Energiatudományi Kutatóközpont

Hosszú felezési idejű neutronaktivációs termékek szimulációja betonokban

Hajdú Dávid, Zagyvai Péter

XLVI. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam
Zalakaros, 2021.09.16.

Pannon Egyetem

1. Bevezetés

- Magyarországon több atomreaktor üzemel/létesítés alatt van:
  - Paks1, Paks2,
  - Budapesti Kutatóreaktor,
  - BME Oktatóreaktor,

  melyek leszereléséről majd gondoskodni kell.
- A beton védelmek nagy mennyiségű, potenciális radioaktív hulladékot jelentenek
- A veszélyességi mutató és az annak alapjául szolgáló izotópleltár meghatározása kulcsfontosságú

$$S = \sum_i \frac{AK_i}{REAK_i}$$

ahol:

- S (=HI „hazard index” =WI „waste index”) veszélyességi mutató
- REAK: Referencia (specifikus vagy általános mentességi) aktivitás-koncentráció [Bq/kg]
- AK: aktivitás-koncentráció [Bq/kg]
- <u>i: a hulladékcsomag radioizotópjai</u>

- Ehhez javasolt szimulációs kódok alkalmazása

2. Irodalmi áttekintés – hosszú felezési idejű izotópok

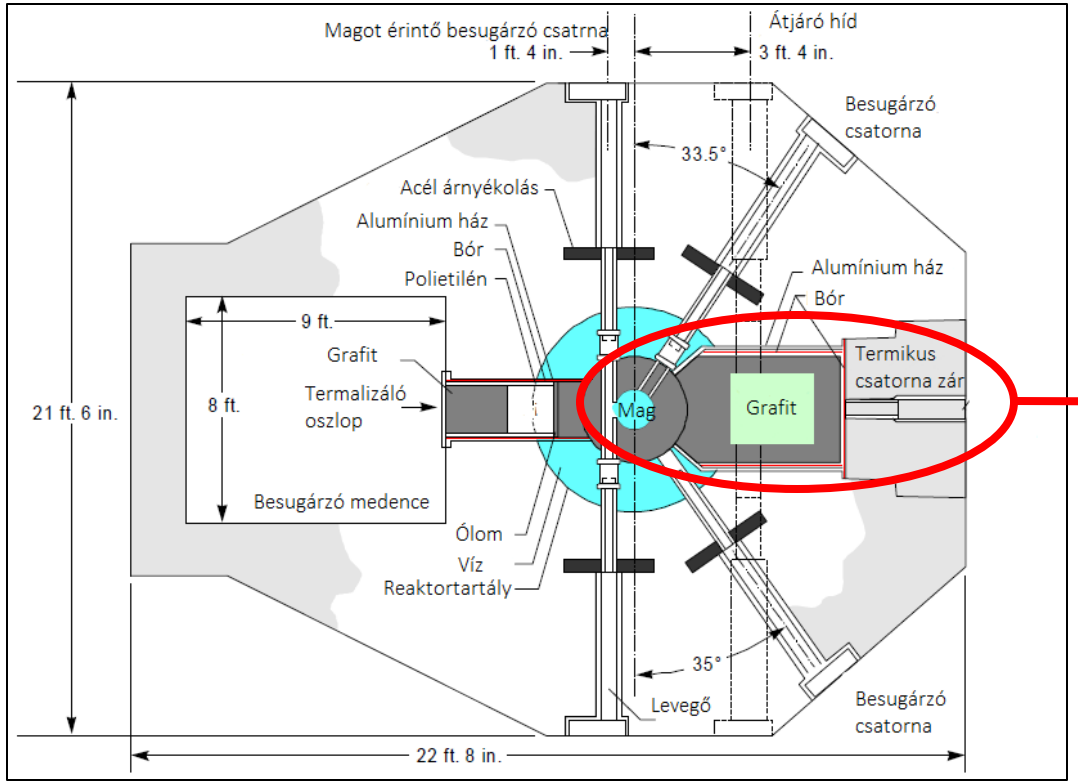
- Számos irodalmi gyűjtés elérhető a témában, változó részletességgel, például:
  M. Božič, T. Žagar, and M. Ravnik, "Calculation of Isotopic Composition During Continuous Irradiation and Subsequent Decay in Biological Shield of the TRIGA Mark II Reactor," in International Conference of Nuclear Energy in Central Europe - 2002, 2002, pp. 1–8.

