

Hızlı nötron reaktörlerinde yakıt malzemesi olarak kullanılan $^{235,238}\text{U}$ ve ^{239}Pu izotoplarına yönelik tesir kesiti hesaplamaları için nükleer seviye yoğunluğu parametresinin incelenmesi

Veli ÇAPALI*, Mert ŞEKERCİ, Abdullah KAPLAN

Süleyman Demirel Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, Isparta.

Geliş Tarihi (Received Date): 15.08.2017
Kabul Tarihi (Accepted Date): 13.10.2017

Özet

Bu çalışmada, hızlı nötron reaktörlerinde yakıt malzemesi olarak kullanılan ^{235}U , ^{238}U ve ^{239}Pu izotoplarının 1-30MeV enerjili hızlı nötronlar ile (n,f) reaksiyon tesir kesitleri teorik olarak seviye yoğunluğu modelleri kullanarak incelenmiştir. Seviye yoğunluğu ve seviye yoğunluğu parametreleri, çekirdeğin yapısal özelliklerini tanımlamada ve reaksiyon tesir kesiti hesaplamalarında çok önemli bir veridir. Reaktör tasarımlarında kullanılacak malzemeler için tasarım öncesi teorik olarak hesaplanan nükleer fisyon tesir kesiti verileri kullanılır. Bahsedilen açıklamalar göz önüne alınarak; bu çalışmada, TALYS 1.8 bilgisayar kodu kullanılarak teorik nükleer reaksiyon tesir kesiti hesaplamaları farklı seviye yoğunluğu modelleri ile gerçekleştirilmiştir. Seviye yoğunluğu parametrelerinden "a" değiştirilerek, enerjiye bağlı olarak teorik tesir kesit sonuçlarını deneysel tesir kesiti sonuçları ile uyumlu olacak bir parametre analizi yapılmıştır ve (n,f) reaksiyonu için teorik olarak kullanılacak bir seviye yoğunluğu modeli önerisi ile parametresi elde edilmiştir.

Anahtar kelimeler: Hızlı nötron reaktörü, yakıt malzemesi, tesir kesiti, seviye yoğunluğu parametresi, TALYS.

Investigation of nuclear level density parameter for the cross section calculations of $^{235,238}\text{U}$ and ^{239}Pu isotopes used as fuel materials in fast neutron reactors

Abstract

In this study, the reaction cross sections of (n,f) reactions with 1-30 MeV energetic neutrons on ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu isotopes which have been using as fuel materials in fast neutron reactors were theoretically investigated using level density models. Level density and level density parameters are very important to describe the structural properties of the nucleus and to calculate the reaction cross section. For the materials to be used in the reactor designs, the theoretically computed nuclear fusion cross section data is used before the design. Taking into account the aforementioned statements; in this study, the theoretical nuclear reaction cross section calculations using TALYS 1.8 computer code were performed with the different level density models. By changing the level density parameter "a", a parameter analysis based on the energy was performed using statistical methods in where the theoretical cross

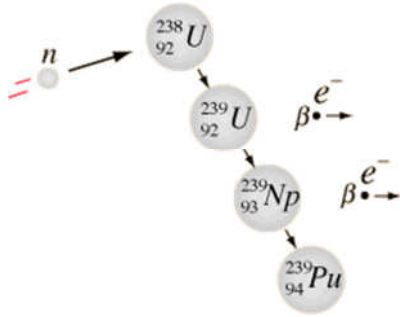
* Veli ÇAPALI, velicapali@sdu.edu.tr, <http://orcid.org/0000-0002-9045-0210>
Mert ŞEKERCİ, mertsekerci@sdu.edu.tr, <http://orcid.org/0000-0003-0870-0506>
Abdullah KAPLAN, abduallahkaplan@sdu.edu.tr, <http://orcid.org/0000-0003-2990-0187>

section results would be consistent with the experimental cross section results and its parameter that can be used theoretically for the (n, f) reaction with 1-10 MeV energetic neutrons are obtained.

