

BETONOK FELAKTIVÁLÓDÁSÁNAK KÍSÉRLETI- ÉS SZIMULÁCIÓS VIZSGÁLATA AZ EURÓPAI NEUTRONKUTATÓ KÖZPONT (ESS) SUGÁRVÉDELMI TERVEZÉSÉHEZ

Hajdú Dávid^{*1,2}, Zagyvai Péter¹, Dian Eszter^{1,3}, Gméling Katalin¹

¹Energiatudományi Kutatóközpont, 1121 Budapest, Konkoly-Thérge M. út 29-33.

²Pannon Egyetem, Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék, 8200 Veszprém, Egyetem u. 10.

³European Spallation Source (ESS) ERIC, Svédország, 22592 Lund, Odarslövsvägen 113

*hajdu.david@ek-cer.hu

A kézirat beérkezett: 2021.01.17.

Közlésre elfogadva: 2021.04.19.

EXPERIMENTAL STUDY OF CONCRETES' ACTIVATION COMPARED TO SIMULATIONS FOR SAFETY OF THE EUROPEAN SPALLATION SOURCE (ESS)

A complex work on dose consequences of neutron activation was carried out for the European Spallation Source (ESS) ERIC by the Environmental Physics Laboratory of the Centre for Energy Research. A concrete type currently used at the site as construction material was investigated. The samples of the concrete were first irradiated in the Budapest Research Reactor and the decay of their activation products were followed by measurements with an HPGe detector. Composition of the samples were determined by neutron activation analysis (NAA) and prompt-gamma activation analysis (PGAA). Using this composition as input, irradiations were reproduced with MCNPX-Cinder1.05 simulation codes. Differences between measured and simulated activities were under 20% in general, thus the compiled material compositions can be used for dose assessment of neutron activation products and waste index estimations.

neutron activation measurement, activation simulation, concrete, MCNP Cinder

Az EK Környezetfizikai Laboratóriumának vezetésével átfogó kutatás készült az Európai Neutronkutató Központ (European Spallation Source (ESS) ERIC) számára az építkezésen használt beton neutron aktivációjának dóziskövetkezményeiről. A vizsgált betont először a Budapesti Kutatóreaktor két besugárzó csatornájában felaktiváltuk, majd HPGe detektor segítségével követtük az aktivációs termékek lecsengését. Neutronaktivációs analízissel (NAA) és prompt-gamma aktivációs analízissel (PGAA) a minták összetételét is meghatároztuk. Ezeket bemenő paraméterként felhasználva MCNPX-Cinder1.05 szimulációs kódok segítségével reprodukáltuk a besugárzásokat. A mért- és szimulált aktivitások közötti eltérés általában 20% alatt maradt, így a kutatás során összeállított beton anyagösszetétel felhasználható felaktiválódásból származó dózisok számításához, hulladékindex becsléshez.

neutronaktivációs mérés, felaktiválódás szimuláció, beton, MCNP, Cinder

BEVEZETÉS

Az Európai Neutronkutató Központ (European Spallation Source (ESS) ERIC [1] jelenleg gördülő tervezéssel épül a svédországi Lund városában. Mivel egyes épületrészek már elkészültek, így lehetőségünk nyílt mintát kapni a kivitelező Skanska cég által használt szabványos betonból (a későbbiekben: Skanska beton) [2]. A betonmintán teljes körű elemanalitikai vizsgálatot végeztünk, továbbá azonosítottuk azon elemek körét, melyek

neutronsugárzás hatására történő felaktiválódása problematikus lehet a személyzetet érő dózis vagy radioaktív hulladékkezelés szempontjából.

A kutatásnak több célja is volt. Egyrészt szerettünk volna egy olyan, mérésen alapuló összetételt rendelni a Skanska betonhoz, ami hozzájárulhat a még tervezés alatt álló épületrészek sugárvédelmi szimulációihoz, azok fejlesztéséhez, lehetővé téve a keletkezett gamma-sugárzó radioizotópok dóziszárulékainak minél pontosabb figyelembe vételét. Másrészt az általunk meghatározott összetétel a beton szerkezetek felaktiválódásának becsléséhez is felhasználható. Végül cél volt az is, hogy rámutassunk egy ilyen munka kritikus pontjaira, és egy általánosan használható eljárást dolgozzunk ki, amit alapul lehet venni egyéb betonok összetételének mérésalapú meghatározásához is. Ez már csak azért is fontos, mert a nukleáris reaktorok reaktortartálya körüli betonvédelmek – mint a leszerelés során radioaktív hulladékká váló anyagok – kezelésében is meghatározó a bennük keletkezett radioizotópok mennyisége, ami a kiindulási összetétel függvénye [3].

