джерелами γ-випромінювання (миттєве γ-випромінювання), як і ізотопи гафнію, що позитивно впливає на термін служби детектора [4, 58].

Існує невелика кількість робіт, в яких не розглядаються фізичні особливості функціонування гафнію в якості нейтронного датчика, увага приділена чутливості до нейтронів та γ у різних радіаційно-термічних умовах [59–65]. Також, у відкритому доступі є інформація і про детектори з емітером із оксидом гафнію [35, 41, **Error! Reference source not found.**, 53, 66–68] та детекторах з емітером із Pt, Ce, Ta, W і Os [69].

Також варто наголосити, що мова йде не про відмову від β-емісійних детекторів. З точки зору надійності сигналу, комптонівський детектор

варто застосовувати лише в режимі з достатньо високими величинами густини потоку нейтронів [70].

Зважаючи на вище сказане, докладне вивчення ядерно-фізичних властивостей гафнію є актуальним і доцільним, особливо щодо відновлення (регенерації) його поглинаючих властивостей і впливу даного процесу на формування сигналу детектора, а також компенсації зниження його рівня в умовах роботи реакторів з водою під тиском.

Висновки до Розділу 1

Проведений огляд демонструє, що загальні тенденції підвищення рівня безпеки та економічності ядерних реакторів призводять до виникнення низки науково-технічних задач. Ці задачі стосуються практично всіх матеріалів, які використовуються в активній зоні реактора та глобально зводяться до того, що забезпечення необхідних показників безпеки реактора є надзвичайно пріоритетним.

Управління та моніторинг безпеки ядерного реактора спирається на контрольно-вимірювальні системи, і контроль поля виділення енергії тут займає одне з ключових місць.

Нові тенденції ЩО призводять зростання ДО дозового та температурного навантаження на матеріали елементів активної зони ставлять під сумнів те, що β-емісійні нейтронні детектори здатні повністю забезпечити оперативне та точне вимірювання величини нейтронного потоку в зоні ядерного реактора. Розглянуто першопричини затримки сигналу β-емісійних детекторів на прикладі ситуації, коли величина потоку нейтронів може різко змінюватися (наведено результати вирішення задачі як для випадку збільшення величини нейтронного потоку, так і для зменшення). Робиться висновок про те, що використання лише детекторів із затримкою сигналу на рівні 10² с є неприпустимим на тлі сучасних прагнень до підвищення показників безпеки та економічності ядерних

реакторів. У зв'язку з цим, разом із β-емісійними нейтронними детекторам пропонується також використовувати і безінерційний детектор, в якому у якості матеріалу емітера береться металевий гафній. Використання гафнію вигідне як з позицій його ядерно-фізичних властивостей, так і щодо вартості даного металу. Безперервне споживання цирконію в атомній промисловості призвело до накопичення запасів гафнію і, як наслідок, до зниження його ринкової вартості.

Розділ 2. ФІЗИЧНІ ОСНОВИ РОЗРОБКИ КОМПТОНІВСЬКОГО НЕЙТРОННОГО ДЕТЕКТОРА ТА МЕТОДИ РОЗРАХУНКУ ЙОГО ХАРАКТЕРИСТИК

Для детектування ядерного випромінювання можна використовувати реакцію його впливу на будь-який матеріал. Під час реєстрації заряджених частинок найчастіше застосовується процес іонізації атомів матеріалу детектора. Нейтрони, у зв'язку з відсутністю у них заряду, не викликають іонізації, тому їх реєструють за частинками-продуктами взаємодії (n, α), (n, p) та (n, γ) . Для отримання достатньої кількості частинок-продуктів та їх ефективної реєстрації величини поперечних перерізів наведених вище процесів мають бути достатньо високими. Крім того, якщо йдеться про моніторинг та управління виділенням енергії, то виникає ще одна надзвичайно важлива вимога – при реєстрації нейтронних полів в активній зоні ядерного реактора сигнал детектора має бути пропорційним величині густини потоку нейтронів, так як вона, в свою чергу, пов'язана зі швидкістю поділу ядер ²³⁵U і, отже, потужністю ядерного реактора. В атомній енергетиці одним із способів вирішення такої задачі є застосування електронно-емісійних нейтронних детекторів, які не потребують для своєї роботи зовнішнього електроживлення (у літературі зазвичай використовуються назви SPD (Self-Powered Detector) та ДПЗ (детектор прямого заряду)).

Основою роботи електронно-емісійних детекторів є реакція радіаційного поглинання нейтронів ядрами атомів матеріалу емітера. Ця реакція призводить до радіоактивного розпаду ізомерних метастабільних рівнів новоутвореного (компаунд) ядра, збудження якого зникає за рахунок випромінювання β-частинок (у разі активаційного ДПЗ) або γ-квантів (у разі комптонівського безінерційного ДПЗ), і саме у процесах послаблення та розсіювання цих фотонів й виникають електрони. Варто зазначити, що в обох типах детекторів (і в β-емісійному, і в комптонівському) протікають зазначені процеси (випромінювання фотонів та електронів за рахунок розрядки компаунд ядра), тут різниця лише в їх інтенсивності – у бета емісійному детекторі переважає випромінювання β -частинок внаслідок протікання (n, γ)-реакції, а в комптонівському детекторі переважає випромінювання γ -квантів. В результаті, емітер випускає електрони, при цьому між колектором та емітером виникає різниця потенціалів, що призводить до протікання електричного струму в ланцюзі.

Загалом же, використання і популярність електронно-емісійних детекторів ґрунтується головним чином на їх доволі вагомих перевагах: відсутність зовнішнього джерела живлення; проста конструкція; малий розмір; стабільність конструкції відносно реакторних умов; відтворюваність та лінійність сигналу; відносно низьке вигоряння матеріалу емітера (залежить від вибору матеріалу) [35].

2.1. Критерії вибору матеріалів внутрішньозонного детектора нейтронів

Починаючи вирішувати задачу із розробки будь-якого внутрішньозонного пристрою, потрібно точно знати, в яких умовах цей пристрій буде експлуатуватися, і визначальними параметрами при цьому є:

 інтенсивність опромінення нейтронами (значення мають як теплова, так і надтеплова області спектру; крім того, надзвичайно важливо розуміти ще й швидкість набору дози, бо цей параметр суттєво змінює властивості матеріалу, зокрема, механічні);

інтенсивність γ-випромінювання (випромінювання продуктів поділу, а також миттєві γ-кванти, що випускаються при поділі ядер палива та в (n, γ)-реакціях радіаційного поглинання нейтронів атомами матеріалів активної зони ядерного реактора);

• температура навколишнього середовища (температура важлива з позицій як механічних властивостей (зміна розміру, фазові перетворення,

дифузія атомів та елементів мікроструктури), так і ядерних (зміна величин поперечних перерізів радіаційного поглинання нейтронів у (n, γ)-реакціях поглинання нейтронів) [66]. Величини поперечного перерізу радіаційного поглинання нейтронів для деяких нуклідів у разі врахування температури значно відрізняються від значень для нормальних умов Табл. 2.3, а також Рис. 2.4 (див. далі п. 2.3.1).

В умовах активної зони ядерного реактора завжди мають місце два «сорти» γ -квантів – миттєві та затримані. Це означає, що частка сигналу, яка формується за рахунок потоку γ -випромінювання, що запізнюється $\Phi_{3an,\gamma}$ з інтенсивністю, яка не є пропорційною потужності реактора, буде негативно впливати на надійність детектора. Це так званий фоновий сигнал, що є головною перешкодою у використанні комптонівських нейтронних детекторів [53].

Сигнал від потоку $\Phi_{_{MHT.\gamma}}$ миттєвого γ-випромінювання складається з двох компонент:

 частка сигналу за рахунок послаблення потоку Φ^{паливо} γ-квантів, що випромінюються при поділі ядер палива;

2) частка сигналу за рахунок послаблення потоку $\Phi_{\text{мит.}\gamma}^{\text{емітер}}$ ү-квантів, що випромінюються при розрядці новоутворених ядер атомів матеріалу емітера. Інтенсивність обох «видів» ү-випромінювання пропорційна потужності реактора, і може бути використана при контролі поля виділення енергії.

Поглинання нейтрона атомним ядром може призвести до появи радіоактивного нукліду, який випромінюватиме потік¹ Φ_β^{емітер} β-частинок при розпаді та впливати на сигнал комптонівського детектора. Ця компонента сигналу здатна суттєво знизити надійність (достовірність) вимірювань, особливо у разі високих значень періодів напіврозпаду.

¹ Мається на увазі генерація частинок у просторі, а не спрямований потік.

В Табл. 2.1 згруповані вище згадані потоки випромінювання, що визначають роботу комптонівського нейтронного детектора. Спільне для всіх наведених характеристик те, що вони безпосередньо залежні від густини потоків нейтронів, якою можна керувати лише певних рамках.

Таблиця 2.1. Поведінка потоків випромінювання, які визначають ефективність роботи внутрішньозонних комптонівських детекторів нейтронів

№	Потоки		Фактори, що визначають поведінку потоків	Поведінка величин потоків	Фактори, на які можна впливати через вибір матеріалу
1.	$\varPhi_{_{\rm MHT.\gamma}}$	${\it I}\!$	$arPsi_{ ext{n}}$; $N_{ ext{at. паливо}}$; $N_{ ext{at. емітер}}^{ ext{ny}}$	↑	$N_{ m ar. emitep}^{ m n\gamma}$
		${I\!$		↓	
2.	$arPsi_{_{3 a \Pi. \gamma}}$		$arPsi_{ m n}$; $N_{_{ m at.продукти}}$	Ť	Ι
3.	$arPsymbol{\Phi}_{\!eta}^{\scriptscriptstyle m emirep}$		${\it I}\hspace{25cm}P_{ m n} \ ; N^{{ m ny}}_{{ m at. emitep}}; N^{m eta}_{{ m at. emitep}}$	↑ / Const / ↓	$N^{ m n\gamma}_{ m at. emitep}$
					$N_{ m at. emitep}^{ m P}$

 $N_{\rm at.\, паливо}$ – концентрація атомних ядер палива, які переживають поділ;

 $N_{\text{ат. емітер}}^{n\gamma}$ – концентрація атомних ядер матеріалу емітера, які беруть участь у (n, γ)-реакції радіаційного поглинання нейронів;

N_{ат. продукти} – концентрація атомних ядер продуктів поділу;

N^β_{ат.емітер} – концентрація радіоактивних нуклідів, що виникають у процесі опромінення матеріалу емітера нейтронами.

Для $\Phi_{_{\rm MHT,\gamma}}$ характерно поступове зменшення через падіння концентрації атомних ядер палива, що діляться, а також вигорання

вихідних нуклідів матеріалу емітера, які здатні брати участь у (n, γ)-реакції поглинання нейтрону.

Останній стовпчик Табл. 2.1 демонструє, що вибір матеріалу емітера – єдине, чим можна оперувати, не вдаючись до корекцій реакторних характеристик. Дійсно, для $N_{ar.emirep}^{n\gamma}$ є абсолютно неважливим походження нуклідів, здатних ефективно брати участь у (n, γ)-реакції радіаційного поглинання нейтрона. Це можуть бути як вихідні нукліди, так і трансмутанти, що постійно народжуються у процесі опромінення мішені. Крім того, концентрацію $N_{ar.emirep}^{\beta}$ також можна заздалегідь визначити вибором матеріалу. Для цього потрібно дослідити ланцюжки перетворення нуклідів для матеріалів з вибраним Z, і виключити матеріали з великою кількістю радіоактивних нуклідів (при цьому також слід враховувати такі фактори, як швидкість напрацювання нуклідів, а також їх активність).

Якщо підсумувати, то критеріями при виборі матеріалу на роль емітера комптонівського ДПЗ є такі характеристики:

- заряд атомного ядра;
- число радіоактивних нуклідів в ланцюгу нуклідних перетворень;

 кількість актів розпаду радіоактивних нуклідів у матеріалі емітера (вона, у свою чергу, залежить від швидкості утворення такого нукліду);

• радіаційна та корозійна стійкість.

Варто зазначити, що й механічні характеристики також мають величезне значення через пряму залежність технології виробництва і її вартості від конкретних властивостей матеріалу (наприклад, пластичність, міцність, швидкість окислення і т.д.).

2.2. Спосіб розрахунку елементного складу матеріалу, що опромінюється нейтронами

Під впливом потоку нейтронів нукліди матеріалу мішені зазнають перетворення, внаслідок яких їх концентрації у часі змінюються, й виникають (генеруються) нові нукліди. Трансмутанти, як і вихідні нукліди, також зазнають впливу нейтронного потоку, що призводить до утворення інших нуклідів, а також подовжує ланцюг перетворень. Для окремого нукліду X, як і для ланцюжка радіоактивних перетворень [89], справедлива схема перетворень

$$\stackrel{n}{\rightarrow} X_1 \rightarrow X_2 \rightarrow \ldots \rightarrow X_{k-1} \rightarrow X_k \rightarrow X_{k+1} \rightarrow \ldots \rightarrow X_n.$$
(2.1)

де, наявність стрілок червоного кольору має на увазі, що кожен із дочірніх нуклідів теж піддається опроміненню нейтронами.

Новоутворений нуклід може виявитися радіоактивним і розпадатися в часі. Радіоактивний розпад у такому випадку – ще одна причина зменшення концентрації нукліду. Для схеми (2.1) вже є математичний апарат, для якого абсолютно не має значення, з яких причин змінюються концентрації нуклідів (у нашому випадку це можуть бути вигоряння в (n, γ)-реакції та радіоактивний розпад). Цей підхід відомий в літературі під назвою «розв'язок Бейтмана» [37].

Як уже було сказано вище, вигоряння вихідного та утворення нових нуклідів у ядерній реакції за участю нейтрону можна представити схемою послідовних перетворень (2.1). Баланс концентрацій N_i в такому ланцюгу визначається звичайними умовами зникнення (убутку, виснаження). Швидкість перетворення X_k в X_{k+1} пропорціональна r_k , а швидкість перетворення X_{k-1} в X_k пропорціональна r_{k-1} (r — швидкість процесу перетворення [c^{-1}]). Для членів ланцюга (2.1) зміну концентрації в часі можна описати системою з *n* звичайних диференціальних рівнянь

$$\begin{cases} \frac{dN_{1}}{dt} = -r_{1} \cdot N_{1} \\ \frac{dN_{2}}{dt} = r_{1} \cdot N_{1} - r_{2} \cdot N_{2} \\ \frac{dN_{3}}{dt} = r_{2} \cdot N_{2} - r_{3} \cdot N_{3} \\ \cdots \\ \frac{dN_{n}}{dt} = r_{n-1} \cdot N_{n-1} - r_{n} \cdot N_{n} \end{cases}$$
(2.2)

де *r* [c⁻¹] – швидкість перебігу процесів перетворення (мається на увазі радіоактивний розпад (λ_{pacn}), ядерна реакція (*r*_x, х – тип реакції) або їх комбінація).

Розв'язок системи (2.2) запропонував Н. Ваteman [37] у припущенні, що в початковий момент часу t = 0 існує лише вихідна (початкова) речовина (тобто, $N_2(0) = N_3(0) = ... = N_n(0) = 0$). Розв'язок має наступний вигляд:

$$N_{\rm n}(t) = C_1 \cdot e^{-r_1 \cdot t} + C_2 \cdot e^{-r_2 \cdot t} + \dots + C_{\rm n-1} \cdot e^{-r_{\rm n-1} \cdot t} + C_{\rm n} \cdot e^{-r_{\rm n} \cdot t}, \qquad (2.3)$$

де

$$C_{1} = N_{1}^{0} \cdot \frac{r_{1} \cdot r_{2} \cdot \dots \cdot r_{n-1}}{(r_{2} - r_{1}) \cdot (r_{3} - r_{1}) \cdot \dots \cdot (r_{n} - r_{1})},$$

$$C_{2} = N_{1}^{0} \cdot \frac{r_{1} \cdot r_{2} \cdot \dots \cdot r_{n-1}}{(r_{1} - r_{2}) \cdot (r_{3} - r_{2}) \cdot \dots \cdot (r_{n} - r_{2})},$$

$$\dots \qquad (2.4)$$

$$C_{n-1} = N_{1}^{0} \cdot \frac{r_{1} \cdot r_{2} \cdot \dots \cdot r_{n-1}}{(r_{2} - r_{n-1}) \cdot (r_{3} - r_{n-1}) \cdot \dots \cdot (r_{n} - r_{n-1})},$$

$$C_{n} = N_{1}^{0} \cdot \frac{r_{1} \cdot r_{2} \cdot \dots \cdot r_{n-1}}{(r_{1} - r_{n}) \cdot (r_{2} - r_{n}) \cdot \dots \cdot (r_{n-1} - r_{n})},$$

$$(t = 0).$$

де $N_1^0 = N_1(t=0)$

В загальному вигляді розв'язок має форму

$$N_{n}(t) = N_{1}^{0} \cdot \left(\prod_{k=1}^{n-1} r_{k}\right) \cdot \sum_{k=1}^{n} \frac{e^{-r_{k} \cdot t}}{\prod_{m \neq k}^{n} (r_{m} - r_{k})},$$
(2.5)

де $N_1^0 = N_1(t=0)$ m = 1...n; k = 1...n; n – число членів ланцюга перетворень; r може бути представлено, як $\lambda_{\text{розп.}}$, r_x або ($\lambda_{\text{розп.}} + r_x$) – це залежить від процесів, які розглядаються (наприклад, для (n, γ)-реакції див. вираз (2.10)). Тобто, індексування за допомогою m та k відповідає перебору номерів членів лінійного ланцюга від 1 до n.

Якщо необхідно отримати розв'язку для більш загального випадку, коли $N_2(0), N_3(0), ..., N_n(0) \neq 0$, то для цього треба до виразу (2.5) (концентрація N_n в ланцюгу із п членів) додати розв'язок для ланцюгів із числом членів (n - 1), (n - 2) и т. д. Наприклад, в ланцюгу з (n - 1) членів первинною є речовина «2», і, відповідно, при t = 0 $N_2^0 = N_2$ і т. д. [37].

Розглянемо, як розв'язок Бейтмана можна застосувати при розрахунку концентрацій Hf природного складу.

Якщо € ланцюжок перетворень, ЩО містить розгалуження (наприклад, поділ на дві гілки – А і В, як показано на прикладі для Hf, Рис. 2.1), то, застосовуючи до неї розв'язок Бейтмана, константи r_i чисельників виразів для C_i після точки розгалуження слід замінювати парціальними величинами відповідно до коефіцієнта розгалуження q ($q_i = r_i/(r_A + r_B)$, i = A; B). При цьому кожну гілку потрібно прораховувати окремо (тобто розкладати на окремі лінійні ланцюги), а якщо далі гілки знову з'єднуються, то число атомів у такій точці (а також «нижче») можна отримати підсумовуванням концентрацій, що формуються за рахунок перетворень по обох ланцюжках.

Нукліди, що входять до складу природного Hf, під впливом потоку нейтронів зазнають ядерних перетворень (див. Рис. 2.1). Представлену на рисунку схему було суттєво спрощено – в неї включено лише один ізомерний стан (всі інші ізомери можна подивитися далі, Рис. 3.1). Наприклад, через низький склад ¹⁷⁴₇₂Hf у вихідному складі, тут



Рис. 2.1. Спрощена схема нуклідних перетворень у Hf, що опромінюється нейтронами. Нукліди: - початкові; - радіоактивні; - стабільні

Як відомо, Hf природного складу представлений у вигляді 6 стабільних ізотопів. У результаті необхідно вивчити вигоряння та перетворення нуклідів по 6 різних ланцюжках перетворення. Кожен нуклід має власний поперечний переріз у (n, γ)-реакції поглинання нейтрону та значною мірою визначає поведінку концентрацій нуклідів, які знаходяться далі (нижче) по ланцюгу (безліч членів походять одночасно від кількох материнських нуклідів). Наприклад, якщо потрібно розрахувати концентрацію N(t) для $^{178}_{72}$ Hf, то доведеться врахувати 4 «порції» атомів Рис. 2.2 – вклад ізотопів $^{174,176,177}_{72}$ Hf , а також поведінку концентрації атомів самого вихідного нукліду ¹⁷⁸₇₂Hf. Кожній «порції» атомів відповідає свій власний лінійний ланцюжок перетворення, який слід прораховувати за допомогою формули (2.5).

Щоб отримати результуючу поведінку концентрації N(t) для $^{178}_{72}$ Hf, треба скласти всі 4 компоненти:

$$N_{\rm Hf-178}(t) = N_{\rm Hf-178}^{\rm from Hf-174}(t) + N_{\rm Hf-178}^{\rm from Hf-176}(t) + N_{\rm Hf-178}^{\rm from Hf-177}(t) + N_{\rm Hf-178}^{\rm 0}(t)$$
(2.6)



Рис. 2.2. Лінійні ланцюги для розрахунку концентрації ¹⁷⁸ Нf

Розв'язок Бейтмана дає можливість окремо вивчити будь-який вклад у ланцюжку перетворення. Розраховуючи, наприклад, зміну концентрації ізотопу $^{183}_{74}$ W, потрібно окремо порахувати, які порції атомів W отримано по відгалуженням «А» і «В» з 6 материнських нуклідів Hf. Зокрема, якщо подивитися на вклад $^{180}_{72}$ Hf (див. Рис. 2.1), то отримаємо наступне:

A:
$${}^{180}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{181}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{181}_{73}\text{Ta} \rightarrow {}^{182}_{73}\text{Ta} \rightarrow {}^{183}_{73}\text{Ta} \rightarrow {}^{183}_{74}\text{W} \rightarrow$$

B: ${}^{180}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{181}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{181}_{73}\text{Ta} \rightarrow {}^{182}_{73}\text{Ta} \rightarrow {}^{182}_{74}\text{W} \rightarrow {}^{183}_{74}\text{W} \rightarrow$ (2.7)

Видно, що ланцюжки відрізняються тільки в одному місці – після точки розгалуження в $^{182}_{73}$ Ta. Обчислюючи концентрацію $^{183}_{74}$ W по кожній з гілок, а потім складаючи їх, ми отримаємо порцію атомів, які виникають за рахунок трансформації нукліду $^{180}_{72}$ Hf. При розрахунках N(t) окремо взятого нукліда з ланцюжка перетворення, будуть потрібні незалежні обчислення по лінійних ланцюгах, які відповідають початковим (материнським) ізотопам. Ці ланцюги будуть подібні (2.7), і описувати їх треба також за допомогою (2.5), а в кінці так само скласти.

