

2 Wprowadzenie w temat pracy.

Przyszłe konstrukcje reaktorów prędkich (FR) i reaktorów sterowanych akceleratorem (ADS) wymagają wielu badań i symulacji, które umożliwią zaprojektowanie instalacji o maksymalnej wydajności do produkcji energii lub do transmutacji szkodliwych odpadów promieniotwórczych. Całość tych zadań może się przełożyć na przyszłe metody składowania groźnych odpadów promieniotwórczych (HLW) jak i na ich ilość. [1], [2], [3]

Strumienie i widma neutronów są podstawowymi parametrami, jakimi są zainteresowani badacze reaktorów jądrowych. Są to parametry lokalne, tzn. zależne od miejsca w reaktorze. Ich dokładna znajomość jest w szczególności ważna w miejscach, w których dokonywane są napromienienia tzw. materiałów tarczowych lub ułożone są materiały przeznaczone do transmutacji. Strumień neutronów a właściwie gęstość strumienia neutronów określa się jako liczbę neutronów przechodzących we wszystkich kierunkach przez jednostkową powierzchnię w ciągu sekundy. Jednostką gęstości strumienia neutronów jest $[n/cm^2 * s]$. Poza różnicami w intensywności strumienia neutronów, bardzo ważną cechą neutronów jest ich energia (energia kinetyczna). Udział neutronów o różnych energiach w widmie jest cechą, której znajomość jest niezbędna do prawidłowego projektowania transmutatorów (reaktorów zajmujących się transmutacją odpadów). Jako widmo energetyczne należy rozumieć gęstość strumienia neutronów, przypadających na jednostkę energii (najczęściej na 1 MeV). Widmo energetyczne można również przedstawić dla danego przedziału energii np. od 20 do 50 MeV.[4]

Neutrony, podobnie jak promieniowanie gamma, nie niosą ładunku elektrycznego, a więc ich rejestracja wymaga wykorzystywania oddziaływania pośredniczącego, które wytworzy cząstki naładowane. Jednak w odróżnieniu od np. światła, które może spowodować np. reakcje chemiczną w emulsji fotograficznej, do rejestracji neutronów należy wykorzystać reakcje jądrowe, w wyniku których powstają np. elektrony lub protony. Sposób detekcji i jej wydajność silnie zależy od energii jak i od wielkości strumienia neutronów, które chcemy rejestrować. Przekroje czynne dla danych reakcji silnie zależą od energii cząstek. Stąd też istnieje mnogość różnych rozwiązań technicznych, różnych w zależności do obserwowanej energii cząstek. W przeciwieństwie do posiadających ładunek cząstek, na detekcję obojętnych elektrycznie neutronów kluczowy wpływ ma ich prędkość. Im jest ona mniejsza, tym neutron spędza więcej czasu w detektorze i ma większe prawdopodobieństwo wywołania reakcji, w wyniku której powstanie cząstka naładowana. Prawdopodobieństwo detekcji neutronu o energii dochodzącej nawet do kilku megaelektronowoltów jest odwrotnie proporcjonalne do prędkości neutronów.

Ze względu na bardzo trudne warunki, jakie panują wewnątrz rdzeni reaktorów oraz ograniczonej ilości miejsca, najlepszą metodą do kontrolowania i badania warunków tam panujących (strumień i rozkład neutronów) jest metoda aktywacyjna wykorzystująca reakcje progowe. Reakcje progowe to reakcje jądrowe, które zaczynają zachodzić od ściśle określonej minimalnej energii cząstek ją wywołujących. Dodatkową zaletą tej metody jest brak czułości na inne rodzaje promieniowania jonizującego i elektromagnetycznego. Detektory aktywacyjne, ze względu na niewielkie możliwe do uzyskania rozmiary, mają tą zaletę, że w minimalnym stopniu zaburzają badane pole neutronów, można je również umieścić w nawet bardzo niedostępnych miejscach (wolna przestrzeń wielkości milimetrów).