NEUTRONAKTIVÁCIÓS MÉRÉSEK

Mivel a kapott Skanska beton összetételére vonatkozóan nem álltak rendelkezésre információk, olyan mérési kombinációt szerettünk volna alkalmazni, mely mind a főkomponensekre, mind a felaktiválódás szempontjából fontos (nyom)elemekre kielégítő adatokat szolgáltat. Előbbit prompt-gamma aktivációs analízissel (PGAA) [4], utóbbit pedig neutronaktivációs analízissel (NAA) [5] valósítottuk meg a Budapesti Kutatóreaktorban (BKR) [6] a Nukleáris Analitikai és Radiográfiai Laboratórium segítségével. A mérési eredmények az 1. táblázatban láthatók. A három elem közül, melyek mindkét módszerrel mérhetőek voltak, a nátrium eredményei jó egyezést mutatnak, a vas és a szamárium esetében azonban a mérés bizonytalanságánál nagyobb az eltérés. Ez többek között arra vezethető vissza, hogy a betonok meglehetősen heterogén anyagok, és a két módszerrel nem pontosan ugyanazt a mintát mértük le.

1. táblázat: A Skanska beton PGAA és NAA módszerrel mért összetétele

Elem	PGAA	Szórás [%]	NAA	Szórás [%]
Főkomponensek [w%]				
H	0,35	2,1	0,56	3,8
C	0,55	57,1		
Na	0,55	2,7		
Al	2,59	2,6		
Si	34,12	1,3		
S	0,31	3,2		
K	1,28	2,6		
Ca	8,36	3,0	2,10	3,7
Ti	0,16	3,1		
Mn	0,05	3,2		
Fe	1,61	3,2		
O	50,46	2,4		
Nyomszennyezők [mg/kg]				
B	25,2	1,3	2,3	4,0
Cl	151	1,8		
Sm	1,73	1,9		
Gd	2,2	6,0	4,8	3,6
Sc				

Elem	PGAA	Szórás [%]	NAA	Szórás [%]
Cr			109,8	3,9
Co			7,7	4,1
Zn			65,7	8,0
Rb			65,9	7,8
Sb			1,3	11,3
Cs			1,1	10,9
Ba			404,7	5,9
La			14,6	3,9
Ce			38,9	4,2
Nd			17,3	9,1
W			174,7	3,8
Th			6,1	4,1
Eu			0,6	4,5
Hf			4,7	5,9
Tb			0,4	9,4
Yb			1,7	5,4
Ta			0,4	10,0

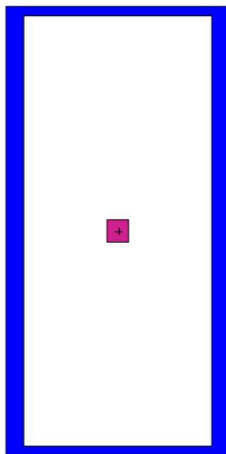
Az NAA mérések során egy-egy $\sim 0,1$ g tömegű mintát sugaraztuk be a BKR 'Termikus-' (17-es) és 'Gyors' csatornájában (47-es) 2–2 órán keresztül. A besugárzások alatt rendre $1,6 \cdot 10^{17}$ és $7,3 \cdot 10^{17}$ neutron fluens érte a mintákat. A felaktivált mintákban az izotópok bomlását 5–5 mérés HPGe detektoron követtük egy háromhetes időszak alatt, először 4 nap hűtés után végezve mérést. A mérési adatokból a bomlási egyenlet segítségével további hűtési időkre is számoltunk aktivitáskoncentráció értékeket. Az 1 és 5 éves bomlási időtartamra számolt értékek a radioaktív hulladék kezelés szempontjából fontos izotópokra mutattak rá. Emellett kiszámoltuk, hogy a t_0 időpillanatban – amely alatt a besugárzás végét értjük (a bomlás szempontjából ez a 0 időpont) – mennyi az egyes izotópok aktivitáskoncentrációja. Ezt mintegy referencia időpontként használtuk a szimulációkkal való összehasonlításához, így ezek az értékek megtalálhatók a 2. táblázatban. Mivel arra is szerettünk volna rámutatni, hogy mely izotópok igazán fontosak a felaktiválódás szempontjából, így meghatároztuk azt a 15 gamma-sugárzó izotópot (kulcsizotópot), melyek a mérés kezdetétől az 5 éves extrapoláció végéig folyamatosan az összaktivitás-koncentráció legalább 80%-áért feleltek, a sugárvédelmi szempontból kiemelten fontos időszakokban (néhány nap hűtés és legalább 1 év hűtés) pedig az összaktivitás-koncentráció legalább 90%-áért. A 2. táblázat csak ezen kulcsizotópokra vonatkozó információkat tartalmaz.

