University of Groningen

Nucleon-induced fission at intermediate energies

Duijvestijn, Maria Catherina

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

2000

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Duijvestijn, M. C. (2000). *Nucleon-induced fission at intermediate energies*. s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

SAMENVATTING

Vanuit de zoektocht naar de aard van materie ontstond in de negentiende eeuw het idee dat alles is opgebouwd uit ondeelbare bouwstenen zonder enige substructuur: de zogenaamde *atomen*. Experimenten uitgevoerd door Rutherford in 1911 vormden de eerste aanleiding om dit beeld te verfijnen. Zijn resultaten duiden op het bestaan van een kleine *kern* binnenin het atoom, die wordt omringd door een vele malen grotere *elektronenwolk*. De doorsnede van zo'n atoomkern bedraagt slechts één tienduizendste deel van het totale atoom. Ondanks deze kleine afmeting bevindt de totale massa van het atoom zich bijna volledig in de kern. Sinds de ontdekking van Rutherford heeft er zich een tak binnen de natuurkunde ontwikkeld die zich wijdt aan de bestudering van de atoomkern: de *kernfysica*.

Inmiddels is bekend dat de kern zelf is opgebouwd uit twee soorten kleinere deeltjes: *protonen* en *neutronen*, die tezamen *nucleonen* worden genoemd. Het aantal protonen in een kern is direct gekoppeld aan het element waartoe het atoom behoort. Zo heeft de kern van een ijzeratoom 26 protonen en van een loodatoom 82 protonen. De protonen zijn elektrisch positief geladen en de neutronen elektrisch neutraal; met als gevolg dat de kern positief geladen is. Positief geladen objecten ondervinden onderling een afstotende kracht: de *Coulomb kracht*. Dat de protonen in de atoomkern onder invloed van deze kracht niet uit elkaar vliegen is te danken aan de *kernkracht*. De aantrekkende kernkracht werkt tussen de nucleonen en vormt als het ware de lijm die de atoomkern intact houdt. Deze kracht neemt echter snel in sterkte af als de afstand tussen de nucleonen groter wordt en is daarom alleen actief als de nucleonen zich dichtbij elkaar bevinden zoals in de kern. Des te meer protonen er in een kern zitten, des te groter is het aantal neutronen dat nodig is om de nucleonen in de kern bijeen te houden.

Figuur 1 : Deformatie energie als functie van de uitrekking. Het resultaat is de splijtingsbarrière. Bovenin het plaatje is de vorm van de kern bij de verschillende mate van uitrekking getekend.

Voor zware kernen geldt dat het energetisch voordelig is om te splijten in twee lichtere kernen (de *splijtingsfragmenten*). Kernsplijting vereist een enorme reorganisatie van de nucleonen die begint met de min of meer bolvormige toestand van de oorspronkelijke kern en uiteindelijk uitmondt in twee wederom bolvormige dochterkernen. Hiertoe dient een kern zich uit te rekken totdat er een langgerekte vorm is ontstaan die een insnoering vertoont. Bij een nog grotere uitrekking breekt de kern vervolgens ter plaatse van de insnoering in twee stukken. Dit is geïllustreerd in Fig. 1. Gedurende het hele splijtingsproces wedijveren de kernkracht en de Coulombkracht met elkaar. Onder invloed van de Coulombkracht wil de kern zich graag zo lang mogelijk maken en uiteindelijk splijten. Tegelijkertijd echter probeert de kernkracht de kern terug te brengen in de oorspronkelijke sferische toestand, waarin elk nucleon zo veel mogelijk burens heeft. Bij kleine deformaties is de kernkracht nog sterker dan de Coulombkracht. Dit betekent dat er extra hulp nodig is, in de vorm van extra energie in de kern, om de kernkracht te overwinnen en de kern een beetje uit te rekken. Deze extra energie heet *excitatie energie*. Als de kern eenmaal een zekere mate van uitrekking heeft bereikt, begint de Coulombwisselwerking te overheersen en de deformatie te versterken. Deze situatie is enigszins analoog aan het fietsen in de bergen. Bij het omhoog gaan moet de zwaartekracht (hier met een vergelijkbare functie als de kernkracht) overwonnen worden door te trappen. Omlaag werkt de zwaartekracht (die nu de rol van de Coulombkracht speelt) juist mee en hoeft de fietser zelf geen inspanning meer te leveren. Als de energie die gepaard gaat met de deformerende van de kern wordt uitgezet tegen de mate van uitrekking ontstaat een plaatje als in Fig. 1. Het spel van de beide krachten geeft aanleiding tot de zogenaamde *splijtingsbarrière*; dit is de extra hoeveelheid energie $B_{splijting}$ die het in eerste instantie kost om de kernkracht te overwinnen. Uit het plaatje wordt ook al duidelijk dat er bij splijting