Uczestnicząc w eksperymentach można było poznać zalety i wady dotychczas wykorzystywanych detektorów jak i sposobów ich rozmieszczania wewnątrz badanego zestawu eksperymentalnego. Złoto jest jednym z najczęściej wykorzystywanych materiałów do wykonywania detektorów aktywacyjnych. Zwykle wykorzystuje się jednocześnie inne

rodzaje detektorów. Podstawową przyczyną wykorzystywania kilku różnych detektorów jest zwiększenie ilości kanałów (energii reakcji progowych) oraz uzyskanie pełnych wyników pokrywających, bez większych przerw, badany zakres energii. Na tej podstawie, można wyznaczyć wartości pola neutronów w badanym przedziale energii. W większości stosowanych detektorów nie można uzyskać dobrych wyników ze wszystkich kolejnych reakcji progowych i w analizowanym przedziale energii pojawiły by się przerwy. W przypadku złota teoretycznie można wykryć produkty 6-u reakcji progowych od (n,2n) do (n,7n), o energiach w szerokim zakresie od 8,1 do 45,7 MeV (Tab. 2.1). W praktyce, ze względu na bardzo małą intensywność linii gamma powstałych w wyniku reakcji (n,3n) oraz (n,5n), nie można wyznaczyć wydajności tych dwu reakcji [5]. Oznacza to, że analizując reakcje progowe dla złota należy bazować na wybiórczych danych pochodzących z co drugiej reakcji.

Reakcja	Energia Progowa [MeV]	Czas T/2
$^{197}\text{Au} (n,2n) ^{196}\text{Au}$	8,1	6,183 d
$^{197}\text{Au} (n,3n) ^{195}\text{Au}$	14,8	186,1 d
$^{197}\text{Au} (n,4n) ^{194}\text{Au}$	23,2	38,02 h
$^{197}\text{Au} (n,5n) ^{193}\text{Au}$	30,2	17,65 h
$^{197}\text{Au} (n,6n) ^{192}\text{Au}$	38,9	4,94 h
$^{197}\text{Au} (n,7n) ^{191}\text{Au}$	45,7	3,18 h
$^{197}\text{Au} (n,8n) ^{190}\text{Au}$	54,5	42,8 min
$^{197}\text{Au} (n,9n) ^{189}\text{Au}$	61,8	28,7 min
$^{197}\text{Au} (n,10n) ^{188}\text{Au}$	70,9	8,84 min

Tab. 2.1 Lista reakcji progowych dla Złota¹⁹⁷ [5], [6], [7].

Analizując kolejne rodzaje detektorów (dokładny opis znajduje się w rozdziale 3.3), można wnioskować, że idealną sytuacją była by możliwość wykorzystywania jednego typu detektora do analizy całego badanego zakresu energii.

Zaproponowano użycie do badań nowego materiału izotopu Itr-89. W przypadku itru występuje tylko jeden stabilny izotop w przyrodzie oraz posiada on serię reakcji progowych od (n,2n) do (n,6n) o energiach w przedziale od 11,5 MeV do 42,1 MeV (Tab. 2.2), które przy sprzyjających warunkach (możliwość wykonania pomiarów natychmiast po eksperymencie) można wszystkie zmierzyć i zanalizować. Energie tych reakcji progowych, co do wartości, są zbliżone do tych z kobaltu a przesunięte względem tych ze złota. Poza faktem, że Itr-89 można użyć jako samodzielny detektor pól neutronów, może on zastąpić kobalt i uzupełnić wyniki ze złota. Tylko jeden izotop Y-88 pochodzący z reakcji (n,2n) ma dość długi czas połowicznego rozpadu (ponad 100 dni), ale dwie linie gamma jakie powstają podczas jego rozpadu, mają bardzo dużą intensywność i są łatwe do detekcji przy użyciu detektorów germanowych, nawet przy krótkich czasach pomiaru (rzędu kilkunastu minut).

Biorąc pod uwagę te cechy w kolejnych eksperymentach zaczęto wykorzystywać detektory wykonane z itru. Z biegiem czasu nasza grupa zmieniła też sposób ich rozmieszczenia wewnątrz zestawu eksperymentalnego (aby uzyskać bardziej miarodajne wyniki), a także sam sposób wykonywania detektorów. Przebieg wszystkich eksperymentów, uzyskane wnioski oraz przykłady uzyskanych rezultatów, opisane zostaną w dalszych rozdziałach tej pracy.