Keywords: Fast neutron reactor, fuel material, cross section, level density parameter, TALYS.

1. Giriş

Hızlı nötron reaktörleri (FNR-Fast Neutron Reactors) geleneksel termal nötron enerjili reaktörlerin ötesine geçen ileri teknolojiye sahip bir reaktör türüdür. Ancak, termal nötron enerjili reaktörler gibi ana akım haline gelememiştir. FNR'lar günümüzdeki reaktörlere göre uranyum kaynaklarını çok daha verimli kullanabilmektedirler ve nükleer atık oranları da geleneksel reaktörlere göre çok daha düşüktür. Günümüzde 20 FNR çalışmaktadır ve bunların sadece birkaçı ticari faaliyet göstermektedir [1].



Şekil 1. Fisil olmayan ^{238}U 'un nötron yakalayarak fisil ^{239}Pu dönüşümü.

Doğal uranyumun % 99.3'ü ^{238}U ve % 0.7'si ^{235}U izotoplarından meydana gelmektedir. Şekil 1'de görüldüğü gibi, ^{238}U nötron yutarak ^{239}Pu 'a dönüşmektedir. Geleneksel reaktörlerde fisil ^{235}U yakıt olarak kullanılırken, FNR'larda hızlı nötronlar ile $^{238}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ dönüşüm sağlanarak fisil ^{239}Pu yakıt olarak kullanılmaktadır [2,3].

FNR'lar ^{238}U 'ün yanı sıra, çoğu reaktörde kullanılan bölünebilir ^{235}U izotopunu daha bilinçli olarak kullanırlar. Ürettikleri uranyum ve plütonyumdan daha fazla plütonyum üretmek için tasarlandıklarından, hızlı üretken reaktörler (FBR-Fast Breeder Reactors) olarak adlandırılırlar [2,3].

FBR'ların ticari olarak kullanılması için tasarımsal değişiklikler günümüzde hala devam etmektedir ve hızlı nötron kullanımına yönelik tasarımsal kısıtlamalara gidilmektedir. Termal nötron reaktörlerinde kullanılan yavaşlatıcı ve soğutucu malzemelerin birçoğu FBR'lar için kullanılamaz. Örneğin; su, yaygın olarak kullanılan soğutucu malzemedir ve bu malzeme nötron yavaşlatmada da çok etkilidir. Bu nedenle, FBR'lar için soğutucu olarak su kullanılamaz. FBR'ların geliştirilmesi ve ticari olarak faaliyet gösterilebilmesi için pek çok

malzemenin hızlı nötronlar ile etkileşimlerinin incelenmesi gerekmektedir. Nükleer reaktörlerde, nükleer reaksiyonların yapısal malzemeler ile olan etkileşimlerini incelemek için nükleer tesir kesitine başvurulur. Nükleer tesir kesiti verisi; deneysel olarak elde edilebilirken, deneysel olarak gerçekleştirilemeyen veya deney öncesi ön çalışmalar gibi durumlar için teorik nükleer reaksiyon modelleri kullanılarak bu veriler hesaplanır. Bu veriler; reaktör yapısal malzemelerine yönelik Ar-Ge çalışmalarında, reaksiyon etkisinin anlaşılmasında, özel bileşenlerin ve mikro yapıların geliştirilme aşamalarında kullanılmaktadır. Reaktör yapısal malzemelerinin reaksiyon tesir kesit hesaplamalarına yönelik pek çok çalışma literatürde yer almaktadır [4-7].

Bu çalışmada; FNR'larda yakıt malzemesi olarak kullanılan ^{235}U , ^{238}U ve ^{239}Pu izotoplarının 1-30 MeV enerjili hızlı nötronlar ile (n,f) reaksiyon tesir kesitleri, teorik olarak seviye yoğunluğu modelleri kullanılarak incelenmiştir. Seviye yoğunluğu ve seviye yoğunluğu parametreleri, çekirdeğin yapısal özelliklerini tanımlamada ve reaksiyon tesir kesiti hesaplamalarında çok önemli bir veridir. TALYS 1.8 [8] bilgisayar kodu kullanılarak teorik nükleer reaksiyon tesir kesiti hesaplamaları farklı seviye yoğunluğu modelleri ile gerçekleştirilmiştir. Seviye yoğunluğu parametrelerinden "a" parametresi değiştirilerek, enerjiye bağlı teorik tesir kesiti sonuçlarının deneysel sonuçlar ile daha uyumlu olmasına yönelik bir çalışma yapılmıştır. Sonuç olarak, 1-30 MeV enerjili nötronlar ile gerçekleşen (n,f) reaksiyonu için teorik olarak kullanılabilecek bir seviye yoğunluğu modeli önerisi ve parametresi elde edilmiştir. Kullanılan deneysel veriler, EXFOR [9] nükleer veri kütüphanesinden alınmıştır.

2. Materyal ve yöntem

TALYS bilgisayar kodu, bash-kabuk komut sistemi ile Unix tabanlı işletim sistemleri üzerinde çalışan, nükleer reaksiyonlara yönelik teorik hesaplama, analiz ve tahminler için kullanılan bir yazılım kodudur. TALYS kodu, geniş enerji bölgesinde nötron, proton, döteron, triton, alfa ve ^3He mermi parçacıkları ile hedef olarak kütle numarası 12 ve üstü olan nükleidlerin reaksiyonlarını simüle edebilen programdır. Programın temel amacı, deney ve kuram arasındaki karşılıklı etkileşimi nükleer reaksiyon

modelleri kullanarak incelemektir. Böylece, nihai nükleer modellerin yeterli öngörü gücüne sahip olduklarını ve sonuçların güvenilirliği incelenmiş olur [8].

TALYS bilgisayar kodu içerisinde nükleer seviye yoğunlukları ve nükleer modeller gibi farklı parametrelerin seçimi için çeşitli seçenekler bulunmaktadır. Seviye yoğunluğu hesaplamaları ile ilgili 3 fenomenolojik ve 3 mikroskopik seviye yoğunluk modeli seçmek mümkündür. Bu modellere ait parametreler, parametre referans kütüphanesinde (Reference Input Parameter Library/RIPL-3) [10] yer almaktadır.

Seviye yoğunluğu parametrelerinden önemli bir parametre olan "a" parametresi; her bir çekirdeğe özgün bir değer olup, seviye yoğunluğu analizindeki ilk önemli parametre değeri olarak tanımlanmaktadır. Ignatyuk, vd. [11]; kütle formülünün sıvı damlası bileşenine, kabuk modeli kullanılarak gerçekleştirilen düzeltme terimleri için enerjiye bağımlı "a" parametresi eklenmesinin gerektiğini savunmuşlardır. Bu sayede, düşük enerjide kabuk etkilerinin varlığını ve fenomenolojik olarak yüksek enerjide bu etkilerin kaybolduğunu hesaba katar. Parametre "a",

$$a = a(E_x) = \tilde{a} \left(1 + \delta W \frac{1 - \exp[-\gamma U]}{U} \right) \quad (1)$$

şeklinde Denklem 1'de ifade edilmiştir. Burada; \tilde{a} herhangi bir kabuk etkisinin yokluğunda elde edilecek asimptotik seviyedeki yoğunluk değeridir ve genel olarak $\tilde{a} = a(E_x \rightarrow \infty)$ 'dir fakat $\delta W = 0$ ise, tüm E_x değerleri için $\tilde{a} = a(E_x)$ 'dir. γ , sönümlenme parametresi iken δW , kabuk düzeltme enerjisi parametresidir [8,11-14].

3. Araştırma bulguları

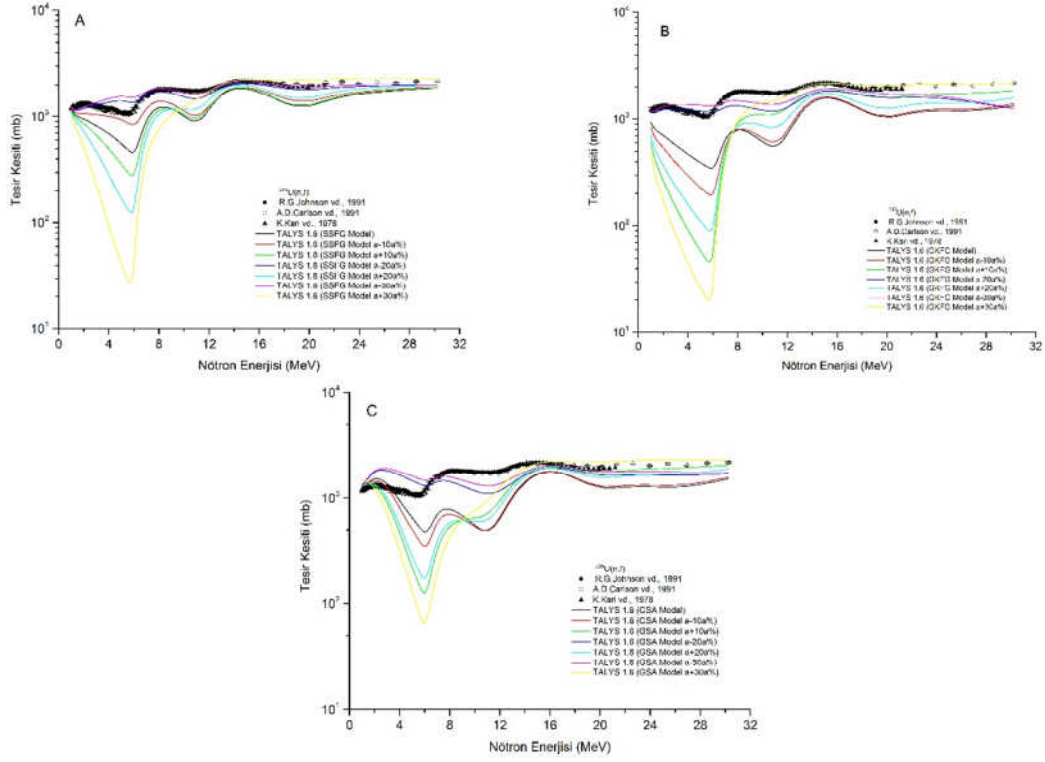
Bu çalışmada, hızlı nötron reaktörlerinde gerçekleşen $^{235}\text{U}(n,f)$, $^{238}\text{U}(n,f)$ ve $^{239}\text{Pu}(n,f)$ reaksiyonlarının tesir kesitleri; TALYS 1.8 bilgisayar kodu içerisinde yer alan Sabit Sıcaklık Fermi Gaz (SSFG), Geri Kaydırmalı Fermi Gaz (GKFG) ve Genelleştirilmiş Süper Akışkan (GSA) seviye yoğunluğu modelleri kullanılarak hesaplanmıştır. Hesaplamalarda varsayılan "a" seviye yoğunluğu parametresi RIPL-3 kütüphanesinden alınmıştır. Varsayılan "a" seviye yoğunluğu parametresi %10, %20 ve %30 değerlerinde artırılıp azaltılarak her bir model için hesaplamalar gerçekleştirilmiştir. Tablo 1'de seviye yoğunluğu modelleri için kullanılan parametre değerleri yer almaktadır.

Hesaplama sonuçları, daha önce gerçekleştirilen çalışmalar ve EXFOR nükleer veri kütüphanesinden alınan deneysel veriler ile karşılaştırılmıştır. Karşılaştırma sonuçlarının her biri grafikler halinde Şekil 2-4'de yer almaktadır.

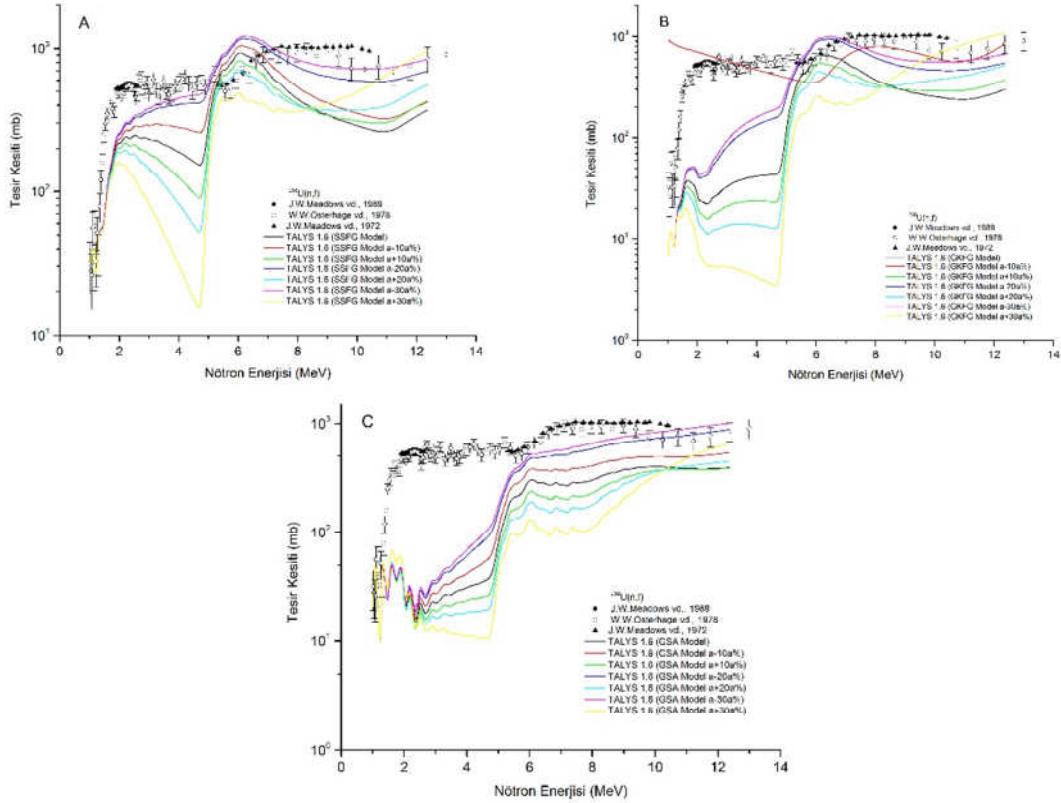
$^{235}\text{U}(n,f)$ reaksiyonu için 1-5.6MeV, 2.468-30 MeV ve 1-21.2MeV yüksek enerjili üç farklı deneye ait deneysel veriler kullanılarak 1-30 MeV nötron enerji aralığında Şekil 1(A,B,C)'de incelenmiştir. Tesir kesiti hesaplamaları öncelikli olarak varsayılan "a" değerleri için gerçekleştirilmiştir. Her üç seviye yoğunluğu modeli için en uyumlu parametre değeri, "a-%20a"dır. Her bir model için parametre değerleri sırasıyla SSFG:12.62889, GKFG: 10.46806 ve GSA:10.73514'dir. Tüm parametreler için gerçekleştirilen hesaplama sonuçları yaklaşık 16 MeV nötron enerjisinden sonra hem kendi aralarında hem de deneysel sonuçlar ile uyumlu olup, birbirlerine yakın sonuçlar vermektedir.

Tablo 1. Hesaplamalarda kullanılan seviye yoğunluğu parametreleri.