A MÉRÉSEK SZIMULÁCIÓS REPRODUKCIÓJA

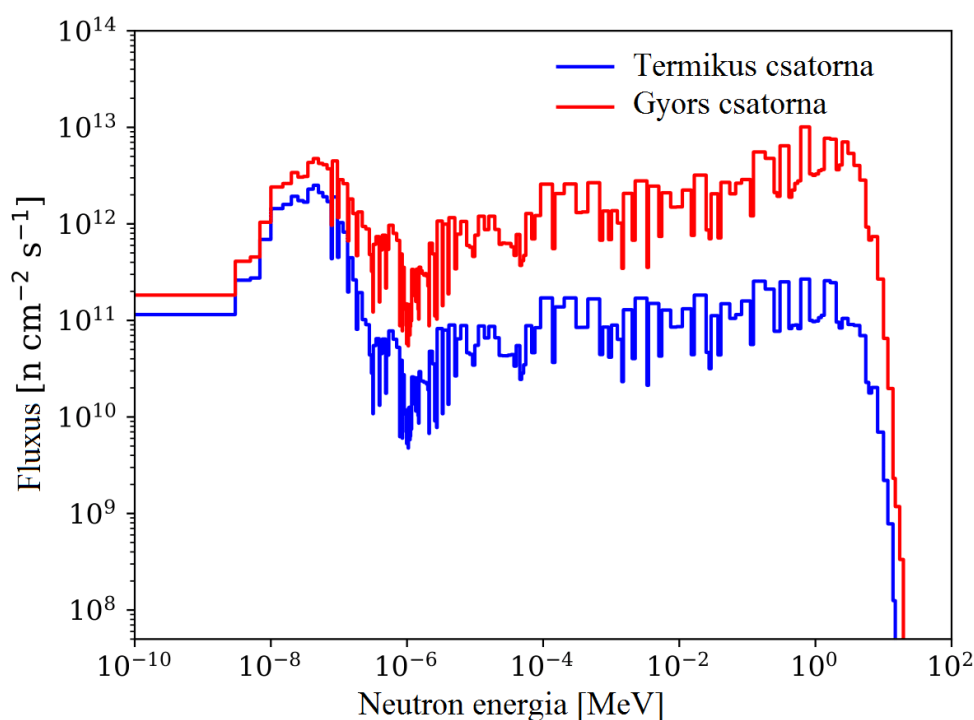
A Budapesti Kutatóreaktorban való besugárzásokat MCNPX [7] és Cinder1.05 [8] kódok segítségével reprodukáltuk. Ez a kódpár úgy működik, hogy először az MCNP Monte Carlo módszerrel kiszámítja a neutron fluxust a mintában. Ezt követően a Cinder analitikus számításokkal meghatározza a mintában található elemek felaktiválását és bomlását a megadott időpontokra. Harmadik lépésben a Cinder képes olyan gamma-sugárforrást is generálni, mellyel az MCNP dózist tud számolni utána, de ennek a tanulmánynak nem volt célja eljutni eddig.