Reakcja	Energia Progowa [MeV]	Czas T/2
$^{89}\text{Y} (n,\gamma) ^{90}\text{Y}$	0	3,19 h
$^{89}\text{Y} (n,2n) ^{88}\text{Y}$	11,5	106,65 d
$^{89}\text{Y} (n,3n) ^{87}\text{Y}$	20,8	79,8 h
$^{89}\text{Y} (n,4n) ^{86}\text{Y}$	32,7	14,74 h
$^{89}\text{Y} (n,5n) ^{85}\text{Y}$	42,1	2,68 h
$^{89}\text{Y} (n,6n) ^{84}\text{Y}$	54,4	39,5 min
$^{89}\text{Y} (n,7n) ^{83}\text{Y}$	63,7	7,08 min
$^{89}\text{Y} (n,8n) ^{82}\text{Y}$	76,8	9,5 s
$^{89}\text{Y} (n,9n) ^{81}\text{Y}$	85,6	70,4 s
$^{89}\text{Y} (n,10n) ^{80}\text{Y}$	98,3	35 s

Tab. 2.2 Lista reakcji progowych dla Itru⁸⁹. Wartości do (n,6n) pochodzą z eksperymentów, powyżej są wyliczone [7], [8].

Poniżej zostaną opisane (w skróconej formie) sposoby detekcji neutronów, aby uzasadnić wykorzystywanie do analizy strumieni neutronów o wysokiej energii metody aktywacyjnej z wykorzystaniem reakcji progowych.

Z powodu neutralności elektrycznej neutronów, wszystkie techniki ich detekcji muszą opierać się na reakcjach jądrowych lub rozpraszaniu. Jeśli mechanizm danej reakcji (oddziaływania) jest dobrze znany (procesy fizyczne i przekroje czynne), to informacje na temat neutronów możemy dostać badając produkty tych reakcji [9]. Ogólnie metody detekcji neutronów możemy podzielić na aktywne i pasywne [10] lub idąc za podziałem opisanym w artykule [11] możemy wydzielić siedem technik powiązanych z energią neutronów:

1. Rozpraszanie neutronów i pomiar energii odrzuconych cząstek np.: ang. Recoil proportional Counter , Recoil Proton Telescope
2. Pomiar energii cząstek naładowanych uwolnionych w wyniku reakcji jądrowej z udziałem neutronów np.: ang. ³He Proportional Counter, Ionization Chambers, Semiconductors Cristals
3. Pomiar prędkości neutronów – ang. Time of Flight Method
4. Reakcje progowe wymagające (aby zajść) neutronów o pewnej minimalnej energii np.: ang. foil activation technique
5. Metody gdzie rozkład energii neutronów jest badany przez zestaw detektorów różniących się czułością na różne energie np.:ang. Bonner Sphere Spectrometer
6. Dyfrakcja neutronów
7. Metody, gdzie mierzony jest czas spowalniania neutronów w odpowiednim otoczeniu

Bardziej szczegółowy opis niektórych metod.

Typowa energia potrzebna do wytworzenia pary jonów w detektorze, to około 35 eV wynika stąd, że neutrony o energiach mniejszych od tej wielkości nie mogą powodować jonizacji bezpośredniej (jonizacja polega na wybijaniu – przenoszeniu ze stanu związanego do swobodnego – elektronów z poziomów lub pasm energetycznych atomów gazu lub ciała stałego).[12]

Do detekcji neutronów powolnych (termicznych) o bardzo małych energiach wykorzystuje się z reguły poniższe reakcje jądrowe. We wszystkich tych reakcjach produkowany jest proton albo cząstka alfa.

- 1) ${}^3_2\text{He} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + p$
- 2) ${}^{10}_5\text{B} + n \rightarrow {}^7_3\text{Li} + \alpha + 2,79\text{MeV}$
- 3) ${}^{10}_5\text{B} + n \rightarrow {}^7_3\text{Li}^* + \alpha + 2,31\text{MeV}$
 ${}^7_3\text{Li}^* \rightarrow {}^7_3\text{Li} + \gamma(0,48\text{MeV})$
- 4) ${}^6_3\text{Li} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + \alpha + 4,781\text{MeV}$

Reakcja nr 1) i 4) to procesy najczęściej wykorzystywane. Do detekcji neutronów termicznych przy użyciu gazowych detektorów proporcjonalnych, napelnia się je albo BF_3 wzbogaconym w izotop ${}^{10}\text{B}$ lub helem wzbogaconym w izotop ${}^3\text{He}$. Dla zapewnienia wysokiej wydajności detektora należy dysponować detektorem odpowiednio długim lub napelnić go gazem pod odpowiednio wysokim ciśnieniem. Ze względu na wyższy przekrój czynny na absorpcję, detektory helowe są na ogół krótsze i wymagają niższych ciśnień. Dzisiejsze detektory w obszarze neutronów termicznych mają wydajności bliskie 100%. Ponadto odpowiedni układ elektryczny pozwala nie tylko zarejestrować neutrony, ale także miejsce jego rejestracji w detektorze. Detektor o takiej własności nosi nazwę detektora pozycyjnego.