uiteindelijk meer energie vrijkomt dan er ingestopt moet worden. Op het splijtingspunt bedraagt dit al $B_{\text{splijting}} + E_{\text{winst}}$. Vervolgens de grootste energiewinst komt hierna en is afkomstig van de Coulombinteractie tussen de splijtingsfragmenten. Omdat deze nieuwe kernen beide positief geladen zijn stoten ze elkaar af en krijgen hierdoor een grote snelheid. Vervolgens remt de omliggende materie de fragmenten af en wordt hun snelheid omgezet in warmte. Het is deze warmte die in een kerncentrale wordt gebruikt om elektriciteit te produceren. Kernen met een protongetal groter dan 89 splijten redelijk makkelijk en worden *actiniden* genoemd.

De splijting in een kerncentrale vindt plaats in het makkelijk splijtbaar materiaal uranium (92 protonen) en wordt aangedreven door rondvliegende vrije neutronen. In een botsing van een neutron met een kern kan het neutron worden opgeslokt. Hierbij ontstaat een nieuwe kern met één extra neutron en een beetje overtollige energie. Deze energie kan de kern benutten om over de splijtingsbarrière heen te bewegen en te splijten. De splijtingsfragmenten bezitten ook een bepaalde hoeveelheid aan overtollige energie die ze ten dele kwijtraken door een paar neutronen uit te zenden. Als gemiddeld één van deze neutronen een volgende kern tot splijting aanzet is er sprake van een gecontroleerde kettingreactie die zichzelf precies in stand houdt. De reactor is dan *kritisch*. Indien er meer dan één neutron per splijting een volgende splijting teweegbrengt loopt de reactie uit de hand en ontstaat er zoveel warmte dat de reactor ontploft of door de bodem van het gebouw smelt (een zogeheten 'meltdown'). Daarom zijn in een kernreactor allerlei veiligheidsmechanismen noodzakelijk die de kettingreactie in de hand houden. Daarnaast produceert een kernreactor afval. De splijtingsfragmenten zijn instabiel en zenden verschillende soorten straling uit. Sommige kernen doen hier heel lang over en blijven wel honderdduizend jaar radioactief. Naast de radioactieve splijtingsprodukten ontstaan er in een reactor ook radioactieve zware kernen uit uraniumkernen die wel een neutron hebben ingevangen maar niet aan splijting zijn toegekomen. De straling afkomstig van het kernafval moet goed worden afgeschermd van het milieu om schade aan mensen, dieren en planten te voorkomen. Veilige opslag van materiaal dat honderdduizend jaar gevaarlijk blijft is echter niet te garanderen. Het blijkt mogelijk te zijn om de levensduur van het afval terug te brengen tot enkele honderden jaren. Door het langlevende afval opnieuw in een reactor te stoppen en te bestralen met neutronen kunnen de zware kernen alsnog worden gespleten en de lichte kernen kunnen door neutroneninvangst worden omgezet in nieuwe kernen die korter radioactief zijn. Dit proces heet de *transmutatie* van kernafval.