A besugárzó csatornákat egy egyszerű elrendezéssel képeztük le, ami az 1. ábrán látható. Az alumínium mintatartót és a közepén lévő mintát egy 20x20x20 cm-es homogén térfogati neutronforrással vettük körbe. A neutronforrás intenzitása és energiaszórása eltérő volt a két

csatorna esetén. A fluxus adatokat a 2. ábra tartalmazza. Az anyagkártyák (anyagösszetételek) összeállítása a mérési eredmények alapján történt (1. táblázat). Amely mintákon PGAA és NAA mérés is történt, ott az NAA mérési eredményét használtuk. A szimulációkban a Skanska beton névleges sűrűségével, $2,33 \text{ g/cm}^3$ -rel számoltunk.



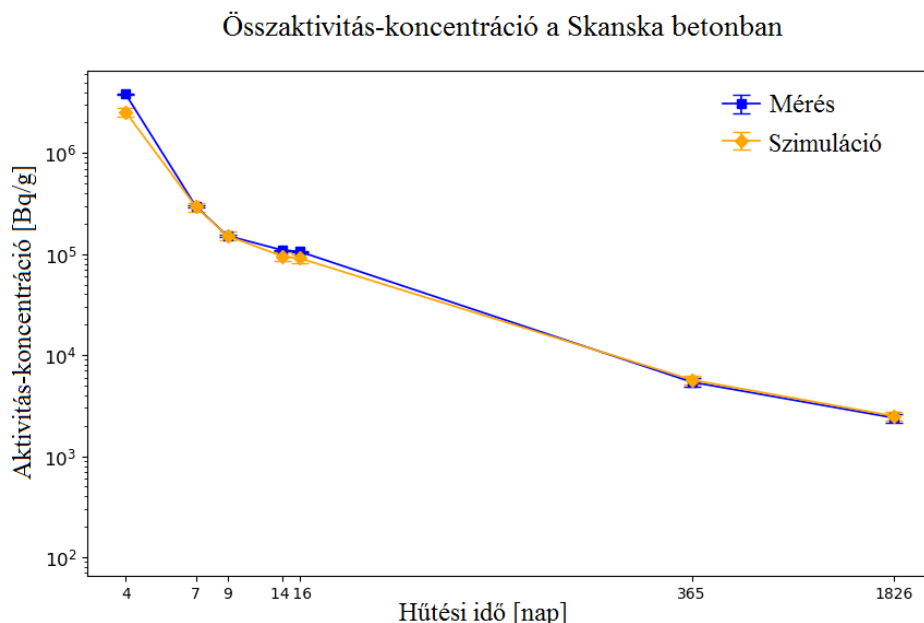
1. ábra: A szimulációk során alkalmazott besugárzási geometria. Kékkel jelöltük az alumínium mintatartót, ami 10 cm hosszú, 2,1 cm belső átmérőjű és 0,4 cm falvastagságú. Középen található a lila színnel jelölt minta, mely egy $0,5 \times 0,5 \times 0,5 \text{ cm}$ -es kocka.



2. ábra: Neutronspektrum a BKR Termikus- és Gyors csatornájában [6]

Először az összaktivitás-koncentrációk szimulációjának eredményeit hasonlítottuk össze a mérési eredményekkel. Mérések esetén ez a mért, 1 és 5 év esetén pedig a mérésekből extrapolált 28 izotóp aktivitáskoncentrációjának összegét jelentette, míg szimulációknál a 15 kulcsizotópét. Ezen a ponton kiemelnénk, hogy a Cinder nem túl felhasználóbarát az aktivációs termékek szűkítésének tekintetében. Jelen esetben összesen 1350 radioaktív