Wszystkie detektory tego typu nie nadają się do detekcji neutronów prędkich, oraz nie mogą mierzyć zbyt dużych strumieni, gdyż mogą rejestrować tylko określoną liczbę reakcji w ciągu danego czasu (większy strumień może je uszkodzić). Najważniejszą cechą, która wyklucza je z większości pomiarów jest ich rozmiar. Nie można ich umieścić wewnątrz badanego zwanego obiektu (np. w kilku miejscach). W przypadkach takich, jak cykl eksperymentów „E+T”, detektor helowy mógł zostać użyty tylko do pomiaru neutronów poza zestawem (tło), w pewnej odległości od niego. Dodatkowo na czas tego pomiaru zmniejszono intensywność wiązki z akceleratora, aby nie uszkodzić detektora zbyt dużym strumieniem cząstek wtórnych (detektor nie mierzył cząstek padających bezpośrednio z akceleratora)

Komory rozszczepieniowe - detektory te wykorzystują zjawisko rozszczepienia zainicjowane pochłonięciem neutronu. Fragmenty rozszczepienia są właśnie tymi cząstkami które są odpowiedzialne za pierwotną jonizację ośrodka komory. Jako jąder rozszczepialnych można użyć izotopów ${}^{233}\text{U}$, ${}^{235}\text{U}$, ${}^{237}\text{Np}$, czy ${}^{239}\text{Pu}$. Konstrukcja detektora jest stosunkowo prosta. Na płytkę w detektorze naniesiona jest cienka warstwa materiału rozszczepialnego. Gaz w komorze powinien mieć niewielką objętość, natomiast ciśnienie powinno oscylować w okolicach kilku MPa. Gazem roboczym może być np. Ar. Typowe grubości materiału rozszczepialnego są niewielkie i wynoszą około $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Tak więc wydajności tego typu detektorów nie mogą być duże, gdyż przez tak cienkie warstwy większość neutronów przeniknie bez wywołania rozszczepienia. Wynoszą one na ogół około 1%. Niska wydajność może być jednak zaletą, jeśli chce się monitorować strumień wiązki lub użyć takiej komory do pomiaru strumienia neutronów wewnątrz reaktora. Przy silnych strumieniach bowiem czas martwy typowego licznika gazowego jak BF_3 nie będzie pozwalał na zarejestrowanie wszystkich neutronów.

Detektory śladowe (Solid State Track Detector) – detektory te podobnie, jak powyższe wykorzystują zjawisko rozszczepienia materiału tarczy pod wpływem neutronów. Fragmenty ciężkiego jądra padają na cienką warstwę innego materiału (folia, mika, klisza) i wybijają w nich mikro otworki. Ilość, kształt i głębokość tych otworków można użyć jako parametrów do wyznaczenia strumienia i energii neutronów.

Detektory aktywacyjne - Detektory aktywacyjne są to detektory, w których pod wpływem promieniowania pewna liczba jąder atomowych ulega aktywacji i zmienia się w izotop promieniotwórczy, których obecność możemy mierzyć detektorami gamma. Jedną z metod pomiaru gęstości strumienia neutronów w reaktorze, w całym zakresie widma

energetycznego, jest metoda detektorów aktywacyjnych. Specjalnie dobrane materiały, o dobrze znanych przekrojach czynnych na reakcje z neutronami, są poddane napromienianiu w polu neutronów, gdzie w wyniku reakcji jądrowych powstają izotopy promieniotwórcze. Mierząc aktywność, czyli szybkość rozpadu promieniotwórczego takich izotopów można określić gęstość strumienia neutronów w miejscu napromienienia materiału. Do pomiarów aktywności detektorów wykorzystuje się promieniowanie gamma, pochodzące z rozpadów powstałych izotopów radioaktywnych.[9]

Najczęściej stosowanymi detektorami aktywacyjnymi w zakresie neutronów termicznych i epitermicznych są złoto i kobalt (Au, Co), które charakteryzują się względnie dużymi przekrojami czynnymi na reakcje wychwyty (n,γ), a także łatwymi do zmierzenia liniami promieniowania gamma, za pomocą detektorów półprzewodnikowych np. germanowych, które mają mniejszą czułość od scyntylacyjnych [13]. (Złoto i kobalt jest również wykorzystywane do detekcji neutronów prędkich).