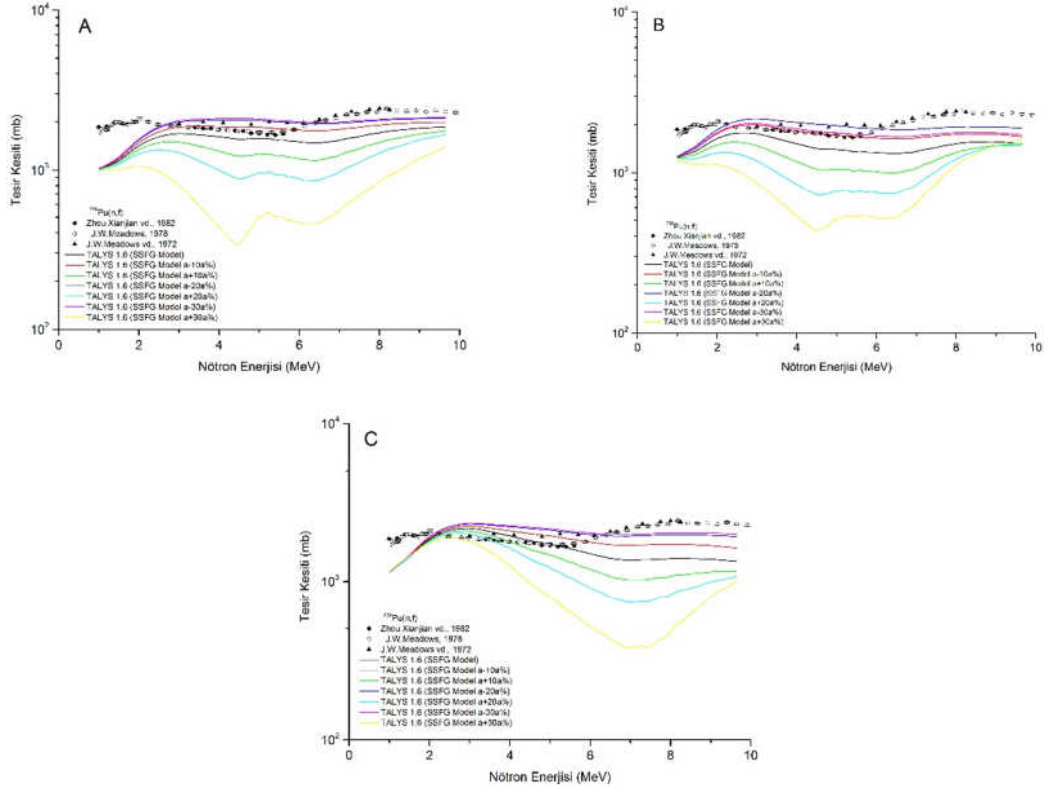
İzotoplar	Modeller	Varsayılan "a" Değeri	a-%10a	a+%10a	a-%20a	a+%20a	a-%30a	a+%30a
^{235}U	SSFG	15.78611	14.2075	17.36472	12.62889	18.94333	12.1553	22.57414
	GKFG	13.08508	11.77657	14.39359	10.46806	15.7021	10.07551	18.71166
	GSA	13.41893	12.07704	14.76082	10.73514	16.10272	10.33258	19.18907
^{238}U	SSFG	16.44051	14.79646	18.08456	13.15241	19.72861	12.65919	23.50993
	GKFG	13.61335	12.25202	14.97469	10.89068	16.33602	10.48228	19.46709
	GSA	12.8993	11.60937	14.18923	10.31944	15.47916	9.932461	18.446
^{239}Pu	SSFG	15.18052	13.66247	16.69857	12.14442	18.21662	11.689	21.70814
	GKFG	13.1665	11.84985	14.48315	10.5332	15.7998	10.13821	18.8281
	GSA	13.59225	12.23303	14.95148	10.8738	16.3107	10.46603	19.43692



Şekil 2. (A)SSFG model, (B) GKFG model, (C) GSA model kullanılarak $^{235}\text{U}(n,f)$ reaksiyonu tesis kesiti hesaplamaları ve deneysel sonuçlar ile karşılaştırılması.



Şekil 3. (A)SSFG model, (B) GKFG model, (C) GSA model kullanılarak $^{238}\text{U}(n,f)$ reaksiyonu tesis kesiti hesaplamaları ve deneysel sonuçlar ile karşılaştırılması.



Şekil 4. (A)SSFG model, (B) GKFG model, (C) GSA model kullanılarak $^{239}\text{Pu}(n,f)$ reaksiyonu tesir kesiti hesaplamaları ve deneysel sonuçlar ile karşılaştırılması.

$^{238}\text{U}(n,f)$ reaksiyonu için 1.92-2.558MeV, 1.02-12.99 MeV ve 5.334-10.4 MeV enerjili üç farklı deneye ait deneysel veriler kullanılarak 1.92-12.99MeV nötron enerji aralığında Şekil 2(A,B,C)'de incelenmiştir. Tesir kesiti hesaplamaları öncelikli olarak varsayılan “a” değerleri için gerçekleştirilmiştir. Varsayılan parametre ile gerçekleştirilen model hesaplamaları, deneysel değerler ile uyum göstermemektedir. Parametre değişikliği yapılarak teorik model hesaplamaları deneysel sonuçlar ile maksimum düzeyde uyumlu hale getirilmeye çalışılmıştır.

Model hesaplamaları içerisinde en uyumlu sonuçlar, SSFG modeli ile elde edilmiştir. Bu model için en uygun parametre değeri “a-%30a”dır. SSFG modeli için kullanılan parametre değeri 12.65919 dur. GKFG ve GSA modelleri için yaklaşık 1-6 MeV enerji aralığında teorik model sonuçları deneysel sonuçların çok çok altında kalmaktadır.

$^{239}\text{Pu}(n,f)$ reaksiyonu için 1-5.6MeV, 1.045-9.903 MeV ve 3-8.25MeV enerjili üç farklı deneye ait deneysel veriler kullanılarak 1-9.903MeV nötron enerji aralığında Şekil 3(A,B,C)'de incelenmiştir. Tesir kesiti hesaplamaları öncelikli olarak varsayılan “a” değerleri için gerçekleştirilmiştir. Varsayılan parametre ile gerçekleştirilen model hesaplamaları, deneysel değerler ile sadece 3-6 MeV nötron enerjisi aralığında uyum

göstermektedir. Parametre değişikliği yapılarak teorik model hesaplamalarının deneysel sonuçlar ile uyumlu hale getirildiğinde, 2 MeV nötron enerjisinden sonra deneysel veriler ile uyumlu parametre değeri olarak; her üç seviye yoğunluğu modeli için parametre değerleri sırasıyla SSFG:13.66247, GKFG: 10.5332 ve GSA:12.23303'dür.

3. Sonuçlar ve tartışma

FNR'lar için yakıt malzemesi olan $^{235,238}\text{U}$ ve ^{239}Pu izotoplarının yüksek enerjili nötronlar ile gerçekleşen (n,f) reaksiyonlarının teorik tesir kesiti hesaplamaları için kullanılacak en uygun seviye yoğunluğu modeli Sabit Sıcaklık Fermi Gaz modelidir. Bu model, var olan “a” parametre değeri ile gerçekleştirilen hesaplamalarda deneysel veriler ile tam uyumlu sonuç göstermemektedir. Fiyon reaksiyonlarında teorik olarak gerçekleştirilen tesir kesit hesaplamaları için pek çok parametre değeri önem arz eder. Özellikle Fiyon reaksiyonunu açıklamak için kullanılan sıvı damlası modeline, kabuk modeli kullanılarak gerçekleştirilen düzeltme terimleri için enerjiye bağımlı “a” parametresi eklenmesi ile deneysel sonuçlara yakın teorik sonuçlar elde edilmesi amaçlanmıştır. Ancak, bu parametreler, sadece Fiyon reaksiyonu için değil diğer reaksiyonları da kapsayacak şekilde elde edilen sonuçların

matematiksel olarak fit edilmesi yöntemi ile belirlenmişlerdir. Bu nedenle seviye yoğunluğu modelleri kullanılarak yapılan hesaplamalar pek çok reaksiyon için kullanılmaktadır. Seviye yoğunluğu parametrelerini reaksiyonlara göre fit ederek deneysel değerler ile daha uyumlu parametreler ve modeller elde edebiliriz. Bu nedenle, Sabit Sıcaklık Fermi Gaz modeli kullanılarak yapılacak olan teorik tesir kesiti hesaplamalarında özellikle yüksek kütle ve atom numaralı izotoplar için “a” parametre değerinin “a-%20a” ve/veya “a-%30a” olarak kullanılması

sonucunda deneysel veriler ile daha uyumlu bulgular elde edilebileceği gözlenmiştir.

Bu çalışmadaki bulgular; ticarileştirilmek üzere geliştirilmekte olan FNR’larda kullanılan ve/veya kullanılacak olan yapı ve yakıt elementlerinin nükleer reaksiyon modellerine dayanan tesir kesiti hesaplamalarında, radyoizotop üretim programları için gerekli veri tabanının güçlendirilmesinde, yeni veri tabanı oluşturulmasında, üretim teknolojisinin geliştirilmesi ve yapılacak deneysel çalışmalara model oluşturulmasında değerlendirilebilir.

Kaynaklar

- [1] World Nuclear Association, <http://www.world-nuclear.org>, (01.06.2017).
- [2] Hızlı Üretken Reaktörler, http://www.nukleer.web.tr/nukleer_santral_turleri/fbr_ana.html, (01.06.2017).
- [3] What is Nuclear? / What is a fast reactor? https://whatisnuclear.com/articles/fast_reactor.html, (01.06.2017).
- [4] Kaplan, A., Sarpün, İ.H., Aydın, A., Tel, E., Çapalı, V. and Özdoğan H., (g,2n) reaction crosssection calculations of several even-even lanthanide nuclei using different level density models, **Physics of Atomic Nuclei**, 78, 1, 53-64, (2015).
- [5] Demir B., Kaplan A., Çapalı V., Özdoğan H., Sarpün, İ.H., Aydın A. and Tel E., Neutron production cross-section and geant4 calculations of the structural fusion material ⁵⁹Co for (a,xn) and (g,xn) reactions, **Journal of Fusion Energy**, 34 (3), 636-641, (2015).
- [6] Kaplan, A., Şekerci, M., Çapalı, V. and Özdoğan, H., Computations of (a,xn) reaction cross-section for ^{107,109}Ag coated materials with possible application in accelerators and nuclear systems, **Journal of Fusion Energy**, 35, 4, 715-723, (2016)
- [7] Sarpün, İ.H., Aydın, A., Kaplan, A., Koca, H. and Tel, E., Comparison of fission barrier and level density models in (a,f) reactions of some heavy nuclei, **Annals of Nuclear Energy**, 70, 175-179, (2014).
- [8] Koning, A., Hilaire, S. and Goriely, S., TALYS-1.8a nuclear reaction program, user manual (nrg, the Netherlands), first edition: December 26, 2015 (2015).
- [9] Brookhaven National Laboratory, National Nuclear Data Center, EXFOR/CSISRS (Experimental Nuclear Reaction Data File). Database Version of June 16, 2017 (2017), (<http://www.nndc.bnl.gov/exfor/>)
- [10] RIPL-reference input parameter library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations, Nuclear Data Sheets 110, 3107 (2009).
- [11] Ignatyuk, A.V., Smirenkin G.N. and Tishin, A.S., Contribution of collective motion to density of excited states of a nucleus, **Soviet Journal of Nuclear Physics**, 21, 3, 255-612, (1975).
- [12] Gilbert, A. and Cameron, A.G.W., A composite nuclear-level density formula with Shell corrections, **Canadian Journal of Physics**, 43, 1446-1496, (1965).
- [13] Dilg, W., Schantl, W., Vonach, H. and Uhl, M., Level density parameters for the back-shifted Fermi gas model in the mass range 40 < a < 250, **Nuclear Physics A**, 217, 269-298, (1973).
- [14] Baba, H., A shell-model nuclear level density, **Nuclear Physics A**, 159, 625-641 (1970).