

۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

## محاسبه‌ی پارامترهای شار نوترون ( $\alpha$ و $f$ ) در راکتور مینیاتوری اصفهان (MNSR) با استفاده از

### روش استانداردسازی $K_0$

ترابی، شیوا\* - شغایی، محمدعلی - رضوانی فرد، مهدی - سلیمانی، بهرام

دانشگاه یزد، دانشکده فیزیک یزد

سازمان انرژی اتمی اصفهان، مرکز تحقیقاتی و تولید سوخت، بخش راکتور مینیاتوری

#### چکیده:

روش استانداردسازی  $K_0$ ، یک روش تک مقایسه‌ای، از انواع نسبی آنالیز فعال‌سازی نوترونی ( $K_0$ -INAA) است که از آن برای بدست آوردن غلظت عناصر با دقت بالا و تعیین شارش گرمایی ( $\phi_{th}$ ) و شارش فوق گرمایی ( $\phi_{epi}$ ) استفاده می‌شود. برای استفاده از این روش پارامترهایی همچون نسبت شارش گرمایی به فوق گرمایی ( $f$ ) و فاکتور شارش فوق گرمایی ( $\alpha$ ) مورد نیاز است که باید محاسبه شود. در این کار یکی از کانال‌های داخلی راکتور مینیاتوری چشمه‌ی نوترون اصفهان (MNSR) انتخاب و پارامترهای شار نوترون ( $\alpha$  و  $f$ ) برای آن، با استفاده از مجموعه مانیتورهای طلا ( $Au$ ) و زیرکونیوم ( $Zr$ ) محاسبه شد. **کلید واژه:** آنالیز فعال‌سازی نوترونی، استانداردسازی  $K_0$ ، پارامترهای شار، توزیع شار نوترون

#### مقدمه:

راکتور مینیاتوری چشمه‌ی نوترون اصفهان (MNSR)، راکتوری تحقیقاتی است و برای آنالیز به روش فعال‌سازی نوترونی (NAA)، مناسب‌تر از راکتورهای تحقیقاتی از انواع دیگر می‌باشد. راکتور MNSR دارای ایمنی ذاتی و قدرت کم، از نوع تانک استخری، آب طبیعی برای کند کننده و سردکننده، برلیوم به عنوان بازتابنده و شار  $10^{10}$  تا  $5 \times 10^{12}$  می‌باشد. قلب این راکتور از  $343$  میله‌ی سوخت تشکیل شده است که این میله‌ها با غنای  $90/2\%$  از اورانیوم  $235$  ساخته شده‌اند. در مرکز قلب یک میله‌ی کنترل از جنس کادمیوم با پوشش استیل وجود دارد که به صورت دستی و اتوماتیک قابل کنترل است. تعداد  $10$  عدد کانال پرتودهی داخلی و خارجی (لوله‌های ریبت) در راکتور وجود دارد که به دلایلی استفاده از تمام این کانال‌ها در حال حاضر امکان‌پذیر نمی‌باشد. تمام شرایط در

۱۶ و ۱۷ شهریور ۱۳۹۴، دانشگاه یزد

کانال‌های داخلی، از جمله شار با درصد خطای قابل قبولی یکسان بوده و این کانالها در حالت مقارنی نسبت به هم قرار گرفته‌اند و اختلاف این کانالها در عمل ناچیز است. [1,2]

روش NAA از لحاظ نوع عملکرد و روش عملی به دو دسته‌ی عمده‌ی مطلق و نسبی تقسیم می‌شود که روش استانداردسازی  $K_0$ ، یک روش نسبی تک مقایسه‌ای است، یعنی در عمل به‌جای استفاده از استانداردهای چند عنصری در روش نسبی، از یک مقایسه‌کننده‌ی تنها، معمولاً طلا، برای تمام عناصر استفاده می‌شود. [3] تکنیک  $K_0$  در طی سال‌های متمادی (دی کرت ۱۹۸۷، دی کرت و سایمونیتس<sup>۲</sup> ۱۹۸۹ و دی کرت ۱۹۹۸) تکامل یافته و به نتایجی با دقت بیشتر رسیده‌اند. [4]