Wśród metod pomiaru strumienia neutronów termicznych za pomocą detektorów aktywacyjnych można wymienić trzy:

- 1) Metoda dwóch różnych detektorów np. Au i Co. W tej metodzie dwa różne detektory są aktywowane w tym samym polu neutronów (należy unikać stykania się folii płaszczyznami, aby nie zwiększać efektu samo przesłaniania)
- 2) Metoda dwóch identycznych detektorów, z których jeden jest w osłonie kadmowej. Detektory są aktywowane w tym samym polu neutronów. Zróznicowanie odpowiedzi detektorów na neutrony termiczne i epitermiczne uzyskuje się dzięki temu, że kadm pochłania neutrony termiczne. Osłona kadmowa powoduje zaburzenia strumienia neutronów w promieniu kilkudziesięciu milimetrów wokół osłony. Detektor Au, aktywowany bez filtra, nie może się znajdować w tym samym miejscu reaktora, co detektor aktywowany w osłonie. Aby uniknąć tej niejednoznaczności można zastosować trzy metody:
 - oprócz dwóch detektorów Au (jednej w osłonie Cd) stosuje się jeszcze jeden detektor do pomiaru względnego rozkładu gęstości strumienia neutronów termicznych np. drut Cu lub Al-Co. Pomiar względnego rozkładu strumieni pozwala na odniesienie strumieni neutronów termicznych do określonej pozycji rdzenia.
 - napromienienie detektorów w takim miejscu rdzenia, w którym nierównomierności strumieni neutronów są zanedbywalnie małe. Metoda ta w bardzo poważnym stopniu ogranicza miejsca pomiaru strumieni.
 - prowadzenie aktywacji obu detektorów w tym samym miejscu, lecz w różnym czasie. Metoda jest mało przydatna ze względu na dodatkowe błędy pomiarowe jak również na znaczne wydłużenie czasu, potrzebnego na aktywowanie detektorów.
- 3) Metoda pojedynczego detektora aktywacyjnego, wymagająca znajomości indeksu epitermicznego np. Au, Co, stop AlCo. Zalecane jest stosowanie przy tej metodzie detektora kobaltowego, ponieważ indeks epitermiczny może być znany z małą dokładnością. W tym przypadku udział aktywacji rezonansowej jest niewielki i błąd pomiaru nieznacznie wpływa na wartość strumienia neutronów.

Detektory progowe - do pomiaru strumieni neutronów prędkich wykorzystuje się tzw. reakcje progowe jak np. (n,p) , (n,α) , $(n,2n)$. Przekroje czynne na te reakcje charakteryzują się tym, że mają wartość zerową poniżej pewnej energii neutronów, czyli tzw. energii progowej. Wartości tych przekrojów są na ogół niewielkie (rzędu 1 barna) [14] i efekt wypalania detektora można pominąć. Detektory te można stosować: przy dużych gęstościach strumienia neutronów, stosować wielokrotnie, stosować przez długi czas. Jednocześnie użycie kilku różnych detektorów progowych pozwala na wyznaczenie większej ilości parametrów

poszukiwanego widma. Pomiar widm neutronów prędkich za pomocą kilku detektorów są kosztowne i pracochłonne. Nie są powszechnie stosowane chyba, że w badaniach naukowych i w sytuacjach, kiedy żadna inna metoda nie nadaje się do wykorzystania. Najczęściej stosowaną metodą pomiaru widma neutronów prędkich za pomocą pojedynczego detektora progowego jest detektor (Ni). Reakcja progowa $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ charakteryzuje się stosunkowo dużym przekrojem czynnym i względnie niską energią progową (0,76 MeV). Ponadto pomiar aktywności ^{58}Co jest prostym pomiarem spektrometrycznym, prowadzonym za pomocą detektora półprzewodnikowego. Aktywację detektora prowadzi się najczęściej przez czas znacznie krótszy od okresów rozpadu ^{58}Co . Innymi powszechnie wykorzystywanymi materiałami do detekcji neutronów prędkich są: złoto, kobalt, bizmut, aluminium, miedź, żelazo, nobium, itr. Detektory progowe nadają się do detekcji neutronów o energiach wyższych od kilku MeV.

Detektory progowe, wykonane z itru, stanowią główną treść niniejszej pracy.