Een *versneller aangedreven reactor* (Accelerator-Driven System of ADS) heeft verschillende voordelen boven een conventionele reactor zowel wat betreft de veiligheid als wat betreft de produktie en transmutatie van afval. In Fig. 2 is de opbouw van zo'n systeem schematisch weergegeven. Uit een versneller komen protonen met zeer hoge energie (oftewel met een hoge snelheid). De protonen worden op een blok lood geschoten en induceren kernreacties. In

Figuur 2 : Schematische weergave van een ADS. De protonen worden versneld en getransporteerd naar het lood. Hier worden de neutronen geproduceerd (aangegeven met de gestippelde pijlen) waarvan een deel de subkritische reactor bereikt.

een botsing van een snel proton met een loodkern wordt een deel van de protonenergie overgedragen op de loodkern. De kern raakt verhit en wil deze extra energie graag kwijt. Dat kan onder meer door het uitzenden van neutronen en protonen. Deze neutronen en protonen zijn nog snel genoeg om met nieuwe reacties in andere loodkernen nog meer neutronen te produceren. Via een lawine aan reacties ontstaan per proton gemiddeld 30 neutronen. Een deel van de neutronen zal de eigenlijke reactor bereiken waarin de splijting plaatsvindt. Omdat er een overschot aan neutronen vanuit het lood de reactor binnenkomt hoeft een deel van de splijtingsreacties nu niet door de splijtingsneutronen geïnduceerd te worden en kan de reactor zelf *subkritisch* zijn; dit wil zeggen dat minder dan één neutron per splijting een volgende splijting veroorzaakt. Als de kettingreactie nu te snel zou verlopen hoeft slechts de versneller uitgeschakeld te worden en de kettingreactie dooft uit. Hiermee is dit type reactor veiliger dan een conventionele reactor. Voorts verloopt het transmuteren van afval efficiënter in een ADS, doordat er zoveel meer neutronen beschikbaar zijn in de reactor. Daarnaast zal er in plaats van uranium waarschijnlijk thorium (90 protonen) in de reactor worden gestopt waardoor ook minder lang radioactief blijvend actinidenafval wordt aangemaakt.

Omdat het ADS-concept redelijk nieuw is, moet er nog veel worden onderzocht. Om een haalbaarheidsstudie te kunnen doen is het van belang de bijdragen te kennen van alle mogelijk kernreacties die op kunnen treden. Een van de reacties waar niet zo veel over bekend is vormt het onderwerp van dit proefschrift: *hoogenergetische splijting*. Omdat de inkomende energie van de protonen zo hoog is zullen er naar alle waarschijnlijkheid neutronen zijn die de

kern bereiken met een energie die een factor 100 hoger ligt dan die van neutronen in een conventionele reactor. Splitsing bij deze hoge energieën van zowel het lood als het uranium of thorium verloopt heel anders. Een belangrijk verschil met laagenergetische splitsing wordt zichtbaar door naar de belangrijkste grootheid die bestudeerd is in dit werk te kijken: de *massaverdeling* van de splitsingsprodukten Y_{massa} . De massa wordt uitgedrukt in het aantal nucleonen. Fig. 3 toont voor uranium in het linker plaatje Y_{massa} bij lage inkomende neutronenergie en in het rechter plaatje bij een energie die ruim honderd maal hoger is. De gebruikte eenheid voor energie is MeV wat staat voor een miljoen elektronvolt (eV). De neutronenergie in een reactor varieert van een honderdste eV tot een paar MeV en de maximale energie die in dit werk wordt beschouwd is 200 MeV. De massaverdeling laat zien dat splitsing bij lage energie bij voorkeur in één licht en één zwaar fragment resulteert met gemiddeld respectievelijk 100 en 137 nucleonen. Dit heet asymmetrische splitsing en is karakteristiek voor laagenergetische splitsing in actiniden. Bij een energie die veel hoger ligt is de gemeten massaverdeling symmetrisch; de geproduceerde fragmenten zijn in de meeste gevallen ongeveer even zwaar met een gemiddelde massa van 112 nucleonen. Hoe deze overgang van asymmetrische naar symmetrische splitsing in actiniden precies tot stand komt is nog niet volledig begrepen. Lichtere kernen (zoals lood) splitsen ook bij lage energie bijna geheel symmetrisch.