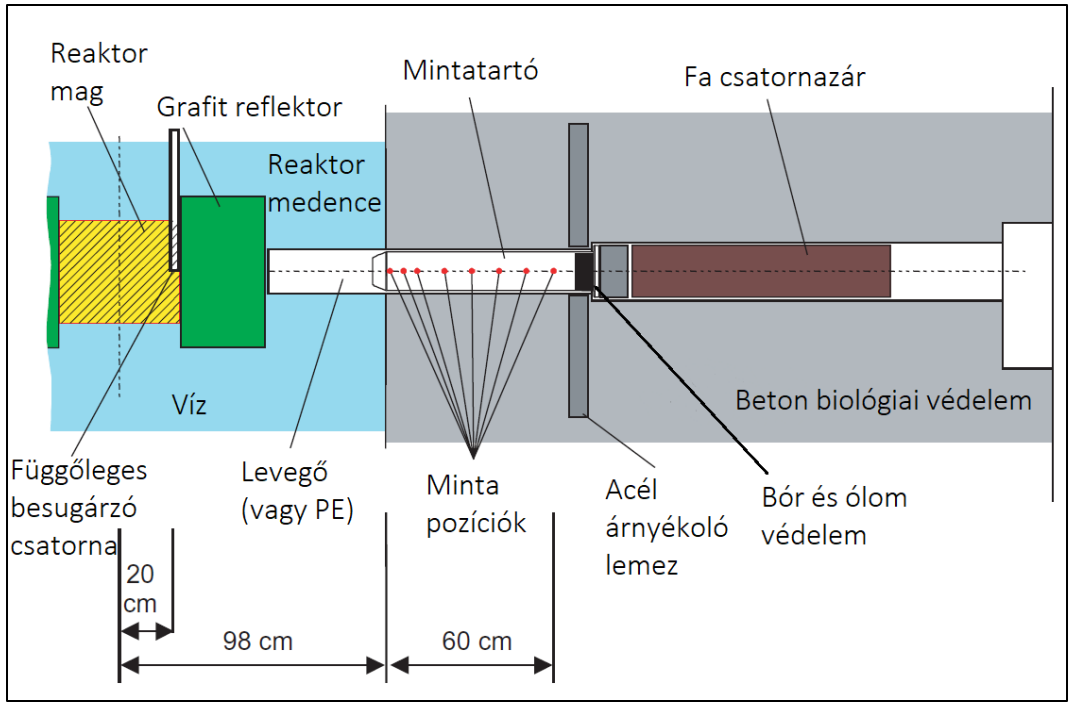
- Általános jellemzők:
  - nem következetesek, ad hoc válogatnak izotópokat
  - a hosszú felezési idő változatosan definiált
  - olykor gáznemű izotópokat is tartalmaznak
  - gamma-sugárzó izotópok felül reprezentáltak

Vegyjel	Rendszám	Reakciók és kiváltó részecskéik	Termék felezési ideje
Co	27	Co-59 (n,γ) Co-60 Termikus n. Ni-69 (n,p) Co-60 Gyors n. Cu-63 (n,α) Co-60 Gyors n.	5,27 év
Mn	25	Mn-55 (n,2n) Mn-54 Gyors n. Fe-54 (n,p) Mn-54 Gyors n.	313 nap
Zn	30	Zn-64 (n,γ) Zn-65 Termikus n. Zn-66 (n,2n) Zn-65 Gyors n.	244 nap
Cs	55	Cs-133 (n,γ) Cs-134 Termikus n. Ba-134 (n,p) Cs-134 Gyors	2,06 év
Eu	63	Eu-151 (n,γ) Eu-152 Termikus n. Gd-152 (n,p) Eu-152 Gyors n. Eu-153 (n,2n) Eu-152 Gyors n.	13,6 év
Eu	63	Eu-153 (n,γ) Eu-154 Termikus n.	8,8 év
Ca	20	Ca-40 (n,γ) Ca-41 Termikus n. Ca-42 (n,2n) Ca-41 Gyors n.	103.000 év
Ca	20	Ca-44 (n,γ) Ca-45 Termikus n. Ti-48 (n,α) Ca-45 Gyors n. Sc-45 (n,p) Ca-45 Gyors n.	162 nap
K	19	K-39 (n,γ) K-40 Termikus n. Ca-40 (n,p) K-40 Gyors n. Természetes radioizotóp	1,27E+9 év
Ar	18	K-39 (n,γ) Ar-39 Termikus n. Ar-40 (n,2n) Ar-39 Termikus n. K-39 (n,p) Ar-39 Gyors n. Ca-42 (n,α) Ar-39 Gyors n.	269 év
Ba	56	Ba-132 (n,γ) Ba-133 Termikus n. Ce-136 (n,α) Ba-133 Gyors n. Ba-134 (n,α) Ba-133 Gyors n.	10,7 év
Fe	26	Fe-54 (n,γ) Fe-55 Termikus n. Ni-58 (n,α) Fe-55 Gyors n.	2,73 év

2. Irodalmi áttekintés – reprodukálandó kísérlet sorozat

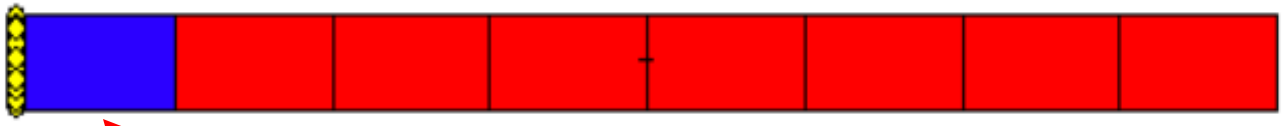
- Szimulációs tapasztalatszerzés céljából TRIGA kísérletsorozat reprodukálása
  T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, "Long-lived activation products in TRIGA Mark II research reactor concrete shield: Calculation and experiment," J. Nucl. Mater., vol. 335, no. 3, pp. 379–386, 2004.





3. A modell felépítése

- MCNPX és Cinder1.05 kódok használata
- 3 eset:
  - tükröző falú henger
  - betonnal körülvett henger
  - csupasz falú henger



Felaktiválódás vizsgálata barit beton hengerekben
r = 6,45 cm l = 10 cm

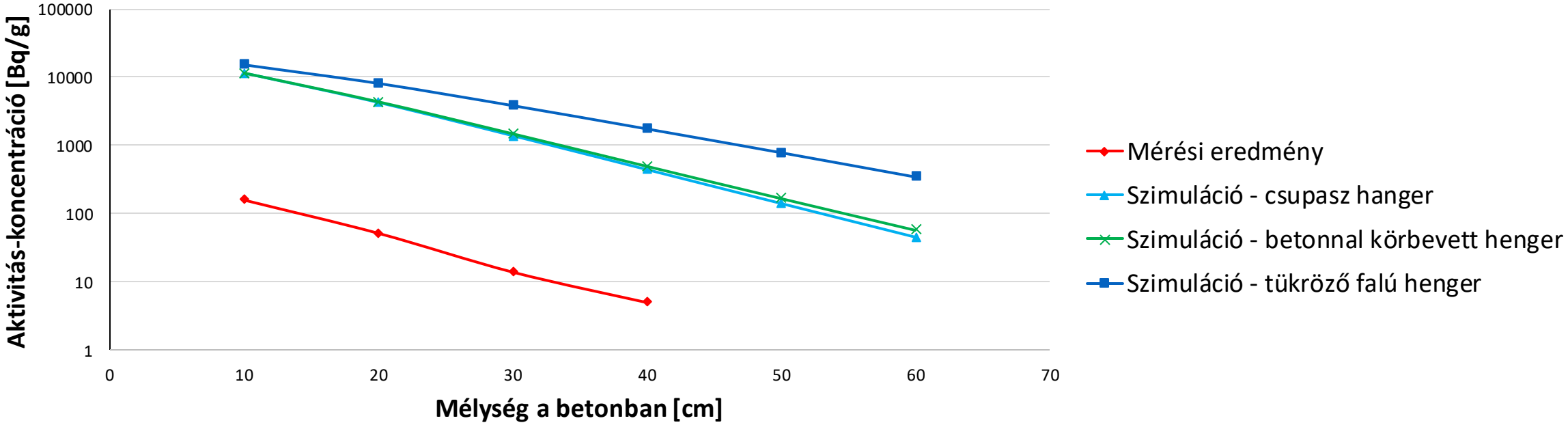
Levegő réteg

Forrás: henger alapú párhuzamosneutron nyaláb

4. Eredmények

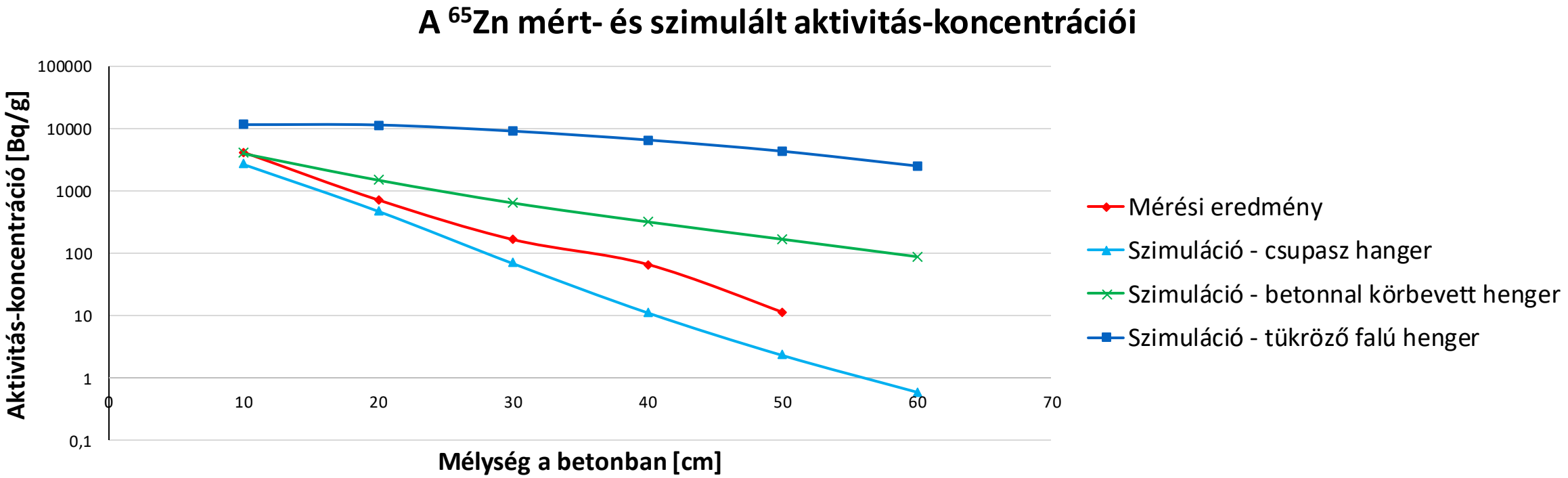
- A ^{54}Mn aktivitását a gyors neutronok ((n,p) reakció) határozzák meg, ezért nincs nagy különbség a csupasz- és a betonnal körbevett eset között
- A jelentős szimuláció általi felülbecslés
  - a gyors neutronok túl nagy arányára utalhatnak a kezdeti neutron spektrumban
  - a valószínűleg viszonylag pontatlan hatáskeresztmetszet könyvtárra vezethetők vissza

A ^{54}Mn mért- és szimulált aktivitás-koncentrációi



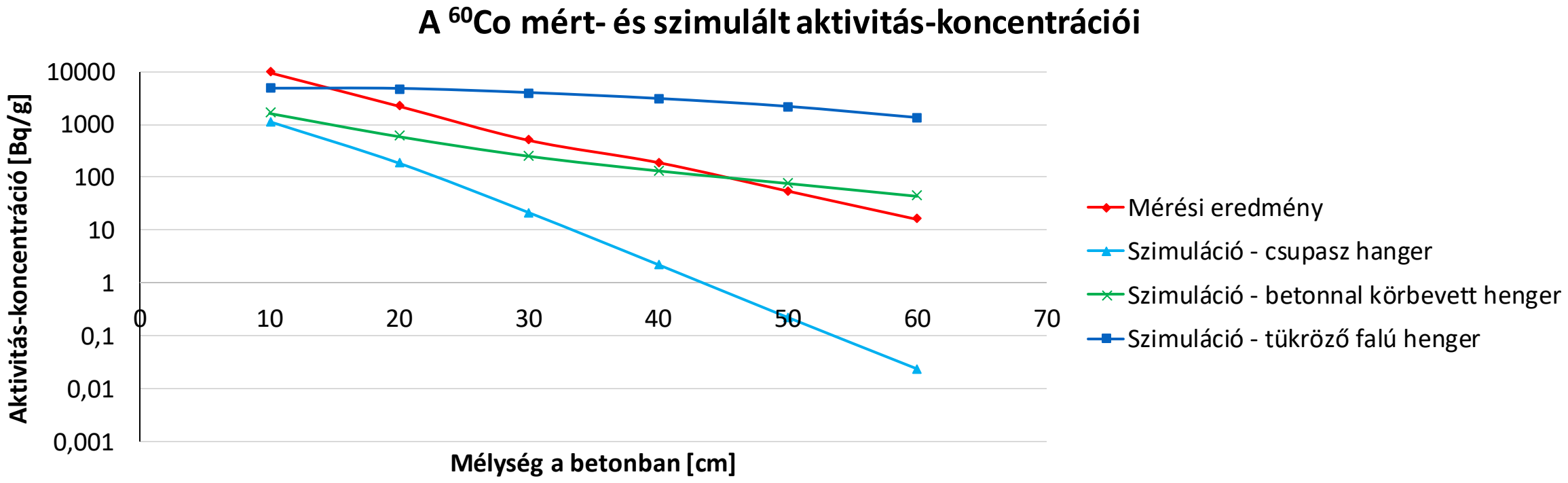
4. Eredmények

- A ^{65}Zn és a ^{134}Cs esetén hasonlóak voltak az eredmények: nagyon közeli kezdeti eredmények után a mérés a csupasz henger és a betonnal körbevett henger szimulációs eredményei közt fut
- A betonnal körbevett hengeres szimuláció és a mérési eredmény távolodása szintén a gyors neutronok túl nagy arányára utal a kezdeti spektrumban
- Az eredeti cikk szerzői hasonlópontossággal reprodukálták a mérést



4. Eredmények

- ^{60}Co, ^{133}Ba, ^{152}Eu és ^{154}Eu esetén hasonló eredmények
- A kezdeti szimuláció általi alul becslés a termikus neutronok hiányára utal a spektrumban
- Később a mérés és a betonnal körbevett hengeres szimuláció eredményei közelítenek egymáshoz



5. Összefoglalás

1. A Zagar és társai által írt cikksorozat eredményeinek reprodukálása nehézségekbe ütközött. Az eltérések forrása valószínűleg a kiindulási neutron spektrum eltrérése a valós neutron spektrumtól.

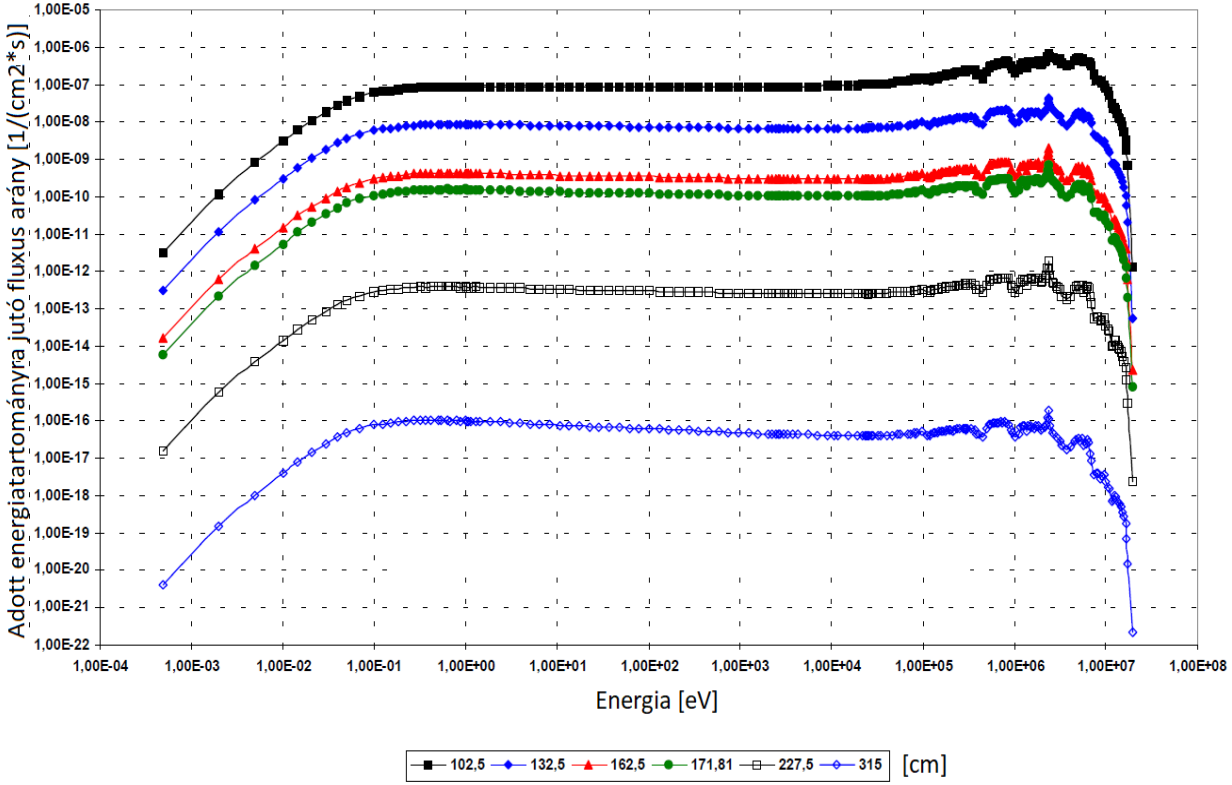
2. Neutron árnyékolásra használt betonok esetén nem egyértelmű a radioaktív hulladék indexet meghatározó radioizotópok köre, a terület további kutatást igényel.

Energiatudományi Kutatóközpont

Köszönjük a figyelmet!

Pannon Egyetem

Irodalomjegyzék

[1] G. Csom, *Atomerőművek üzemtana - 1. kötet*. Budapest: Műegyetemi Kiadó, 1997.
[2] D. B. Pelowitz, "MCNPX TM USER ' S MANUAL," no. April. LANL, 2011.
[3] J. T. Goorley *et al.*, "MCNP6 User's Manual, Version 1.0, LA-CP-13-00634," *Los Alamos Natl. Lab.*, no. LA-CP-13-00634, p. 765, 2013.
[4] P. M. W. B. Wilson, S. T. Cowell, T. R. England, A. C. Hayes, *A Manual for CINDER'90 Version 07.4 Codes and Data LA-UR-07-8412*. Los Alamos National Laboratory, 2008.
[5] "Paksi Atomerőmű." [Online]. Available: http://www.atomeromu.hu/hu/Lapok/default.aspx. [Accessed: 23-Oct-2020].
[6] "Oktatóreaktor - BME Nukleáris Technikai Intézet." [Online]. Available: http://www.reak.bme.hu/oktatoreaktor.html. [Accessed: 23-Oct-2020].
[7] "Budapesti Kutatóreaktor – Energiatudományi Kutatóközpont." [Online]. Available: https://www.ek-cer.hu/budapesti-kutatoreaktor/. [Accessed: 23-Oct-2020].
[8] "Nyitólap - Paks2." [Online]. Available: https://www.paks2.hu/. [Accessed: 23-Oct-2020].
[9] L. Szentmiklósi and Z. Kasztovszky, *Prompt gamma aktivációs analitikai gyakorlat*. Budapest: MTA Izotópkutató Intézet, 2010.
[10] D. Bódizs, *Atommagsugárzások méréstechnikái*. Budapest: Typotex, 2009.
[11] Glenn F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, no. 1. 2010.
[12] M. Fábián, J. Osán, and P. Zagyvai, *Magfizika*. Budapest: Edutus Főiskola, 2012.
[13] G. L. Molnár, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis : with Neutron Beams*. Springer US, 2004.
[14] I. A. E. A. IAEA, *IAEA-TECDOC-1285 Reference neutron activation library*, vol. 4, no. April. 2002.
[15] "1996. évi CXVI. törvény az atomenergiáról - Hatályos Jogszabályok Gyűjteménye." [Online]. Available: https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=99600116.tv. [Accessed: 23-Oct-2020].
[16] "487/2015. (XII. 30.) Korm. rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről - Hatályos Jogszabályok Gyűjteménye." [Online]. Available: https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=a1500487.kor. [Accessed: 23-Oct-2020].
[17] "27/2018. (II. 28.) Korm. rendelet az egyes atomenergetikai tárgyú kormányrendeletek módosításáról - Hatályos Jogszabályok Gyűjteménye." [Online]. Available: https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=A1800027.KOR&txtreferer=00000001.txt. [Accessed: 23-Oct-2020].
[18] H. Dong Sohn, K. Soo Park, H. Woong Kim, C. Woo Kim, Y. Hwan Hwang, and J. Young Yoon, "The study for activation evaluation on activated structures in nuclear power plant with 40 years operation history," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 141, p. 107305, 2020.
[19] D. Hajdú, E. Dian, E. Klinkby, C. P. Cooper-Jensen, J. Osán, and P. Zagyvai, "Neutron activation properties of PE-B4C-concrete assessed by measurements and simulations," *J. Neutron Res.*, vol. 21, no. 3–4, pp. 87–94, Jan. 2020.
[20] D. Hajdú, P. Zagyvai, E. Dian, K. Gméling, J. Osán, and E. Klinkby, "Betonok neutron aktivációjának kísérleti vizsgálata sugárvédelmi szimulációkhoz," in *Őszi Radiokémiai Napok 2019 konferenciakiadvány*, 2019, pp. 42-47.
[21] L. Szentmiklósi, D. Párkányi, and I. Sziklai-László, "Upgrade of the Budapest neutron activation analysis laboratory," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 309, no. 1, pp. 91–99, 2016.
[22] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, "Long-lived activation products in TRIGA Mark II research reactor concrete shield: Calculation and experiment," *J. Nucl. Mater.*, vol. 335, no. 3, pp. 379–386, 2004.
[23] T. Žagar and M. Ravnik, "Determination of long-lived neutron activation products in reactor shielding concrete samples," *Nucl. Technol.*, vol. 140, no. 1, pp. 113–126, 2002.
[24] V. Dean, H. C. Box, R. Jeraj, T. Žagar, and M. Ravnik, "Triga Mark Ii Reactor Benchmark," 2016.
[25] M. R. Tomaz Zagar, "Measurement of Neutron Activation in Concrete," in *International Conference of Nuclear Energy in Central Europe - 2000*, 2000, pp. 1–8.
[26] M. Božič, T. Žagar, and M. Ravnik, "Calculation of Isotopic Composition During Continuous Irradiation and Subsequent Decay in Biological Shield of the TRIGA Mark II Reactor," in *International Conference of Nuclear Energy in Central Europe - 2002*, 2002, pp. 1–8.
[27] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, "Neutron Activation Measurements in Research Reactor Concrete Shield," in *International Conference - Nuclear Energy for New Europe, Proceedings*, 2001, pp. 1–10.
[28] M. Lesar, T. Žagar, and M. Ravnik, "Estimation of Waste Volumes after TRIGA Mark II Research Reactor Dismantling," *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, pp. 779–786, 2003.
[29] T. Žagar, M. Ravnik, and H. Boeck, "Comparison of Long-Lived Activation in Concrete Samples from Three Different Reactors," *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, no. January 2003, pp. 125–131, 2003.
[30] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, "Calculation of Neutron Fluxes in Biological shield of TRIGA Mark II Reactor," in *International Conference - Nuclear Energy for New Europe, Proceedings*, 2001.
[31] M. Božič, T. Žagar, and M. Ravnik, "Comparison of Neutron Fluxes Obtained by 2-D and 3-D Geometry with Different Shielding Libraries in Biological Shield of the TRIGA MARK II Reactor," *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, pp. 105–116, 2003.
[32] G. Mckinney, *MCNPX User's Manual, Version 2.7.0*. 2011.
[33] "WebPlotDigitizer ." [Online]. Available: https://automeris.io/WebPlotDigitizer/?fbclid=IwAR1mMjUr8inZGjpTBEBwBHjmESaHT5TwbGkXYXVpFyM2fQjgE0Cou3YObsk. [Accessed: 10-Dec-2020].
[34] J. Lloyd *et al.*, "LA-UR-13-21822 - Listing of Available ACE Data Tables," 2014.

Fontos fejezetcím