2.3. Фізичні процеси, що забезпечують роботу безінерційного детектора нейтронів

Принципові конструкції нейтронних детекторів активаційного (βемісійного) та комптонівського (безінерційного) типів дуже схожі Рис. 1.7. Головна відмінність між ними полягає в першопричинах утворення сигналу. У β -емісійному детекторі сигнал формується β -частинками, що виникають у процесі радіоактивного розпаду; у комптонівському детекторі сигнал формується електронами з (n, γ , e)- та (γ , e)-процесів. При цьому, у формуванні електронів приймає як миттєве, так запізніле (затримане) γ -випромінювання. При взаємодії з атомами емітера, ізолятора та колектора γ -кванти розсіюються та генерують вторинні електрони у незалежних процесах фотоефекту, комптонівського розсіювання та народження електрон-позитронних пар.

У ході виконання цієї роботи необхідно оцінити відгук детектора на дію реакторного випромінювання. Такому розрахунку передує визначення потоку γ -квантів в об'ємі емітера $\Phi_{\gamma}^{\text{емітер}}$. Емітер зазнає вплив як фотонів з (n, γ)-реакції поглинання нейтронів ядрами атомів матеріалу емітеру, так і фотонів реакторного походження. Оцінити останнє аналітично – дуже важко, а ось з'ясувати, яка величина потоку має місце за рахунок процесу (n, γ) в матеріалі емітера можна.

Число γ-квантів $N_{\gamma}^{\text{емітер}}$, що утворюються в одиниці часу внаслідок протікання реакції (n, γ), безпосередньо залежить від швидкості поглинання нейтронів атомними ядрами матеріалу емітера:

$$N_{\gamma}^{\text{emmep}} = K \cdot N_{\text{m}} \cdot \sigma_{\text{n}\gamma} \cdot \Phi_{\text{n}}, \qquad (2.8)$$

де K – кількість γ -квантів у розрахунку на одне поглинання нейтрона; $\sigma_{n\gamma}$ – поперечний переріз реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтрона [cm²]; Φ_n – величина потоку нейтронів [cm⁻²·c⁻¹]; $N_m = m \cdot N_A/M$ – число атомів у емітері масою m [г], тут M – молярна маса [г/моль], N_A – число Авогадро [моль⁻¹]; кількість поглинань нейтронів дорівнює добутку $\sigma_{n\gamma} \cdot \Phi_n$.

Зазвичай у якості матеріалу емітера β -емісійного (активаційного) детектора застосовують такі метали, як ${}^{51}_{23}$ V, ${}^{103}_{45}$ Rh, ${}^{115}_{49}$ In, ${}^{108}_{47}$ Ag, ${}^{55}_{25}$ Mn, ${}^{238}_{92}$ U, ${}^{235}_{92}$ U [42]. У комптонівському ж детекторі може бути використано практично будь-який матеріал, що задовольняє вимогам щодо необхідного

терміну служби в умовах активної зони ядерного реактора, а також відповідає критеріям, які було викладено вище в п. 2.1 (наприклад, Co, Cd, Gd, Er, Hf, Ta, W, Re, Os, Pt, Ce [35, 69], Табл. 2.2 [71–73]).

Таблиця 2.2. Мікроскопічні перерізи поглинання теплового нейтрону σ_{nγ}, резонансний інтеграл *I*_{pe3} та число фотонів на 100 нейтронних поглинань для матеріалів, що використовуються як емітери комптонівських та β-емісійних детекторів

Елемент	<i>σ</i> пγ / Ірез, барн [73]	Число ү-кв. на 100 погл. n [71, 72]	Елемент	<i>σ</i> пγ / І _{рез} , барн [73]	Число ү-кв. на 100 погл. n [71, 72]
$^{51}_{23}$ V	5,08 / 2,70	182	¹⁴⁰ ₅₈ Ce	0,61 / 0,4	454
$^{52}_{24}{ m Cr}$	3,07 / 1,50	125	$^{157}_{64}$ Gd	48630 / 404	337
$^{55}_{25}{ m Mn}$	13,28 / 13,52	167	$^{167}_{68}{ m Er}$	156 / 748	334
$^{56}_{26}$ Fe	2,55 / 1,34	165	$^{178}_{72}{ m Hf}$	105 / 1994	387
⁵⁹ ₂₇ Co	37,21 / 75,85	243	¹⁸¹ ₇₃ Ta	20,68 / 660	256
⁵⁹ ₂₈ Ni	4,38 / 2,14	76	$^{184}_{74}{ m W}$	18,26 / 317	252
$^{103}_{45}$ Rh	133,2 / 1045	261	$^{186}_{75}{ m Re}$	90 / 830	277
$^{108}_{47}{ m Ag}$	63 / 760	296	$^{190}_{76}{ m Os}$	17,62 / 176	337
$^{112}_{48}$ Cd	2468 / 66,59	365	$^{195}_{78}{\rm Pt}$	10,29 / 130,6	261

У таблиці наведено параметри γ -випромінювання для ядер атомів деяких елементів, які зазвичай використовуються в детекторах комптонівського та β -емісійного типів [35, 42, 56, 59]. Наводиться сумарна кількість γ -квантів, що випускаються на 100 поглинань теплових нейтронів. Насправді для кожного елемента формується своя унікальна картина щодо випромінювання фотонів у певних діапазонах енергії Рис. 2.3. Видно, що для популярних матеріалів емітерів комптонівських детекторів область середніх енергій γ -квантів (0,5...3,5 MeB) є найбільш насиченою.


Рис. 2.3. Вихід у-квантів на 100 поглинутих теплових нейтронів [71, 72]

Число фотонів, що випромінюються після радіаційного поглинання емітера вибору матеріалу нейтрону, не визначає остаточного комптонівського нейтронного детектора. Потрібно також враховувати ще й швидкість (виснаження), вигоряння яка визначається величиною поперечного перерізу (n, *γ*)-реакції. При цьому багатоізотопні елементи можуть мати додаткову перешкоду, – якщо послідовність атомних мас їх вихідних нуклідів не є безперервною, це призводить до утворення радіоактивних ізотопів, присутність яких за замовчуванням має бути мінімальною, бо наявність періоду напіврозпаду у таких нуклідів призводить до збільшення ваги компоненти сигналу, яка має певний час затримки. Наявність таких компонент спотворює сумарний сигнал і, чим більша їх вага (вклад), тим менш надійними будуть покази детектора.

Якщо підсумувати, то кандидат на роль матеріалу емітера повинен бути достатньо ефективним джерелом миттєвого γ -випромінювання, тобто не просто мати здатність після поглинання нейтрону випускати велику кількість γ -квантів, але ще й мати досить високі поперечні перерізи радіаційного поглинання нейтронів у реакції (n, γ). Проте, в той же час, переріз у реакції (n, γ) має бути не занадто великим, бо важливо, щоб матеріал якомога довше зберігав свої вихідні властивості, а також мінімально спотворював нейтронні поля в активній зоні ядерного реактора.

2.3.1. Поглинання нейтрону. Вплив резонансів та $k \cdot T$

У загальному вигляді схему (n, γ)-реакції поглинання нейтрону можна зобразити наступним чином:

$${}^{A}_{Z}\mathbf{M} + {}^{1}_{0}\mathbf{n} \to {}^{A+1}_{Z}\mathbf{M}^{*} \to {}^{A+1}_{Z}\mathbf{M} + K \cdot \gamma, \qquad (2.9)$$

де М – нуклід, що взаємодіє з нейтроном n; Z і A – заряд ядра та атомна маса нукліда; γ – γ -квант; K – коефіцієнт, що відповідає множинності γ -квантів (для розрядки збудженого новоутвореного компаунд ядра зазвичай потрібно випромінювання цілого каскаду фотонів; як результат, протягом

певного часу можуть утворюватися *γ*-кванти з абсолютно різних діапазонів енергії).

Як уже зазначалось вище, радіаційне поглинання нейтрону визначає рамки використання комптонівського детектора, і це відбувається відразу на 2-х «рівнях»:

• рівень сигналу та чутливість;

 радіаційний ресурс (насамперед, мається на увазі швидкість вигоряння (виснаження) атомів, здатних ефективно брати участь у поглинанні нейтронів).

Поперечний переріз $\sigma_{n\gamma}$ (n, γ)-реакції демонструє ймовірність поглинання нейтрону атомним ядром матеріалу поглинача, проте цей переріз є сумою ймовірностей поглинання в різних областях енергії нейтронів – у резонансній області та тепловій.

Швидкість вигоряння $r_{n\gamma}$ нукліду, мікроскопічний переріз (n, γ)реакції та величина густини нейтронного потоку Φ_n пов'язані між собою наступним виразом:

$$r_{n\gamma} = \hat{\sigma}_{n\gamma} \cdot \Phi_n. \tag{2.10}$$

Наявність поглинання в резонансній області та тепловій передбачає, що мікроскопічний поперечний переріз $\hat{\sigma}_{ny}$ складається з 2-х компонент (також див. вираз (1.6)) [55, 74]

$$\hat{\sigma}_{n\gamma} = \sigma_{pe3} + \sigma_{kT}, \qquad (2.11)$$

де

$$\sigma_{\rm res} = I_{\rm pes} \cdot k_{\rm pes/Tenn}, \qquad (2.12)$$

а

$$\sigma_{\rm kT} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sqrt{\frac{E_{\rm n}}{E_{\rm T}}} \cdot \sigma_{\rm n\gamma} (E_{\rm n}) \cdot g(T). \qquad (2.13)$$

В наведених формулах $k_{\text{рез/тепл}}$ – жорсткість нейтронного спектру (див. формулу (1.7) та (1.8)) (по суті, це співвідношення числа теплових і надтеплових нейтронів у спектрі [54]); I_{γ} – резонансний інтеграл; $E_{n} = 0,0253$ eB; $E_{T} = k \cdot T$; $\sigma_{n\gamma}(E_{n})$ – мікроскопічний переріз; g(T) – фактор Весткота [66, 67]. Таблиця 2.3. Мікропереріз радіаційного поглинання теплових і резонансних нейтронів та періоди напіврозпаду радіонуклідів з ланцюга перетворень Hf із урахуванням резонансного інтегралу $I_{\text{peз}}$, жорсткості спектру $k_{\text{peз/тепл}} = 0,436$, а також $k \cdot T$ і фактора g(T) Весткота для T = 600 K

Елемент	Нуклід	$T_{1/2}$	$\sigma_{ m n\gamma}$, б	<i>I</i> _{рез} , б	g(T)	$\sigma_{\! m kT}$,б	$\hat{\sigma}_{\!\! m n\gamma}$,б	$\sigma_{\!\! m n\gamma}$, б
Hf	174	-	549	307	0,944	322	455	1500
	175	70 діб	-	-	-	-	-	-
	176	-	23,5	708	1,011	14,7	323	15
	177	-	375	7200	1,088	253	3392	380
	178	-	84	800	1,013	53	434	75
	179m1	18,7 c	-	-	-	-	-	-
	179	-	41	630	0,987	25,1	300	65
	180	-	13,04	33	0,988	8	22	23
	181	42,4 дів	80,03	132	1,001	50	107	-
Lu	175	-	6,6	550	1,0027	4,1	244	35
	175m	-	16,7	550	1,0027	10,4	250	
	176m	3,62 год	-	-	-	-	-	
	176	-	2020	1087	1,7579	2203	2677	4000
	177	6,65 діб	1000	-	1	621	620	-
	178	25 хв	-	-	-	-	-	-
Та	181	-	20,5	655	1,015	13	298	70
	182	115 діб	8200	943	3,366	17127	17537	17000
	183	5,1 діб	-	-	-	-	-	-
W	182	-	19,9	600	1,012	12,5	274	19
	183	-	10,4	355	1,012	6,5	161	11
	184	-	1,7	14,7	1,001	1,1	7.5	4
	185	75,1 діб	-	-	-	-	-	-
Re	185	-	112	1727	1,022	71	824	220
	186	3,7 діб	-	-	-	-	-	-

 $\sigma_{n\gamma}$ – початкова величина мікроперерізу; σ_{kT} – величина перерізу з урахуванням впливу температури ($k \cdot T$ та фактора Весткота);

 $\hat{\sigma}_{n\gamma}$ – величина мікроперерізу з урахуванням усіх факторів;

*σ*_{пγ} – величина мікроперерізу поглинання нейтронів згідно даних роботи [47].

Вираз (2.11) дає змогу отримати величини мікроскопічного перерізу для конкретних реакторних умов, де враховано поглинання в резонансній області та тепловій. Наприклад, в Табл. 2.3 наведені величини $\hat{\sigma}_{n\gamma}$ для Hf, які відповідають умовам реактора BBEP-1000 (середня жорсткість нейтронного спектру на рівні 0,436 і температура 600 K).

Для деяких нуклідів використання формули (2.11) є надзвичайно важливим, тому що переріз поглинання нейтрону може суттєво змінюватися. Окремий розгляд поглинання в резонансній області особливо важливий для атомів з великим *Z*, у яких (як, наприклад, у Hf) число резонансів досить велике [68]. А для ВВЕР-1000, де активній зоні властива більш тісна водо-паливна решітка у порівнянні з іншими легководними

діапазоні може продемонструвати свою власну унікальну картину.

реакторами, розділення процесів поглинання в резонансному та тепловому





– поглинання в резонансній області; – поглинання в тепловій області

На Рис. 2.4 наведено діаграми для деяких нуклідів з ланцюжка перетворення Hf (величини поперечних перерізів було отримано за допомогою формули (2.11) для умов активної зони BBEP-1000). Добре видно, що поглинання в резонансній області є основною складовою мікроскопічного поперечного перерізу поглинання нейтронів, і лише для окремих нуклідів (¹⁷⁴₇₂Hf i ¹⁸²₇₃Ta) поглинання в тепловій області переважає над поглинанням в резонансній.

При опроміненні нейтронами у матеріалі можуть формуватися радіоактивні нукліди, стала розпаду яких дорівнює $\lambda_{\text{розп.}} = \ln 2/T_{1/2}$, де $T_{1/2}$ – період напіврозпаду радіонукліда. Щоб визначити сумарну швидкість зникнення атомів радіонукліду, який вигоряє в потоці нейтронів, необхідно враховувати обидва процеси – і радіоактивний розпад, і вигоряння. Замість формули (2.10), в такому разі, треба скористатись виразом

$$r = r_{\rm n\gamma} + \lambda_{\rm posn.} \,. \tag{2.14}$$

2.3.2. Процес послаблення потоку ү-квантів у матеріалі

 γ -Кванти з (2.9), а також реакторне (затримане та миттєве) γ випромінювання відповідальні за виникнення електронів, що формують сигнал комптонівського детектора. Сигнал виникає за рахунок народження електронів при ослабленні фотонів у матеріалі. Головним чином, це відбувається в 3-х незалежних процесах: комптонівське розсіювання, народження пар електрон-позитрон, фотопоглинання. При фотопоглинанні фотон втрачає всю свою енергію в одному акті взаємодії (ймовірність цього процесу залежить від E_{γ} і Z). У процесі комптонівського розсіювання втрачається лише частина енергії фотона (ймовірність взаємодії залежить від E_{γ} та Z слабо). При утворенні електрон-позитронної пари фотон також може втратити всю свою енергію (поріг енергії γ -кванту даного процесу більше або дорівнює 1,022 MeB).

Кожен із перерахованих процесів має власну ймовірність протікання [22, 53, 74, 75] та переважний діапазон (з найбільшою ефективністю конвертації ү-квантів в електрони) енергії ү-випромінювання, яке послаблюється в матеріалі Рис. 2.5 [76]. Крім того, перерізи наведених процесів мають абсолютно різні за своїм характером залежності від E_{γ} та Z ядра атома, на якому відбувається ослаблення [53]

$$\sigma_{\text{комптон}} \sim Z/E_{\gamma}$$
, (2.15)

$$\sigma_{\phi \sigma \tau \sigma} \sim Z^5 / E_{\gamma}^{3,5} , \qquad (2.16)$$

$$\sigma_{\text{ел.-поз.}} \sim Z^2 \cdot \ln(2E_{\gamma}), \qquad (2.17)$$

саме з цієї причини слід розглядати їх окремо один від одного.



Рис. 2.5. Масовий коефіцієнт μ_m послаблення γ -квантів у Нf

За характером залежностей перерізів можна зробити висновок, що в області низьких енергій фотонів переважає фотоефект, для середніх енергії комптонівське розсіювання, значень a y випадку високоенергетичного у-випромінювання – утворення пар електронпозитрон (причому утворення пар проходить як у полі ядра атома, так і полі його електронів, хоча і з інтенсивністю на 2 порядки величини меншою (див. Рис. 2.5)). Однак важливо розуміти, що співвідношення діапазонів енергії у-квантів для кожного Z своє власне. У результаті будьякі зміни в енергетичному спектрі фотонів еквівалентні порушенню балансу між окремими процесами послаблення цих фотонів в матеріалі, а також різною кількістю електронів, що утворюються в цих процесах послаблення [22, 53, 76, 75].

Також варто зазначити, що згідно Рис. 2.3 найбільше фотонів, випромінюваних внаслідок протікання реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтрону, знаходиться в межах 0,5...3,5 MeB, а з графіка Рис. 2.5 видно, що у цьому діапазоні переважає комптонівський тип розсіювання γ-квантів.

 γ -Кванти, поширюючись у матеріалі, зазнають послаблення свого потоку Φ_{γ} в процесах фотоефекту, комптонівського розсіювання і народження пар електрон–позитрон за законом [75]

$$\Phi_{\gamma}(x) = \Phi_{\gamma}(0) \cdot e^{-\mu \cdot x}, \qquad (2.18)$$

де μ – коефіцієнт лінійного ослаблення γ-випромінювання є сумою коефіцієнтів у зазначених процесах

$$\mu = \mu_{\text{фото}} + \mu_{\text{Комптон}} + \mu_{\text{ел.-поз.}}$$
(2.19)

і має розмірність [см⁻¹] (*x* – товщина шару ізолятора [см]). Коефіцієнт *µ* відповідає ймовірності взаємодії фотона з атомом на одиниці довжини шляху у матеріалі. Вираз для лінійного коефіцієнта ослаблення γ-випромінювання має вигляд:

$$\mu = \sigma_{\gamma}^{k} \cdot N_{k}, \qquad (2.20)$$

де σ_{γ}^{k} – поперечний переріз розсіювання фотона на k-му атомі, N_{k} – концентрація k-х атомів. Величина $1/\mu$ є мірою вільного пробігу² фотонів в матеріалі, відповідаючи рівню поглинання (ослаблення) їх потоку $\Phi_{\gamma}(x)/\Phi_{\gamma}(0) = e^{-\mu x}$.

Коефіцієнт μ залежить від густини поглинача, тому зручно ввести нормування на ρ речовини. У результаті отримаємо масовий коефіцієнт ослаблення (поглинання) γ -квантів $\mu_{\rm m}$ [см²/г]:

$$\mu_{\rm m} = \frac{\mu}{\rho_{\rm k}} = \frac{\sigma_{\gamma}^{\rm k} \cdot N_{\rm k}}{\rho_{\rm k}} = \frac{\rho_{\rm k} \cdot N_{\rm A}}{A_{\rm k}} \cdot \frac{\sigma_{\gamma}^{\rm k}}{\rho_{\rm k}} = \frac{\sigma_{\gamma}^{\rm k} \cdot N_{\rm A}}{A_{\rm k}}, \qquad (2.21)$$

де ρ_k – густина поглинача, що складається з атомів k-го сорту; $N_A = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$ – число Авогадро [77]; A_k – маса атома k-го сорту

² У літературі цю величину також називають середньою довжиною вільного пробігу – середня довжина, яку пройде частка в речовині, перш ніж провзаємодіяти.

[г/моль]. У різних базах даних зазвичай вказується саме масовий коефіцієнт ослаблення μ_m , бо він не прив'язаний до густини матеріалу. Він визначає можливість взаємодії γ-квантів з конкретним хімічним елементом. У разі складних хімічних складів матеріалу, що опромінюється, справедлива формула [75]

$$\mu_{\rm m} = \sum_{\rm i} \omega_{\rm i} \cdot \mu_{\rm mi}, \qquad (2.22)$$

де ω_i – масова частка і-го елемента; μ_{mi} – величина масового коефіцієнта послаблення і-го елемента.

Для випадку, коли мішень є сумішшю нуклідів, концентрація кожного з яких змінюється в часі, вираз (2.8) буде виглядати

$$\boldsymbol{\Phi}_{\gamma}^{\text{emirep}} = \boldsymbol{\Phi}_{n} \cdot \sum_{i} K_{i} \cdot N_{i}(t) \cdot \boldsymbol{\sigma}_{n\gamma}^{i} . \qquad (2.23)$$

Послаблення потоку фотонів та процес формування електронів у матеріалі можна описати за допомогою виразу

$$\Phi_{\rm e}/\Phi_{\gamma} = (\mu_{\rm poto} + \mu_{\rm Komitoh} + \mu_{\rm en.-nos.}) \cdot \rho \cdot x, \qquad (2.24)$$

де ρ – густина матеріалу [г/см³]; x – товщина матеріалу [см]. Величину $\rho \cdot x$ також називають масовою товщиною речовини [г/см²].

Отже, формула (2.23) дає змогу за відомою величиною густини нейтронного потоку оцінити, який потік фотонів слід очікувати при протіканні реакції (n, γ). Формула ж (2.24) допомагає оцінити кількість зарядів, що генеруються при ослабленні фотонів у матеріалі. Однак (2.24) треба застосовувати і $\Phi_{\gamma}^{\text{емітер}}$, і для потоків γ реакторного походження, що в результаті й допоможе оцінити сумарний рівень сигналу.

На жаль, описаний підхід дає можливість лише використання середніх величин потоків, а також змушує користуватися середніми величинами енергій γ-квантів при визначенні коефіцієнтів ослаблення *μ*. Однак для первинної оцінки матеріалів він досить зручний, і дає змогу швидко отримати уявлення про здатність мішені генерувати електричний заряд у полі нейтронів та γ-квантів.

2.3.3. Походження фотонів

Результуючий сигнал комптонівського детектора формується головним чином за рахунок електронів, які виникають у процесах ослаблення наступних «видів» γ-випромінювання Рис. 2.6:

 фотони, що сформовані при поділі ядер палива (миттєве γвипромінювання);

 фотони, що випускаються продуктами поділу ядерного палива (запізніле або затримане γ-випромінювання);

• фотони, що сформовані при розрядці новоутворених ядер нуклідів, які входять до складу матеріалу емітера (звичайно, маються на увазі як вихідні нукліди, так і трансмутанти, що виникають через перебіг (n, γ)реакції, а потім починають вигоряти).

Матеріали ізолятора та колектора за замовчуванням вибираються таким чином, щоб вважати їх «прозорими» у процесі взаємодії з нейтронами. Саме тому в блоці «2» Рис. 2.6 вказаний тільки матеріал емітера – адже тільки у його нуклідів достатньо високі величини поперечних перерізів поглинання нейтронів у реакції (n, γ).

Сумарний рівень сигналу комптонівського нейтронного детектора залежить від цілого ряду процесів (Рис. 2.7). На детектор впливають потоки нейтронів і фотонів реакторного походження, і кожен з них створює певний ланцюжок процесів.

Реакторні γ-кванти зазнають ослаблення в матеріалах детектора, і ефективність їх конвертації в електрони, при цьому, визначена властивостями матеріалу (густина, товщина, переріз взаємодії з γ-квантом) та енергією фотонів. Народження електронів за межами емітера перешкоджає правильній роботі детектора, тому матеріали колектора та ізолятора зазвичай складаються з атомів з низькими перерізами (γ, е)- процесів, а також мають мінімально можливу товщину, зазвичай обмежену конкретними механічними властивостями.



Рис. 2.6. Схематичне зображення процесу утворення електронів

у комптонівському детекторі нейтронів



Рис. 2.7. Схематичне зображення основних процесів, що є відповідальними за генерацію електричного заряду в комптонівському детекторі (показано поперечний переріз)

Потік реакторних нейтронів при проходженні через матеріали детектора послаблюється за рахунок поглинання в реакціях (n, γ). Нові компаунд ядра, мають певний рівень енергії збудження, і позбавляються його за допомогою випромінювання каскаду фотонів. Фотони з реакції (n, γ), подібно до реакторних, також взаємодіють з атомами матеріалів, з яких складається детектор, призводячи в результаті до виникнення електронів. Для нейтронів, як і для γ -квантів, наявні ті ж міркування в плані колектора та ізолятора – матеріали цих елементів детектора повинні мати мінімально можливі перерізи поглинання у (n, γ)-реакції, а також мати найменші можливі товщини.

В емітері, ізоляторі та колекторі постійно генеруються електрони. Їх кількість, енергія та напрямок руху визначають, яким буде підсумковий сигнал. Звичайно, через найбільшу ефективність у процесах (n, γ) і (γ , e), емітер виробляє найбільшу кількість електронів. Однак частина цих електронів все ж таки має недостатню енергію для того, щоб подолати шар ізолятора і потенціальний бар'єр в ньому. Такі електрони не створюють корисний внесок у загальний сигнал і сприяють подальшому накопиченню заряду в діелектрику. Потенціальна енергія електрона в електричному полі ДПЗ, що працює у режимі «короткого замикання», має максимум, який знаходиться всередині ізолятора. Якщо електрон під час руху через ізолятор повністю втрачає свою енергію, не доходячи до цього максимуму, то його заряд повертається на емітер. При перетині ж електроном поверхні максимуму – заряд потрапляє на колектор [78, 79]. Так з'являються струми провідності зворотного знаку. Сумарно всі перелічені процеси й визначають поведінку детектора в умовах активної зони реактора.

Перелічені вище процеси не піддаються надійній аналітичній оцінці, і сумарна генерація заряду в детекторі може бути визначена лише в деяких межах і з цілою низкою обмежень (найсерйозніші з них – усереднення значень енергії та потоків частинок). Саме з цієї причини для підрахунку електронів, які народжуються в системі найвигідніше використовувати Монте-Карло код.

2.4. Модель комптонівського детектора в активній зоні реактора

2.4.1. Комп'ютерний код

Задачі моделювання взаємодії іонізуючого випромінювання з речовиною мають тривалу історію через надзвичайну їх важливість для використання в техніці, фізиці та медицині. Усього було розроблено два принципово різні підходи для розв'язку таких задач: методи Монте-Карло та детерміністичні методи.

Детерміністичні методи засновані розв'язку інтегрона диференціального рівняння Больцмана, що описує процес перенесення частинок у речовині [80]. Врахування процесів взаємодії у-квантів з в геометрично складних тілах провокує речовиною виникнення математичних труднощів розв'язку рівнянь переносу. Це призводить до необхідності застосування наближень, через які знижується точність Оскільки більшості детерміністичних методів результатів. В ДЛЯ дискретизації рівнянь перенесення використовується однорідна просторова сітка, ці методи стають надто повільними у задачах зі складними поверхнями, оскільки крок сітки потрібно вибирати дуже малим.

Теоретична база методу Монте-Карло закладена ще наприкінці 1940х років. Ст. Уламом та Дж. фон Нейманом [81]. В основі цього методу лежить ймовірнісний підхід отримання наближеного розв'язку для фізичної величини, що досліджується. Величезна кількість рандомних (випадкових) історій окремих частинок моделюється, а потім усереднюється.

При моделюванні відгуку деякого об'єкта на зовнішнє випромінювання переважно використовують саме метод Монте-Карло, бо на даний момент він є найрозвиненішим. Детальні моделі елементарних процесів взаємодії фотонів із речовиною розроблені аж до енергій $\sim 10^2$ ГеВ і ядер з Z < 100 [82]. У результаті на основі цих моделей

створено універсальні програми розрахунку транспорту фотонів та заряджених частинок в об'єктах довільного складу та геометрії. (MCNP [83, 84], EGSnrc [85], GEANT [86], ITS [87] та ін.).

Для задач транспорту частинок за допомогою методу Монте-Карло можна отримати результати, надзвичайно близькі до тих, що мають місце у реальному житті. У цьому методі відстежується повна історія (від народження і до зникнення) кожної частки, що вийшла з джерела. Усі події розігруються з використанням генерації випадкових чисел. У результаті дані з транспорту дозволяють зібрати інформацію про частинку у будьякій точці її історії.

Випадковий пробіг частки залежить тільки від її поточного стану, тому нейтронні взаємодії розглядаються як незалежні події. Це т.зв. «аналоговий режим», у якому історія кожної частки моделюється точно.

Метод Монте-Карло заснований на фізиці взаємодії частинок, і використовує точкові поперечні перерізи (маються на увазі безперервні перерізи, які не мають поділів на комірки). Помилка коду визначена статистичною невизначеністю вибіркових випадкових історій і масштабується, як $1/\sqrt{N}$, де N – задане число подій.

У роботі використовувався код МСNPX. Для задачі визначення відгуку об'єкта, що знаходиться в умовах ядерного реактора, надзвичайно зручними є опції цієї програми. У коді можна встановити джерело випромінювання з необхідними для дослідження параметрами (сорт частинок, потужність, геометрія, енергетичний спектр, просторовий розподіл). Також у програмі враховуються і похідні процеси – генерація вторинних джерел випромінювання (наприклад, в ядерних реакціях).

Загалом спектр застосування кодів Монте-Карло надзвичайно широкий. Є можливість розв'язку як стаціонарних задач, так і залежних від часу. Вбудований функціонал дозволяє повністю задати та контролювати різноманітні властивості матеріалів мішеней та джерел випромінювання радіації. У коді також враховуються процеси розсіювання та поглинання частинок. Є функціонал для розв'язку задач критичності та поділу атомних ядер нейтронами. Геометричний модуль у коді – надзвичайно потужний і дозволяє скомпонувати модель практично будь-якої складності.

Методи Монте-Карло налаштовуються на будь-яку геометрію, мають перевірені бібліотеки поперечних перерізів та моделюють фізичні процеси, що проходять при взаємодії γ-квантів із речовиною. Проте, так як у коді моделюється історія кожної окремої частки, то методи Монте-Карло є досить повільним для завдань, де переважають процеси розсіювання. Крім того, у таких завданнях необхідне визначення характеристик радіаційних полів (потоки, кутові розподіли, швидкості реакцій і т.д.). Функціонал у частині підрахунку частинок також надзвичайно великий і дозволяє збирати інформацію різними, зручними користувачеві способами: в об'ємі, через поверхню, у детекторі, із заданими множниками чи нормуванням тощо.

У коді MCNPX використовуються бібліотеки ядерних даних ENDF (Evaluated Nuclear Data File) та ACTL (Activation Library). Вибір бібліотеки є надзвичайно важливим для проведення розрахунків. Наприклад, бібліотеку ENDF треба брати версією не нижче ніж ENDF/B-IV.

У цій роботі ядерно-фізичні параметри для більшості нуклідів було взято з бібліотеки ENDF/B-VII-0, однак для ізотопів Hf та деяких нуклідів, що виникають у процесі опромінення, було використано дані з бібліотеки ENDF/B-VIII-0, де авторами було суттєво скориговано поперечні перерізи взаємодії частинок.

2.4.2. Опис детектора і моделі

Як згадувалося вище, предметом вивчення цієї роботи є комптонівський (безінерційний) детектор нейтронів (див. п. 1.2.2) (Рис. 1.7, Рис. 2.7). Модель, що використовується, відповідає макету детектора,

виготовленому в рамках [88]. Емітер виготовлено з ядерно-чистого металевого Hf природного складу (стрижень радіусом. $r_{\rm em.} = 0,075$ см); ізолятор сформовано з MgO (товщина шару $d_{\rm iзол.} = 0,0414$ см, густина – $\rho = 2,21$ г/см³, питомий електричний опір – $R_{\rm пит.} = 2,7\cdot10^5$ Ом·м); колектор є трубкою зі сплаву Inconel-600 з товщиною стінки $d_{\rm кол.} = 0,02$ см. Довжина детектора L = 25 см. Варто зазначити, що ізолятор було сформовано методом рідкофазного осадження. Ізолятор має відносно високу густину, а також гарну величину електричного опору (для готового виробу в нормальних умовах опір знаходиться на рівні $R \sim 10^{11}$ Ом). Діелектричний шар внутрішньозонного детектора найчастіше формують за допомогою засипки дрібнодисперсних порошків Al₂O₃ або MgO із подальшим їх ущільненням. Отримати в такий спосіб показник густини вище 2 г/см³ – надзвичайно складна технологічна задача. Детектор має стандартну для таких пристроїв коаксіальну геометрію, в якій ізолятор заповнює простір між емітером та колектором.

MCNPX Розрахунок y коді проводився моделі, для яка компонувалась відповідно до реальних умов ВВЕР-1000. Ця модель є частиною більш глобальної моделі всієї активної зони, розробленої раніше в ЦПАЗ НТК ЯПЦ³. Характеристики скомпонованої моделі відповідають ТВЗ 1-го блоку Запорізької АЕС (цикл №30; номер часового моменту кампанії – 10; потужність – 100%⁴; ефективна доба кампанії – 160 (10 часовий крок по вигорянню; абсолютний номер ТВЗ – 105; координата – 06-21)). Також для обраної ТВЗ було застосовано дзеркальні граничні умови. Що ж до ядерного палива, то його було задано у вигляді циліндра замість стовпчика таблеток. Гафнієвий детектор нейтронів розміщується в центральному каналі збірки Рис. 2.8, координати за висотою відповідають положенню одного із штатних родієвих детекторів.

³ Центр проектування активних зон, Науково-технічний комплекс «Ядерний паливний цикл».

⁴ Зазначеній частині паливної збірки (висотою 25 см) відповідає потужність 1,8 МВт.

Для розрахунку було взято лише ділянку ТВЗ висотою, що дорівнює довжині детектора, вплив сусідніх збірок при цьому не враховувався. Спрощення такого роду було прийнято через те, що метою було отримати не точні величини, а лише характеристики, які б дозволили порівняти ступінь впливу зовнішніх факторів і роль самого детектора в процесі генерації електричного заряду.



Рис. 2.8. Поперечний переріз тепловидільної збірки

Колектор знаходиться під потенціалом «землі», так що основним джерелом різниці потенціалів у ланцюзі є емітер. Заряд, що виникає в колекторі, важливий, але для правильної роботи детектора, перш за все, потрібно зберігати необхідний напрямок електричного поля між електродами.

З огляду на сказане вище слід визначити, яка величина електричного заряду генерується в емітері. У програмі MCNPX для цього потрібно скористатися лише одним таллі розподілу заряду, але при цьому треба розглянути дві ситуації:

• враховується вплив опромінення нейтронами n i γ-квантами з (n, γ)реакції в детекторі, а також опромінення γ-квантами, що утворились за межами матеріалів детектора (маються на увазі фотони реакторного походження – затримані та миттєві); враховується вплив опромінення нейтронами n та γ-квантами з (n, γ)-реакції лише у самому детекторі.

Такий поділ необхідний для того, щоб з'ясувати, яка частка електричного заряду генерується за рахунок емітера, і яка роль реакторного γ-випромінювання в цьому процесі.

Для прискорення розрахунку, крім згаданих вище, також було прийнято такі спрощення моделі, як:

 взято один детектор замість семи штатних, розміщених по висоті активної зони, і, відповідно, взято лише частину ТВЗ висотою, що відповідає довжині детектора;

• проігноровано реальну геометрію детектора в нижній та верхній частинах – замість кінцевика та області з'єднання з контактним проводом використано площини, що обмежують довжину детектора;

• не враховується чохол, в якому розміщується детектор, враховано лише стінку КНВ.

Однією з основних завдань є дослідження тенденцій у зміні характеристик детектора за рахунок зміни складу матеріалу емітера. Нуклідний склад емітера було взято для проміжку часу 0...5 років, а розраховано його за допомогою розв'язку Бейтмана (див. опис методу в п. 2.2, а результати розрахунку в п. 3.1). Також, беручи до уваги особливості матеріалів ізолятора та колектора (насамперед надзвичайно слабку здатність поглинати нейтрони), зміна складу цих елементів детектора не враховувалася.

Врахування нуклідного складу є важливим з кількох позицій:

• вплив на здатність поглинати нейтрони;

вплив на здатність ослаблення у-квантів;

• зміна кількості γ-квантів, що випромінюються при поглинанні нейтрону.

Все це має пряме відношення до генерації заряду в детекторі та формуванні підсумкового сигналу.

Якщо підсумувати вище сказане, то було скомпоновано модель, у якій зовнішні чинники (температура, величини потоків n i γ) є незмінними, i на процес генерації заряду впливає лише модифікація нуклідного складу емітера. Такий варіант завдання виник через інтерес визначити, яка ж реальна роль емітера у порівнянні з реакторним випромінюванням n i γ.

Висновки до Розділу 2

У Розділі 2 викладено основні критерії, які дозволяють оцінити матеріал з позицій його придатності для використання у якості емітера внутрішньозонного комптонівського нейтронного детектора. Розглянуто співвідношення факторів, які тією чи іншою мірою визначають поведінку детектора. Під «факторами» маються на увазі набори величин потоків та атомних концентрацій елементів, що входять ДО складу емітера нейтронного детектора та ядерного палива. Робиться висновок, що з позиції процесу детектування єдине, чим можна оперувати, не вдаючись до корекцій реакторних характеристик, це вибір матеріалу. Зокрема, маються на увазі такі характеристики, як: заряд атомного ядра; число радіоактивних нуклідів у ланцюжку перетворень; число актів розпаду радіоактивних нуклідів у матеріалі емітера (воно, своєю чергою, залежить від швидкості утворення такого нукліда); радіаційна та корозійна стійкість.

На прикладі Hf детально розглянуто застосування розв'язку Бейтмана для розрахунку зміни нуклідного складу в часі. Показано, як правильно використовувати цей розв'язок у випадку розгалужень ланцюжка перетворень.

Розглянуто процеси поглинання нейтрону та вигоряння матеріалу. Наведено спосіб, що дозволяє окремо розглянути і порівняти процеси поглинання нейтронів в резонансному та тепловому діапазонах енергії. Робиться висновок, що для більшості нуклідів гафнію, як вихідних, так і тих, що утворюються в процесі опромінення нейтронами, найбільш значущим є поглинання у резонансній області.

Розглянуто процеси, які відповідальні за функціонування комптонівського детектора. З точки зору вибору матеріалу емітера, важливим є вихід фотонів з реакції (n, γ). Для ряду матеріалів проведено порівняння числа γ -квантів, що випромінюються після поглинання нейтрона. Виявлено, що у Hf найбільше число фотонів, випромінюваних внаслідок протікання реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтрону, знаходиться в діапазоні 0,5...3,5 MeB, де для цього металу домінує комптонівське розсіювання.

Розглянуто, як ослаблення потоку фотонів призводить до виникнення електричного заряду в детекторі. Робиться висновок, що процеси, що протікають при цьому, не піддаються надійній аналітичній оцінці, і сумарна генерація заряду в детекторі може бути визначена лише з цілим рядом обмежень (усереднення значень енергії і потоків частинок). Саме тому для підрахунку електронів, які народжуються в системі, найвигідніше використовувати комп'ютерний код, що базується на методі Монте-Карло.

Наведено основні особливості прогами MCNPX, які дозволяють реалізувати поставлені в роботі задачі. Однією з незаперечних особливостей є можливість встановити джерела опромінення і детальну геометрію всієї системи.

Описано модель, у якій було проведено розрахунок. Модель детектора відповідає реальному макету, виготовленому в рамках однієї із робіт співавторів. У якості зовнішніх умов обрано частину раніше спроектованої моделі активної зони BBEP-1000. В цій частині враховується лише вплив однієї ТВЗ, висота якої відповідає довжині детектора.

Розділ 3. РОБОЧИЙ РЕСУРС ГАФНІЄВОГО ЕМІТЕРА В УМОВАХ АКТИВНОЇ ЗОНИ РЕАКТОРА ВВЕР-1000

Безпека та економічність експлуатації будь-якого ядерного об'єкта багато в чому визначені фізичними показниками матеріалів, із яких складаються його окремі елементи та частини конструкції. Одним із найважливіших параметрів матеріалу є радіаційний ресурс – здатність матеріалів зберігати свої робочі (експлуатаційні) показники у межах встановлених норм та вимог.

Внутрішньозонний нейтронний ДПЗ складається з певних конструкційних елементів (емітер, колектор, ізолятор, струмопровідні частини і т. д.), кожен з яких має власний ресурс в умовах роботи активної зони ядерного реактора. І, якщо мова йде про радіаційний ресурс детектора, то слід враховувати реакцію кожного окремо взятого конструкційного елемента на вплив радіації (головним чином, мається на увазі вплив потоків нейтронів і γ-квантів), хоча найбільш вагомою є поведінка саме матеріалу емітера.

Окрім реакторних факторів, на сигнал ДПЗ (його рівень, форму, рівень шумів) також впливає вибір матеріалів детектора та його геометрія. Наприклад, змінюючи товщину колектора і варіюючи *Z* матеріалу, або використовуючи певне покриття або оболонку, можна частково екранувати детектор від паразитного (фонового) сигналу від реакторних γ-квантів [90– 92]. У той же час, за допомогою зміни товщини емітера та вибору його нуклідного складу також можна впливати й на підсумковий сигнал.

Вибір матеріалів емітера і колектора також визначається ступенем їхнього впливу на нейтронний потік. Цей вплив має бути мінімальним з двох причин:

1) частка сигналу від (n, γ)-реакції радіаційного поглинання пропорційна потужності реактора (мається на увазі локальна потужність в

області розташування ДПЗ), і важлива з позиції достовірності контролю енерговиділення в активній зоні;

2) мінімальне спотворення нейтронного потоку (наскільки це можливо, бо втрата кожного нейтрону еквівалентна зниженню економічності реактора).

Кажучи про радіаційний ресурс емітера комптонівського детектора нейтронів, мова йде, перш а все, про ефективність в (n, γ)- і (γ , е)-процесах (тобто в процесах радіаційного поглинання нейтронів і послаблення γ випромінювання з подальшим утворенням електронів). Особливості перебігу цих процесів впливають на такі характеристики детектора, як загальний рівень сигналу, висота «шумів», швидкість відгуку зміни величини потоку випромінювання.

Реакції (n, γ) та (γ, е) багато в чому визначаються нуклідним складом мішені. Саме його (склад) слід вивчити в першу чергу при розгляді того чи іншого кандидата на роль матеріалу внутрішнього пристрою.

3.1. Трансформація складу Нf в потоці нейтронів активної зони реактора BBEP-1000

3.1.1. Ланцюг перетворень та зміна складу Нf

Ланцюжки перетворень добре демонструють характер радіаційних змін нуклідного складу вибраного матеріалу. Для тих матеріалів, у яких хоча б частина вихідних ізотопів розташована в безперервній послідовності, зазвичай складається «зручне» положення з точки зору подовження строку служби (за рахунок перетікання і-х нуклідів в (i+1)-ші). Однак одного прямування нуклідів один за одним мало, важливі ще й величини поперечних перерізів нейтронного поглинання окремими ізотопами, а також концентрації N_i цих ізотопів. Ідеальний випадок – це коли N_i розподілені рівномірно, а величини перерізів в (п, γ)-реакції відрізняються несуттєво, і така картина ще й має властивість зберігатися в часі. Крім вище сказаного, важливим фактором також є ще й те, які характеристики властиві трансмутантам, що утворюються в процесі опромінення. З цих міркувань, у металевого Нf досить зручні показники (див. Табл. 2.3), у тому числі і за рахунок накопичення Ta та W [4] (утворення «корисних» трансмутантів важливе з погляду часткової компенсації здатності до поглинання нейтронів).

Ізотопи Hf мають оптимальні величини концентрацій і поперечних перерізів поглинання нейтронів в (n, γ)-реакції. Вони йдуть у послідовності масових чисел A = 176...180 (не враховуючи $^{174}_{72}$ Hf, який мало впливає на загальну динаміку вигоряння Hf природного складу через надто малу початкову концентрацію $\approx 0,16\%$). У результаті і-ті ізотопи «перетікають» в (i+1)-ші доти, доки не досягнуть $^{180}_{72}$ Hf, якому властива мала величина поперечного перерізу радіаційного поглинання нейтронів, що в свою чергу і сповільнює подальше виснаження Hf, як хімічного елементу [4, 47].

За допомогою розв'язку (2.5), а також алгоритму, що описаний в п. 2.2, було розраховано концентрації всіх членів наведеного на Рис. 3.1 ланцюга. У цьому ланцюжку є спрощення – деякі нукліди (переважно, ізомери) сюди не включені, бо мають малі величини коефіцієнтів розгалуження. Наприклад, ізомери ^{178m1,178m2}₇₂Hf можна також виключити із ланцюга – сумарно на ці ізомери може перетворитися лише 0,018% атомів нукліду ¹⁷⁷₇₂Hf.



Рис. 3.1. Ланцюжок нуклідних перетворень у Hf, що опромінюється нейтронами.
Відсоткові значення під ізотопами гафнію – початковий природний склад.
Відсоткові значення біля стрілок – коефіцієнти розгалуження (відповідає долі атомів, які перетворюються у напрямку, що вказує стрілка)

На Рис. 3.2 наведено криві для елементного складу Hf. Результати отримані за допомогою розв'язку Бейтмана [37] (2.5), і добре демонструють, які елементи є найважливішими.



Рис. 3.2. Елементний склад Hf емітера під опроміненням нейтронами

Для розуміння всієї «картини» того, що відбувається, одного елементного складу мало, – також потрібно мати уявлення і про те, які саме нукліди формують той чи інший елемент. Це важливо тому що кожен нуклід має власні ядерно-фізичні характеристики, і може, наприклад, бути радіоактивним або мати специфічні величини поперечних перерізів поглинання нейтронів (див. стовпчик для $T_{1/2}$ в Табл. 2.3 і 3.2).

На Рис. 3.3 наведені стовпчикові діаграми, які демонструють, як з кроком в 1 рік змінюється нуклідний склад гафнію природного складу, що зазнає вплив нейтронного потоку (результати також отримані за допомогою розв'язку (2.5)). «Стрілками» на рисунку показано тенденції до зміни числа атомів (збільшення чи зменшення) у порівняння із попереднім значенням. «Точкою» позначені нукліди, яких не було у складі на попередньому кроці.



Рис. 3.3. Діаграми змін нуклідного складу Нf емітера, що опромінюється нейтронами

На рисунку видно, що найважливішими нуклідами є ^{176,177,178,179,180,181} Hf, ¹⁸¹₇₃Ta та ^{182,183,184}₇₄W – адже тільки їх концентрації подолали означену межу (пунктирна лінія червоного кольору (див. Рис. 3.3)). Положення цієї лінії відповідає величині концентрації, меншій на 3

порядки величини початкового числа атомів в одиничному об'ємі ($\approx 4,4\cdot10^{22}$) металевого Нf природного складу. Звісно, вплив домішок навіть на рівні 10^{-4} – 10^{-6} ат. % може виявитися вагомим для низки властивостей (передусім, мова про фізико-механічні властивості), але для випадку, коли потрібно зрозуміти, як зміна складу відіб'ється на модифікації ядернофізичних властивостей, слід виділити лише основні нукліди, відповідальні за «корисні» події ((п, γ)-реакція та послаблення γ -квантів). У результаті, той факт, що ряд нуклідів не долають бар'єр в 0,1 ат. %, дає змогу вважати мізерно малим їх внесок, наприклад, у зміну здатності поглинати нейтрони, наведеної активності, а також у процеси формування сигналу детектора.



Рис. 3.4. Нуклідний склад Hf емітера, що опромінюється нейтронами: *a* – початкові нукліди; *б* – трансмутанти

На Рис. 3.4 *а* та *б* наведено нуклідні перетворення в динаміці. Вигоряння нукліда $^{177}_{72}$ Hf, що має найбільшу величину резонансного інтегралу $I_{pe3} = 7200$ барн, з високою швидкістю трансформує його в ізотопи $^{178}_{72}$ Hf і $^{179}_{72}$ Hf, концентрації котрих починають різко знижуватися після практично повного вигоряння атомів ізотопу $^{177}_{72}$ Hf : 178-й ізотоп – раніше, 179-й – пізніше. Головним фінальним результатом перетворень усіх нуклідів гафнію є монотонне збільшення концентрації ізотопу $^{180}_{72}$ Hf. Цей нуклід, навіть з урахуванням резонансного поглинання та $k \cdot T$ (див. вираз (2.11) і Табл. 2.3) має досить низьку величину поперечного перерізу поглинання нейтрону $\hat{\sigma}_{n\gamma} = 22$ б для того, щоб конкурувати з кількістю атомів, які щомиті перетворюються на 180-й ізотоп гафнію з попередніх йому членів ланцюжка.

У процесі вигоряння ¹⁸⁰₇₂ Нf утворюється радіоактивний нуклід ¹⁸¹₇₂ Hf ($T_{1/2} = 42,4$ дiб), який служить початком для ділянки ланцюга перетворення з нуклідами Ta, W i Re. Нуклід ¹⁸¹₇₂ Hf також вигоряє в реакції (n, γ), проте його швидкість радіоактивного розпаду більш, ніж у 30 разів більша за швидкість у процесі вигоряння по реакції ¹⁸¹₇₂ Hf (n, γ) ¹⁸²₇₂ Hf (стала розпаду – $\lambda_{\text{розп.}}^{^{181}\text{Hf}} \approx 1,9 \cdot 10^{-7} \text{ c}^{-1}$, тоді, яка швидкість вигоряння має величину – $r_{n\gamma} \approx 5,7 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$)⁵.

Нуклід гафнію з атомною масою 182 — радіоактивний, але величина його періоду напіврозпаду занадто велика ($\approx 9.10^6$ років; $\lambda_{\text{розп.}}^{^{182}\text{Hf}} \approx 2,5.10^{-15}\text{c}^{-1}$), тому відгалуження в сторону $\frac{^{182}}{^{72}}$ Нf не є суттєвим у порівнянні з домінуючим відгалуженням за рахунок β-розпаду $\frac{^{182}}{^{73}}$ Ta.

Новоутворений нуклід ¹⁸²₇₃Ta також трансформується в реакції (n, γ), призводячи до виникнення безлічі важливих нуклідів Ta, W та Re. Вже після 1-го року опромінення, видно, що склад деяких нуклідів досягає кількох відсотків (див. Рис. 3.4), що є надзвичайно важливим з позицій збереження поглинаючих властивостей матеріалу емітера (див. також п. 3.2).

⁵ Для оцінки швидкості вигоряння атомів (див. формулу (2.10)) було використано середню величину нейтронного потоку $\bar{\varPhi}_n = 5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$ (див. ДОДАТОК В).

Результати нуклідного складу гафнію, які було отримано за допомогю розв'язку Бейтмана для проміжку часу 0...5 років в умовах активної зони BBEP-1000, далі буде використано у комп'ютерній моделі MCNPX (див. п. Розділ 4).

3.1.2. Вплив ізомерії на динаміку зміни нуклідного складу Нf

У ланцюжку перетворень (див. Рис. 3.1) присутні різні ядерні ізомери, які від звичайних збуджених станів ядер відрізняються достатньо великим часом існування, а також певними умовами переходу у стан з меншим рівнем енергії (правила заборони по спіну та парності) [38]. Важливо зрозуміти, як подібне явище здатне впливати на властивості Hf.

Загалом, вплив ізомерії варто розглядати з очевидної причини – нуклід, у якого є ізомерний стан по своїй суті є радіоактивним, і, звичайно характеризується певним періодом напіврозпаду. В результаті розпаду ізомерного (метастабільного стану), ядро випромінює фотони. Тобто виходить, що деяку частину γ-квантів буде випущено із певною затримкою у часі, і, відповідно, ці у-кванти почнуть конвертуватись в електрони так само із запізненням у порівнянні з тими фотонами, що було випущено ядрами одразу після поглинання нейтронів (~10⁻¹⁴ с). В результаті, ïх утворення/вигоряння/розпаду наявність ізомерів, швидкість £ передумовами для формування компоненти сигналу із деякою затримкою в часі. Саме з цієї причини і необхідно оцінювати вплив ізомерів на динаміку нуклідних перетворень у ланцюгу матеріалу, що служить у якості емітера комптонівського нейтронного детектора.

Повернемося до спрощеної версії ланцюжка перетворення Hf (див. Рис. 2.1, п. 2.2). Як приклад розглянемо ділянку з $^{176}_{72}$ Hf по $^{180}_{72}$ Hf . У спрощеному вигляді ланцюжок для цього випадку буде виглядати так

$$^{176}_{72}\text{Hf} \rightarrow ^{177}_{72}\text{Hf} \rightarrow ^{178}_{72}\text{Hf} \rightarrow ^{179}_{72}\text{Hf} \rightarrow ^{180}_{72}\text{Hf} \rightarrow .$$
 (3.1)

Якщо включимо метастабільний стан ^{179ml} Hf (бо саме цей нуклід має найбільшу вірогідність утворення, Табл. 3.1 [93]), то ланцюг перетворень зміниться на наступний

$$\overset{^{179\text{ml}}}{\underset{72}{72}}\text{Hf} \rightarrow \overset{^{177}}{\underset{72}{72}}\text{Hf} \rightarrow \overset{^{178}}{\underset{72}{72}}\text{Hf} \rightarrow \overset{^{179}\text{Hf}}{\underset{72}{72}}\text{Hf} \rightarrow \overset{^{180}\text{Hf}}{\underset{72}{72}}\text{Hf} \rightarrow (3.2)$$

і в розрахунках треба буде враховувати компоненту (3.1), а також:

$${}^{176}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{177}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{178}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{179\text{ml}}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{179}_{72}\text{Hf} \rightarrow {}^{180}_{72}\text{Hf} \rightarrow .$$
(3.3)

Таблиця 3.1.	Величини	мікроскопічних	поперечних					
перерізів утворення деяких ізомерів Hf [93]								

Реакція	σ, б	<i>I</i> , б
$^{177}_{72}$ Hf $(n,\gamma)^{178m2}_{72}$ Hf	2,6.10-6	5.10-5
$^{177}_{72}$ Hf $(n,\gamma)^{178m1}_{72}$ Hf	0,96	-
$^{178}_{72}$ Hf $(n,\gamma)^{179m2}_{72}$ Hf	$\leq 2 \cdot 10^{-4}$	\leq 1,3·10 ⁻³
$^{178}_{72}$ Hf $(n,\gamma)^{179m1}_{72}$ Hf	53	-
$^{179}_{72}$ Hf $(n, \gamma)^{180m}_{72}$ Hf	0,45	6,9

Тепер, користуючись описаним в п. 2.2 алгоритмом, можна розрахувати концентрацію будь-якого члена ланцюга. Обчислюючи, наприклад, концентрацію ¹⁷⁹₇₂Hf або ¹⁸⁰₇₂Hf, знадобиться брати до уваги коефіцієнт розгалуження для кожного компонента.

Розрахунок показує, що наявність ізомерного стану ^{179m1}₇₂Hf хоч і ускладнює ланцюжок, але на загальний характер зміни складу впливає незначно. Тим не менш, деякий вплив наявності ізомеру зазнають ізотопи ¹⁷⁸₇₂Hf і ¹⁷⁹₇₂Hf (Рис. 3.5): 178-й починає швидше вигоряти (так як до швидкості *r* зменшення концентрації цього нукліду тепер потрібно додати ще й частку на формування ^{179m1}₇₂Hf); концентрація ж 179-го ізотопу починає швидше накопичуватися. Видно, що протягом розрахункового

часу різниця між кривими становить <1 ат. %; для концентрацій трансмутантів ($^{181}_{72}$ Hf, а також Та і W) ця різниця ще на два порядки нижча.



Рис. 3.5. Залежність концентрації N(t) нуклідів $^{178}_{72}$ Hf і $^{179}_{72}$ Hf від часу з урахуванням впливу $^{179m1}_{72}$ Hf (пунктир)

У разі Hf вплив метастабільного стану на динаміку зміни концентрацій вихідних ізотопів і трансмутантів, що напрацьовуються, є незначним. Але в цілому при подібних оцінках матеріалів завжди слід звертати увагу на те, чи властиво нуклідам, що входять до складу матеріалу, який опромінюється, утворювати ізомери.

3.2. Роль трансмутантів у поглинанні нейтронів гафнієм

Опромінення матеріалів нейтронами змінює їх фізичні та механічні властивості. Ці зміни зумовлюють термін експлуатації залежно від дози опромінення, швидкості її набору та температури. Перелічені чинники зазвичай є визначальними для радіаційного ресурсу матеріалів. Радіаційний ресурс можна охарактеризувати зміною здатності до поглинання нейтронів

$$R(t) = \frac{\Sigma(t)}{\Sigma(0)},$$
(3.4)

де $\Sigma(t)$ – макроскопічний поперечний переріз суміші ізотопів (нуклідів) під час опромінення t, $\Sigma(0)$ – макроскопічний поперечний переріз суміші до початку опромінення опромінення. Макроскопічний переріз Σ [см⁻¹] має сенс числа взаємодій на одиниці довжини шляху нейтрона, тобто це – лінійний коефіцієнт ослаблення в матеріалі, який знаходиться під опроміненням. У випадку, якщо опромінюваний матеріал складається із суміші ядер різного «сорту», то макроскопічний поперечний переріз може бути визначений через наступний вираз

$$\Sigma = \sum_{k} \sigma_{n}^{k} \cdot N_{k}, \qquad (3.5)$$

де σ_n^k – мікроскопічний поперечний переріз взаємодії нейтронів з k-м типом ядер; N_k – число ядер k-го типу в одиниці об'єму. Макроскопічний поперечний переріз – характеристика середовища і залежить від його складу [75, 94]. За своєю суттю макропереріз – це кількісна характеристика ймовірності того, що нейтрон на одиниці довжини своєї траєкторії руху в речовині зазнає взаємодії з атомом k-го сорту. Тобто в результаті величина, що є зворотною до макроперерізу $1/\Sigma$ відповідає середній величині пробігу нейтрону в матеріалі мішені.

Незважаючи на сповільнення процесу виснаження елементного складу, що має місце через доволі низьку величину швидкості вигоряння атомів нукліду $^{180}_{72}$ Hf, ланцюжок перетворень все ж таки подовжується далі. При цьому утворюються нові нукліди, частина з яких є корисною з позицій збереження робочого стану емітера. Знаючи поведінку концентрацій у часі цих трансмутантів (див. Рис. 3.4 *б*), оцінимо, як змінюється в часі здатність Hf до поглинання нейтронів Рис. 3.6.



Рис. 3.6. Зміна здатності Hf до поглинання нейтронів для ряду значень *k*_{рез./тепл.}

На рисунку: криві, позначені стрілками – результат розрахунку, отриманий у цій роботі; інші криві – результати розрахунків із роботи [55], проведених для різних величин жорсткості спектру нейтронів (величини *k*_{рез./тепл.} вказані біля кожної кривої). Добре видно (криві, відповідні *k*_{рез./тепл.} = 0,436), що після першого року опромінення і далі, поглинаюча здатність зменшується повільніше, бо значною мірою починає відновлюватися за рахунок накопичення трансмутантів (розрахунок було проведено для числа частинок, що міститься у одиниці об'єму речовини; також варто відзначити, що ефект самоекранування тут не враховано, тобто розглядається ситуація, коли всі частинки матеріалу, ЩО опромінюється, знаходяться в ідентичних умовах).

3.3. Порівняння матеріалів, що є загальноприйнятими в якості емітера комптонівського детектора

Як згадувалося вище (див. п. 2.3), у якості емітера комптонівського детектора крім Нf використовуються також й інші матеріали, найбільш популярні з яких – Cd, Co, Er и Pt [35, 68, 69, 95]. І треба з'ясувати, як поводять себе представлені метали у порівнянні із гафнієм.

В Табл. 3.2 (див. ДОДАТОК Б) по аналогії з Табл. 2.3 наведено величини поперечних мікроскопічних перерізів $\hat{\sigma}_{n\gamma}$ (див. вираз (2.11)), у яких розділено компоненти перезізу на ту, що відповідає діапазону теплової рівноваги та поглинанню у резонансній області. Саме на базі цих даних були розраховані склади всіх матеріалів (див. далі п. 3.3.2).

3.3.1. Ланцюги перетворень

Кадмій природного складу складається з 8 стабільних ізотопів, і при нейтронному опроміненні в ньому виникають нукліди таких елементів, як Ag, Pd, In i Sn Puc. 3.7.



Рис. 3.7. Спрощена схема перетворень ізотопів Cd, що знаходиться під впливом нейтронного потоку. Нукліди: ■ — стабільний;

радіоактивний;
 первинний (поруч вказано ізотопний склад)

Деякі з продуктів ядерних перетворень є радіоактивними (наприклад, через β⁺- та β⁻розпади, електронне поглинання, внутрішній перехід), і в процесі розпаду випускають заряджені частинки або γ-кванти. Незважаючи на спрощення (нехтування відгалуженнями з коефіцієнтом розгалуження 10⁻³ і менше), у ланцюжку є ряд розгалужень, які роблять розрахунок вкладів і-х нуклідів в (i+1)-ші досить громіздким.



Рис. 3.8. Спрощена схема перетворень ізотопів Ег, що знаходиться під впливом нейтронного потоку. Нукліди: ■ — стабільний;

радіоактивний;
 первинний (поруч вказано ізотопний склад)

Ербій також є одним із загальноприйнятих матеріалів для виготовлення емітерів нейтронних детекторів миттєвої дії [35, 68, 69]. Природний Ег складається з 6 стабільних ізотопів, і під впливом нейтронного потоку в ньому виникають нукліди таких елементів, як Но, Dy, Tm i Yb Puc. 3.8. Деякі з них є радіоактивними та, звісно, змінюють загальну наведену активність детектора.

Платина природного складу складається з 6 стабільних ізотопів, і в процесі опромінення нейтронами в ній з'являються нукліди таких елементів, як Ir, Au, Hg, Tl i Pb Puc. 3.9. Як і у випадках з Hf, Cd та Er, ланцюжок перетворення для Pt має безліч розгалужень, а також деяку кількість радіоактивних нуклідів.





радіоактивний;
 первинний (поруч вказано ізотопний склад)

Кобальт є моноізотопним елементом $\binom{59}{27}$ Co), і у процесі опромінення нейтронами не формує складних ланцюжків перетворень [96]. Радіаційна трансформація складу даного металу полягає у виснаженні вихідного нукліду, утворенні радіоактивного $\binom{60}{27}$ Co та напрацюванні ізотопів Ni.

Як уже згадувалося в п. 3.1.1, важливо, щоб матеріал, обраний на роль емітера нейтронного детектора, мав такі властивості, як:

 розташування вихідних нуклідів у безперервній послідовності атомних мас;

• баланс між швидкостями перетворень та концентраціями як вихідних нуклідів, так і тих, що утворюються в процесі опромінення;

• наявність, якнайменшого числа радіоактивних нуклідів.

У всіх, наведених у цьому пункті металів, як і у Hf, є ділянки з безперервними послідовностями нуклідів (крім моноізотопного Cd). Однак і у всіх є радіоактивні члени ланцюжка, оцінка активності яких наведена далі в п. 3.3.3.
3.3.2. Елементний склад

За допомогою методики, описаної в п. 2.2, для Cd, Co, Er i Pt, що знаходяться під опроміненням у потоці нейронів активної зони BBEP-1000, було розраховано зміни концентрацій для всіх нуклідів ланцюга перетворень. У ланцюзі кожного елемента, крім Co, присутні десятки членів, і їх концентрації постійно змінюються у часі. В рамках даної роботи для зазначених металів через надзвичайну об'ємність отриманих даних наведено лише підсумковий елементний склад Рис. 3.10.

Кадмій має безперервну послідовність нуклідів ^{110,111,112,113,114}₄₈Cd, які представляють основну частину ізотопного складу (\approx 90%, Рис. 3.7). Ізотопи 110, 111 і 112 поступово перетворюються в 113, котрий має найбільший переріз (\approx 3,1·10⁴ б, див. Табл. 3.2, ДОДАТОК В) і швидко вигоряє, перетворюючись в ¹¹⁴₄₈Cd. Нуклід же 114 має вже досить невисоку величину поперечного перерізу радіаційного поглинання нейтрону (11,2 б), що й призводить до послаблення поглинаючої здатності даного металу.

Кобальт, спочатку маючи відносно високу величину поперечного перерізу поглинання нейтронів, перетворюється на Ni з більш ніж на порядок нижчою величиною поперечного перерізу у реакції (n, γ). Також надзвичайно негативним фактором ϵ і те, що в процесі опромінення нейтронами у металі утворюються такі радіоактивні нукліди, як $^{60m}_{27}$ Co ($T_{1/2} = 10,4 \text{ xB}$), $^{60}_{27}$ Co ($T_{1/2} = 5,3 \text{ p}$) і $^{61}_{27}$ Co ($T_{1/2} = 1,6 \text{ г}$) (Табл. 3.2, див. ДОДАТОК). Серед наведених нуклідів найбільш «шкідливим» з точки зору впливу на роботу нейтронного детектора $\epsilon ^{60}_{27}$ Co через його високу інтенсивність, а також суттєву величину періоду напіврозпаду.



Рис. 3.10. Зміни елементного складу емітерів із Cd (*a*), Co (*б*), Er (*в*), Pt (*г*) у процесі опромінення нейтронами

Ербій має найбільшу частку свого ізотопного складу у послідовності нуклідів ^{166,167,168} Ег ($\approx 83\%$). У цих нуклідів спостерігається дисбаланс у величинах нейтронних перерізів – 50, 1882 і 17,8 б, відповідно (Табл. 3.2, див. ДОДАТОК). Це призводить до того, що через якийсь час даний метал складатиметься переважно із 168-го ізотопу, подальше виснаження (вигоряння) якого обмежене низькою величиною поперечного перерізу в реакції (n, γ). Ізотоп 170 має досить високу початкову концентрацію (14,91%), але дуже низьку величину поперечного перерізу (5,5 б) в реакції поглинання нейтронів. У результаті у ербію, як і кадмію, через відсутність балансу між концентраціями нуклідів та його нейтронними перерізами також досить швидко слабшає здатність поглинати теплові нейтрони.

Платина у послідовності ^{194,195,196} Pt має майже 92% свого ізотопного складу. Поперечний переріз радіаційного поглинання нейтрона 3,1 б у нукліда 194, 177 б – у 195 і 2,2 б – у 196. Такий розподіл у парі із близькістю величин атомних концентрацій робить даний метал поглиначем з невисокою швидкістю виснаження поглинаючих властивостей і ставить його, по суті, в один ряд з металевим гафнієм.

Якщо порівнювати перелічені в цьому пункті метали з гафнієм, то, як згадувалося вище (див. 3.1.1), даний метал має безперервну послідовність з 5 нуклідів з хорошим балансом концентрацій і перерізів поглинання нейтронів. Це за замовчуванням, як і у випадку з платиною, гарантує збереження здатності до поглинання нейтронів.

3.3.3. Здатність поглинати нейтрони. Наведена активність

На Рис. 3.11 наведено результати розрахунку поведінки величини макроскопічного поперечного перерізу $\Sigma(t)$ (див. формулу (3.5), п. 3.2) для Cd, Co, Er, Pt i Hf. Добре видно, що Cd i Er мають найгірші показники, і, як згадувалося вище (п. 3.3.2), причиною тому є дисбаланс величин поперечних перерізів поглинання нейтронів та концентрацій нуклідів у ланцюжку перетворень.

Кобальт, платина та гафній демонструють відносно низькі швидкості падіння величини макроскопічного перерізу. В період t = 0...1 років поведінка $\Sigma(t)$ для Hf пояснюється вигорянням ізотопу $^{177}_{72}$ Hf, а у Er i Cd – вигорянням $^{167}_{68}$ Er i $^{113}_{48}$ Cd, відповідно. Однак, на відміну від ербію та кадмію, після ізотопу із достатньо високою величиною швидкості вигоряння атомів у Hf в ланцюжку перетворень є ще кілька нуклідів, концентрації та поперечні перерізи в (n, γ)-реакції яких збалансовані, і надалі дозволяють стабілізувати процес трансформації атомів.



Рис. 3.11. Зміна макроскопічного поперечного перерізу поглинання нейтронів різними металами, розрахована для умов активної зони BBEP-

1000 ($k_{\text{pe3./TeIIJI}} = 0,436$; $T = 600 \text{ K}; \overline{\Phi}_n = 5,291 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$)



Рис. 3.12. Зміна активності одиниці об'єму Cd, Co, Er, Pt та Hf, розрахована для умов активної зони BBEP-1000 ($k_{pe3./тепл} = 0,436$;

$$T = 600 \text{ K}; \bar{\Phi}_{n} = 5,291 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{c}^{-1})$$

При опроміненні нейтронами в матеріалах можуть виникати радіоактивні нукліди, знаючи поведінку їх концентрацій у часі, можна отримати криву для наведеної активності Рис. 3.12. Тут під активністю мається на увазі кількість ядерних перетворень радіоактивного нукліду в одиницю часу. Добре відомо, що для розрахунку активності потрібно знати лише два параметри — швидкість розпаду λ_i та концентрацію радіонукліду N_i [53]:

$$A(t) = \sum_{i} \lambda_{i} \cdot N_{i}(t), [A] = Беккерель (Бк).$$
(3.6)

На рисунку добре видно, що Со має найбільшу активність, яка швидко виходить у насичення і далі практично не змінюється. У кобальту A(t) приблизно в 4 рази вище, ніж у найближчого елемента на графіку (Hf).

Таблиця 3.2. Вартість 100 г чистого металу, USD [97]						
Cd	Er	Co	Hf	Pt		
~ 50	~ 500	~ 20	~ 120	~ 13 000		

Якщо підсумувати наведені в даному пункті результати, то виходить, що за таких критеріїв, як поглинаюча здатність та активність, найбільш підходящими кандидатами на роль матеріалу емітера комптонівського нейтронного детектора є гафній та платина (див. Рис. 3.11 і Рис. 3.12). Однак варто враховувати, що Рt більш ніж у 100 разів дорожча за Hf Табл. 3.2 [97], і цей факт може стати надзвичайно важливим при виробництві детекторів із даних металів. Хоча, звісно, вартість металу не може повністю гарантувати прийнятну вартість технології виробництва кінцевого продукту – це питання для окремого дослідження.

3.4. Профіль вигоряння емітера

Попередні параграфи розділу присвячені цього розрахунку нуклідного аналітичного складу підходу, за допомогою де використовується розв'язок Бейтмана. Такий підхід відображає середні зміни складу та дозволяє досить швидко оцінити поведінку матеріалу в умовах активної зони реактора (при цьому, використовується середня величина потоку нейтронів (див. ДОДАТОК В)). Величина зазначеного середнього потоку $\bar{\Phi}_n$ очевидно є нижчою за величини потоків, які було використано у розрахунках в програмі MCNPX. Це так, бо моделювалась частина реальної паливної збірки ще й в координатах, де величина потоку є найбільшою (по висоті паливної збірки).

В реальних умовах для будь якого об'єкту, що перебуває під дією нейтронів, має місце нерівномірність опромінення у об'ємі через депресію потоку та процеси самоекранування. Сумарно це призводить до нерівномірного вигоряння і, як результат, нерівномірної деградації поглинаючої здатності. Зважаючи на те, що (n, γ)-реакція відіграє надзвичайно важливу роль у роботі комптонівського детектора, то треба також дослідити, як саме буде змінюватись її ефективнсіть із часом в об'ємі емітера. Найзручніше це можна зробити за допомогою опції «burn» програми MCNPX [98].

Для того, щоб розглянути процес вигоряння в емітері, його було розбито на аксіальні шари Рис. 3.13 [7]. З точки зору програми MCNPX, це реалізується як вигоряння матеріалу в окремих комірках.



Рис. 3.13. Схематичне зображення поділу емітера на аксіальні шари

В результаті кожен шар у процесі вигоряння має свій власний нуклідний склад, що дозволяє за допомогою виразу (3.5) оцінити макроскопічний переріз та отримати уявлення про деградацію поглинаючої здатності залежно від глибини розташування шару (по радіусу).

В розрахунках даного розділу було використано модель, описану в п. 2.4.2. Опція «burn» передбачає використання нейтронів, що виникають

внаслідок поділу атомних ядер палива. Профіль вигоряння розраховувався для 4-х послідовних паливних кампаній (кожна з яких триває 289 днів, після чого є ще 76 днів при нульовій потужності до початку наступної кампанії). Було отримано наступні результати.

Завдяки процесу опромінення всі нукліди матеріалу емітера знаходяться в досить широкому діапазоні від 10⁻⁵ до 10² % ат. З точки зору поглинальних властивостей найважливішими є нукліди, частка яких становить не менше кількох відсотків.



Рис. 3.14. Нуклідний склад коаксіальних шарів Hf-емітера (на протязі 4-х паливних кампаній)

Як видно на Рис. 3.14, після 4-х паливних кампаній склад нуклідів $^{179}_{72}$ Нf і $^{180}_{72}$ Нf є домінантним. Така картина має місце для всіх емітерних шарів з невеликим відхиленням через різницю нейтронного потоку, яка, очевидно, залежить від глибини розташування шару. Нукліди, що знаходяться у ланцюгу перетворень до 180 Hf, – поступово виснажуються. Однак видно, що концентрація 179 Hf спочатку підвищується, а потім

спадає. Цей ефект виникає внаслідок послідовних перетворень нуклідівпопередників, таких як $^{177}_{72}$ Hf , $^{178}_{72}$ Hf і $^{179}_{72}$ Hf (також див. п. 3.1).

Маючи найвищу величину перерізу $\sigma_{n\gamma}$ (3392 б), ¹⁷⁷Нf трансформується в ¹⁷⁸₇₂Hf з досить високою швидкістю. Нуклід ¹⁷⁸₇₂Hf має величину $\sigma_{n\gamma}$ приблизно на 40% вище, ніж ¹⁷⁹₇₂Hf (434 і 300 б відповідно), тому відбувається сплеск складу 179-го нукліда. Таким чином, ¹⁷⁷Hf досить швидко зникає, і генерація ¹⁷⁸₇₂Hf припиняється. Потім, як результат, припиняється і утворення ¹⁷⁹₇₂Hf, – він починає виснажуватися без будьякої регенерації. Поперечний переріз $\sigma_{n\gamma}$ ¹⁸⁰₇₂Hf досить низький (22 б), тому наступне перетворення обмежене, і з точки зору хімічного складу Hf залишається основним елементом для матеріалу емітера (також див. п. 3.1).

У процесі опромінення нейтронами ланцюг перетворення Hf значно розширюється (див. Рис. 3.1). Існує багато трансмутантів, частина з яких представляє інтерес з точки зору збереження поглинаючих властивостей через величини їх поперечних перерізів.

На Рис. 3.15 видно, що в шарах 1 і 2 спостерігається найвища концентрація трансмутантів (Lu, Ta, W, Re). Але насправді різниця між шарами незначна (для 4-ї кампанії опромінення близько 9,6% для 5-го шару і близько 10,3% для 1-го). Відбувається це, очевидно, через ефект екранування; більш глибокі шари знаходяться під опроміненням з меншими значеннями потоку нейтронів, ніж зовнішні.



Рис. 3.15. Склад трансмутантів у коаксіальних шарах Hf-емітера (на протязі 4-х паливних кампаній)



Рис. 3.16. Нуклідний склад Та і W в коаксіальних шарах Hf-емітера (на протязі 4-х паливних кампаній)

З усієї сукупності трансмутантів найбільш важливими і, як наслідок, цінними є нукліди Та і W (особливо, $^{181}_{73}$ Ta і $^{183}_{74}$ W). У них близько 11% ат. складу в кінці опромінення (після 4-х паливних кампаній), тоді як решта трансмутантів (Lu, Re, Os) мають у сумі не більше 0,15% ат. Тому на Рис. 3.16 показано лише поведінку ізотопів Та і W.

Тенденції поведінки концентрацій, показані вище на Рис. 3.2–Рис. 3.4 (результати розрахунку складу за допомогою розв'язку Бейтмана), спостерігаються і в даному випадку (Рис. 3.16), не дивлячись на відмінність у величині нейтронного потоку (також для порівняння варто розглянути ще й Рис. 3.17).

Що стосується складу Hf емітера, то можна зробити наступний підсумок:

 Доля ізотопів Та і W постійно зростає, приводячи до значення їх концентрації близько 11% ат. після опромінення протягом 4 паливних кампаній.

• Основними нуклідами серед трансмутантів є $\frac{181,182}{73}$ Та і $\frac{182,183,184}{74}$ W.

• Присутні деякі відхилення в поведінці концентрації в різних шарах через ефекти самоекранування та депресії потоку. Але практично різниця в складі між шарами незначна і не може серйозно вплинути на поведінку матеріалу з точки зору його використання як емітера комптонівського детектора.



Рис. 3.17. Зміни нуклідного складу Hf емітера (на протязі 4-х паливних кампаній): (*a*) – нукліди Hf; (б) – нукліди Ta i W

На Рис. 3.14 і Рис. 3.16 показано зміни нуклідного складу в окремих шарах емітера. На Рис. 3.17 усі ці дані зібрано разом, і можна побачити, як загальний склад матеріалу емітера змінюється з часом. Загалом тут спостерігається подібна до результатів з Рис. 3.4 поведінка концентрацій нуклідів. Серед нуклідів Hf 180-й ізотоп поступово стає найважливішим, а решта вигорає. Серед трансмутантів домінуючими є нукліди ¹⁸¹/₇₃Ta i

Як вже було показано в п. 3.3.3, знаючи нуклідний склад, можна оцінити, як із часом буде змінюватись і поглинаюча здатність Рис. 3.18.



Рис. 3.18. Макроскопічний переріз $\Sigma(t)$ матеріалу емітера на протязі 4-х паливних кампаній залежно від шару

На Рис. 3.18 (*a*) дані впорядковані за шарами емітера, і кожна лінія відповідає конкретній кампанії вигоряння (1–4 з кроком 0,5 паливної кампанії). Тут можна побачити відхилення всередині кожного шару. Очевидно, що найглибший шар (5) залишається з найвищими величинами макроскопічних перерізів, оскільки він екранований попередніми. За перші 2 роки опромінення макроскопічний переріз зменшується приблизно в 7 разів. Усі наступні зміни знаходяться в межах похибки розрахунку, а макроскопічний переріз залишається приблизно на тому ж рівні.

На Рис. 3.18 (б) дані впорядковані відповідно до часу вигоряння, де кожна лінія відповідає певному шару всередині емітера. Кожен матеріал

шару має свій власний $\Sigma(t)$, але, в той же час очевидно, що величини макроперерізів майже не відрізняються одне від одного. Звичайно, така картина має місце через малий розмір опромінюваного випромінювача $(r_{\rm Em} = 0,075 \text{ см})$, де процес самоекранування не може бути настільки відчутним, як для більш масивних об'єктів (наприклад, керуючих стрижнів).

Загалом же, якщо порівнювати отримані в даному пункті результати деградації поглинаючої здатності з тими, що, було отримано в п. п. 3.3.3, то можна побачити наступне.

Не зважаючи на суттєву різницю у величинах нейтронних потоків в одному і в другому випадках, суттєві відмінності у $\Sigma(t)$ спостерігаються у перші 2 роки опромінення. Так, у випадку, де для розрахунку складу було використано розв'язок Бейтмана, деградація у період до 2-х років майже в 2 раза повільніша, ніж, коли в моделі використовується параметри реальної паливної збірки. Після 2-го року опромінення макроскопічний переріз змінюється дуже слабко в обох випадках. Така поведінка виникає головним чином через взаємозв'язок процесів вигоряння наступних нуклідів гафнію: $^{177}_{72}$ Hf, $^{178}_{72}$ Hf та $^{179}_{72}$ Hf (див. Рис. 3.4, Рис. 3.14 та Рис. 3.17).

Висновки до розділу 3

Для гафнію та інших найбільш застосовуваних металів, що використовуються як матеріал емітера комптонівського нейтронного детектора, проведено порівняння таких характеристик, як: нуклідний/елементний склад, здатність поглинати нейтрони, наведена активність.

Складено та проаналізовано ланцюжки перетворень Hf, Cd, Co, Er та Pt. Зроблено висновок про надзвичайну важливість наявності балансу величин поперечних перерізів реакції (n, γ) та концентрацій нуклідів із ланцюга перетворень (і мова йде як про концентрації вихідних нуклідів, так і тих, що утворюються в процесі опромінення нейтронами).

На прикладі металевого гафнію природного складу розглянуто, як поява у ланцюгу ядерних перетворень метастабільних станів (ізомерів) здатна вплинути на загальну динаміку зміни нуклідного складу Hf. Показано, як за допомогою розв'язку Бейтмана проводити оцінку такого впливу. Виявлено, що у разі Hf вплив появи нукліду у метастабільному стані на динаміку зміни концентрацій вихідних ізотопів і трансмутантів, що напрацьовуються, є незначним (на рівні 1 ат.% для вигоряння вихідних нуклідів).

Також показано, що поява і подальше накопичення нуклідів Та і W в процесі опромінення Hf позитивно впливає на зміну його здатності до поглинання нейтронів.

Порівняння здатності поглинати нейтрони та активності Hf, Cd, Co, Er та Pt показало, що найбільш прийнятними кандидатами на роль матеріалу емітера є гафній та платина, проте вартість Pt більш ніж у 100 разів вища вартості Hf, що, звичайно, не може бути проігнорованим з позицій загальної вартості фінального виробу.

За допомогою програми MCNPX розглянуто зміну нуклідного складу Hf емітера при опромінення на протязі 4-х паливних кампаній. Показано, що процеси самоекранування та депресії нейтронного потоку несуттєво впливають на загальні тенденції деградації поглинаючою здатності.

Розділ 4. ЕВОЛЮЦІЯ ЗДАТНОСТІ ГЕНЕРАЦІЇ ЕЛЕКТРИЧНОГО ЗАРЯДУ В КОМПТОНІВСЬКОМУ ДЕТЕКТОРІ НЕЙТРОНІВ

Однією з головних задач цієї роботи є з'ясування того, як буде поводитись процес генерації електричного заряду в детекторі, і який внесок у інтенсивність цього процесу робиться реакторними факторами і самим детектором нейтронів. Реакторні фактори представлені потоками нейтронів та фотонів, і останні складаються з двох компонент – миттєвої та затриманої. Випромінювання миттєвих фотонів пов'язано із процесом поділу атомних ядер палива, отже, пропорційно потужності. З точки зору реєстрації опромінення нейтронний детектор комптонівського типу, не може відрізнити затримане γ-випромінювання від миттєвого. Фотони обох сортів послаблюються у матеріалі мішені через одні й ті самі процеси, і формують електрони, які мають певний вклад у генерацію заряду. Але у випадку послаблення затриманого γ-випромінювання, звісно, знижується достовірність підсумкового сигналу детектора.

На даний момент задачу відділення миттєвого реакторного γвипромінювання від затриманого ще не вирішено, а, кажучи про розділення «факторів», в даній роботі мається на увазі визначення (з'ясування) ролі емітера на тлі того, який сумарний внесок у генерацію електричного заряду робиться за рахунок дії реакторних нейтронів і всіх реакторних фотонів (як миттєвих, так і затриманих). Тобто, це перш за все з'ясування конкретного впливу вибору матеріалу емітера на результуючий відгук детектора, що знаходиться під опроміненням.

Що ж до фотонів, які виникають внаслідок протікання (n, γ)-реакції радіаційного поглинання нейтронів, то для гафнію їх переважну більшість можна вважати миттєвими (проміжок часу, необхідний для розрядки новоутвореного компаунд ядра знаходиться на рівні ~ 10⁻¹⁴ с [53]). Отже, частина сигналу, яка формується за рахунок електронів із процесів (n, γ , е)

в емітері, також є пропорційною потужності (локальній в місці розташування детектора) ядерного реактора.

4.1. Розділення реакторних факторів

Підсумковий сигнал детектора формується головним чином за рахунок відгуку емітера на потоки γ-квантів різного походження (див. Рис. 2.6): реакторні фотони (сумарно і миттєві, і затримані), а також γ-кванти з реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтронів у матеріалі емітера. Щоб зрозуміти рівень впливу цих груп фотонів, розрахунки в коді MCNPX було проведено в декількох різних комбінаціях факторів Табл. 4.1.

Таблиця 4.1. Комбінації факторів, що було використано в розрахунках					
N⁰	Реакторні ү-кванти	Реакторні нейтрони	γ-Кванти з реакції (n, γ) у детекторі		
1	+	+	+		
2	_	+	+		
3	+	_	-		

Комбінація «1» таблиці дає змогу оцінити загальний рівень генерації електричного заряду у випадку, коли враховано всі зазначені фактори (n і γ реакторного походження; фотони з (n, γ)-реакції в самому детекторі).

Комбінація «2» організована таким чином, що γ-випромінювання реакторного походження не враховується у розрахунках. Щоб реалізувати таку компоновку, у комп'ютерній моделі одразу за стінкою нейтронного каналу було задано комірку нульової густини (тобто без визначення матеріалу, т.зв. VOID) і малої товщини. Також для цієї комірки було задано параметр «imp:p 0»⁶. Отже, детектор, поведінка якого

⁶ Команда «imp» (від «importance»; «p» від «photon») зі значенням «0» дає можливість обірвати (припинити) відстеження історії частинок у вибраній комірці.

досліджується у моделі, опинився в умовах, коли на нього не діють фотони, що виникають за межами комірки з «ітр:р 0». Тобто, фотони, народжені з боку ядерного реактора повністю виключаються із всіх розрахунків відгуку детектора на опромінення. Як результат, в даній комбінації факторів було скомпоновано ситуацію, коли детектор зазнає впливу лише від нейтронного опромінення, а електричний заряд генерується лише за рахунок ослаблення фотонів в реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтронів в матеріалі емітера.

Комбінація «3» відповідає умовам, коли враховуються лише фотони, які виникли за межами детектора. Однак, щоб виключити фотони з реакції (n, γ), також слід усунути це й вплив нейтронів. З огляду на особливості коду MCNPX, організувати це аналогічно комбінації «2», тобто, у явному вигляді, не є можливим (через те, що виникає "fatal error"⁷). Тому було прийнято рішення зробити розрахунок у комбінації факторів «1», але з іншим (штучним) матеріалом емітера.

Функціонал коду МСNPX дає змогу не просто задати матеріал, але ще й призначити йому необхідні для розрахунку параметри. Тобто, фактично € можливість скомпонувати матеріал 3 такими характеристиками, які фактично йому не притаманні, але можуть бути застосовані у моделі. В даному випадку потрібно було використовувати «штучний» матеріал з низькою величиною поперечного перерізу (n, γ)реакції радіаційного поглинання нейтрону, але зі схожими на Нf властивостями щодо послаблення потоку фотонів. На роль такого матеріалу добре підійшов Pb, бо його здатність до поглинання нейтронів суттєво слабша, ніж у Hf. Ізотопний склад Рb представлений нуклідами ^{204, 206, 207, 208} Pb, із складом 1,4% (1,282 б), 24,1% (0,061 б), 22,1% (0,612 б) і 52,2% (0,305 б), відповідно (у дужках зазначені величини мікроскопічних

⁷ Є опція для відключення «fatal error», і розрахунок був проведений також і в такому компонуванні. Результати збігаються з тими, що отримані за допомогою «штучного» матеріалу, однак було прийнято рішення використовувати в даній роботі метод, що базується на фізичному підході, а не на «лазівках» програми.

поперечних перерізів реакції (n, γ)). Якщо порівняти макроскопічні перерізи (розрахунок за формулою (3.5)) Нf і Pb, то з'ясується, що

$\Sigma(Pb) \ll \Sigma(Hf),$

де $\Sigma(Pb) \approx 1,08 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ і $\Sigma(Hf) \approx 41,062 \text{ см}^{-1}$. Видно, що у Pb здатність поглинати нейтрони настільки низька в порівнянні з Hf, що можна знехтувати реакцією (n, γ), і вважати мізерно малим число фотонів, що виникають в емітері за рахунок перебігу цього процесу.

Взаємодія фотона з атомом матеріалу багато в чому зумовлена густиною електронної хмари [22, 75]. Для порівняння матеріалів треба, в такому випадку, ввести поправку на різну кількість електронів для Hf i Pb, наприклад, одиниці об'єму. Поправка ця, звичайно, стосується лише густини матеріалу, адже інші параметри є фіксованими. Число електронів у матеріалі пов'язане із зарядом ядра та числом атомів виразом

$$N_{\rm e} = N_{\rm ar.} \cdot Z \,, \tag{4.1}$$

де

$$N_{\rm ar.} = \frac{\rho \cdot N_{\rm A}}{A_{\rm M}},\tag{4.2}$$

де, в свою чергу, ρ – густина матеріалу [г/см³], $A_{\rm M}$ – молярна маса [г/моль], $N_{\rm A} = 6,02214 \cdot 10^{23}$ моль⁻¹ – число Авогадро. Прирівнювання середніх величин густини електронів у Рb та Hf передбачає справедливість виразу

$$\frac{N_{\rm e}^{\rm Hf}}{N_{\rm e}^{\rm Pb}} = 1.$$
 (4.3)

В решті, користуючись (4.1)–(4.3), нову (штучну) густину Рb ρ_{Pb} можна підрахувати наступним чином:

$$\rho_{\rm Pb}^{'} = \frac{A_{\rm M}^{\rm Pb}}{Z_{\rm Pb}} \cdot \frac{\rho_{\rm Hf} \cdot Z_{\rm Hf}}{A_{\rm M}^{\rm Hf}}.$$
(4.4)

Всі члени формули (4.4) відомі, і, як результат, величина нової густини Рb дорівнює $\rho'_{Pb} \approx 13,48 \, \Gamma / \, \text{см}^3$, замість 11,34 г/см³.

Саму штучну величину $\rho'_{\rm Pb}$ було використано у розрахунках, де в якості матеріалу емітера визначався Pb замість Hf, і у такий спосвб було

отримано ідентичність властивостей для послаблення фотонів в комбінації зі здатністю мізерно малої участі у поглинанні нейтронів. У такому разі, потоки реакторних γ-квантів мінімально спотворені випромінюванням, яке генерується в детекторі. З іншого боку, скоригована густина електронів забезпечує ті ж коефіцієнти послаблення γ-квантів у процесах фотоефекту, Комптонівського розсіювання та утворення пар електрон-позитрон, що і у випадку Hf, і дає змогу отримати інтенсивність генерації електричного заряду, яка відповідає цьому металу, і все це для фотонів реакторного походження.

4.2. Потоки нейтронів і фотонів, що опромінюють детектор

Для всіх точок (0–5 років) розв'язання задачі було проведено в наступних умовах: зовнішні параметри (кількість та потужність джерел пта γ-випромінювання, а також температура середовища) є незмінними; враховується лише зміна складу матеріалу емітера, модифікації складів інших матеріалів повністю ігноруються. Тобто розглядається система, в якій реакторні фактори є постійними, і в основі будь-яких змін у поведінці відгуку детектора на опромінення лежить модифікація нуклідного складу матеріалу його емітера. Такі умови були прийняті для того, щоб відокремити й оцінити роль емітера на тлі зазначений вище реакторних факторів.

Метою всіх розрахунків було визначення інтенсивності утворення електричного заряду у детекторі. Проте, як було зазначено вище, в основі генерації сигналу комптонівського детектора нейтронів, лежать процеси послаблення фотонів різного походження та їх конвертація в електрони. Тому надзвичайно важливо мати уявлення про те, які величини потоків γквантів і з якими енергіями передують народженню електронів. Крім того, для тієї частини фотонів, які з'являються у самому детекторі, першопричиною є нейтрони. Отже, треба з'ясувати поведінку таких величин, як:

• потік та енергетичний спектр реакторних нейтронів в області розташування детектора;

• потік та енергетичний спектр реакторних фотонів (миттєвих та затриманих) в області розташування детектора;

• потік та енергетичний спектр фотонів з реакції (n, γ) у матеріалі емітера.

Щодо величин потоків та спектрів нейтронів і фотонів реакторного походження, то, як вже зазначалось, у моделі вони будуть незмінними для всіх точок часу, а ось характеристики з останнього пункту змінюватимуться відповідно до модифікації нуклідного складу.

На Рис. 4.1 показано спектр нейтронів в емітері комптонівського детектора.



Рис. 4.1. Спектр реакторних нейтронів в об'ємі емітера детектора

В даному випадку програмою було розраховано середній потік у зазначеній комірці (це ж саме таллі «F4» використано і для отримання спектрів фотонів та електронів див. далі).

Нехай частинка з вагою W і енергією E має пробіг T в певній комірці об'ємом V. Такий пробіг має вклад W·T/V в сумарний потік (або флюєнс) у комірці. В результаті за допомогою таллі «F4» отримуємо суму таких вкладів для всіх частинок, історії яких відслідковуються програмою. Технічно, якщо $\Phi = \Phi(\vec{r}, E, \Omega)$, то дане таллі буде підраховувати наступне

tally F4 =
$$\frac{1}{V} \int_{V} dV \int_{E} dE \int_{4\pi} \Phi(\vec{r}, E, \Omega) d\Omega.$$
 (4.5)

У даному випадку підраховується число частинок в одиницю часу, тобто в результаті отримується потік розмірності [см⁻²·c⁻¹]. Якщо ж знадобиться підрахувати флюєнс, то треба інтегрувати ще й відносно часу, а у самому коді додати так звану «time card», що відповідає за час опромінення.



Рис. 4.2. Спектр фотонів в об'ємі емітера детектора

На Рис. 4.2 наведено спектр фотонів в об'ємі емітера. Суцільна крива відповідає результату реакторних фотонів, який було отримано відповідно до прийомів, що описані в попередньому пункті (п. 4.1). Інші криві відповідають сумарним потокам фотонів в об'ємі емітера залежно від часу (0, 1, ..., 5 років), тобто, по суті, від складу матеріалу емітера. Добре видно, що і для реакторних γ -квантів, і для сумарного потоку, найбільш інтенсивнім є діапазон енергії фотонів $E_{\gamma} = 0,2...3$ МеВ. У відповідності з Рис. 2.5, в даному діапазоні домінує комптонівське розсіювання γ -квантів. Також видно, що криві для 1...5 років дуже близькі, і з усієї серії виділяється тільки $\Phi_{\gamma}(E_{\gamma})$ для Hf вихідного складу (0 років).

Якщо говорити про порівняння сумарних величин потоків фотонів для різних точок у часі, то зручно подати отримані дані, як показано на Рис. 4.3.



Рис. 4.3. Потоки фотонів через емітер детектора в залежності від строку його служби (0...5 років, кожному з яких відповідає власний нуклідний склад)

- величина потоку γ -квантів $\Phi_{\gamma}^{\text{Hf}}$, що виникають в Hf емітері за рахунок (n, γ)-реакції
- загальний потік γ-квантів Φ_γ^{total} фотони, що виникають в Hf емітері за рахунок (n, γ)-реакції, та фотони реакторного походження (миттєві та затримані)
- величина потоку γ -квантів Φ_{γ}^{Pb} для випадку, коли у якості матеріалу емітера скомпоновано Pb

На рисунку наведено криві для потоку γ-квантів через емітер. Крива червоного кольору відповідає випадку з емітером із Pb, і відображає ситуацію, коли вважається, що є лише γ-кванти реакторного походження. У результаті добре видно, що реакторні фотони мають найбільшу долю в сумарному γ -випромінюванні, яке діє на детектор. Частка фотонів, що формуються у самому детекторі — мала. Загальний потік γ -квантів змінюється слабо, і ця зміна повністю визначена генерацією фотонів у матеріалі емітера (реакторні фактори незмінні для всіх точок). Також треба окремо зазначити, що ефективність емітера, як джерела фотонів поступово зменшується. Так, видно що до початку опромінення частка γ -квантів, що утворюються в об'ємі емітера за рахунок перебігу реакції (n, γ) складає близько 33% від загальної кількості фотонів, що пронизують емітер, тоді, як станом на 5-й рік роботи ця величина становить лише 16%.



Рис. 4.4. Спектр фотонів, що виникають в емітері детектора за рахунок реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтронів

На Рис. 4.4 наведено спектр фотонів, що виникають в емітері за рахунок реакції (n, γ) радіаційного поглинання нейтронів. По суті, даний спектр є арифметичною різницею між сумарним спектром для гафнію та спектром фотонів реакторного походження. Але все ж варто зазначити, що за даних умов (коли зовнішні фактори фіксовані), видно, що загальне число фотонів, які генеруються самим емітером поступово зменшується, і це означає, що із перебігом часу матеріал емітера все гірше відчуває потік нейтронів, і стає більш чутливим до γ-випромінювання.

4.3. Інтенсивність утворення заряду

У цій роботі використовувалася величина R_Q з розмірністю [Кл/с], і за фізичним змістом вона еквівалентна силі електричного струму. З огляду на особливості формування сигналу в комптонівському детекторі (накопичення об'ємного заряду, та «фільтрація» частинок, які не змогли подолати потенційний бар'єр в ізоляторі), тут замість поняття «сила струму» фігурує «інтенсивність генерації електричного заряду» бо досліджується саме здатність до утворення електричного заряду, а не результуючого сигналу детектора, тобто на даному етапі цікавить лише безпосередній відгук матеріалу на опромінення нейтронами та фотонами. Цю величину було підраховано за допомогою таллі розподілу заряду «+F8». По-суті, дана функція підраховує часточки, які перетинають поверхню вказаної комірки. Також є можливість перевірки (контролю) результату за допомогою іншого таллі — «F1» (це таллі разом із опцією «FT1: E ELC» також може підраховувати електричний заряд). В результаті програма оцінює наступний інтеграл:

$$R_{\rm Q} = \int_{S} \vec{J} \cdot d\vec{S} , \qquad (4.6)$$

де \vec{J} – вектор густини електричного струму, $d\vec{S} = dS \cdot \vec{n}$, dS – елементарний площина, через яку проходить заряд, \vec{n} – одиничний вектор нормалі до площини dS.

На Рис. 4.5 наведено результати розрахунку електричного заряду емітера. Кожній точці по осі абсцис відповідає свій власний нуклідний склад (див. Рис. 3.3). На рисунку видно, що для випадку, коли реакторне γ випромінювання не враховано, інтенсивність утворення заряду в рази нижча. Це означає, що загальне утворення заряду проходить головним чином за рахунок реакторних фотонів. Також видно, що інтенсивність генерації заряду постійно змінюється, і якщо говорити про $R_0^{\rm Hf}$, що виникає лише рахунок фотонів з (n, γ)-реакції в емітері, він відповідає поведінці $\Phi_{\gamma}^{\text{Hf}}$ (див. Рис. 4.3), який має місце у цьому випадку.



Рис. 4.5. Інтенсивність генерації електричного заряду залежно від часу

інтенсивність генерації заряду R_Q^{Hf} у випадку, коли враховано лише фотони з (n, γ)-реакції в емітері

інтенсивність генерації заряду R_Q^{total} для випадку, коли враховано
 фотони, що виникають в Hf емітері за рахунок (n, γ)-реакції, та фотони реакторного походження (миттєві та затримані)

інтенсивність генерації заряду R_Q^{Pb} для випадку, коли у якості матеріалу емітера скомпоновано Pb (аналог того, коли враховано лише реакторні фотони)

Якщо ж говорити про енергію електронів, що виникають в емітері, то уявлення про це можна отримати з Рис. 4.6.

Видно, що в загальному потоці електронів, які генеруються в емітері, найбільше всього частинок з діапазону енергії 0,05...2 МеВ. Також видно, що частка електронів, що виникають за рахунок процесу (n, γ , e) у матеріалі емітера, становить ~ 30% від сумарної генерації електронів. На тлі виділяються криві для випадку, коли емітер складається з Hf природного складу. Криві для наступних складів (1–5 років) проходять суттєво нижче, причиною цьому є 177-й ізотоп Hf, який до кінця першого року служби практично вигоряє. Наступний 178-й ізотоп також незабаром вигоряє. Отже, сумарна кількість поглинань нейтронів суттєво знижується, а, отже, зменшується і кількість випромінюваних фотонів, які здатні зазнати ослаблення та призвести до народження електронів.



Рис. 4.6. Спектр електронів.

Цільна лінія – електрони з процесу (n, γ, е) у емітері. Пунктир і точки – електрони, що утворюються за рахунок послаблення реакторних фотонів та процесу (n, γ, е) у емітері

Аналогічно поведінці сумарних потоків фотонів через емітер (див. Рис. 4.3), інтенсивність утворення електричного заряду в емітері так само демонструє тенденції до поступового зменшення свого вкладу в сумарну генерацію (див. Рис. 4.5). Але варто зазначити той факт, що потоки γ -квантів, які утворись в матеріалі емітера за рахунок перебігу реакції (п, γ) послаблюються більш ефективно у порівнянні із послабленням потоків γ , які утворились за межами детектора Рис. 4.7.



Рис. 4.7. Швидкості зміни числа фотонів та інтенсивності утворення електричного заряду

Так, видно, що 33% фотонів дають 53% від загальної генерації заряду до початку опромінення, 21% фотонів – 33% сигналу і т.д. до останньої точки, де 16% фотонів забезпечують близько 26% сумарного заряду.

Добре видно, що, починаючи приблизно з 2-го року опромінення швидкості зміни величини потоку фотонів $\Phi_{\gamma}^{\text{Hf}}$ з реакції (n, γ) в емітері та швидкість зміни інтенсивності утворення електричного заряду R_{Q} майже не змінюються. Головним же висновком, який можна зробити з Рис. 4.7, є той факт, що фотони, які народились внаслідок перебігу (n, γ)-реакції більше ефективно конвертуються в електрони у порівнянні з фотонами, що утворились за межами детектора і послаблюються в ньому.

4.4. Порівняння з іншими дослідженнями

В рамках поточного дослідження вивчався відгук емітера комптонівського нейтронного детектора із гафнію на дію таких факторів

як, потоки нейтронів і фотонів реакторного походження, а також температура середовища. Геометрію детектора в моделі було взято у відповідності з реально існуючим макетом, що було виготовлено в ННЦ ХФТІ.

Серед результатів дисертаційної роботи можна виділити дві групи:

 особливості вигоряння гафнієвого емітера в умовах активної зони BBEP-1000;

• особливості утворення відгуку гафнієвого емітера комптонівського детектора на умови активної зони BBEP-1000.

Стосовно вигоряння гафнію в літературі мова зазвичай йде про експериментальні випробування, або ж про розрахунки для умов конкретного реактора [99, 100]. Порівняння з результатами робіт такого напрямку підтверджує важливість появи трансмутантів (Та і W) та перспективність Hf в умовах, коли спектр нейтронів достатньо жорсткий, і частка надтеплових нейтронів є суттєвою. В даній роботі показано, що наявність метастабільних нуклідів у ланцюгу перетворень не перешкоджає гафнію бути кандидатом матеріалу емітера чудовим роль на комптонівського детектора.

Стосовно ж відгуку на дію зовнішнього опромінення, є роботи, що присвячені вивченню поведінки детектора в реакторних умовах або ж теоретичні роботи, де було розглянуто різні моделі підрахунку сумарного сигналу [35, 39, 40, 42, 41, 50, 59–53, 79, 101].

Головною метою всіх експериментів є вивчення чутливості детектора до потоків нейтронів та фотонів різного сорту. Як і у даній роботі, помічено, що інтенсивність сумарного відгуку детектора головним чином визначається потоками фотонів реакторного походження. Автори цих робіт також зазначають, що використання такого детектора на практиці потребує калібровки під конкретні умови середовища експлуатації. Порівняння з результатами робот, присвячених моделюванню з використанням методу Монте-Карло, показує що зберігаються основні тенденції стосовно поведінки матеріалу (зміна нуклідного складу), а також стосовно загального рівня відгуку детектора на опромінення зі сторони реактора. Крім того, зберігаються висновки, що основним первинним джерелом для утворення електричного заряду в детекторі є фотони реакторного походження.

Загалом сердь робіт присвячених вивченню поведінки детекторів з Нf в реакторних умовах, не знайдено робіт, у яких би було запропоновано використати комптонівський детектор з емітером із металевого гафнію в реакторі BBEP-1000, тому дана робота розширює спектр можливостей застосування Hf в активній зоні реакторів.

Висновки до Розділу 4

Для визначення ролі самого детектора на тлі реакторних факторів (нейтрони та фотони) запропоновано підхід, який дає змогу за допомогою опцій програми MCNPX скомпонувати принципово відмінні один від одного розрахунки. Компонування умов можливе завдяки маніпуляціям з опцією «importance» та можливістю задати штучний матеріал, що має зручні для розрахунку властивості.

У результаті задача вирішувалася у кількох комбінаціях (див. Табл. 4.1), але все було зведено до того, що зовнішні параметри (кількість і потужність джерел n- і γ-випромінювання, і навіть температура середовища) є незмінними, а враховується лише те, як змінюється із часом склад матеріалу емітера, а модифікації складів інших матеріалів при цьому повністю ігноруються. Отже, для детектора з емітером з металевого Hf вдалося з'ясувати поведінку таких характеристик, як:

• потік та енергетичний спектр реакторних нейтронів в емітері;

• потік та енергетичний спектр реакторних фотонів (миттєвих та затриманих) в емітері;

• потік та спектр фотонів з реакції (n, γ) у матеріалі емітера.

Отримані результати дозволяють зробити такі висновки:

 реакторні фотони мають найбільшу долю в сумарному үвипромінюванні, що діє на детектор;

 частка фотонів, що формуються в детекторі суттєво менша порівняно з реакторними потоками γ-квантів, а також вона поступово зменшується в часі;

• потоки фотонів, що утворюються внаслідок перебігу реакції поглинання нейтронів в Hf емітері, більш ефективно конвертуються в електрони у порівнянні із фотонами реакторного походження;

• інтенсивність генерації електричного заряду головним чином визначається фотонами реакторного походження.

ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі запропоновано на додаток до штатних β емісійних нейтронних детекторів з емітером із родію використовувати в активній зоні BBEP-1000 ще й комптонівський детектор нейтронів з емітером із гафнію. З метою визначення, чи даний метал є прийнятним для таких умов експлуатації, запропоновано підхід для оцінки матеріалів на роль емітера емісійного внутрішньозонного детектора нейтронів. Також запропоновано спосіб чисельного поділу факторів, що визначають функціонування такого детектора. У якості «факторів» мається на увазі наступне: потік реакторних нейтронів; потік реакторних фотонів (сумарно і миттєвих, і затриманих); потік фотонів, що виникають в емітері за рахунок протікання (n, γ)-реакції радіаційного поглинання нейтрону.

Основні результати, отримані у дисертаційній роботі, сформульовані у таких положеннях:

1) <u>Розроблено</u> підхід для оцінки придатності матеріалу до роботи в умовах активної зони реактора в ролі емітера емісійного детектора. Цей підхід складається з кількох послідовних оцінок: вивчення ланцюжків перетворення; розрахунок нуклідного складу у часі; розрахунок змін наведеної активності, здатності до поглинання нейтронів та здатності генерувати електричний заряд.

2) <u>Виявлено</u>, що з позиції процесу детектування єдине, чим є можливість оперувати, не вдаючись до корекцій реакторних характеристик, це вибір матеріалу. Зокрема, мається на увазі вибір таких величин як: заряд атомного ядра; число радіоактивних нуклідів у ланцюжку перетворень; число актів розпаду радіоактивних нуклідів у матеріалі емітера (воно в свою чергу залежить від швидкості утворення такого нукліда); радіаційна та корозійна стійкість.

3) Для нуклідів та трансмутантів Hf, а також для інших потенційних кандидатів на роль матеріалу емітера комптонівського детектора, <u>отримано</u> величини мікроскопічних поперечних перерізів радіаційного поглинання нейтронів, в яких враховано вплив таких факторів, як температура середовища та резонансне поглинання. Останнє є надзвичайно важливим для умов активної зони BBEP-1000, де жорсткість нейтронного спектра суттєво вища у порівнянні з іншими легководними реакторами.

4) <u>Проведено</u> порівняння нуклідного/елементного складу, здатності поглинати нейтрони та наведеної активності для Hf, Cd, Co, Er та Pt. Виявлено, що найбільш прийнятними кандидатами на роль матеріалу емітера є гафній та платина, проте вартість Pt більш ніж у 100 разів перевищує вартість Hf, і явно цьому перешкоджає.

5) На основі аналізу ланцюжків перетворень нуклідів та перерізів, що враховують вплив температури середовища (фактор Весткота і $k \cdot T$) та резонансів, <u>виявлено</u> надзвичайну важливість наявності балансу перерізів реакцій (n, γ) та концентрацій нуклідів із ланцюга перетворень.

6) <u>Виявлено</u>, що вплив ізомерів (метастабільних станів), які присутні в ланцюжку перетворення Hf, на динаміку зміни концентрацій вихідних ізотопів і трансмутантів, що напрацьовуються, є незначним. Ізомер, у якого найбільша величина поперечного перерізу утворення, призводить до зсуву кривої зміни концентрації в часі на величину < 1% ат.

7) <u>Показано</u>, що напрацювання нуклідів Та і W у Hf позитивно впливає на зміну здатності поглинати нейтрони, суттєво її уповільнюючи.

8) <u>Запропоновано</u> підхід, що дає змогу за допомогою програми MCNPX оцінити роль матеріалу емітера комптонівського нейтронного детектора на тлі впливу реакторних нейтронів і фотонів (миттєвих та затриманих).

9) <u>Розраховано</u> потоки та енергетичні спектри випромінювань, які повністю визначають функціонування комптонівського детектора

нейтронів (реакторні n та γ ; електрони з процесу (γ , е); фотони та електрони з процесу (n, γ , е) у матеріалі емітера). Виявлено, що: реакторні фотони мають найбільшу частку у сумарному γ -випромінюванні, що діє на детектор; частка фотонів, які утворюються в детекторі суттєво менша порівняно з реакторними потоками γ -квантів, а також поступово зменшується в часі; потоки γ -квантів, що народились внаслідок перебігу реакції (n, γ) більш ефективно конвертується в електрони у порівнянні із реакторними γ -квантами; інтенсивність генерації електричного заряду головним чином визначається фотонами реакторного походження; ефективність Hf емітера у генерації електричного заряду через перебіг

В результаті, всі поставлені задачі було виконано, і мету дисертації досягнуто, а підходи, що пропонуються в дисертаційній роботі, дозволяють швидко оцінювати поведінку матеріалів у полі реакторних нейтронів і фотонів. Спосіб оцінки впливу температурного впливу та резонансного поглинання нейтронів дає змогу визначити, як той чи інший матеріал насправді сприйме середовище, в якому частка надтеплових нейтронів є вагомою. Запропоновані підходи для відокремлення ролі матеріалу емітера від ролі реакторних факторів дозволяють спрогнозувати поведінку характеристик нейтронного комптонівського детектора в часі.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. B.A. Shilyaev, A.L. Ulybkin, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, A.O. Pudov, K.V. Kutny. Compton detector of neutrons for the energy yield control in the active zone of WWER. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2017. Vol. 108, Iss. 2. P. 75–82.

https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2017_2/article_2017_2_75.pdf.

2. B.A. Shilyaev, A.L. Ulybkin, K.V. Kovtun, A.V. Rybka, V.E. Kutny, A.O. Pudov. Hafnium in Nuclear Power Industry: The Evolution of Increasing of the Economic Indicators and the Operation Safety of Pressurized Water Nuclear Reactors. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2018. Vol. 113, Iss. 1. P. 43–50.

https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2018_1/article_2018_1_43.pdf.

3. A.L. Ulybkin, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, V.N. Voyevodin, A.O. Pudov. Compton-emissive hafnium detector of neutrons for in-core monitoring. *Nuclear Physics and Atomic Energy*. 2018. Vol. 19, Iss. 3. P. 237–243. URL: <u>http://jnpae.kinr.kiev.ua/19.3/html/19.3.0237.html</u>. DOI: <u>10.15407/jnpae2018.03.237</u>/.

4. A. Ulybkin, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov,
R. Azhazha. Radiation-induced transformation of Hafnium composition. *Nuclear Engineering and Technology*. 2019. Vol. 51, Iss. 8. P. 1964–1969.
URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573318309690</u>.
DOI: <u>10.1016/j.net.2019.06.007/</u>.

5. A. Ulybkin, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov, R. Azhazha, E. Bogdan, Compton (Prompt-Response) Neutron Detectors: Comparison of Emitter Materials Through the Nuclear Transmutation Model. *Sensors International*. 2020. Vol. 1, 100020, ISSN 2666-3511.

URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2666351120300206</u>. DOI: <u>10.1016/j.sintl.2020.100020</u>/. 6. R. Azhazha, E. Bogdan, V. Gann, K. Kovtun, V. Kutny, O. Pudov, A. Rybka, S. Soldatov, A. Ulybkin. The Compton neutron hafnium detector: Electric charge generation. *Problems of Atomic Science and Technology*. Vol .138, Iss. 2. P. 102–108.

URL: https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2022_2/article_2022_2_10 2.pdf. DOI: 10.46813/2022-138-102/.

7. Vladimir Gann, Pylyp Kuznietsov, Alexander Ulybkin, The burn-up profile of the Compton neutron detector Hf-emitter in the VVER-1000 reactor. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2023. Vol. 148, Iss. 6. P. 116–121. URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2023_6/article_2023_6_11</u> 6.pdf. DOI: <u>10.46813/2023-148-116/.</u>

8. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів миттєвої дії для контролю рівня енерговиділення в активній зоні реактора BBEP-1000. *12-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 16–18 листопада 2016 р.: тези доп. Харків, 2016. С. 16.

9. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів з емітером із металічного гафнію для контролю енерговиділення в активній зоні реактора ВВЕР. *11-а Міжнародна конференція «Ядерна та радіаційна фізика»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Алмати, Республіка Казахстан, 2017. С. 245.

10. Б.А. Шиляєв, О.Л. Улибкін, К.В. Ковтун, О.В. Рибка, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, А.А. Васил'єв. Чистий гафній – матеріал найважливіших елементів конструкцій ядерних реакторів. *4-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Харків. С. 12.

11. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, О.В. Рибка, І.Н. Шляхов, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов. Радіаційні характеристики комптонівського ДПЗ з емітером із гафнію при опроміненні нейтронами та

гама-квантами. 13-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики», 18–20 жовтня 2017 р.: тези доп. Харків, 2017. С. 33–34.

12. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Радіаційні зміни нуклідного складу гафнію. *14-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 14–16 листопада 2018 р.: тези доп. Харків., 2018. С. 12.

13. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Порівняння емітерів комптонівських детекторів нейтронів. *5-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості*, 10–13 вересня 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 97.

14. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Комптонівські детектори нейтронів: порівняння матеріалів емітерів по моделі ядерних перетворень. *15-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 10–13 листопада 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 21.

15. В.В. Ганн, С.А. Солдатов, О.Л. Улибкін, Є.А. Богдан, Р.В. Ажажа, А.О. Пудов, В.М. Воєводін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній. Комптонівський нейтронний детектор з емітером із металічного гафнію. *6-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»*, 13–15 вересня 2021 р.: тези доп. Харків, 2021. С. 38.

16. Р.В. Ажажа, Є.О. Богдан, В.В. Ганн, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, О.В. Рибка, С.А. Солдатов, О.Л. Улибкін. Роль матеріалу емітера для процесу утворення електричного заряду емісійного нейтронного детектора. 29-а щорічна наукова конференція Інституту

ядерних досліджень НАН України, 26–30 вересня 2022 р.: тези доп. Київ, 2022. С. 123–124.

17. Introduction to the Use of the INPRO Methodology in a Nuclear Energy System Assessment. *IAEA Nuclear Energy Series No. NP-T-1.12*. URL: <u>https://www.iaea.org/publications/8591/introduction-to-the-use-of-the-inpro-methodology-in-a-nuclear-energy-system-assessment</u>.

 Nuclear Power and Sustainable Development. IAEA. Vienna. 2016.
 P. URL: <u>https://www.iaea.org/publications/11084/nuclear-power-and-</u> sustainable-development.

19. Stephen M. Goldberg and Robert Rosner. Nuclear Reactors: Generation to Generation. Project: Global Nuclear Future. Jan 2011. URL: <u>https://www.amacad.org/sites/default/files/publication/downloads/nuclear</u> <u>Reactors.pdf</u>.

20. Sang-Seob Lee, Sung-Hwan Kim and Kune-Yull Suh, The design features of the Advanced Power Reactor 1400. *Nuclear Engineering and Technology*. 2009. Vol. 41, Iss. 8. P. 995–1004.

DOI: <u>10.5516/NET.2009.41.8.995</u>.

21. S.N. Pelykh, M.V. Maksimov, V.E. Baskakov, Grounds of VVER-1000 fuel cladding life control. *Annals of Nuclear Energy*. Vol. 58. 2013.
P. 188–197. DOI: <u>10.1016/j.anucene.2013.03.020</u>.

22. Elmer E. Lewis. Fundamentals of Nuclear Reactor Physic. Academic Press. 2008. 293 P. DOI: <u>10.1016/B978-0-12-370631-7.00011-5</u>.

23. Malcolm Joyce. Nuclear Engineering: A Conceptual Introduction to Nuclear Power. Butterworth-Heinemann. 2018. 419 P. DOI: <u>10.1016/B978-0-</u><u>08-100962-8.09995-9</u>.

24. Sabotinov, L., Lutsanych, S., & Kadenko, I. Primary LOCA in VVER-1000 by pressurizer PORV failure: Conference Paper. 2013. P. 44–49. URL: <u>https://www.researchgate.net/publication/305882994_PRIMARY_LOCA_IN_VVER-1000_BY_PRESSURIZER_PORV_FAILURE.</u>
25. Yasuo Koizumi, Masahiro Shoji, Masanori Monde, Yasuyuki Takata, Niro Nagai. Boiling. Elsevier. 2017. 801 P. DOI: <u>10.1016/B978-0-08-101010-5.00004-X</u>.

26. G. Por, O. Glöckler, U. Rindelhardt, Boiling detection in PWRS by noise measurement. *Progress in Nuclear Energy*. 1988. Vol. 21. P. 555–563. DOI: <u>10.1016/0149-1970(88)90076-5</u>.

27. Hiroshi Sekimoto. Nuclear Reactor Theory. Japan, 2007. 115 P. URL: <u>http://www.zc.iir.titech.ac.jp/coe21/eng/events/NuclReactorTheoryTextbo</u>ok.pdf.

28. Енергетика: історія, сучасність і майбутнє. Кн. 4: Розвиток атомної енергетики та об'єднаних енергосистем. 2013 р. ISBN 978-617-635-005-7. URL: <u>http://energetika.in.ua/ua/books</u>.

29. М.О. Азарєнков, Л.А. Булавін, І.І. Залюбовський, В.Г. Киричеко, І.М. Неклюдов, Б.А. Шиляєв. Ядерна енергетика: навчальний посібник для студентів старших курсів, аспірантів та науковців. ХНУ ім. В.Н. Каразіна. 2012. 480 С.

30. О. Бакай, В. Бар'яхтар. Про нагальні проблеми атомної енергетики України. *Світогляд*. 2017. Вип. 4. С. 36–40.

31. Samuel Glasstone, Alexander Sesonske. Nuclear Reactor Engineering: Reactor Systems Engineering. Springer New York, NY. Springer Science+Business Media Dordrecht. 1994. 381 P. DOI: <u>10.1007/978-1-4615-</u> <u>2083-2</u>.

32. S.I. Azarov, A.V. Taranovski. Use of Detectors for Reactor In-Core Monitoring. *International Nuclear Safety Journal*. 2014. Vol. 3. Iss. 2. P. 12-20. URL: <u>https://nuclearsafety.info/international-nuclear-safety-</u> journal/index.php/INSJ/article/viewFile/27/pdf.

33. S.I. Azarov, V.M. Evlanov, A.V. Taranovskyi. Development of inpile Power Monitoring System Based on the Calorimetric Gamma-Detector. Ядерна та радіаційна безпека. 2014. Вип. 3. С. 36-42. URL: <u>https://nuclear-</u> journal.com/index.php/journal/article/view/408/327. DOI: 10.32918/nrs.2014.3(63).08

34. Salwa H. Abdel-Latif, Samaa A. Wasfy, Ahmed M. Refaey, A study of VVER-1000 fuel rod integrity during LOFA. *Progress in Nuclear Energy*. 2023. Vol. 159, 104650. DOI: <u>10.1016/j.pnucene.2023.104650</u>.

35. W.H. Todt, Sr. Characteristics of self-powered neutron detectors used in power reactors. *Proceeding of specialists' meeting «In-core instrumentation and core assessments»*, Mito-spi, Japan, 14–16 Oct. 1996. Publisher: Paris: Nuclear Energy Agency: Organization for Economic Co-operation and Development. 1997. P. 181–190.

36. R.A. Forest, J-Ch Sablet, The European activation file: EAF-99 decay data library. UKAEA FUS 409. Oxfordshire. 1998. 38 P. URL: <u>https://scientific-publications.ukaea.uk/wp-content/uploads/UKAEA-FUS-409-1.pdf</u>.

37. H. Bateman. The solution of a system of differential equations occurring in theory of radio-active transformations. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, Mathematical and physical sciences.* 1910. Vol. 5. P. 423–427.

URL: <u>https://ia802809.us.archive.org/18/items/cbarchive_122715_solutionofasy</u> stemofdifferentia1843/solutionofasystemofdifferentia1843.pdf.

38. K. Siegbahn, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy. Publisher: North-Holland Publishing Company. Amsterdam. 1st edition. 1955. 959 P. URL: <u>https://archive.org/details/betagammarayspec00sieguoft/betagammarayspe</u> <u>c00sieguoft/page/n7/mode/2up</u>.

39. Hyunsuk Lee et al, New calculational model for self-powered neutron detector based on Monte Carlo simulation. *Journal of Nuclear science and Technology*. 2015. Vol. 52, Iss. 5. P. 660–669.

DOI: <u>10.1080/00223131.2014.975766</u>.

40. Qingmin Zhang et al, A Simple Iterative Method for Compensating the Response Delay of a Self-Powered Neutron Detector. *Nuclear Science and*

Engineering. 2017. Vol. 186, Iss. 3. P. 293–302.

DOI: <u>10.1080/00295639.2016.1273619.</u>

41. Ю.І. Володько, Ю.В. Гарусов, О.К. Єгоров та ін. Випробування комптонівських детекторів нейтронів з емітером, що містить гафній в реакторах РВПК. *Атомна енергія*. 1987. Том. 62, Вип. 6. С. 407–409.

42. J. Hilborn. Self-Powered Neutron Detectors for Reactor Flux Monitoring. *Nucleonics*. 1964. Vol. 22, Iss. 2, P. 69–74.

43. Roland Tricot, The metallurgy and functional properties of hafnium. Journal of Nuclear Materials. 1992. Vol. 189, Iss. 3. P. 277–288.

DOI: <u>10.1016/0022-3115(92)90382-U</u>.

44. M.M. Pylypenko, A.O. Drobyshevska, Yu.S. Stadnik, Yu.O. Stupak, Pure Hafnium For Nuclear Power. ISSN 1562-6016. *Problems of Atomic Science and Technololgy*. 2020. Vol. 125, Iss. 1. P. 3–7.

URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2020_1/article_2020_1_3.</u> pdf.

45. J. Giacobbe, D.N. Dunning. New Developments in the Fabrication of Hafnium Control Rods. *Nuclear Science and Engineering*. 1958. Vol. 4. P. 467–480. DOI: <u>10.13182/NSE58-A25543</u>.

46. G.W. Cunningham, A.K. Foulds, D.L. Keller, W.E. Ray. Development of a Composite Control Rod. *Nuclear Science and Engineering*. 1958. Vol. 4. P. 449–457. DOI: <u>10.13182/NSE58-A25541</u>.

47. D. Gosset. Absorber Materials for Generation IV Reactors. Woodhead Publishing Series in Energy: Number 106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors. (Edited by: P. Yvon). Elsevier Ltd. 2017. P. 533–567. DOI: <u>10.1016/B978-0-08-100906-2.00015-X</u>.

48. Реактори і парогенератори енергоблоків АЕС: схеми, процеси, Р31 матеріали, конструкції, моделі. О. В. Єфімов, М. М. Пилипенко, Т. В. Потаніна та ін.; за ред. О.В. Єфімова. Харків : ТОВ «В справі», 2017. 420 С. URL: <u>https://core.ac.uk/download/pdf/161787044.pdf</u>. 49. In Operation & Suspended Operation Reactors. International Atomic Energy Agency (IAEA).

URL: <u>https://www.iaea.org/PRIS/WorldStatistics/OperationalReactorsByType.a</u> <u>spx</u>.

50. V. Verma, L. Barbot, P. Filliatre, C. Hellesen, C. Jammes, S. Jacobsson Svärd, Self-powered neutron detectors as in-core detectors for Sodium-cooled Fast Reactors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2017. Vol. 860. P. 6-12. DOI: <u>10.1016/j.nima.2017.04.011</u>.

51. Detectory. SBORNÍK PŘEDNÁŠEK ZE SEMINÁŘE. Plzeň, 11– 12 Května 1999. C20129219: Procedings of seminar lectures. 1999. 76 P. URL: <u>https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/32/002/32002</u> 550.pdf.

52. О.С. Герасимов, Т.С. Зарицька, О.П. Рудик. Довідник з утворення нуклідів у ядерних реакторах. М.: «Енергоатовидат». 1989. 575 С.

53. Knoll, Glenn F, Radiation Detection and Measurement, Sec. ed., Inc. New York: John Wiley & Sons. 1989. 754 P.

54. І.Н. Аборіна, Фізичні дослідження реакторів ВВЕР. М.: Атомвидат. 1978. 120 С.

55. А.Д. Галанін. Введення в теорію ядерних реакторів на теплових нейтронах. М.: «Енергоатомвидат». 1984. 416 С.

56. В.І. Владіміров. Практичні завдання з експлуатації ядерних реакторів. М.: «Енергоатомвидат». 1986. 311 С.

57. IAEA, Nuclear Data Section. URL: <u>https://www-</u>nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html

58. Б.А. Шиляєв, О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, В.Є. Кутній, К.В. Ковтун, Основи розробки нового комптонівського детектора нейтронів прямого заряду для активної зони ядерного реактора ВВЕР-1000. Препринт ННЦ ХФТІ. ХФТІ 2017-2. Харків. ННЦ ХФТІ. 2017. 46 С.

59. H. Böck, In-Core Neutron-Detector Behaviour During Reactor Transient Operation. *Nuclear Instruments and Methods*. 1975. Vol. 125, Iss. 2, P. 327–329. DOI: 10.1016/0029-554X(75)90290-6.

60. H. Böck, Zeilinger, A, Radiographic examination of irradiated in-core neutron detectors. *Nuclear Instruments and Methods*. 1975. Vol. 129, Iss. 1. P. 147–154. DOI: 10.1016/0029-554X(75)90124-X.

61. P. Gebureck, W. Jaschik, W. Seifritz, D. Stegemann, Development and in-core application of self-powered neutron detectors. (Chapter in Nuclear power plant control and instrumentation: Proceedings of a symposium, 20–26 January, 1973, Prague, 901 P. Printed in Austria by IAEA). 1973. P. 783–801. URL: <u>https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/05/102/51021</u> <u>42.pdf</u>.

62. P. Gebureck, W Jaschik, D. Stegemann, W. Seifritz, Development of promptly indicating neutron flux detectors according to the electron current principle. Deutsches Atomforume: Reactor meeting, April 10–13, 1973 Karlsruhe. 1973. Vol. 4, Iss. 11. P. 451–454.

63. P. Gebureck. Investigation of special neutron flux detectors and their application in BWR reactors. 20 July, 1979. 119 P. Available from Fach informations zentrum Energie, Physik, Mathematik, Karlsruhe, Germany, F.R; Diss. (D.Eng.). RN: 12614123.

64. H. D. Warren. Radiation Detector Solid State. Radiation Detection Using an Insulator Between the Emitter and Collector. U. S. Pat. 3,603,793. 7 Sept 1971. NSA-25:57755.

URL: <u>https://patentimages.storage.googleapis.com/71/31/8d/c9df7f70ea849f/US</u> 3603793.pdf.

65. H. D. Warren. Radiation detector with an emitter. 9 Dec 1976; 5 p; DE PATENT DOCUMENT 2047593/B/; Available from Dt. Patentamt, Muenchen (FRG). 2 figs.

URL: <u>https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/08/338/83383</u> 89.pdf 66. C.H. Westcott, W.H. Walker, T.K. Alexander, Effective Cross Sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors. *Conference 2. United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (Switzerland): Technical Report. 1958.* 18 P.

URL: <u>https://www.osti.gov/servlets/purl/4279663</u>.

67. Norman E. Holden, Temperature Dependence of the Westcott g-factor for Neutron Reactions in Activation Analysis. *Pure and Applied Chemistry*. 1999. Vol. 71, Iss. 12. P. 2309–2315. DOI: <u>10.1351/pac199971122309</u>.

68. T.C. Ware. Measurement and Analysis of the resolved Resonance cross Section of Natural Hafnium Isotopes. PhD Thesis, School of Physics and Astronomy College of Engineering and Physical Sciences. The University of Birmingham, June, 2010.

URL: https://etheses.bham.ac.uk//id/eprint/807/1/Ware10PhD.pdf.

69. H. Böck, Miniature detectors for reactor in-core neutron flux monitoring. *Atomic energy review*. 1976. Vol. 14. P. 87–132.

URL: <u>https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/53/072/53072</u> 397.pdf?r=1.

70. H. Böck, M. Villa, Practical course on reactor instrumentation. AIAU 24316. 67 P. URL: <u>https://www.osti.gov/etdeweb/servlets/purl/20998824</u>.

71. Ядерні дані: Збірник результатів вимірювань гаммавипромінювання, що виникає під час захоплення теплових нейтронів. Ч. III: От Z = 68 до Z = 94 (от Er до Pu). М.: «Атомвидат». 1970. 431 С.

72. Orphan, V. J. Rasmussen, N. C. Harper, T. L., Line and Continuum Gamma-Ray Yields from Thermal-Neutron Capture in 75 Elements. Final rept. AD0717639. 1970. 687 P. URL: <u>https://apps.dtic.mil/sti/pdfs/AD0717639.pdf</u>.

73. Nuclear Data Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA). URL: <u>https://wwwndc.jaea.go.jp/NuC/index.html</u>.

74. H. van Dam, T. van der Hagen, J. Hoogenboom, Nuclear Reactor Physics. Delft University of Technology. *Physics of Nuclear Reactors. Lecture notes AP3341*. 2005. 132 P. <u>FILE</u>. 75. D. Reilly, N. Ensslin, H. Smith Jr, S. Kreiner. Passive nondestructive assay of nuclear materials. United States: N. p., 1991. Web. NUREG/CR-5550. LA-UR-90-732 ON: TI91016546. ISBN: 0-16-032724-5. 723 P.

URL: https://www.nrc.gov/docs/ML0914/ML091470585.pdf.

76. National Institute of Standard and Technology, Physical Measurements Laboratory, XCOM Photon Cross-Sections Database. URL: <u>https://www.nist.gov/pml/xcom-photon-cross-sections-database</u>.

77. Fundamental Physical Constants. National Institute of Standards and Technologies. URL: <u>https://physics.nist.gov/cuu/Constants/Table/allascii.txt</u>.

78. Wanno Lee et al., A study on the sensitivity of self-powered neutron detector (SPND). 1999 Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (Cat. No.99CH37019): Conference Record, Seattle, WA, USA, 1999, P. 772–77. DOI: <u>10.1109/NSSMIC.1999.845782</u>.

79. Warren, H. D., Calculational Model for Self-Powered Neutron Detector. *Nuclear Science and Engineering*. 1972. Vol. 48, Iss. 3. P. 331–342. DOI: <u>10.13182/NSE72-A22491</u>.

80. M. L. Williams et al., Deterministic photon transport calculations in general geometry for external beam radiation therapy. *Medical Physics*. 2003. Vol. 30, Iss. 12. P. 3183–3195.DOI: <u>10.1118/1.1621135</u>

81. Eckhardt R., Stan Ulam, John von Neumann, and the Monte Carlo Method. *Los Alamos science*. 1987. Iss. 15. P. 131–143.

URL: http://library.sciencemadness.org/lanl1_a/lib-www/pubs/00326867.pdf.

82. Hubbell J. H. Review and history of photon cross section calculations.
J. H. Hubbell. *Physics in Medicine & Biology*. 2006. Vol. 51. P. R245–R262.
URL: https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0031-9155/51/13/R15.

83. For the U.S. Department of Energy. Monte Carlo N-Particle Transport Code for Multiparticle and High Energy Applications, Version 2.4.0. Los Alamos National Laboratory, Los Alamos report LA-CP-02-408. 2002. URL: <u>https://archive.org/details/manualzilla-id-5644120</u>. 84. MCNP – A general Monte Carlo n-particle transport code. Briesmeister J. F. (editor). Los Alamos National Laboratory. 2003. – LA-UR-03-1987, Version 5.

URL: https://mcnpx.lanl.gov/pdf_files/TechReport_2003_LANL_LA-UR-03-1987Revised212008_SweezyBoothEtAl.pdf.

85. Kawrakow, Iwan, Ernesto Mainegra-Hing and David W. O. Rogers, EGSnrcMP: the multi-platform environment for EGSnrc. Technical Report PIRS–877, National Research Council of Canada, Ottawa, Canada. 2006. URL: https://www.researchgate.net/profile/Ernesto-Mainegra-

Hing/publication/44080505_EGSnrcMP_the_multi-

platform_environment_for_EGSnrc/links/557f42be08aec87640ddf81a/EGSnrc MP-the-multi-platform-environment-for-EGSnrc.pdf.

86. S. Agostinelli et al. Geant4 – a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2003. Vol. 506. P. 250– 303. DOI: 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.

87. J. A. Halbleib et al. ITS: the integrated TIGER series of electron/photon transport codes – Version 3.0. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 1992. Vol. 39, Iss. 4. P. 1025–1030. DOI: <u>10.1109/23.159753</u>.

88. E.A. Bohdan, et al., Mineral Insulators for Compton Detectors of Neutrons With a Metal Hafnium Emitter. *Problems of Atomic Science and Technologies*. 2020. Vol. 125, Iss. 1. P. 211-214.

URL: https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2020_1/article_2020_1_21 1.pdf.

89. E. Rutherford, Radio-activity, *University Press*. 1905. p. 331. https://archive.org/details/radioactivity00ruthrich/page/304.

90. Johansson, L O. Self-powered neutron detector. United States: N. p. US 4123658. 1978.

https://patentimages.storage.googleapis.com/04/31/22/a52770e3932c99/US4123 658.pdf. 91. Allan C J, Cuttler J M, Lynch G F, and Shields R B. Self-powered neutron and gamma-ray flux detector. United States Patent: US 4284893. Aug. 18. 1981. URL: <u>https://patents.justia.com/patent/4284893</u>.

92. Colin J. Allan (Deep River), Method of manufacturing a length of mineral insulated cable having predetermined .gamma.-ray sensitivity in a high radiation environment. United States Patent: US 4569705. Feb. 11. 1986. URL: <u>https://patents.justia.com/patent/4569705.</u>

93. S.F. Mughabghab, Neutron resonance parameters and thermal cross sections, part b, Z = 61-100, In: Neutron Cross Sections, vol. 1, Academic Press, 1984. ISBN: 9780323142359.

94. Nuclear physics and reactor theory. Volume 1 of 2. DOE fundamentals handbook. Dept. of Energy, Wash., D.C. DOE-HDBK-1019-1-93. 1993. P. 133.

URL: <u>https://sites.ntc.doe.gov/partners/tr/Training%20Textbooks/10-</u> Nuclear%20Physics-Reactor%20Theory/0-

Intro%20to%20Nuclear%20Physics%20and%20Reactor%20Theory.pdf.

95. H. Böck, J. Rantanen, Temperature and radiation tests with Pt- and Rh-self-powered neutron detectors. *Nuclear Instruments and Methods*. 1979. Vol. 164, Iss. 1. P. 205–207. DOI: <u>10.1016/0029-554X(79)90455-5</u>.

96. W. Jaschik & W. Seifritz, Model for Calculating Prompt-Response Self-Powered Neutron Detectors. *Nuclear Science and Engineering*. 1974. Vol. 53, Iss. 1. P. 61–78. DOI: <u>10.13182/NSE74-A23330</u>.

97. Periodic Table of Elements and Chemistry. URL: <u>https://www.chemicool.com/elements/.</u>

98. Mckinney, Gregg. MCNPX User's Manual, Version 2.6.0. 2008. URL: <u>https://www.researchgate.net/publication/263009058_MCNPX_User's_M</u> <u>anual_Version_260</u>.

99. V. Remeikis, A. Jurkevicius, Evolution of the neutron sensor characteristics in the RBMK-1500 reactor neutron flux. *Nuclear Engineering*

and Design. 2004. Vol. 231. P. 271–282.

DOI: <u>10.1016/j.nucengdes.2004.03.011</u>.

100. G. J. Salvaggio, Hafnium Control Rod Behavior in the Shipping portPressurized Water Reactor. *Nuclear Applications*. 1968. Vol. 5. P. 26.DOI: <u>10.13182/NT68-A27982</u>.

101. G.R. Imel, P.R. Hart, The performance of hafnium and gadolinium self powered neutron detectors in the TREAT reactor. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 111, Iss. 3–4. 1996. P. 325–336. DOI: <u>10.1016/0168-583X(95)01364-4</u>.

ДОДАТОК А

СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Наукові роботи, в яких опубліковано основні результати дисертації:

1. B.A. Shilyaev, **A.L. Ulybkin**, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, A.O. Pudov, K.V. Kutny. Compton detector of neutrons for the energy yield control in the active zone of WWER. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2017. Vol. 108, Iss. 2. P. 75–82.

URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2017_2/article_2017_2_75</u> .pdf/.

2. B.A. Shilyaev, **A.L. Ulybkin**, K.V. Kovtun, A.V. Rybka, V.E. Kutny, A.O. Pudov. Hafnium in Nuclear Power Industry: The Evolution of Increasing of the Economic Indicators and the Operation Safety of Pressurized Water Nuclear Reactors. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2018. Vol. 113, Iss. 1. P. 43–50.

URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2018_1/article_2018_1_43</u> .pdf/.

3. A.L. Ulybkin, A.V. Rybka, K.V. Kovtun, V.E. Kutny, V.N. Voyevodin, A.O. Pudov. Compton-emissive hafnium detector of neutrons for in-core monitoring. *Nuclear Physics and Atomic Energy*. 2018. Vol. 19, Iss. 3. P. 237–243. URL: <u>http://jnpae.kinr.kiev.ua/19.3/html/19.3.0237.html</u>. DOI: <u>10.15407/jnpae2018.03.237/</u>.

4. A. Ulybkin, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov,
R. Azhazha. Radiation-induced transformation of Hafnium composition. *Nuclear Engineering and Technology*. 2019. Vol. 51, Iss. 8. P. 1964–1969.

URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573318309690</u>. DOI: <u>10.1016/j.net.2019.06.007/</u>.

5. A. Ulybkin, A. Rybka, K. Kovtun, V. Kutny, V. Voyevodin, A. Pudov,R. Azhazha, E. Bogdan, Compton (Prompt-Response) Neutron Detectors:

Comparison of Emitter Materials Through the Nuclear Transmutation Model. *Sensors International*. 2020. Vol. 1, 100020, ISSN 2666-3511.

URL: <u>https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2666351120300206</u>. DOI: <u>10.1016/j.sintl.2020.100020</u>/.

6. R. Azhazha, E. Bogdan, V. Gann, K. Kovtun, V. Kutny, O. Pudov, A. Rybka, S. Soldatov, **A. Ulybkin**. The Compton neutron hafnium detector: Electric charge generation. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2022. Vol .138, Iss. 2. P. 102–108.

URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2022_2/article_2022_2_10</u> 2.pdf. DOI: <u>10.46813/2022-138-102</u>/.

7. Vladimir Gann, Pylyp Kuznietsov, **Alexander Ulybkin**, The burn-up profile of the Compton neutron detector Hf-emitter in the WWER-1000 reactor. *Problems of Atomic Science and Technology*. 2023. Vol. 148, Iss. 6. P. 116–121. URL: <u>https://vant.kipt.kharkov.ua/ARTICLE/VANT_2023_6/article_2023_6_11</u> <u>6.pdf</u>. DOI: <u>10.46813/2023-148-116/.</u>

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації:

1. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів миттєвої дії для контролю рівня енерговиділення в активній зоні реактора ВВЕР-1000. *12-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 16–18 листопада 2016 р.: тези доп. Харків, 2016. С. 16.

2. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.В. Рибка. Комптонівський детектор нейтронів з емітером із металічного гафнію для контролю енерговиділення в активній зоні реактора ВВЕР. *11-а Міжнародна конференція «Ядерна та радіаційна фізика»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Алмати, Республіка Казахстан, 2017. С. 245. 3. Б.А. Шиляєв, **О.Л. Улибкін**, К.В. Ковтун, О.В. Рибка, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, А.А. Васил'єв. Чистий гафній – матеріал найважливіших елементів конструкцій ядерних реакторів. *4-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»*, 12–15 вересня 2017 р.: тези доп. Харків. С. 12.

4. О.Л. Улибкін, Б.А. Шиляєв, О.В. Рибка, І.Н. Шляхов, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов. Радіаційні характеристики комптонівського ДПЗ з емітером із гафнію при опроміненні нейтронами та гама-квантами. *13-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 18–20 жовтня 2017 р.: тези доп. Харків, 2017. С. 33–34.

5. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Радіаційні зміни нуклідного складу гафнію. *14-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 14–16 листопада 2018 р.: тези доп. Харків., 2018. С. 12.

6. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Порівняння емітерів комптонівських детекторів нейтронів. *5-а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості»,* 10–13 вересня 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 97.

7. О.Л. Улибкін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, В.М. Воєводін, О.О. Пудов, Р.В. Ажажа. Комптонівські детектори нейтронів: порівняння матеріалів емітерів по моделі ядерних перетворень. *15-а Міжнародна науково-технічна конференція молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, 10–13 листопада 2019 р.: тези доп. Харків, 2019. С. 21.

8. В.В. Ганн, С.А. Солдатов, **О.Л. Улибкін**, Є.А. Богдан, Р.В. Ажажа, А.О. Пудов, В.М. Воєводін, О.В. Рибка, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній. Комптонівський нейтронний детектор з емітером із металічного гафнію. *6*- а Міжнародна конференція «Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості», 13-15 вересня 2021 р.: тези доп. Харків, 2021. С. 38.

9. Р.В. Ажажа, Є.О. Богдан, В.В. Ганн, К.В. Ковтун, В.Є. Кутній, О.О. Пудов, О.В. Рибка, С.А. Солдатов, **О.Л. Улибкін**. Роль матеріалу емітера для процесу утворення електричного заряду емісійного нейтронного детектора. 29-а щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України, 26–30 вересня 2022 р.: тези доп. Київ, 2022. С. 123-124.

ДОДАТОК Б

МІКРОПЕРЕРІЗИ

Таблиця 3.2. Мікроперерізи радіаційного поглинання теплових і резонансних нейтронів, а також періоди напіврозпаду $T_{1/2}$ радіоактивних нуклідів із ланцюгів перетворення Hf, Pt, Er, Cd та Co із урахування резонансного інтегралу I_{pe3} ,

Hf-емітер			Pt-емітер			Er-емітер			Cd-емітер			Со-емітер		
Α	$\hat{\sigma}_{\scriptscriptstyle\! m n v}$	$T_{1/2}$	Α	$\hat{\sigma}_{\scriptscriptstyle\! m nv}$	$T_{1/2}$	Α	$\hat{\sigma}_{\scriptscriptstyle\! m nv}$	$T_{1/2}$	Α	$\hat{\sigma}_{ m nv}$	$T_{1/2}$	Α	$\hat{\sigma}_{\scriptscriptstyle\! m nv}$	$T_{1/2}$
	Hf			Pt			Er			Cd			Co	
174	455	-	190	126	-	16	221	-	106	2,4	-	59	85,4	-
175	-	70д	19	-	2,8д	16	-	75хв	107	-	6,5г	60	-	10,4хв
176	323	-	19	59	-	16	66,5	-	108	5,1	-	60	101	5,3p
177	3392	-	19	-	50 p	16	-	10,4г	109	434	462д	61	-	1,6г
178	434	-	19	3,1	-	16	52	-	110	23,8	-		Ni	
179m	-	18,7c	19	177	-	16	1882	-	111	22,3	-	60	2.2	-
179	300		19	2,2	-	16	17,8	-	112	6,8	-	61	2.2	-
180	22	-	19	-	19,9г	16	-	9,4д	113	3097	-			
181	107	42,4д	19	32,1	-	17	5,5	-	114	11,2	-			
	Lu		19	9,3	31хв	17	173	7,5г	115	-	44,6д			
175	244	-	20	-	12,6г	17	-	49,3г	115	-	53,5г			
175m	250	-		Ir			Ho		116	1,35	-			
176m	-	3,62г	19	2140	-	16	-	4570p	117	-	3,4г			
176	2677	-	19	3670	74д	16	340	-	117	-	2,5г			
177	620	6,65д	19	666	-	16	6593	26,8г		Ag				
178	-	25хв	19	974	19,3г	16	-	3,1г	107	0,73	44,3c			
	Та		19	-	2,3г		Dy		107	70	-			
181	298	-		Au		16	725	-	108	-	2,4хв			
182	1753	115д	19	738	-	16	1730	-	109	699	-			
183	-	5,1д	19	1526	2,7д	16	1182	2,3г	110	64,3	24,6c			
	W		19	18,6	3,1д	16	-	81,6г	111	47,6	7,5д			
182	274	-	20	-	48хв		Tm		112	-	3,1г			
183	161	-	Hg			16	16 789 -			Pd				
184	7,5	-	19	36	-	17	258	129д	108	112	-			
185	-	75,1д	19	1463	-	17	219	1,9p	109	-	13,6г			
	Re		20	2	-	17	-	63,6г	110	1,44	-			
185	824	-	20	19,6	-		Yb		111	-	23хв			
186	-	3,7д	20	4,5	-	17	141	-		In				
			20	-	45,6д	17	175	-	115	-	4,5г			
			20	0.37	-	17	11,7	-	115	1575	$4,4.10^{14}$ p			
			20	-	5,1хв	17	175	-	116	-	14,1c			
				Tl		17	51	-	117	-	116хв			
			20	24,3	-	17	-	4,2д	117	-	43хв			
			20	54,4	3,8p					Sn				
			20	0,35	-				115	48,2	-			
			20	-	4,2хв				116	5,3	-			
			Pb					117	7,5	-				
			20	1,4	-				118	1,6	-			
			20	-	$1,7 \cdot 10^{7} p$				119	2,6	-			
			20	0,07	-				120	0,58	-			

A [a.o.м] – атомна маса; $T_{1/2}$ – період напіврозпаду; $\hat{\sigma}_{n\gamma}$ [барн] – величина мікроскопічного перерізу, що

було розраховано за формулою (2.11)

ДОДАТОК В

РОЗРАХУНОК СЕРЕДНЬОГО ПОТОКУ НЕЙТРОНІВ ЗА ПАЛИВНУ КАМПАНІЮ

Число актів поділу ядер палива може бути виражено наступним чином

$$N_{\rm ginehb/c} = Q_{\rm T}/E_{\rm f} , \qquad (1)$$

або ж через ймовірність взаємодії та величину нейтронного потоку

$$N_{\rm ділень/c} = \frac{\bar{\Phi}_{\rm n} \cdot N_{\rm A} \cdot m_{235} \cdot \bar{\sigma}_{\rm f}^{235}}{M_{235}}, \qquad (2)$$

де $Q_{\rm T}$ – теплова потужність реактора (3·10⁹ Вт); $E_{\rm f}$ – енергія, що виділяється в акті поділу ядра палива (200 МеВ або 3,2·10⁻¹¹ Дж/ділення); $N_{\rm A}$ – стала Авогадро (6,02·10²³ моль⁻¹); $\bar{\sigma}_{\rm f}^{235}$ – мікроскопічний переріз поділу ядра ²³⁵U (334,810⁻²⁴ см²); M_{235} – молярна маса ²³⁵U (235 г/моль). Масу ²³⁵U m_{235} можна визначити через масу палива $M_{\rm U}$, що завантажено в зону

$$m_{235} = c \cdot M_{\rm U},\tag{3}$$

де с = 0,036 – збагачення по ²³⁵U. Саму ж M_U можна визначити через величину проектної глибини вигоряння \overline{B}

$$M_{\rm U} = \frac{t \cdot Q_{\rm T} \cdot n}{\overline{B}},\tag{4}$$

де t – проектна тривалість опромінення палива до перезавантаження (291,7 діб); n = 3 – кількість перезавантажень.

Комбінуючи (1) та (2), знаходимо, що середня величина нейтронного потоку має наступний вигляд

$$\overline{\Phi}_{n} = \frac{M_{235} \cdot B}{N_{A} \cdot \overline{\sigma}_{f}^{235} \cdot E_{f} \cdot c \cdot t \cdot n} \approx 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot c^{-1}.$$
(5)

Онлайн сервіс створення та перевірки кваліфікованого та удосконаленого електронного підпису

протокол

створення та перевірки кваліфікованого та удосконаленого електронного підпису

Дата та час: 12:11:16 13.05.2024

Назва файлу з підписом: Ulybkin_diss.pdf.asice Розмір файлу з підписом: 4.3 МБ

Перевірені файли: Назва файлу без підпису: Ulybkin_diss.pdf Розмір файлу без підпису: 4.9 МБ

Результат перевірки підпису: Підпис створено та перевірено успішно. Цілісність даних підтверджено

Підписувач: УЛИБКІН ОЛЕКСАНДР ЛЕОНІДОВИЧ П.І.Б.: УЛИБКІН ОЛЕКСАНДР ЛЕОНІДОВИЧ Країна: Україна РНОКПП: 3072906831 Організація (установа): ФОП УЛИБКІН ОЛЕКСАНДР ЛЕОНІДОВИЧ Код ЄДРПОУ: 3072906831 Посада: КЕРІВНИК Час підпису (підтверджено кваліфікованою позначкою часу для підпису від Надавача): 12:11:15 13.05.2024 Сертифікат виданий: АЦСК АТ КБ «ПРИВАТБАНК» Серійний номер: 248197DDFAB977E5040000002AAE2201C1037204 Алгоритм підпису: ДСТУ 4145 Тип підпису: Удосконалений Тип контейнера: Підпис та дані в архіві (розширений) (ASiC-E) Формат підпису: З повними даними для перевірки (XAdES-B-LT) Сертифікат: Кваліфікований

Версія від: 2024.04.15 13:00