برای تعیین نسبت شارش گرمایی به فوق گرمایی ( $f = \Phi_{th}/\Phi_{epi}$ ) و فاکتور شکل شارش فوق گرمایی ( $\alpha$ ) که در واقع همان انحراف توزیع شار نوترون فوق گرمایی از حالت ایده‌آل  $1/E$  (به صورت  $1/E^{1+\alpha}$ ) است، در کانال‌های تابش راکتور، از فاکتور  $K_0$  استفاده می‌شود [5]. با داشتن این دو پارامتر می‌توان هم غلظت عناصر را با تکنیک  $K_0$  تعیین نمود و هم شارش گرمایی و فوق گرمایی را با دقت بالایی محاسبه کرد. که البته برخی از کشورهای دارای راکتور تحقیقاتی این پارامترها را برای کانال‌های تابش خود مشخص کرده‌اند و به‌عنوان ثابتی در کارهای پژوهشی بعدی استفاده می‌کنند [6,7]. هدف ما هم در این مقاله محاسبه‌ی  $f$  و  $\alpha$ ، به منظور رسیدن به حداکثر دقت منطقی برای توزیع شار نوترون به روش  $K_0$  در کانال‌های تابش راکتور مینیاتوری اصفهان می‌باشد.

فرمول‌بندی فاکتور  $K_0$  بر اساس رهیافت هاگدال (رهیافتی بر مبنای تقسیم طیف انرژی به دو قسمت گرمایی و فوق گرمایی و محاسبات آهنگ واکنش بر اساس این تقسیم‌بندی) به صورت زیر است:

$$K_{0,m}(a) = \frac{M_m \gamma_a \theta_a \sigma_{0,a}}{M_a \gamma_m \theta_m \sigma_{0,m}} \quad (1)$$

که در آن  $a$  نشان دهنده‌ی آنالیت یا نمونه‌ی مورد نظر برای ارزیابی و  $m$  نشان دهنده‌ی مانیتور یا عنصر مقایسه‌گر است. البته در فرمول ایزوتوپ‌های زیرکونیوم در نقش آنالیت هستند. همچنین  $M$ ، وزن اتمی بر حسب گرم بر مول،  $\gamma$ ، فراوانی گامای مورد اندازه‌گیری،  $\theta$ ، فراوانی نسبی ایزوتوپ هدف و  $\sigma_0$ ، سطح مقطع گیراندازی نوترون گرمایی می‌باشد. [8] به طور معمول برای تعیین  $f$  و  $\alpha$ ، به روش  $K_0$  از مجموعه مانیتور Au-Zr (واکنش‌های  $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$ ،  $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$  و  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ ) استفاده می‌شود.

۱۶ و ۱۷ شهریور ۱۳۹۴، دانشگاه یزد

در رابطه بالا  $a$  نماد ایزوتوپ‌های زیرکونیوم ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{97}\text{Zr}$ ) و  $m$  نماد طلا ( $\text{Au}$ ) می‌باشد. برای محاسبه  $f$  و  $\alpha$  به ترتیب از روش‌های مانیتور دو ایزوتوپی لخت (منظور بدون پوشش کادمیوم) و مانیتور سه‌گانه‌ی لخت استفاده می‌کنیم.

رابطه‌ای که برای  $f$  داریم به صورت زیر است: [9]

$$f = \frac{G_{\text{epi},1} \frac{k_{0,\text{Au}}(1)}{k_{0,\text{Au}}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \cdot Q_{0,1}(\alpha) - G_{\text{epi},2} \frac{A_{\text{sp},1}}{A_{\text{sp},2}} \cdot Q_{0,2}(\alpha)}{G_{\text{th},2} \frac{A_{\text{sp},1}}{A_{\text{sp},2}} - G_{\text{th},1} \frac{k_{0,\text{Au}}(1)}{k_{0,\text{Au}}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}}} \quad (2)$$

$$(1) = ^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb} \quad , \quad (2) = ^{95}\text{Zr}$$

در رابطه‌ی بالا،  $G_{\text{epi}}$ ،  $G_{\text{th}}$  به ترتیب، ضرایب تصحیح خود حفاظی گرمایی و فوق گرمایی می‌باشند.

$$A_{\text{sp}} = \frac{N_p / t_c}{\text{SDC}w} \quad (3)$$

$A_{\text{sp}}$  نماد اکتیویته‌ی ویژه،  $N_p$ ، سطح خالص زیر پیک گامای اندازه‌گیری شده،  $t_c$ ، زمان شمارش،  $t_i$ ، زمان تابش،  $t_d$ ، زمان واپاشی،  $S$ ، فاکتور اشباع و برابر با  $1 - e^{-\lambda t_i}$ ،  $D$ ، فاکتور واپاشی و برابر با  $e^{-\lambda t_d}$ ،  $C$ ، فاکتور شمارش و برابر با  $\frac{1 - e^{-\lambda t_c}}{\lambda t_c}$  و  $w$ ، وزن نمونه بر حسب گرم است.

$\varepsilon_p$ ، بازده قله‌ی تمام انرژی آشکارساز و  $Q_0 = I_0 / \sigma_0$  می‌باشد که مقادیر آن در جداول موجود است.

به طریق مشابه رابطه‌ی  $\alpha$  از عبارت زیر به دست می‌آید:

$$(a - b)Q_{0,1}(\alpha) \frac{G_{\text{epi},1}}{G_{\text{th},1}} - aQ_{0,2}(\alpha) \frac{G_{\text{epi},2}}{G_{\text{th},1}} + bQ_{0,3}(\alpha) \frac{G_{\text{epi},3}}{G_{\text{th},3}} = 0 \quad (4)$$

$$a = \left\{ 1 - \frac{A_{\text{sp},2}}{A_{\text{sp},1}} \cdot \frac{k_{0,\text{Au}}(1)}{k_{0,\text{Au}}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \right\}^{-1} \quad ; \quad b = \left\{ 1 - \frac{A_{\text{sp},3}}{A_{\text{sp},1}} \cdot \frac{k_{0,\text{Au}}(1)}{k_{0,\text{Au}}(3)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,3}} \right\}^{-1} \quad (5)$$

$$(1) = ^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb} \quad , \quad (2) = ^{95}\text{Zr} \quad , \quad (3) = ^{198}\text{Au}$$

$$Q_0(\alpha) = \frac{Q_0 - 0.429}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0.429}{E_{\text{Cd}}^\alpha (2\alpha + 1)} (\text{leV})^\alpha \quad (6)$$

$$\bar{E}_r = \text{انرژی تشدید موثر}$$

جدول شماره (۱) داده‌های هسته‌ای برای عناصر مانیتور [5]

۱۶ و ۱۷ شهریور ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

$k_{0,Au}$	$\theta$	E (KeV)	$\bar{E}_r$ (eV)	Q <sub>0</sub>	مانیتور
$9/32 * 10^{-5}$	۴۴/۱۵	۷۲۴/۲	۶۲۶۰	۵/۰۵	$^{94}Zr(n,\gamma)^{95}Zr$
$1/15 * 10^{-4}$	۵۴/۵۰	۷۵۶/۷			
$1/30 * 10^{-5}$	۹۷/۹۰	۷۴۳/۳۳	۳۳۸	۲۴۸	$^{96}Zr(n,\gamma)^{97}Zr$
۱	۹۵/۵۰	۴۱۱/۸۰	۵/۶۵	۱۵/۷۱	$^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$

## روش کار :

پولک‌های با خلوص بالای طلا و زیرکونیوم، برای زدودن آلودگی از سطح شان، ابتدا با استون و سپس با آب مقطر شستشو داده و با ترازوی با دقت ۰/۱ میلی گرم توزین شده‌اند. پولک طلا (با ضخامت ۰/۰۱۸ میلی متر و جرم ۲/۷۲ میلی گرم) و پولک زیرکونیوم (ضخامت ۰/۳۰ میلی متر و جرم ۴۱/۴ میلی گرم) را جداگانه در ظرف‌های پلی اتیلنی کوچک قرار داده و درب آنها محکم بسته می‌شود.

به دلیل آن‌که با خطای قابل قبولی می‌توان تمام کانال‌های داخلی راکتور مورد استفاده را از نظر شرایط و ویژگی‌ها یکسان در نظر گرفت، کانال یک را انتخاب گردید.

راکتور راه‌اندازی شد و روی شار  $(n/cm^2.s) 10^{11} * 5$  قرار گرفت.

ابتدا ظرف پلی اتیلن حاوی نمونه طلا، جهت پرتوزاشدن توسط سیستم رایبیت به کانال تابش داخلی مورد نظر انتقال داده شد و برای مدت ۵ دقیقه در معرض تابش قرار گرفت. بعد از خروج نمونه‌ی طلا از کانال تابش، ظرف پلی اتیلن حاوی نمونه‌ی زیرکونیوم به طریق مشابه به همان کانال تابش انتقال داده شد و به دلیل سطح مقطع پایین زیرکونیوم برای نوترون‌های گرمایی، این بار نمونه را به مدت ۵ ساعت و ۲ دقیقه در معرض تابش قرار گرفت. زمان‌های پایان پرتودهی نمونه‌ها ثبت گردید. پس از اتمام زمان‌های پرتودهی، نمونه‌ها توسط سیستم‌های انتقال نمونه وارد محفظه‌های سربی گردیده و در آن‌جا نگهداری شدند. زمانی که پرتوزایی نمونه‌ها کاهش یافت، نمونه‌ها از حفاظ سربی خارج گردیدند. (در این حال زمان مرده باید به حدود ۴٪ رسیده باشد).

هر نمونه با کمک سیستم‌های انتقال نمونه به روی آشکارساز نیمه هادی ژرمانیوم فوق خالص (HPGe)، برای طیف‌گیری گاماها ساطع شده از نمونه، فرستاده و فاصله نمونه‌ها از سر آشکارساز ۱۳ سانتی متر تنظیم شد. برای یافتن مساحت‌های

۱۶ و ۱۷ شهریور ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

زیر پیک طیف اشعه‌های گاما از برنامه span استفاده نموده و با کمک مساحت‌های بدست آمده و زمان‌های تابش، واپاشی و شمارش و همچنین وزن نمونه‌ها، اکتیویته‌های ویژه محاسبه گردید.

## نتایج:

با فرمول‌های ذکر شده و با استناد بر جداول ثابت‌های هسته‌ای که در متن نیز آورده شده‌اند، مقادیر  $\alpha$  و  $f$  در کانال مورد نظر در راکتور مینیاتوری اصفهان محاسبه شد. در جدول زیر مقادیر محاسبه شده در کنار مقادیر این پارامترها در راکتورهای مینیاتوری دیگر، با مجموعه مانیتور یکسان، آورده شده است.

جدول شماره (۲) مقادیر  $\alpha$  و  $f$  در راکتورهای مینیاتوری مختلف [10]

$\alpha$	$f$	راکتورهای مینیاتوری (MNSR)
-۰/۱۲۳۴	۲۸/۵۹	راکتور مینیاتوری اصفهان
-۰/۰۴۰۲	۲۲/۲۲	راکتور مینیاتوری پاکستان
-۰/۱۰۴	۱۸/۸	راکتور مینیاتوری غنا

## بحث و نتیجه‌گیری:

با توجه به اینکه مقدار شار، فاصله از آشکارساز و شرایط تجربی دیگر، در تعیین مقادیر  $\alpha$  و  $f$  موثر هستند، و این که این پارامترها تنها در یک کانال و با فرض یکسانی و تقارن کانال‌ها محاسبه گردیده، همچنین با در نظر گرفتن این نکته که مجموعه مانیتورهای متفاوت، در زمان‌های تابش کوتاه و بلند، منجر به مقادیر مختلفی برای  $\alpha$  و  $f$  می‌شوند، این پارامترها محاسبه شده است. می‌توان در کارهای بعدی، کانال‌های دیگر را هم در نظر گرفت و یا از مجموعه مانیتور مناسب دیگری استفاده کرد که در شرایط تجربی نسبت به مجموعه  $Au+Zr$  عملکرد بهتری داشته باشد و خطاهای تجربی مربوط به این مجموعه را کمتر کند. از جمله این خطاها می‌توان به نیمه عمر کوتاه  $^{97}Zr$  و یا مشکلاتی که فوتون‌ترونها ساطع شده از بازتابنده‌ی برلیوم برای  $^{95}Zr$  ایجاد می‌کنند، همچنین مقادیر کم فاکتور  $K_0$  برای هر دو ایزوتوپ عنصر زیرکونیوم، اشاره کرد.