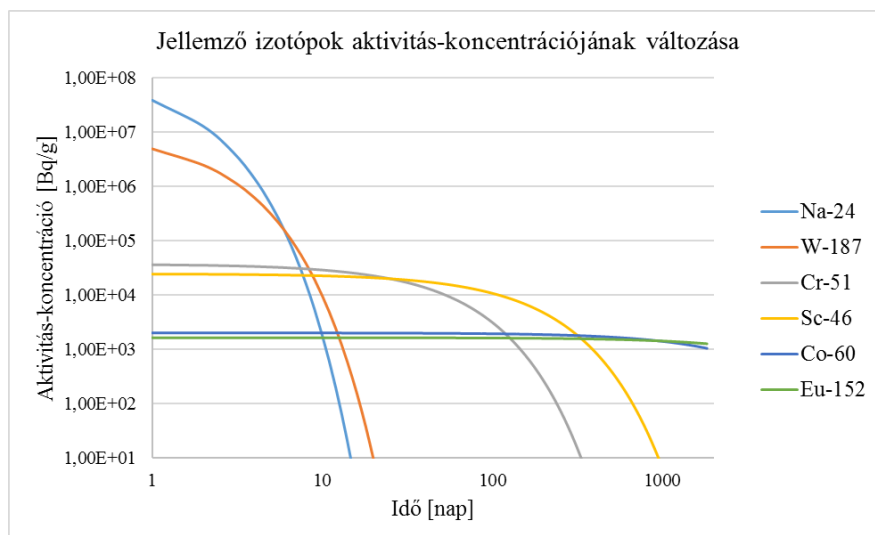
izotópot tartalmazott az eredmény táblázatunk, így fontos volt használni a kiértékelés során a mérések tapasztalatait, melyek lehetővé tették, hogy a valóban fontos és releváns izotópokkal tudjunk tovább dolgozni. A két adatsor a legtöbb pontban 5% alatti eltérést mutatott (3. ábra). Ez alól kivétel az első pont, ahol 33% volt az eltérés. Itt a problémát az jelenthette, hogy a nagy aktivitások nagy holtidőkhöz vezettek a HPGe detektorban, így a mérés viszonylag pontatlan volt, és ezt nem tükrözte kellőképpen a kiértékelő program által számított szórás. A 14 és 16 napos hűtési időknél 13–15% volt az eltérés. Ez körülbelül megfelel a szimuláció eredményébe bele nem számolt, nem kulcsizotópok mennyiségének.



3. ábra: A mért-és szimulált összaktivitás-koncentráció a Skanska betonban a Termikus csatornában való felaktiválás utáni 4. nap és 5. év között

Annak szemléltetésére, hogy az összaktivitás-koncentrációban hogyan változik az egyes izotópok szerepe, aránya, ábrázoltuk 6 jellemző izotóp aktivitás-koncentrációjának változását a Termikus csatornában történt besugárzás után szintén 5 éves távlatban. A radioizotópok közül kettő körülbelül az első 10 napban, kettő az első 100 napban, 2 pedig 1000 nap fölött járul hozzá jelentős mértékben az összaktivitás-koncentrációhoz (lásd 4. ábra).

Ezt követően a 15 kulcsizotóp aktivitáskoncentráció értékeit hasonlítottuk össze (lásd 2. táblázat). Az izotópok felezési idő szerint növekvő sorrendben szerepelnek a táblázatban (^{24}Na 15 óra $\rightarrow$ ^{152}Eu 13,5 év). Az összehasonlítást elvégeztük a Gyors- és a Termikus csatornában kivitelezett besugárzások esetében is. A mérés és szimuláció közötti eltérés általában 20% alatt maradt a ^{86}Rb -nál ($T_{1/2} = 18,63$ nap) hosszabb felezési idejű izotópokra. A nagyon rövid felezési idejű izotópoknál a nagyobb eltérések oka a már említett nagyon nagy kezdeti aktivitások okozta nagy holtidőből fakadó mérési bizonytalanság növekedés. A többi izotóp közül nagyobb eltérés tapasztalható egyrészt a ^{54}Mn esetén, mely valószínűleg a gyorsneutron-aktiváció (n,p) pontatlanabb szimulációjának következménye (míg a többi izotóp általában (n, γ) reakcióval keletkezett). Emellett a ^{233}Pa -nál volt nagyobb az eltérés. Ez sem „sima” (n, γ) reakcióval keletkezik, hanem az (n, γ) reakcióval keletkező ^{233}Th ($T_{1/2} = 22$ perc) leányeleme. Ez mind az elemi összetétel kiszámításában- mind a szimulációban okozott némi bonyolalmat és bizonytalanságot.



