

KHẢ NĂNG CHUYỂN ĐỔI ^{99}Tc , ^{129}I THÀNH CÁC CHẤT PHÓNG XẠ NGẮN NGÀY BẰNG DÒNG NEUTRON SINH RA TRONG MÁY GIA TĂNG NĂNG LƯỢNG

Mai Văn Nhơn*, Từ Thanh Danh*, Nguyễn Mộng Giao*

* Trường Đại học Khoa học Tự Nhiên – ĐHQG-HCM

* Phân Viện Vật Lý Tp. HCM, Trung Tâm Khoa học và Kỹ thuật Việt Nam

(Bài nhận ngày 27 tháng 11 năm 2003, hoàn chỉnh sửa chữa 12 tháng 02 năm 2004)

TÓM TẮT: Mô hình tính toán của chúng tôi được xây dựng dựa trên các công thức bán thực nghiệm từ thí nghiệm TARC tại CERN (1999). Mục tiêu là chứng minh khả năng sử dụng neutron ở vùng cộng hưởng đoạn nhiệt để phá hủy một cách hiệu quả các đồng vị phóng xạ sống dài (LLFF) trong các máy gia tăng năng lượng (EA). Tiết diện biểu kiến và tỉ số bắt neutron của LLFF như ^{99}Tc , ^{129}I đã được tính toán. Các kết quả tính toán phù hợp khá tốt với thực nghiệm. Mô hình cũng có thể ứng dụng tính toán tỉ số chuyển đổi cho các nguyên tố khác và trong các vùng năng lượng neutron khác mà thực nghiệm không đo đạt được.

1. Giới thiệu

Ea là một hệ thống lò phản ứng dưới tới hạn được vận hành bởi một máy gia tốc proton và sử dụng neutron nhanh hoặc neutron nhiệt. Lò phản ứng kiểu mới này có nhiều tiềm năng và ưu thế hơn lò phản ứng thông thường:

- Hoạt động an toàn hơn và sạch hơn.
- Có thể tiêu hủy chất thải hạt nhân.
- Loại trừ nguy cơ phổ biến quân sự hạt nhân.

Ea khắc phục hầu hết những nhược điểm của lò cổ điển và trong tương lai nó có khả năng cạnh tranh, thay thế lò phản ứng thông thường. Ngoài ra EA cũng có thể phá hủy chất thải phóng xạ đặc biệt là các chất phóng xạ dài ngày (LLFF) như ^{99}Tc và ^{129}I .

Chúng tôi xây dựng một mô hình tính toán khả năng chuyển đổi LLFF thành các đồng vị sống ngắn hoặc bền. Mục đích là kiểm tra lại độ tin cậy của các công thức, sau đó áp dụng tính toán tiết diện biểu kiến và tỉ số chuyển đổi LLFF ^{99}Tc , ^{129}I và một số các đồng vị khác: ^{127}I , ^{107}Ag , ^{109}Ag , ^{27}Al , ^{115}In , ^{181}Ta . Mô hình cũng mở rộng tính toán cho các vùng năng lượng khác mà thực nghiệm không đo đạt được và cũng hữu dụng cho nhiều đồng vị khác.

Mô hình được xây dựng dựa vào thí nghiệm TARC [1] tại CERN (1999). Trong thí nghiệm TARC, một chùm hạt proton được gia tốc đạt xung lượng 3,5 GeV/c, mật độ được chuẩn hóa 10^9 proton/shot, đến bắn phá một bia chì với chu kỳ 14,4 s. Sau đây là các công thức:

- Mối tương quan năng lượng-thời gian, E-t:

$$\bar{E}(t) = K / (t + t_0) \quad , \quad K_{\text{exp}} = 172 \pm 2 \text{ keV} \cdot \mu\text{s}^2 \quad , \quad t_0 = 0,37 \pm 0,2 \mu\text{s}$$

K là hằng số trong vùng năng lượng 0,1 eV- 10 keV.

- Số phản ứng bắt neutron trên một đơn vị thời gian:

$$n(t, \vec{r}) = \frac{\Delta n_{\text{det}}(t, \vec{r})}{\Delta t} = N_{\text{target}} f_0(\bar{E}(t), \vec{r}) \bar{\sigma}(\bar{E}(t)) \left| \frac{\Delta E}{\Delta t} \right|$$

- Luồng neutron được fit từ số liệu thực nghiệm theo hàm lý thuyết tuổi Fermi:

$$f_0(E, \vec{r}) = \frac{a}{Eu^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{bu}\right) \exp\left(-\frac{c}{\sqrt{E}}\right) \quad , \quad u = \ln\left(\frac{E_0}{E}\right)$$

Đối với proton 3,5 GeV/c, các tham số có giá trị:

$$E_0 \approx 1,5 \text{ MeV}, a \approx (8 \pm 1) \times 10^7 \text{ neutron/cm}^2/10^9 \text{ proton}, b \approx 10^3 \text{ cm}, c \approx 0,5 \text{ eV}^{1/2}$$

• Tiết diện trung bình: $\bar{\sigma}(\bar{E}(t)) = \int M(E, \bar{E}(t)) \sigma(E) dE$