انتخاب جرم‌های مساوی برای هر یک از عناصر موجود در مانیتور نیز می‌تواند در ساده‌سازی داده‌ها و سهولت محاسبات تاثیر بسزایی داشته باشد. [11]

۵ و ۶ اسفندماه ۱۳۹۴، دانشگاه یزد

## مراجع :

- ۱- عاطفه سهرابی، احمد شیرانی، ایرج شهابی، نجمه انجمنی، محاسبه توزیع شار نوترون در طول کانال خشک رآکتور MNSR با استفاده از کد محاسباتی MCNP و مقایسه با نتایج تجربی، کنفرانس فیزیک ایران، ۱۳۷۸
- ۲- ایرج شهابی، توصیف عمومی رآکتور مینیاتوری، مرکز تحقیقاتی و تولید سوخت اصفهان، بخش رآکتور مینیاتوری، ۱۸-۱۳۷۷، ۶
- 3- F.De Corte, K<sub>0</sub> and comparator NAA: Influences and interactions, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.245, No.1, 157-161, 2000
- 4- R.N.Acharya, A.G.C.Nair, A.V.R.Reddy, S.B.Manohar, Validation of a neutron activation analysis method using K<sub>0</sub>-standardization, Applied Radiation and Isotopes, 57, 391-398, 2002
- 5- K.Embarch, M.Bounakhla, A.Bajja, M.Ibnmajah, R.jacimovic, B.Smodis, A.R.Byrne, A.Sabir, Instrumental neutron activation analysis of Moroccan geological samples using the k<sub>0</sub>-standardization method, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.261, No.1, 43-49, 2004
- 6- Khoo Kok Siong, Sukiman Sarmani, Amran Abudul Majid, Ti Kien Leong, Assessment of Neutron Flux Gradients in Irradiation Channels at the TRIGA Reactor Au-Cr-Mo Monitor Set Based on k<sub>0</sub>-INAA, Sains Malaysiana, 37, 4, 401-404, 2008
- 7- B.J.B.Nyarko, Y.Serfor-Armah, E.H.K.Akaho, A.W.K.Kyere, G.T.Odamtten, Reactor Neutron Activation Analysis of Lichens by K<sub>0</sub>-NAA Standardization method, International Journal of Pure and Applied Physics ISSN 0973-1776 Vol.1, No.2, 181-190, 2005
- 8- X. Lin, H. Gerstenberg, Ch. Lierse von Gostomski, R. Henkelmann, A. Türler, M. Rossbach, Determination of k<sub>0</sub>-values for the reactions <sup>94</sup>Zr (n, γ) <sup>95</sup>Zr and <sup>96</sup>Zr (n, γ) <sup>97</sup>Zr-<sup>97m</sup>Nb by irradiation in highly thermalized neutron flux, Applied Radiation and Isotopes, 2009
- 9- K.S.Khoo, S.B.Sarmani, I.O.Abugassa, Determination of thermal to epithermal neutron flux ratio (f), epithermal neutron flux shape factor (α) and comparator factor (F<sub>c</sub>) in the Triga Mark II Reactor, Malaysia, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.271, No.2, 419-424, 2007
- 10- E.H.K.Akaho, B.J.B.Nyarko, Characterization of neutron flux spectra in irradiation sites of MNSR reactor using the Westcott-formalism for the k<sub>0</sub> neutron activation analysis method, Applied Radiation and Isotopes, 57, 265-273, 2002
- 11- Marie Kubešová, Ivana Krausová, Jan Kučera, Verification of k<sub>0</sub>-NAA results at the LVR-15 reactor in Řež with the use of Au+Mo+Rb(+Zn) monitor set, JOURNAL OF RADIOANALYTICAL AND NUCLEAR CHEMISTRY, 1.42 · DOI: 10.1007/s10967-014-2991-7, 2014