4. ábra: 6 jellemző izotóp aktivitás-koncentrációjának változása a Skanska beton Termikus csatornában történő 2 órás besugárzása után az 5 éves hűtési időtartam alatt

2. táblázat: A mérés- és szimuláció eredményének izotóponkénti összehasonlítása t_0 időpontban a meghatározó radioizotópok esetében

Izotóp	$T_{1/2}$	Termikus csatorna			Gyors csatorna		
		Mérés [Bq/g]	Szimuláció [Bq/g]	Eltérés [%]	Mérés [Bq/g]	Szimuláció [Bq/g]	Eltérés [%]
Na-24	15 óra	1,19E+08	1,52E+08	22	5,09E+08	4,07E+08	-25
W-187	24 óra	9,99E+06	9,16E+06	-9	5,36E+07	4,36E+07	-23
La-140	40 óra	4,72E+05	4,36E+05	-8	1,16E+06	1,20E+06	4
Sm-153	46 óra	5,59E+05	4,39E+05	-27	2,16E+06	2,56E+06	15
Yb-175	4,2 nap	6,03E+04	3,95E+04	-53	1,04E+05	1,02E+05	-2
Rb-86	19 nap	1,42E+04	1,44E+04	2	6,75E+04	8,41E+04	20
Pa-233	27 nap	6,49E+03	5,49E+03	-18	1,55E+04	2,82E+04	45
Cr-51	28 nap	3,74E+04	4,13E+04	9	9,18E+04	1,10E+05	17
Fe-59	45 nap	2,47E+04	2,16E+04	-15	6,00E+04	6,21E+04	3
Sc-46	84 nap	2,48E+04	2,67E+04	7	5,91E+04	7,02E+04	16
Zn-65	244 nap	1,20E+03	1,23E+03	2	3,58E+03	3,88E+03	8
Mn-54	312 nap	1,59E+02	3,84E+02	59	1,10E+04	2,11E+04	48
Cs-134	2,1 év	3,76E+02	3,31E+02	-14	1,56E+03	1,71E+03	9
Co-60	5,3 év	2,02E+03	1,88E+03	-8	4,93E+03	5,73E+03	14
Eu-152	13,5 év	1,65E+03	1,78E+03	7	4,30E+03	4,73E+03	9

ÖSSZEFOGLALÁS

Az ESS-től kapott ismeretlen összetételű Skanska beton összetételének meghatározását sikeresen elvégeztük PGAA és NAA segítségével. A mérések elvéből fakadóan a mért összetételek tartalmazzák az összes neutronaktiváció hatására számottevő bomlási gamma-sugárzást kibocsátó elemet. A mért radioizotópok közül meghatároztuk a legfontosabb gamma-sugárzó izotópokat (2. táblázat) és azok anyaelemeit is: Na, W, La, Sm, Yb, Rb, Th, Cr, Fe, Sc, Zn, Cs, Co és Eu. MCNPX és Cinder1.05 szimulációs kódok segítségével, nagy pontossággal reprodukáltuk a méréseket, így az előállt anyagösszetételek alkalmasak sugárvédelmi szimulációkhoz az ESS-ben.

IRODALOM

- [1] S. Peggs, "ESS Technical Design Report" jelentés azonosító: ESS-DOC-274. 2013.
- [2] "Skanska - Sweden." [Online] <https://www.skanska.se/en-us/> Elérés: 2019.09.04.]
- [3] T. Žagar, M. Božič, és 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.
- [4] L. Szentmiklósi, T. Belgya, Z. Révay, és Z. Kis, "Upgrade of the prompt gamma activation analysis and the neutron-induced prompt gamma spectroscopy facilities at the Budapest research reactor" *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 286, no. 2, pp. 501–505, 2010.
- [5] L. Szentmiklósi, D. Párkányi, és I. Sziklai-László, "Upgrade of the Budapest neutron activation analysis laboratory" *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 309, no. 1, pp. 91–99, 2016.
- [6] Budapesti Kutatóreaktor – Energiatudományi Kutatóközpont." [Online] <https://www.ekcer.hu/budapesti-kutatoreaktor/> Elérés: 2020.10.23.
- [7] D. B. Pelowitz, "MCNPXTM User's Manual" no. April. LANL, 2011.
- [8] W. B. Wilson, S. T. Cowell, T. R. England, A. C. Hayes, és P. Moller "A Manual for CINDER'90 Version 07.4 Codes and Data LA-UR-07-8412." LANL, 2008.

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával