Későneutron-paraméterek vizsgálata, uránkoncentráció meghatározása

1. Bevezetés

Az ²³⁵U atommag egy neutron befogását követő hasadása során keletkező instabil közbenső mag két hasadványmagra¹ hasad, ezenkívül hasadásonként néhány (²³⁵U esetében átlagosan 2,47) neutron szabadul fel. A keletkező neutronok több mint 99%-a a hasadást követő 10⁻¹² s-on belül emittálódik. Ezeket a neutronokat *prompt neutronok*nak nevezzük. Az ezt követően - akár néhány perccel később - kibocsátott neutronok az ún. *késő neutronok*. Bár ezek mennyisége a prompt neutronokéhoz viszonyítva kicsi (²³⁵U esetében az össz-neutronszámnak csupán 0,64%-a), jelentőségük igen nagy a reaktorok szabályozhatósága szempontjából.

2. Elméleti összefoglalás

Az ²³⁵U termikus befogását követően létrejövő közbenső mag sokféle (több 100) különböző módon hasadhat szét. Egy ilyen lehetőség például a következő:

$$^{235}\text{U} + \text{n} \rightarrow ^{236}\text{U}^* \rightarrow ^{90}\text{Kr} + ^{143}\text{Ba} + 3\text{m}$$

A hasadási termékek száma igen nagy. A hasadványok relatív gyakoriságának tömegszám szerinti eloszlását az 1. ábrán láthatjuk. Megállapítható, hogy a görbének a 95 és a 140 tömegszám közelében egy-egy maximuma van. A hasadásban közvetlenül keletkező primer hasadási termékek nagy neutronfelesleggel rendelkeznek az azonos tömegszámú stabil atommagokhoz képest. A hasadási termékek az esetek döntő többségében sorozatos izobár magátalakulással, β -bomlással szabadulnak meg neutronfeleslegüktől, és így közelítik meg a stabil N-Z görbét. A fent bemutatott hasadványpár esetében a következő két bomlássorozat megy végbe:

$${}^{90}\text{Kr} \frac{\beta^{-}}{33 \text{ s}} {}^{90}\text{Rb} \frac{\beta^{-}}{2,7 \text{ min}} {}^{90}\text{Sr} \frac{\beta^{-}}{28 \text{ ev}} {}^{90}\text{Y} \frac{\beta^{-}}{64 \text{ h}} {}^{90}\text{Zr} \text{ (stabil)}$$

$${}^{143}\text{Ba} \frac{\beta^{-}}{0,5 \text{ min}} {}^{143}\text{La} \frac{\beta^{-}}{12 \text{ min}} {}^{143}\text{Ce} \frac{\beta^{-}}{33 \text{ h}} {}^{143}\text{Pr} \frac{\beta^{-}}{13,7 \text{ d}} {}^{143}\text{Nd} \text{ (stabil)}$$

A vonalak alatti idők a β -bomlások felezési idejét jelentik.

¹ A hasadás pillanatában (azaz 10⁻¹⁴ s-on belül) keletkező atommagokat *hasadvány*oknak nevezzük. Ezek később elektronokat szednek fel, majd radioaktív bomlások révén új atomokká alakulnak át. Ez utóbbiakat *hasadási termékek*nek nevezzük.



1. ábra. Az ²³⁵U hasadási termékeinek tömegszám szerinti eloszlása

2.1. A prompt és késő neutronok keletkezése a hasadás során

Amint a bevezetőben említettük, a hasadás során keletkező neutronok csaknem mindegyike - több mint 99%-a - a hasadást követően szinte azonnal, számottevő késés nélkül keletkezik. Ezek a *prompt neutronok*, amelyeket a hasadványok bocsátják ki. Gerjesztési energiájuk ugyanis általában sokkal nagyobb mint egy neutron szeparációs energiája. Az ilyen gerjesztett állapotok neutronemisszióval történő bomlásának az ideje 10^{-15} s (10^{-14} s??? 10^{-12} s???) vagy kisebb. Nem minden hasadvány emittál neutronokat, néhányuk esetében a legerjesztődés történhet γ -emisszióval is.

Ezt követően a hasadási termékek β -bomlással szabadulnak meg neutronfeleslegüktől, és további neutron-kibocsátás általában már nem történik. Némelyikük izobár átalakulása azonban olyan leányelem képződéséhez vezet, amelyikben a gerjesztési energia nagyobb, mint a neutron szeparációs energiája. Ekkor a (*Z*,*N*) rendszámú, illetve neutronszámú hasadási termék magjából magasan gerjesztett állapotú (*Z*+1,*N*-1) mag keletkezik, amely "azonnal" kibocsát egy neutront, és átalakul a (*Z*+1,*N*-2) maggá. Így keletkeznek az ún. *késő neutronok*. A (*Z*,*N*) magot *későneutron-anyamag*nak, a (*Z*+1,*N*-1) magot pedig *későneutron-emitter*nek nevezzük. Az ily módon keletkező késő neutronok esetében a maghasadás pillanatától számított teljes késési idő várható értékét az anyamag β -bomlásának felezési ideje szabja meg. Megállapíthatjuk továbbá, hogy az anyamagok β -bomlását követően létrejött emitter magok esetében a gerjesztési energia kisebb mint, a közvetlen hasadási termékek eseténen, emiatt a késő neutronok átlagos energiája számottevően kisebb (300÷600 keV), mint a prompt neutronoké (átlagosan 2 MeV). A hasadásban keletkező neutronok teljes *hozama* (száma, v) a prompt neutronok és a késő neutronok hozamából (v_p , illetve v_k) tevődik össze:

$$v = v_p + v_k$$

A késő neutronok mennyiségét szokás még az ún. későneutron-hányad formájában is kifejezni:

$$\beta = \frac{v_k}{v} \,. \tag{1}$$

A 2. ábrán a későneutron-hozamnak a hasadást kiváltó neutron energiájától való függését mutatjuk be ²³⁵U és ²³⁹Pu esetére.



2. ábra. A későneutron-hozam a hasadást kiváltó neutron energiájának a függvényében

A görbékből megállapítható, hogy a későneutron-hozam a $0 \le E_n \le 4$ MeV intervallumban gyakorlatilag független a hasadást kiváltó neutron energiájától.

A tejes későneutron-hozamok értékei jelentősen függnek a hasadóképes izotóptól. Az 1. táblázatban bemutatott értékekből azonban kétféle szabályt mégis megfigyelhetünk:

- Egy adott elemre vonatkozóan a későneutron-hozam növekszik a tömegszámmal (*A*).
- A későneutron-hozam csökken a protonszámmal (Z).

1. táblázat.

hasadóképes mag	v_k (neutron/100 hasadás)
²³³ U	0,667 <u>+</u> 0,0029
²³⁵ U	1,621 <u>+</u> 0,05
²³⁸ U*	4,39 <u>+</u> 0,10
²³⁹ Pu	0,628 <u>+</u> 0,038
²⁴⁰ Pu*	0,95 <u>+</u> 0,08
²⁴¹ Pu	1,52 <u>+</u> 0,11
²⁴² Pu*	2,21 <u>+</u> 0,26

Teljes későneutron-hozamok (későneutron-szám per 100 hasadás) különböző izotópoknak termikus neutronok által kiváltott hasadásaira

*Gyors neutron által kiváltott hasadásokra vonatkozó adat.

2.2. A későneutron-csoportok

A magfizikusok eddig 66 különböző későneutron-anyamagot azonosítottak.² Felezési időik 0,12 s és 78 s között változik, emiatt az általuk keltett késő neutronok jelentősen különböző késleltetési időkkel jelennek meg. Reaktorkinetikai számításokban a késő neutronok korrekt kezelése ennek megfelelően az lenne, ha valamennyi anyamagot a saját felezési idejével és hozamával vennénk figyelembe. Ezzel kapcsolatban két fő probléma merül fel:

- Az anyamagok nagy száma miatt a feladat nagyon elbonyolódna.
- Az egyes anyamagok bomlási sémája, felezési ideje, részaránya nem kellő pontossággal ismert.

G. R. Keepin dolgozta ki kísérleti úton a számítások számára kielégítő közelítést a későneutron-adatok kondenzált kezelésével, azaz a későneutron-csoportok létrehozásával. Hasonlóan a mai gyakorlaton elvégzendő méréshez, hasadóanyagból készített mintát rövid ideig tartó neutron-besugárzásnak tett ki. A besugárzott mintában bekövetkezett hasadások révén nagy számú anyamag keletkezett, amelyek a besugárzást követően felezési idejük szerint lecsengő későneutron-forrásként működtek ($S_k(t)$). Ha a mintában a besugárzás során bekövetkezett hasadási reakciók száma n_f volt, akkor a keltett anyamagok száma $v_k n_f$. Az $S_k(t)$ függvény ezen anyamagok lebomlását, és ennélfogva a késő neutronok keletkezésének időbeli alakulását írja le. A 3. ábrán egy ilyen görbe látható, a ⁸⁷Br izotópnak, egy tipikus anyamagnak a bomlási-görbéjével együtt.

² Ezek a Ga, As, Se, Br, Kr, Rb, Sr, Y, In, Sn, Sb, Te, I, Xe, Cs, Ba, La és Tl egyes izotópjai.



3. ábra. A későneutron-forráserősség csökkenése az idő függvényében

Az $S_k(t)$ bomlási görbe az összes anyamag járulékos bomlásgörbéinek bonyolult szuperpozíciója. Keepin szerint az $S_k(t)$ jól közelíthető hat exponenciális függvény összegével:

$$S_k(t) = n_f \sum_{i=1}^6 v_{ki} \lambda_{ki} e^{-\lambda_{ki} t}, \qquad (2)$$

ahol

 v_{ki} : az i-edik későneutron-csoport hozama,

 λ_{ki} : az i-edik későneutron-csoport bomlási állandója

Az $S_k(t)$ függvény a fenti közelítésben olyan későneutron-forrásfüggvényt reprezentál, amelyben mindegyik csoport saját v_{ki} későneutron-hozammal, átlagos λ_{ki} bomlási állandóval, ill. az ennek megfelelő átlagos felezési idővel rendelkezik. Három különböző hasadóképes izotópra (²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³³U) a későneutron-csoportok főbb adatait a 2. táblázatban foglaltuk össze. Ez a hatcsoportos későneutron-struktúra általánosan használatos a reaktorkinetikában.

2. táblázat. A későneutron-csoportok adatai három hasadóképes izotópra

i	késő neutronok lehetséges	közepes energia	anyamagok átlagos felezési ideje (s)			késő neutronok részaránya az összes		
	anyamagjai	(MeV)			hasadási neutronhoz			
			²³⁵ U	²³⁹ Pu	²³³ U	^{V1} ²³⁵ U	²³⁹ Pu	a (%) ²³³ U
1	⁸⁷ Br, ¹⁴² Cs	0,25	55,72	54,28	55,0	0,021	0,0072	0,0226
2	¹³⁷ I, ⁸⁸ Br	0,56	22,72	23,04	20,57	0,140	0,0626	0,0786
3	¹³⁸ I, ⁸⁹ Br, ^(93,94) Rb	0,43	6,22	5,60	5,00	0,126	0,0444	0,0658
4	¹³⁹ I, ^(93,94) Kr ¹⁴³ Xe, ^(90,92) Br	0,62	2,3	2,13	2,13	0,252	0,0685	0,0730
5	¹⁴⁰ I, ¹⁴⁵ Cs	0,42	0,61	0,618	0,615	0,074	0,018	0,0135
6	(Br, Rb, As stb.)	-	0,23	0,257	0,277	0,027	0,0093	0,0087

összesen	0,64	0,21	0,26
----------	------	------	------

2.3. A késő neutronok hatása a neutronfluxus időbeni változására³

Ha egy termikus reaktor időben állandósult állapotban üzemel, akkor az egymást követő neutrongenerációk neutronszámának hányadosát jelentő *effektív sokszorozási tényező*, *k*_{eff} éppen egységnyi. A reaktor teljesítményének növelésekor vagy csökkenésekor a sokszorozási tényező 1-től eltér:

$$\Delta k_{eff} = k_{eff} - 1$$

A ρ reaktivitás definíció szerint a következő:

$$\rho = \frac{\Delta k_{\text{eff}}}{k_{\text{eff}}} = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}}.$$
(3)

Időben állandósult állapotban $\rho = 0$. A szokásos körülmények közötti teljesítményváltoztatások az állandósult állapothoz közeli állapotokon keresztül mennek végbe, és ekkor jó közelítéssel $\rho \approx \Delta k_{eff}$. Minthogy Δk_{eff} jelenti a neutronszám növekedési arányát az egyik generáció és a soron következő generáció között, a teljes neutronszámnak egy generáció élete során bekövetkező növekedése $n\Delta k_{eff}$ -fel egyenlő, ahol *n* a neutronszám az induló neutronpopulációban. Ha a neutronok átlagos élettartama 1, akkor a neutronszám időegység alatti változását a következő differenciálegyenlet adja meg:

$$\frac{\mathrm{dn}}{\mathrm{dt}} = \frac{\mathrm{n}\Delta k_{\mathrm{eff}}}{\ell}.$$
(4)

Feltételezve azt, hogy $\Delta k_{\rm eff}$ nem függ az időtől, integrálással kapjuk:

$$n(t) = n(t_0) \exp(\frac{\Delta k_{eff}}{\ell} t).$$
(5)

Az oktatóreaktorban $1 = 7 \cdot 10^{-5}$ s. Definiáljuk a reaktor periódusidejét (*T*): az az idő, amely alatt a neutronszám az *e*-szeresére változik (*e* = 2,7172...). (5) alapján tehát:

$$T = \frac{\ell}{\Delta k_{\rm eff}}.$$
 (6)

A neutronszámra felírt összefüggés átvihető közelítőleg (egycsoportos elmélet) a neutronsűrűségre és ezen keresztül a neutronfluxusra és a reaktorteljesítményre is:

$$\mathbf{n}(\mathbf{t}) = \mathbf{n}(\mathbf{t}_0)\mathbf{e}^{\frac{\mathbf{t}}{T}}.$$
 (5a)

³ Ez a fejezet azoknak szóló összefoglalás, akik nem hallgatták a *Reaktorfizika* előadást, a töbieknek könnyű olvasmány.

Az időben állandó, stacioner üzemű reaktorban $n(t) = n(t_0) =$ konst., tehát T végtelen. A reaktor periódusideje rendkívül fontos mennyiség a változó teljesítményű reaktor biztonsága szempontjából. Minden reaktorba beépítenek olyan biztonságvédelmi rendszert, amely azonnal leállítja a reaktort, ha a periódusidő a szabályozhatóság lehető-ségeit tekintve túlságosan kicsiny. Ha nem üzemelne *periódusidő-védelem*, a 7÷10 s-nál rövidebb periódusidő már kifejezetten veszélyes állapotot jelentene.

A késő neutronok fontosságának a kidomborítása érdekében határozzuk meg a periódusidőt abban az esetben, amikor a reaktivitás $\rho = 0.25\%^4$, de csak a prompt neutronokat figyelembe véve. Mivel $\Delta k_{eff} \approx \rho = 0.0025$, (6) alapján a periódusidőre a következő adódik:

$$T = \frac{\ell}{\Delta k_{eff}} = \frac{0,00007}{0,0025} = 0,028 \text{ s}.$$

Ezt azt jelenti, hogy 1 s alatt a neutronszám

$$\frac{n(1 s)}{n(0)} = e^{\frac{1 s}{0,028 s}} = e^{35,7} = 3 \cdot 10^{15} -$$

szeresére nő. Semmilyen szabályozórendszer (amely mechanikus elemeket is tartalmaz) nem tudja követni ezt a gyors felfutást. "Szerencsére" a késő neutronok bizonyos feltételek között jelentősen lelassítják a növekedési ütemet, és ezzel lehetővé teszik a reaktorok szabályozását.

A késő neutronok hatásának a megvilágítása érdekében leegyszerűsítjük a tárgyalást: csak egyetlen, átlagos későneutron-csoportot veszünk figyelembe.⁵ Ha a 2. táblázatban az ²³⁵U-ra adott felezési időket átlagoljuk, 9 s-t kapunk, vagyis a (2) alatti hat bomlási állandót az átlagos

$$\overline{\lambda} = \frac{\log 2}{9 \text{ s}} = 0,077 \text{ s}^{-1}$$

bomlási állandóval helyettesítjük. Ha C(t)-vel jelöljük a t időpillanatban a reaktorban levő későneutron-anyamagok számát, akkor 1 s alatt $\overline{\lambda}C(t)$ késő neutron keletkezik. Ennek megfelelően a (4) egyenlet az alábbi alakba meg át:

$$\frac{\mathrm{dn}}{\mathrm{dt}} = \frac{\mathrm{nk}_{\mathrm{eff}}(1-\beta)-\mathrm{n}}{\ell} + \overline{\lambda}C(\mathrm{t}), \qquad (7a)$$

⁴ A reaktivitást (amely dimenzió nélküli szám) gyakran fejezzük ki %-ban. Például $\rho = 0,25\%$ azt jelenti, hogy $\rho = 0,0025$ (vagyis (3) alapján $k_{\text{eff}} \approx 1,0025$).

⁵ A részletest tárgyalást lásd az [5] jegyzetben.

amelynek a jobb oldalán az első tag a prompt, a második tag pedig a késő neutronok által képviselt neutronsokszorozást fejezi ki. Ezt az egyenletet ki kell egészítenünk a későneutron-anyamagok számát megszabó egyenlettel:

$$\frac{\mathrm{dC}}{\mathrm{dt}} = -\overline{\lambda}C(t) + \frac{\mathrm{nk}_{\mathrm{eff}}\beta}{\ell}.$$
(7b)

A jobboldal első tagja az 1 s alatt elbomló, a második tag pedig az 1 s alatt a hasadásokban keletkező anyamagok számát adja meg.⁶ Nézzük meg ezután, mennyiben növelik a késő neutronok a reaktorperiódust!

(5a) mintájára a (7) egyenletrendszer megoldását az alábbi alakban keressük:

$$\mathbf{n}(t) = \mathbf{n}_0 e^{t/T} \qquad \qquad \text{és} \qquad \qquad \mathbf{C}(t) = \mathbf{C}_0 e^{t/T} \,.$$

Ha ezt (7)-be helyettesítjük, elemi számolás után T-re a következő egyenletet kapjuk:

$$\frac{\rho}{\beta} = \frac{\ell/(k_{\rm eff}\beta)}{T} + \frac{1}{1+\overline{\lambda}T},\tag{8}$$

ahol felhasználtuk a (3) alatt definiált reaktivitást. Amikor ennek az egyenletnek a megfelelőjét 6 későneutron-csoport figyelembe vételével vezetjük le, akkor a kapott egyenletet *reciprokóra egyenlet*nek nevezzük.

Adott reaktivitás mellett a (8) egyenlet a *T* periódusidőre vonatkozóan másodfokú egyenlet:

$$\frac{\rho}{\beta}\overline{\lambda}T^{2} + \left(\frac{\rho}{\beta} - \frac{\ell\overline{\lambda}}{k_{\text{eff}}\beta} - 1\right)T - \frac{\ell}{k_{\text{eff}}\beta} = 0.$$
(9)

Jelöljük a két gyököt T₁-gyel és T₂-vel. Ezek felhasználásával a neutronszám időfüggése

$$\mathbf{n}(t) = n_1 e^{t/T_1} + n_2 e^{t/T_2}$$
(10)

alakban adódik, ahol az n_1 és n_2 állandók a kezdeti feltételektől függnek. Ha a ρ reaktivitás negatív (vagyis k_{eff} < 1, tehát a reaktor *szubkritikus*), a (9) egyenlet mindhárom együtthatója negatív, tehát mindkét gyök negatív,⁷ vagyis a neutronszám (10) szerint a kezdeti feltételektől függetlenül időben csökken. Ha azonban a ρ reaktivitás pozitív (vagyis keff > 1, tehát a reaktor *szuperkritikus*), a (9) egyenlet első együtthatója pozitív, a harmadik pedig továbbra is negatív. A reaktivitástól függően a második együttható lehet negatív is, pozitív is. Mindkét esetben azonban van egy előjelváltás és egy előjelkövetés,

⁶ Vegyük észre, hogy éppen ezzel az utóbbi taggal csökkent (7a) jobb oldalának első tagja a (4) egyenlethez képest.

⁷ Emlékeztetünk arra az elemi algebrai szabályra, hogy két egymást követő együttható azonos előjele negatív, különböző előjele pedig pozitív gyököt jelent.

vagyis a két gyök közül az egyik negatív, a másik pozitív. Legyen az utóbbi T_1 . Ekkor elegendően nagy *t* idő elteltével (10) átmegy az

$$n(t) \approx n_1 e^{t/t_1}$$
 (t>> T₂) (11)

alakba. A késő neutronok jelenlétében is igaz marad tehát, hogy egy magára hagyott szuperkritikus reaktorban a neutronszám exponenciálisan nő. Döntő viszont az időállandó nagysága. Vegyük fel a következő számértékeket:

$$\beta = 0,0064;$$
 $1 = 7 \cdot 10^{-5} \text{ s};$ $\rho = 0,0025;$ $\overline{\lambda} = 0,077 \text{ s}^{-1};$ $k_{\text{eff}} = 1,0025.$

Ezeket (9)-be helyettesítve $T_1 = 20,31$ s adódik, ami lényegesen nagyobb idő, mint a késő neutronok nélkül kapott 0,028 s. Ez a számpélda jól mutatja a lényeget: *a késő neutronok hatására a periódusidő olyan mértékben megnő, hogy a neutronszám növekedését külső eszközökkel biztonságosan befolyásolni lehet*.

Ez az állítás azonban csak addig érvényes, amíg a reaktivitás nem túlságosan nagy, pontosabban, amíg $\rho/\beta < 1$. Amíg ez fennáll, a (9) egyenletben az 1-et tartalmazó tagok elhanyagolhatók, vagyis a pozitív periódus közelítőleg így írható:

$$T_1 \approx \frac{\beta - \rho}{\rho \overline{\lambda}}.$$
 ($\rho/\beta < 1$) (12a)

A fenti számpéldában ez a közelítés $T_1 = 20,26$ s-t ad, tehát a közelítő képlet elég pontos. Minőségileg megváltozik azonban a helyzet, amikor $\rho/\beta > 1$. Ekkor ugyanis (9)-ben a második tag együtthatója pozitívra vált, és az egyenlet pozitív gyökét más képlettel kell közelíteni:⁸

$$T_1 \approx \frac{\ell}{k_{\text{eff}}(\rho - \beta)}$$
. $(\rho/\beta > 1)$ (12b)

Például, $\rho/\beta = 1,1$ esetén ($k_{eff} = 1,0071$) a (12b) képlet szerint $T_1 = 0,109$ s, azaz a reaktor ismét szabályozhatatlanná válik. (A pontos érték $T_1 = 0,099$ s.) Azt találtuk tehát, a reaktor csak addig szabályozható, amíg $\rho/\beta < 1$, vagyis $k_{eff} < 1+\beta$ (közelítőleg). Más szavakkal a szabályozhatóság szükséges feltételét úgy szoktuk kifejezni, hogy *a reaktor a késő neutronok nélkül legyen szubkritikus*. Ha azonban a reaktor már a késő neutronok nélkül is szuperkritikus (vagyis ha $\rho/\beta > 1$), a reaktor szabályozhatatlanná válik, *megszalad*. Az ilyen reaktorállapotot *prompt szuperkritikus állapotnak* nevezzük, amelynek a fellépte súlyos reaktorbalesetnek minősül.

Az elmondottakból következik, hogy a β későneutron-hányadnak a reaktorszabályozás szempontjából döntő jelentősége van. Erre való tekintettel ezt választjuk a reaktivitás egységének is. Ennek az egységnek a neve: *dollár* (\$): egy reaktor reaktivitása 1 \$, ha

⁸ Az Olvasó számára hasznos gyakorlat a közelítő képlet levezetése, így ugyanis ellenőrizheti, menyynyire sikerült az eddigieket megértenie.

 $\rho/\beta = 1$. Mint láttuk, a gyakorlatban ezt a reaktorállapotot kerülni kell, ezért a gyakorlatban ennek az egységnek a 100-ad részét, a *cent*et (č) használjuk: egy reaktor reaktivitása 1 č, ha $\rho/\beta = 0.01$.

3. Későneutron paraméterek meghatározása

3.1. A méréshez szükséges eszközök, anyagok

- Reaktor és besugárzó csőposta;
- besugárzandó urán fólia csőposta-tokban;
- moderátorral töltött mérőedény;
- neutrondetektor-gyűrű 6 db detektorból (³He);
- mérő elektronika (tápegység, diszkriminátor);
- PC sokcsatornás analizátorkártyával (multiscaler időanalizátor).

3.2. A mérés menete

A reaktor aktív zónájában besugárzott természetes urán fólia a csőposta segítségével (kb. 3 s-os szállítási idő után) a mérőhelyre kerül. A besugárzást követően a mérőedényben elhelyezett neutrondetektorok mérik a fólia időben csökkenő későneutronintenzitását. Az intenzitás időbeli változásának rögzítése az analizátorkártyával történik, amely a detektorok diszkriminált jeleit összegzi a megadott léptetési időtartam alatt (1 s). A léptetési időtartam alatt gyűjtött impulzusok időbeli sorrendjüknek megfelelően egymás utáni csatornákban tárolódnak. Amint azt az elméleti összefoglalóban láttuk, a későneutron-intenzitásnak ez a változása nem más, mint különböző felezési idejű exponenciális bomlási görbék lineáris szuperpozíciója. A későneutron-intenzitás mért értékeiből a kiértékeléskor lépésről-lépésre meghatározzuk és levonjuk a leghosszabb felezési idejű exponenciális komponenseket.

A reaktor 1 kW-os teljesítményénél az urán fóliát tartalmazó tok a csőposta segítségével az aktív zónába kerül. A meghatározott besugárzási idő elteltével a minta automatikusan kerül a mérő pozícióba. A minta mozgását érzékelő, és a csőpostát vezérlő fotocella jele a méréshez startjelként használható. (Figyelem: a mozgásérzékelő befelé menet is jelez!)

A paraffin moderátorral töltött mérőedényben 6 db, párhuzamosan kapcsolt ³He töltésű neutron-számlálócső van elhelyezve. A termikus neutronenergiák tartományában érzékeny detektorok miatt a detektálandó késő neutronokat le kell lassítani. Éppen erre szolgál a mérőedényben levő moderátor. A neutronok lelassulási ideje elhanyagolhatóan kicsi (kb. 1 µs.), még a gyakorlatilag mérhető legrövidebb felezési idejű késő neutronok késleltetési idejéhez képest is.

A neutrondetektorok esetében fordítsunk gondot a jelamplitúdó diszkriminációs szint helyes megválasztására! Mint ismeretes, az említett detektortípusnál az amplitúdódiszkriminációval jelentősen csökkenthető a γ- és zajháttér. A diszkriminációs

szint beállításhoz először keressük meg azt a maximális diszkriminációs értéket, amelynél még jelentős a számlálási sebesség, és válasszuk ennek kb. 1/8-át. A mérést maximum 300 s-ig érdemes folytatni. A kapott eredmény a PC-ben elhelyezett analizátor memóriájában hozzáférhető, elmenthető és kinyomtatható.

3.3. Kiértékelés

A későneutron-intenzitás időbeli csökkenését leíró függvény közelítőleg 6 db exponenciális összegének tekinthető. A kiértékelés célja a felezési idők és a relatív intenzitások meghatározása az adott körülmények között mérhető későneutron-csoportokra. Az eljárás első lépéseként a leghosszabb felezési idejű komponens paramétereit határozzuk meg abban az időtartományban, ahol a rövidebb felezési idejű komponensek már nem észlelhetők, de a mért intenzitások még kiemelkednek a háttérből. Az intenzitások logaritmikus transzformációja után egyenest illesztünk a kiválasztott időintervallum pontjaira. Meredekségének abszolút értéke a leghosszabb felezési idejű csoport bomlási állandóját adja, míg a tengelymetszet a relatív intenzitás logaritmusa.

A meghatározott paraméterekkel megadott exponenciális komponenst levonjuk az eredeti intenzitásokból, ahol így már csak a maradék csoportoktól származó intenzitás időbeli függvénye marad, majd megismételjük az eljárást. A kiértékelésre szánt időintervallumok között célszerű pontokat kihagyni, hogy a levonást követően a véletlen zaj miatt megjelenő esetleges negatív értékek ne zavarjanak (például a logaritmusképzés miatt). Megjegyezzük, hogy az eljárás csak közelítő pontosságú, mivel az illesztés előtti logaritmikus transzformálás az eltéréseket is transzformálja. A számításoknál referencia időpontnak azt az időpontot kell venni, amikor a minta az aktív zónát elhagyja. (Ennek az időpontnak felel meg a startjel.)

Pontosabb eredmény kapható a teljes adatsoron végrehajtott súlyozott legkisebbnégyzetes illesztéssel.

4. Urántartalom meghatározása

A mérés során egy olyan mintában, amelyik ismeretlen mennyiségben tartalmaz természetes izotóp-összetételű urániumot, meg kívánjuk határozni a tömeg százalékában mért uránkoncentrációt. Az ismeretlen összetételű minta teljes tömege 105,5 mg.

4.1. A méréshez szükséges eszközök, anyagok

- A későneutron-paraméterek meghatározásánál használt berendezés (lásd 3.1. rész);
- analitikai mérleg;
- polietilén csőposta besugárzó tokok;
- reaktor és besugárzó csőposta;
- két darab, a Nemzetközi Atomenergia Ügynökségtől (NAÜ) származó uránstandard.

3. táblázat. Az uránstandardok adatai

jel	természetes izotóp ös	a minta teljes	
	m	tömege (mg)	
	bizonylati	U-koncentráció:	
	koncentrációk szélső	átlagérték±szórás	
	értékei (tömeg%)	(tömeg%)	
S-7	0,475 ÷ 0,527	0,501±0,013	93,3
S-8	0,128 ÷ 0,142	0,135±0,0035	85,1

4.2. A mérés menete

A mérés a relatív későneutron-intenzitás mérésén alapul, amely az urántartalom gyors, pontos, roncsolásmentes meghatározását teszi lehetővé. A módszer gyorsasága és egyszerű kivitelezhetősége miatt ércminták sorozatelemzésére, érzékenysége folytán pedig az érckutatásban az urán dúsulásainak nyomozására szolgálhat. A mérés célja ismeretlen koncentrációjú minta urántartalmának meghatározása a NAÜ két uránstandardjával történő összehasonlítás alapján, továbbá a mérési hibának, valamint a kimutatási határnak a számítása. Ismeretlen mintaként uránszurokérc tartalmú kőzetet használunk.

A polietilén csőpostatokban az ismeretlen mintából, a standardokéhoz hasonló mennyiséget, kb. 100 mg-ot helyezünk el. A besugárzást 10 kW reaktorteljesítményen végezzük. Az analizátor beállítása megegyezik a korábbival (vö. 3.2. rész). A mérés alapgondolata: *a standardokban és az ismeretlen mintában a besugárzott urán bomlás-görbéjét ugyanaz a (2) szerinti függvény írja le, legfeljebb az egyes görbék n*f *együttha-tója térhet el.* Ebből következik, hogy a lecsengő későneutron-intenzitási görbe bármelyik szakaszának összevetése alkalmas a minták összehasonlítására. Elvileg egy adott időpontbeli intenzitás - akár egy csatorna - is elegendő lenne, de több csatorna összegzésével a kiértékelés alapjául szolgáló impulzusszám relatív szórását csökkenthetjük. Az összegzett csatornák kiválasztásában az alábbi szempontokat vesszük figyelembe.

Mind a standardok, mind az ismeretlen minta tartalmaz oxigént, amelyben a besugárzás során az ¹⁷O(n,p)¹⁷N magreakció eredményeként 4,1 s felezési idejű neutronemitter mag, ¹⁷N keletkezik. Mivel az oxigén mennyisége mintánként változik (továbbá nem is ismert), a besugárzás után, a mérés megkezdése előtt célszerű 20 s ún. *hűtési idő*t várni, mialatt az ¹⁷N-től származó neutronok gyakorlatilag eltűnnek, és így a minta és a standardok oxigéntartalmának különbsége nem zavaró. Ebből következik, hogy a 2. táblázat szerinti 3.÷6. későneutron-csoportok a mérés kezdetére szintén eltűnnek, tehát az urántartalom meghatározását a 22,72 s felezési idejű, elegendően nagy hozamú későneutron-csoportra érdemes alapozni. A hűtési idő növelése egyébként más szempontból is hasznos lehet, mivel rövid hűtési idők esetében az időmérés bizonytalansága (1 s-os felbontás) is nagyobb. A mérési időt úgy kell megválasztani, hogy a mérési idő végén a csökkenő későneutron-intenzitás még mindig jelentősen kiemelkedjék a háttérből. (A javasolt mérési időintervallum 20÷80 s.)

A szórás és a kimutatási határ számításához a háttér mérése is szükséges: üres tok besugárzásával a kiértékelésre szánt intervallumra vegyük fel a háttér-intenzitás értékeit.

4.3. A mérés kiértékelése

Egy standard mérése

A kiértékelés célja az ismeretlen minta uránkoncentrációjának meghatározása. Jelölje a mintára, illetve a standardra vonatkozó impulzusszámok összegét rendre N_x és N_{std} :

$$N_{x} = \sum_{i=20}^{80} n_{i,x}, \qquad N_{std} = \sum_{i=20}^{80} n_{i,std}, \qquad (15)$$

ahol $n_{i,x}$ és $n_{i,std}$ az i-edik csatorna tartalma az ismeretlen mintára, illetve a standardra vonatkozóan. Hasonló módon kapjuk az ezekből levonandó hátteret:

$$H_{x} = \sum_{i=20}^{80} h_{i,x} , \qquad (16)$$

ahol $h_{i,x}$ az i-edik csatorna tartalma az ismeretlen mintához tartozó háttér mérésekor. Ha a standardot és az ismeretlen mintát időben egymáshoz közel mérjük, fel lehet tételezni, hogy ez a háttér érvényes a standardra is. Az általánosság kedvéért azonban megengedjük, hogy az utóbbihoz külön háttér, H_{std} tartozzon. Az ismeretlen koncentrációt azzal a feltételezéssel határozzuk meg, hogy a minta *fajlagos* (egységnyi tömegre vonatkozó) beütésszáma a *C uránkoncentrációval arányos*:

$$\frac{N-H}{m} = aC, \qquad (17)$$

ahol *m* a minta tömege, és *a* valamilyen (ismeretlen) arányossági tényező. Természetesen a (17) összefüggés nem a *mért adatokra*, hanem csak azok *várható értékére* érvényes. Viszont a (17) összefüggés lehetővé teszi, hogy az egyik standardra kapott mérési adatok alapján becslést adjunk az ismeretlen *a* paraméterre:

$$\widetilde{a} = \frac{N_{std} - H_{std}}{m_{std}C_{std}},$$
(18)

ahol az "std" index a standardra vonatkozóan mért adatokra utal. C_{std} a kiválasztott standard bizonylati koncentrációja (tömeg%, vö. 3. táblázat). Ennek alapján az ismeretlen minta uránkoncentrációját a

$$C_{x} = \frac{N_{x} - H_{x}}{m_{x}\tilde{a}}$$
(19)

képlettel becsüljük. Ha csak egy standardot mérünk, ez a képlet jelenti a kiértékelés végét. Mielőtt a két standard esetét tárgyalnánk, adjuk meg a (19)-hez tartozó hibaszámítási képleteket. Tekintve, hogy tömeget (az egyéb hibaforrásokhoz képest) nagy pontossággal tudunk mérni, m_x és m_{std} mérési hibáját elhanyagoljuk. A háttérrel csökkentett beütésszámok szórásnégyzetét a Poisson-eloszlás alapján becsüljük:

$$\sigma_{\text{std}}^2 \approx N_{\text{std}} + H_{\text{std}}$$
 és $\sigma_x^2 \approx N_x + H_x$. (20)

Az a paraméter (18) szerint becsült értékének a szórásnégyzete:

$$\sigma_{a}^{2} = \tilde{a}^{2} \left(\frac{N_{std} + H_{std}}{\left(N_{std} - H_{std}\right)^{2}} + \frac{\sigma_{C_{std}}^{2}}{C_{std}^{2}} \right),$$
(21a)

továbbá a (19) szerint számolt uránkoncentrációé:

$$\sigma_{C_x}^2 = C_x^2 \left(\frac{N_x + H_x}{\left(N_x - H_x\right)^2} + \frac{\sigma_a^2}{\tilde{a}^2} \right).$$
(21b)

A (21) képletek levezetése a matematikai statisztikai elemeiből következik, ezért nem is részletezzük.

Két standard mérése

Amikor mindkét standardot mérjük, több kiértékelési módszer kínálkozik. A legegyszerűbb az *a* paraméternek mindkét standard alapján való független becslése:

$$\widetilde{a}_{i} = \frac{N_{i} - H_{i}}{m_{i}C_{i}}, \qquad (i = 1, 2)$$

$$(22)$$

ahol az "i" index az egyes standard mintákra mért adatokat jelöli. Az így kapott értékek szórásnégyzetét (21a) mintájára becsülhetjük:

$$\sigma_{ai}^{2} = \tilde{a}_{i}^{2} \left(\frac{N_{i} + H_{i}}{\left(N_{i} - H_{i}\right)^{2}} + \frac{\sigma_{Ci}^{2}}{C_{i}^{2}} \right). \qquad (i = 1, 2)$$
(23)

Az a paraméter végső értékét ezek súlyozott átlagolásával becsülhetjük:

$$\widetilde{a} = \frac{\sum_{i=1}^{2} \widetilde{a}_i / \sigma_{ai}^2}{\sum_{i=1}^{2} 1 / \sigma_{ai}^2},$$
(24a)

amelynek a szórásnégyzete:

$$\sigma_{a}^{2} = \frac{1}{\sum_{i=1}^{2} 1/\sigma_{ai}^{2}}.$$
(24b)

Kevésbé heurisztikus becslést kapunk, ha a (17) képletre alapozva az *a* paramétert lineáris regresszióval becsüljük. Ez azt jelenti, hogy az *a* paraméter függvényében kereszsük a

$$Q = \sum_{i=1}^{2} w_{i} \left(\frac{N_{i} - H_{i}}{m_{i}} - aC_{i} \right)^{2}$$
(25a)

négyzetösszeg minimumát, amelyben a súlyok a mért mennyiségek szórásnégyzeteivel fejezhetők ki:

$$w_i^{-1} = \frac{N_i + H_i}{m_i^2} + a^2 \sigma_{C_i}^2.$$
(25b)

Ennek a minimumproblémának a megoldása könnyen levezethető:

$$\widetilde{a} = \frac{\sum_{i=1}^{2} w_i C_i \frac{N_i - H_i}{m_i}}{\sum_{i=1}^{2} w_i C_i^2},$$
(26a)

amelynek a szórásnégyzete:

$$\sigma_{a}^{2} = \frac{1}{\sum_{i=1}^{2} w_{i} C_{i}^{2}}.$$
(26b)

Tekintve, hogy a w_i súlyok a (25b) képlet szerint függnek az *a* paramétertől, a (26a) képlet alkalmazása *a*-ra nézve iterációt igényel.⁹ A (24a) szerinti módszer ilyen iterációt nem tesz szükségessé.

Akár a (22)÷(24) formulákat, akár a (25)÷(26) formulákat használjuk, az ismeretlen uránkoncentráció meghatározására a (19) és (21b) képleteket kell alkalmaznunk. A két kiértékelési mód egymással egyenértékű. Ajánlatos, hogy az Olvasó ezt bizonyítsa be. Útmutatás: a (23) képletben (de csak ott!) írjunk \tilde{a}_i^2 helyébe \tilde{a}^2 -t; ezután egyszerű algebrai átalakításokkal beláthatjuk, hogy (24a) és (24b) pontosan ugyanazt adja, mint (26a), illetve (26b). Kérdés: miért elég ennek bizonyítása a két becslés egyenértékűségének a belátásához?

⁹ Ennek az iterációnak a tulajdonságai erősen függnek az egyes szórások értékeitől. Ajánlatos, hogy az Olvasó a konkrét mérés esetében közelebbről ismerkedjen meg vele. Általános tendencia, hogy a (25b) szerinti súlyozás csökkenteni igyekszik *a* becsült értékét.

Kimutatási határ

A kimutatási határ definíciójánál az urán mennyiség meghatározás alapjául szolgáló nettó impulzusszám háttérből való szignifikáns kiemelkedését kell biztosítani statisztikai kritériumok alapján, másként megfogalmazva azt kell eldöntenünk, hogy van-e effektus vagy nincs, és ennek a döntésnek a mennyiségi megalapozását kell megadnunk. A döntés során alapvetően kétféle hibát követhetünk el. Az első az úgynevezett elsőfajú hiba melynél azt feltételezzük, hogy a mért összegzett intenzitás egy része a minta urán tartalmától származik, pedig csak a háttér pozitív fluktuációjáról van szó. Másodfajú hibát akkor követünk el, ha mért impulzusszám egy része urántól származik, de úgy gondoljuk hogy ez csak a háttér véletlen fluktuációja.

Az elsőfajú hiba ellen bizonyos megbízhatósági szinten - centrált normális zaj feltételezéssel - , úgy védhetjük magunkat, hogy a hasznos jel komponenstől elvárjuk, hogy a háttér szórását a konfidencia szinttől függő mértékben haladja meg.

$$L_{c1} = k_1 \sigma_h = k_1 \sqrt{N_h}$$

Ahol k1 az elsőfajú hibára vonatkozó szignifikancia szinttől függő egyoldali kvantilis.

A másodfajú hiba valószínűsége általában valamilyen konkrét ellenhipotézis formájában fogalmazható meg. Itt ésszerű kiindulás az, hogy feltételezünk egy L_{c2} nagyságú nettó effektust, melynek meg kell haladnia az előbb definiált L_{c1} szintet olyan mértékben, hogy az alá L_{c2} bizonyos szintű negatív fluktuációi révén se kerülhessen. Azaz L_{c2} legyen L_{c1} plusz L_{c2} szórásának megfelelő kvantilissel vett szorzata:

$$L_{c2} = L_{c1} + k_2 \sqrt{\sigma_{L_{c2}}^2 + \sigma_h^2}$$

Ahol k_2 a másodfajú hibára vonatkozó szignifikancia szinthez tartozó kvantilis. Ha $k_2 = k_1$ feltételből indulunk ki (ettől való eltérés a kétféle hibából eredő kockázat alapján lehetséges), akkor a háttérből még szignifikánsan kiemelkedő impulzusszám:

$$L_{c2} = k^2 + 2L_{c1} = k^2 + 2k\sqrt{N_h}$$

E mennyiséget kell a standardnál mérhető impulzusszámhoz hasonlítani, hogy a urán mennyiségre vonatkozó kimutatási határ értéket megkapjuk.

5. Ellenőrző kérdések

- 1. Mik a késő neutronok?
- 2. Ismertesse a késő neutronok keletkezési mechanizmusát!
- 3. Mik az anyamagok?
- 4. Mik a prompt neutronok?
- 5. Ismertesse a prompt neutronok keletkezési mechanizmusát!
- 6. Mi a különbség a prompt és a későneutronok energia eloszlása között?
- 7. Mi a periódus idő?
- 8. Mi a szerepe a késő neutronoknak a reaktor szabályzásban?

- 9. Ismertesse a késő neutronok mérésénél alkalmazott módszert
- 10. Milyen csoportokba sorolhatjuk a késő neutronokat és minek alapján?
- 11. Ismertesse az uránkoncentráció meghatározás elvét!

6. Irodalom

- 1. G. R. Keepin: Physics of Nuclear Reactors, Addison-Wesley Publishing Co., Massachusetts (1965)
- G. R. Keepin: Interpretation of Delayed Neutron Phenomena, J. Nucl. Energy, 7, 13 (1958)
- 3. G. R. Keepin, T. F. Wimmet, R. K. Zeigler: Delayed Neutron from Fissionable Isotopes of Uranium, Plutonium and Thorium, Phys. Rev., 107, 1044 (1957)
- 4. Kiss D., Quittner P., Neutronfizika, Akadémiai Kiadó, Budapest 1971.
- 5. Szatmáry Z., Bevezetés a reaktorfizikába, Egyetemi jegyzet (ELTE), 1991.