• Hàm phân bố xác suất:

$$M(E, \bar{E}(t)) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{\bar{E}}}} \exp\left(-\frac{(E - \bar{E})^2}{2\sigma_{\bar{E}}^2}\right)$$

• Độ lệch chuẩn:

$$\sigma_E / E = 2\sigma_t / t = 0,12167 \sqrt{1 + 1,7/E}, \quad E < 4eV$$

$$\sigma_E / E = 0,13, \quad 3eV < E < 1000eV$$

$$\sigma_E / E = 0,147277 [1 + 0,306 \ln(E/896)], \quad 4eV < E < 1600eV$$

• Tiết diện của đồng vị mẫu bia, được lấy từ JENDL-3.2: $\sigma(E)$

• Tỉ số chuyển đổi, là số hạt nhân bia bắt neutron trên một proton tới:

$$tr(\bar{E}) = n(t) \frac{\Delta t}{\Delta E} = N_{target} f_0(\bar{E}(t), \bar{r}) \bar{\sigma}(\bar{E}(t))$$

$$tr_{tot} = \int tr(\bar{E}) d\bar{E}$$

Trong mô hình tính toán, chúng tôi giả sử hiệu suất ghi của detector bằng một và bề dày mẫu vô cùng bé nên ta có thể bỏ qua các hiệu ứng tự ngăn cản và tự hấp thụ.

2. Chuyển đổi các đồng vị phóng xạ sống dài ⁹⁹Tc và ¹²⁹I

• Các kết quả đối với technetium (⁹⁹Tc):

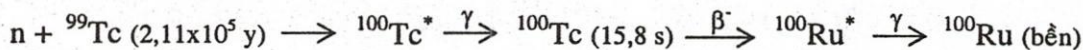
Các mẫu thực nghiệm bao gồm 0,85 mg ⁹⁹Tc được đặt trong một tấm ²⁷Al 1,7 g có dạng hình hộp 2 cm x 2 cm x 1,5 mm. Hình 1 và 2 vẽ tiết diện bắt neutron biểu kiến (σ_{app}) thực nghiệm không có và có sự hiệu chỉnh các hiệu ứng nhiễu do vật liệu của detector và nhiễu do bề dày mẫu bia. So sánh hình 2 và hình 1 ta thấy hiệu ứng bề dày mẫu thể hiện chủ yếu ở hai đỉnh bắt cộng hưởng chính, cụ thể giá trị của tiết diện được tăng cao hơn khoảng 50% ở đỉnh 5,58 eV, 18% tại đỉnh 22,3 eV và không tăng cường đáng kể ở những năng lượng khác. σ_{app-th} được tính toán cho mẫu vô cùng mỏng (hình 3) rất trùng khớp với σ_{app-ex} đã được hiệu chỉnh (hình 2), chứng tỏ các công thức được sử dụng là đáng tin cậy.

Tỉ số chuyển đổi vi phân thực nghiệm $tr_{ex}(E)$ và lý thuyết $tr_{th}(E)$ được vẽ trong hình 4 và 5 theo $E \times tr(E)$. Ta thấy số liệu thực nghiệm thấp hơn là do mẫu có bề dày.

Để đo tỉ số chuyển đổi toàn phần, người ta tiến hành phân tích kích hoạt các mẫu ⁹⁹Tc như sau:

- Mẫu rắn ⁹⁹Tc, khối lượng 14,3 mg, hình dạng 15 mm x 6 mm, dày $l = 29 \mu\text{m}$.
- Mẫu bột ⁹⁹TcO₄K, hình trụ: 10 mm x 4 mm (đường kính), khối lượng $m1 = 206,0 \pm 0,1$ mg chứa 100,88 mg ⁹⁹Tc.
- Mẫu bột ⁹⁹TcO₄K, hình trụ: 12 mm x 5 mm, $m2 = 441,3 \pm 0,1$ mg chứa 216,11 mg ⁹⁹Tc.

Sơ đồ chuyển đổi khi kích hoạt neutron cho ⁹⁹Tc:



Hình 6 vẽ tỉ số chuyển đổi toàn phần thực nghiệm và tính toán cho mẫu bột 216 mg ⁹⁹Tc. Chúng tôi tính toán cho trường hợp mẫu rất mỏng tr_{th} và cho cả mẫu thực tế $tr^* = tr_{th} \times d_{ex}$ ($tr^{**} = tr_{th} \times d_{th}$) thông qua việc hiệu chỉnh hiệu ứng bề dày mẫu được thể hiện qua tham số d .

$$d_{ex} = tr_{ex}(\text{mẫu dày}) / tr_{ex}(\text{mẫu rất mỏng_mẫu rắn});$$

$$d_{th} = tr_{ex} / tr_{th}$$

$$d_{ex}(101 \text{ mg}/14,3 \text{ mg}) = 0,6$$

$$d_{th}(101 \text{ mg}/101 \text{ mg}) = 0,56$$

$$d_{ex}(216 \text{ mg}/14,3 \text{ mg}) = 0,54$$

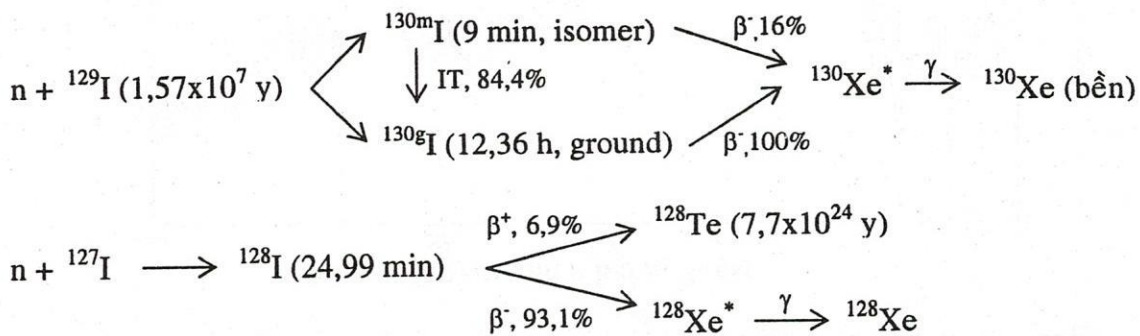
$$d_{th}(216 \text{ mg}/216 \text{ mg}) = 0,473$$

So sánh các giá trị d_{th} và d_{ex} ta thấy kết quả tính toán lý thuyết của chúng ta là chấp nhận được và $d_{th} < d_{ex}$ là hợp lý bởi vì $tr_{th}(14,3 \text{ mg}, l \rightarrow 0) > tr_{ex}(14,3 \text{ mg}, l = 29 \mu\text{m})$ và sai số tương đối trung bình so với thực nghiệm $(tr_{th}^* - tr_{ex}) / tr_{th}^* = (d_{ex} - d_{th}) / d_{ex} = 13\%$. Nhìn chung các kết quả tính toán lý thuyết tương đối phù hợp với thực nghiệm.

Hình 4 và 5 cho thấy xác suất bắt neutron được tăng cường rất lớn ở các đỉnh cộng hưởng. Đối với ^{99}Tc hầu hết các phản ứng bắt neutron xảy ra ở hai đỉnh cộng hưởng chính (5,6 eV và 20,3 eV), cụ thể số hạt nhân được chuyển đổi chiếm 80% trong vùng [1 eV, 30 eV] và chiếm 90% trong vùng [1 eV, 1 keV] so với toàn vùng lấy tích phân [1 eV, 1 MeV]. Điều này chứng minh được quan điểm sử dụng vùng cộng hưởng đoạn nhiệt (ARC) để phá hủy hiệu quả LLFF.

• Các kết quả đối với iốt (^{129}I , ^{127}I):

Mẫu iốt được chuẩn bị có dạng hình trụ 9 mm x 6 mm (đường kính) [1], khối lượng 286,85 mg bao gồm ^{129}I , ^{127}I , Pb, H₂ và O₂ trong đó ^{129}I chiếm 64,7 mg ^{127}I chiếm 10,44 mg. Sơ đồ chuyển đổi như sau:



Tiết diện phản ứng biểu kiến σ_{app} , tỉ số chuyển đổi vi phân $E \times tr(E)$ và toàn phần $tr(R)$ được lấy tích phân trong vùng năng lượng [10^{-3} eV, 10^6 eV] được hiển thị trong hình 8, 9 và 7.

So sánh các kết quả (hình 7) ta thấy số liệu lý thuyết thấp hơn số liệu thực nghiệm, theo nguyên tắc điều này là vô lý do mẫu thực tế có bề dày. Tuy nhiên khi ta mở rộng phạm vi năng lượng cho phép của các công thức ($E < 0,1$ eV và $E > 10$ keV) thì số liệu tính toán sẽ kém chính xác và ở phần năng lượng thấp thì số liệu tiết diện JENDL-3.2 sẽ không đủ để tính toán cho phần chân của đỉnh Gauss mô tả sự phân bố năng lượng neutron ($M(E, \bar{E}(t))$) nên kết quả tính toán thường thấp hơn kết quả mà đáng ra nó phải có (xem hình 8, 9 ở phần năng lượng thấp). Cũng chính lý do này mà đối với mẫu iốt ta khó có thể đánh giá được hiệu ứng tự ngăn cản do có bề dày mẫu như đã làm trong trường hợp của ^{99}Tc .

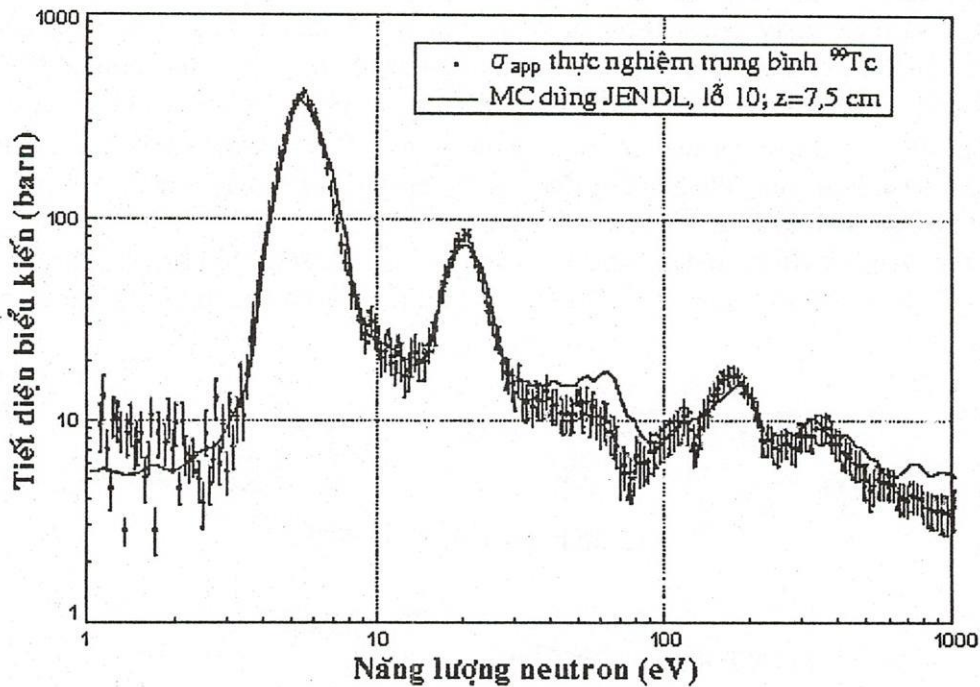
Mặt dù chúng ta đã mở rộng thêm phạm vi tính toán của các công thức (10^{-3} eV $\leq E \leq 1$ MeV), nhưng các kết quả thu được cũng rất khả quan, sai số tương đối $(tr_{th} - tr_{ex}) / tr_{th}$ được lấy trung bình theo các lỗ là 10% đối với ^{129}I và 3% đối với ^{127}I .

Số hạt nhân bắt neutron luôn chiếm ưu thế trong vùng cộng hưởng. So với toàn vùng lấy tích phân [10^{-3} eV, 10^6 eV], tỉ số chuyển đổi chiếm khoảng 33,4 % trong vùng [10^{-3} eV, 50 eV], 61,8% trong vùng [50 eV, 10^4 eV] đối với ^{129}I và 4 % trong vùng [10^{-3} eV, 20 eV], 94% trong vùng [20 eV, 10^4 eV] đối với ^{127}I .

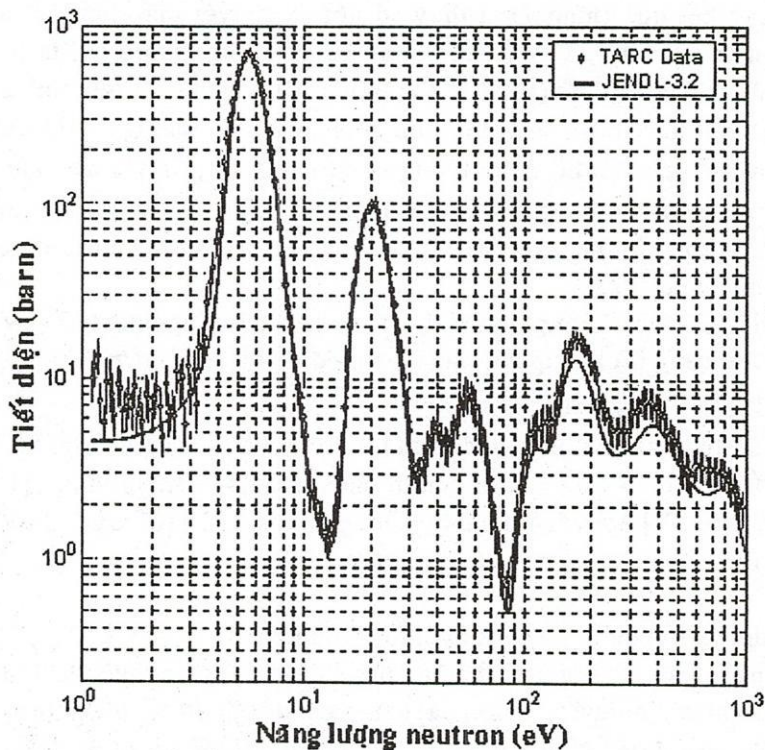
3. Kết luận

- Các kết quả tính toán phù hợp khá tốt với thực nghiệm.
- Hiệu ứng tự ngăn cản, tự hấp thụ là khác nhau đối với các nguyên tố khác nhau. Đối với cùng một nguyên tố thì các hiệu ứng nhiễu này cũng khác nhau ở các năng lượng khác nhau, chúng có ảnh hưởng chủ yếu ở các đỉnh cộng hưởng cao nhất và có xu hướng giảm dần khi năng lượng tăng dần.
- Khả năng chuyển đổi thường chiếm ưu thế trong vùng năng lượng cộng hưởng đoạn nhiệt.

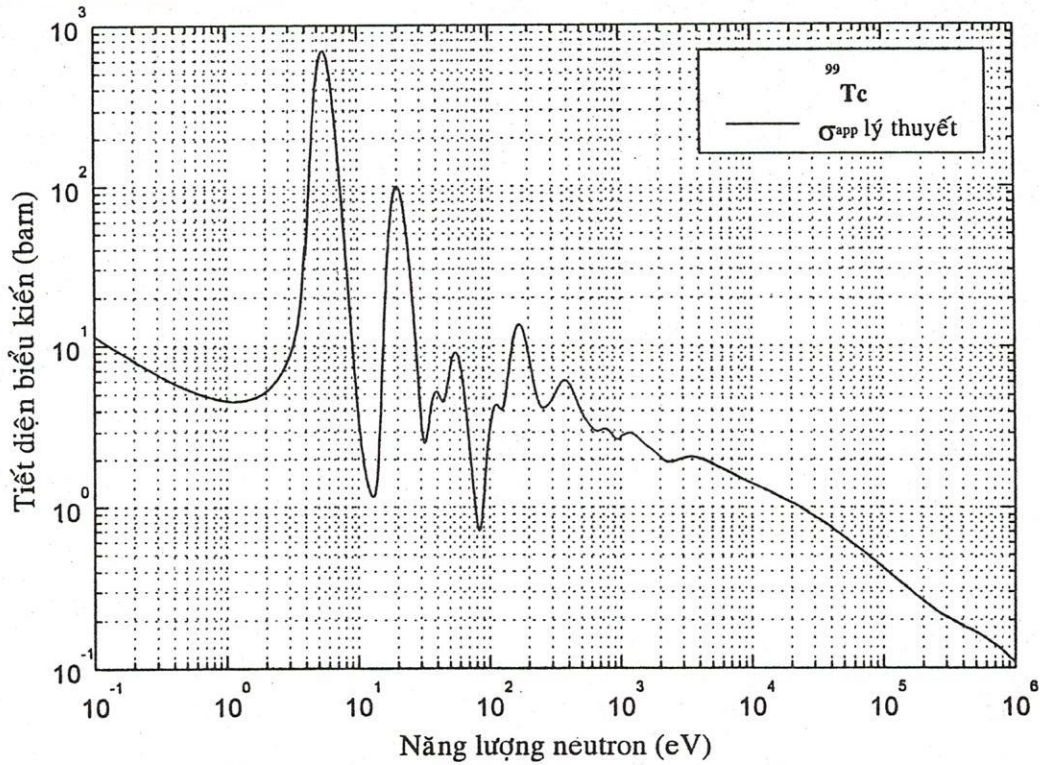
- Chương trình máy tính (Math-4.0) được xây dựng dưới dạng tổng quát nên dễ dàng sử dụng cho nhiều nguyên tố khác sau này. Tuy nhiên trong tính toán ta bị hạn chế trong việc hiệu chỉnh các hiệu nhiễu do bề dày mẫu, đa số chỉ tính toán cho trường hợp mẫu mỏng vô hạn.



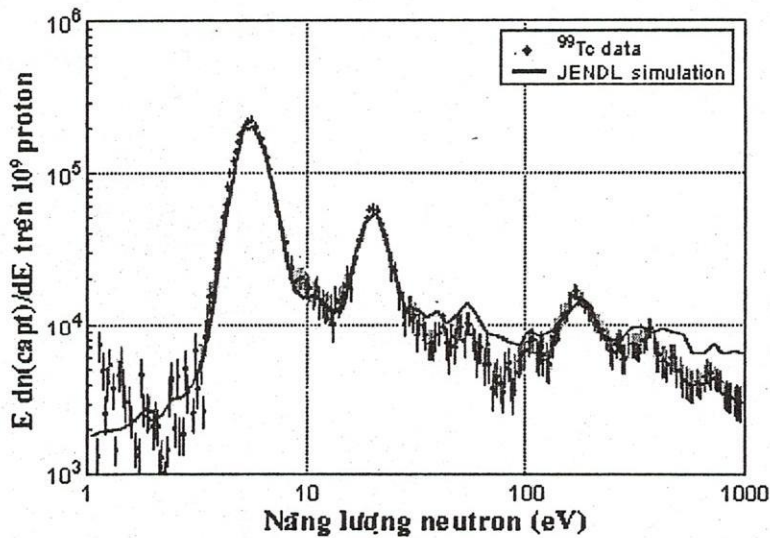
Hình 1: Tiết diện biểu kiến trung bình (n,γ) thực nghiệm của ^{99}Tc được so sánh với phương pháp MC sử dụng dữ liệu từ JENDL.



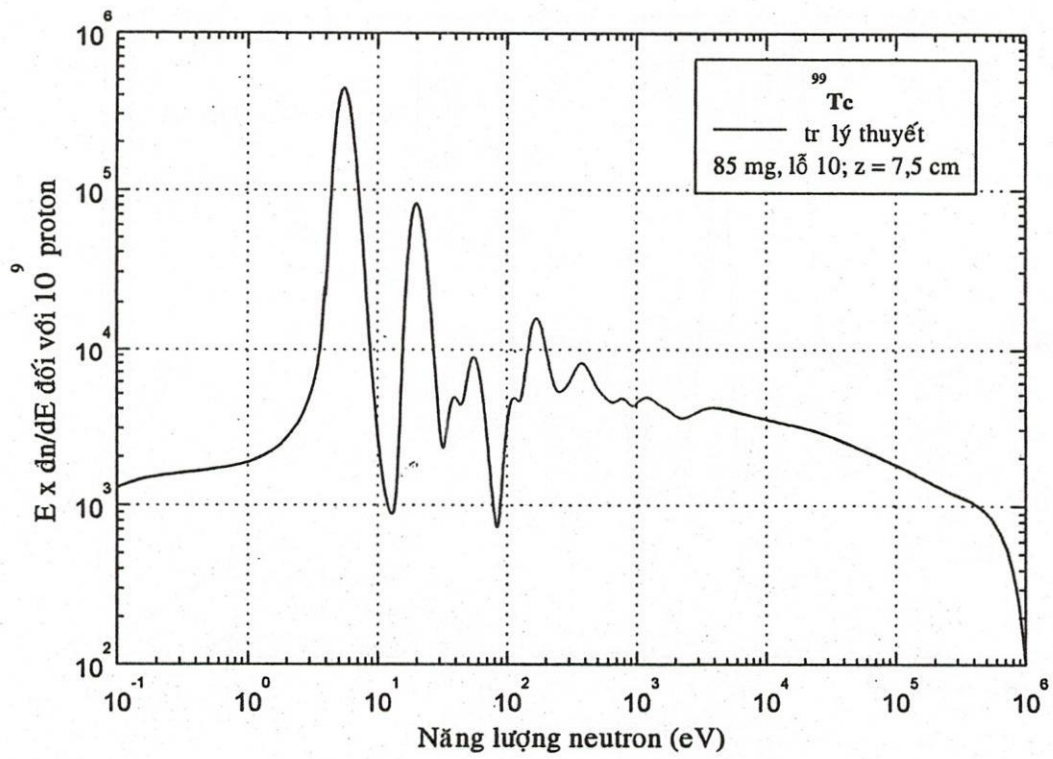
Hình 2: So sánh tiết diện ^{99}Tc đã được hiệu chỉnh của TARC và dữ liệu của JENDL-3.2.



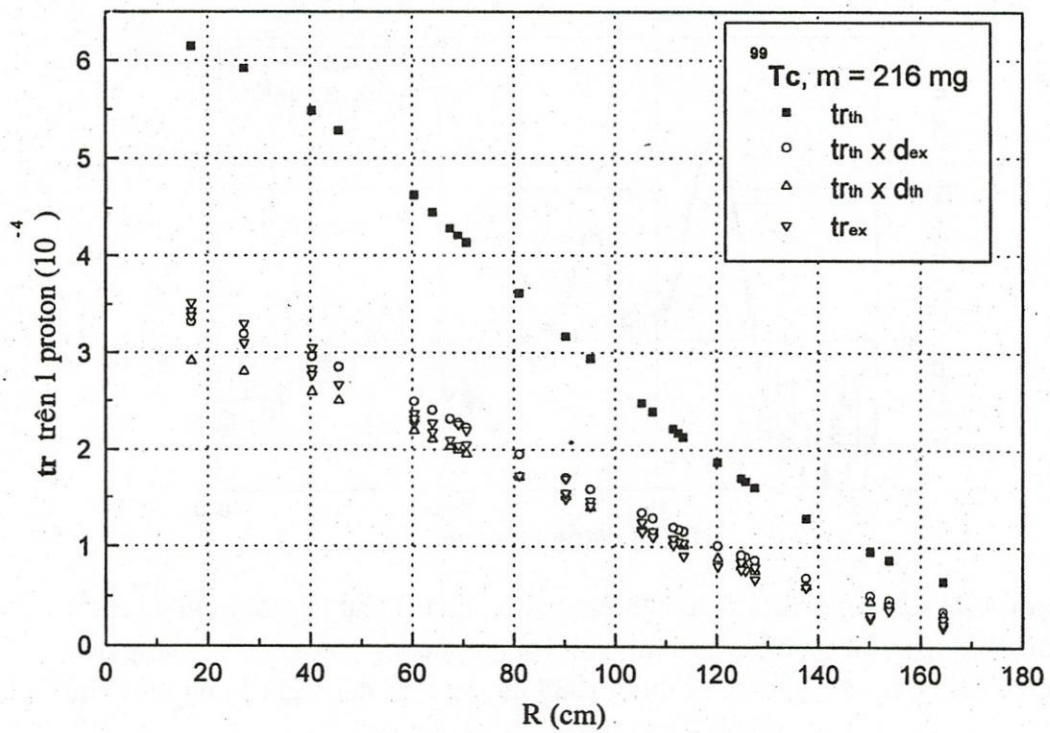
Hình 3: Tiết diện biểu kiến lý thuyết được tính toán bằng chương trình Math-4.0 sử dụng dữ liệu tiết diện từ JENDL-3.2.



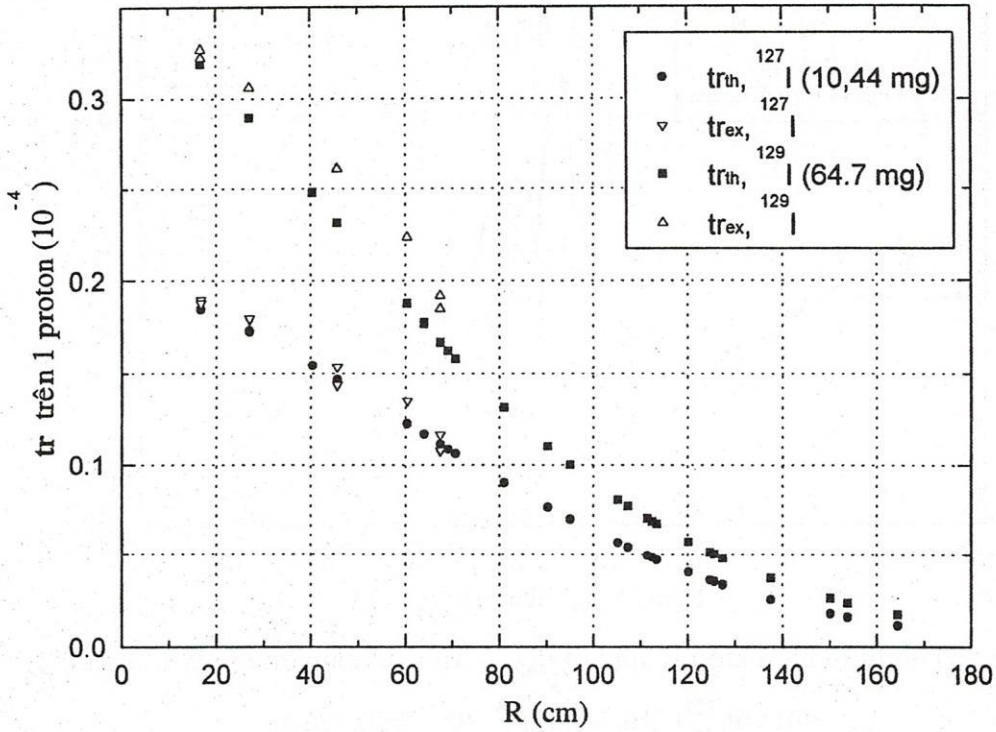
Hình 4: Tỷ số chuyển đổi thực nghiệm tr_{ex} (vi phân) như là một hàm số theo năng lượng neutron, được so sánh với tr_{MC} từ phương pháp MC sử dụng dữ liệu của JENDL. Mẫu được sử dụng chứa 85 mg ^{99}Tc được giữ trong một tấm nhôm 2 cm x 2 cm dày 1,5 mm.



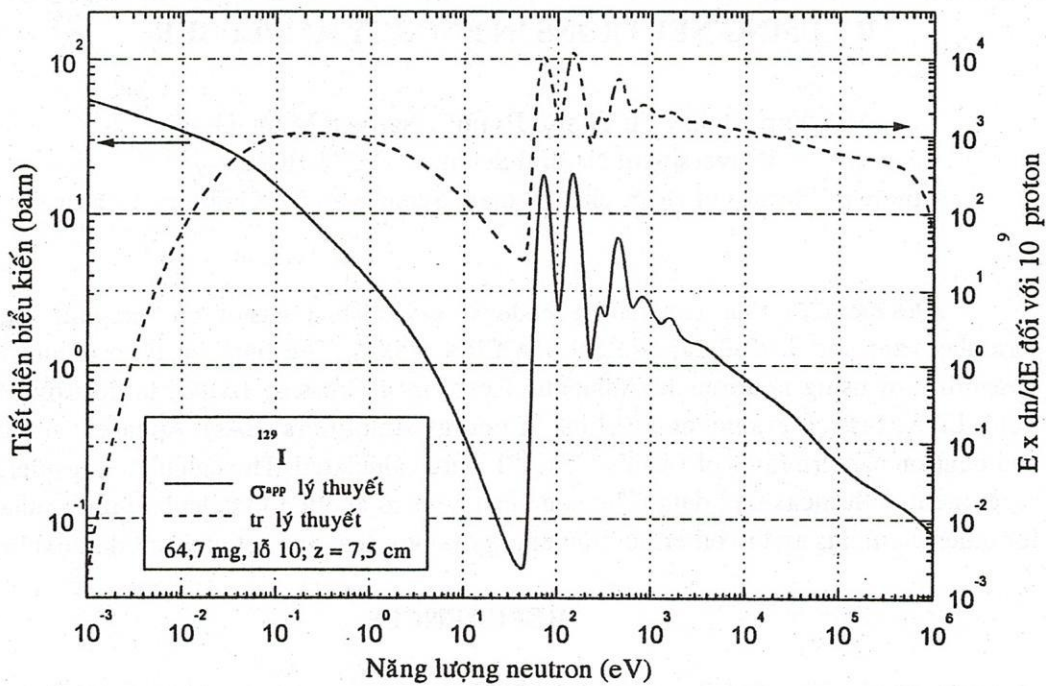
Hình 5: Tỷ số chuyển đổi lý thuyết tr_{th} đối với mẫu mỏng vô hạn ^{99}Tc (85 mg).



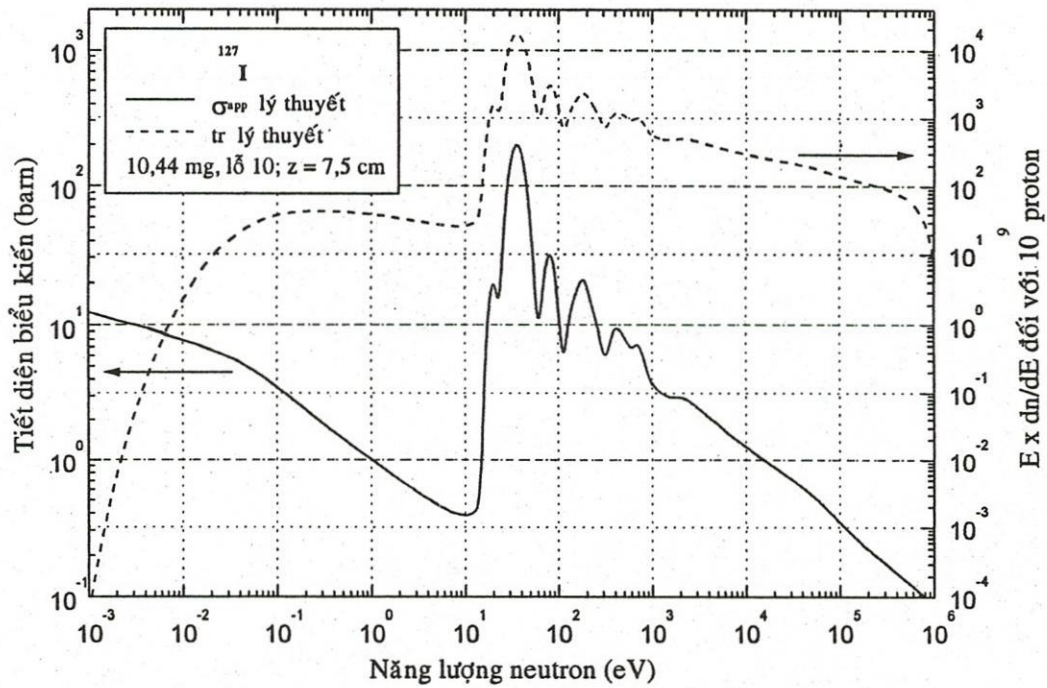
Hình 6: Số phản ứng bắt neutron trên một proton tới đối với 216 mg ^{99}Tc biến đổi theo khoảng cách tính từ tâm khối chì.



Hình 7: Tỷ số chuyển đổi tr_{ex} và tr_{th} đối với 1 proton tới khi kích hoạt neutron mẫu iốt chứa 10,44 mg ¹²⁷I và 64,7 mg ¹²⁹I.



Hình 8: Tiết diện biểu kiến lý thuyết và tỷ số chuyển đổi tr_{th} đối với ¹²⁹I (64,7 mg; lỗ 10; z = 7,5 cm).



Hình 9: Tiết diện biểu kiến lý thuyết σ_{app-th} và tỉ số chuyển đổi lý thuyết tr_{th} đối với ^{127}I (10,44 mg; lổ 10, z = 7,5 cm).

TRANSFORMATION ABILITY OF ^{99}Tc , ^{129}I INTO SHORT-LIVED ISOTOPES BY USING NEUTRONS IN ENERGY AMPLIFIER

Mai Van Nhon*, Tu Thanh Danh⁺, Nguyen Mong Giao⁺

* University of Natural Science – VNU-HCM

⁺ Institute of Physics of HCM city, Vietnam Science and Technology Centre

ABSTRACT: Our calculating code is established based on one-half experiment formulas from the TARC experiment at CERN (1999). The purpose is to demonstrate the possibility of using neutrons in Adiabatic Resonance Crossing (ARC) to destroy efficiently Long-Lived Fission Fragments (LLFFs) in Energy Amplifiers (EAs). Apparent cross sections and neutron capture rates of LLFFs ^{99}Tc , ^{129}I were calculated. The calculated results are good agreement with measured data. The code can be also applied to calculate transmutation rate for other elements and in other neutron energy ranges that are not measured in experiment.

REFERENCES

- [1] H. Arnould et al., *The TARC experiment (PS211): Neutron-driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing*, CERN Yellow Report 99-11, editor: J.P. Revol, 15 December 1999.
- [2] H. Arnould et al., *Experimental Verification of Neutron Phenomenology In Lead and Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing in Accelerator Driven Systems: A short summary*, SL-Note-2000-034 EET, Geneva, Switzerland, 5 April, 2000.

-
- [3] S. Díez, R. Fernández, E. González, *Simulation of the ^{99}Tc capture rate measurements performed in the tarac experiment*, CIEMAT, Madrid, Spain. (1998).
- [4] F. Carminati, R. Klapisch, J. P. Revol, Ch. Roche, J. A Rubio and C. Rubbia, *An energy amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator*, CERN/AT/93-47 (ET), CERN, Geneva 1 November 1993.
- [5] C. Rubbia, *A high gain energy amplifier operated with fast neutrons*, AIP Conference Proceedings 346, International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, 1994.
- [6] C. Rubbia et al., *Conceptual design of a fast neutron operated high power Energy Amplifier*, CERN/AT 95-44 (ET), Geneva, 29th September, 1995.
- [7] Francesco Venneri et al., *Hybrid (subcritical) systems for nuclear waste destruction and energy production*, Conference proceeding Vol. 59, Nuclear data for science and technology, 1997, p. 155-165.
- [8] F. Venneri et al., *Disposition of Nuclear Wastes Using Subcritical Accelerator-Driven Systems*, The Uranium Institute, twenty fourth annual international symposium 1999.
- [9] Jean-Pierre Revol, *Particle physics contribution to the elimination of nuclear waste*, The proceedings of VIII International Conference on Calorimetry in High Energy Physics, Lisbon, June 13-19, 1999.