Daarnaast wordt het splitsingsproces bij hoge energie een stuk gecompliceerder vanwege de bijdragen van verscheidene splijtende systemen. Als een neutron of proton met hoge snelheid een kern binnenkomt krijgt deze zo veel extra energie dat er eerst een aantal nucleonen wordt geëmitteerd voordat het langzamere splitsingsproces een kans krijgt. Splitsing betekent een collectieve beweging van alle nucleonen waarmee meer tijd gemoeid is dan met het uitzenden van een enkel nucleon. Anders dan bij conventionele laagenergetische splitsing waarin een neutron wordt ingevangen en vervolgens de nieuwe kern

Figuur 3 : Het linker plaatje bevat de massaverdeling van de splitsingsprodukten voor splitsing in uranium (^{238}U) bij een inkomende neutronenergie van 1.6 MeV [112] en het rechter plaatje voor een inkomende neutronenergie van 200 MeV [39].

als geheel in twee brokstukken uiteenvalt, vindt splijting bij hoge energieën dus plaats in competitie met het afdampen van nucleonen. In plaats van dezelfde splijtende kern met een vaste excitatie energie in elke reactie, zijn er nu tientallen verschillende splijtende kernen mogelijk met een excitatie energie variërend tussen (bijna) nul en de oorspronkelijk ingebrachte energie van het invallende deeltje. Bij het berekenen van hoogenergetische splijting dienen al deze bijdragen meegenomen te worden.

Omdat er een gebrek bestaat aan experimentele gegevens over splijting bij hoge energieën is er in het kader van dit promotieonderzoek allereerst een experiment uitgevoerd. Hierin zijn de splijtingsprodukten gemeten in reacties van protonen met wolfram, goud, lood en thorium. De AGOR-versneller van het KVI in Groningen leverde een bundel protonen met een energie van 190 MeV waarmee folies van de te bestuderen materialen zijn bestraald. Dit is geïllustreerd in Fig. 4 voor lood. De protonbundel raakt het loodfolie waarin splijting kan optreden. De splijtingsprodukten (SP) bezitten voldoende snelheid om uit dit folie te schieten vanwege de al eerder genoemde Coulomb repulsie. Ze worden vervolgens gestopt in de dikke plastic folies aan weerszijden van het loodfolie. Loodkernen (LK) die wel een oplawaai krijgen van een proton maar niet splijten hebben minder snelheid en worden afgevangen in de tussenliggende filterfolies. Na bestraling zitten de dikke plastic folies vol met radioactieve splijtingsprodukten, waarvan vele gammastraling uitzenden. De precieze energieën van deze gamma's vormen een vingerafdruk voor de kern waarvan de straling afkomstig is. Gammametingen aan de plastic folies brengen op deze wijze aan het licht hoeveel van welk splijtingsprodukt aanwezig is. De uitkomsten voor lood zijn weergegeven in Fig. 5. De resulterende massaverdeling duidt op volledige symmetrische splijting. Fig. 6 laat de gemeten massaverdeling van thorium zien. Hieruit blijkt duidelijk dat zelfs met deze hoge inkomende energie nog een spoor van asymmetrische splijting aanwezig is. De asymmetrische bijdragen zijn afkomstig van kernen die eerst veel excita-

Figuur 4 : Schematisch overzicht van de bestraling van een loodfolie en het opvangen van de splijtingsprodukten (SP). Een loodkern (LK) die wel een zetje krijgt maar niet splijt wordt opgevangen in een filterfolie.

Figuur 5 : De in dit werk gevonden opbrengsten voor verschillende massa's van splijtingslood (^{208}Pb) bij 190 MeV.

Figuur 6 : Soortgelijk plaatje als Fig. 5 voor thorium (^{232}Th). De lijnen geven de symmetrische en asymmetrische componenten.

tie energie zijn kwijtgeraakt door nucleonenverdamping en uiteindelijk pas bij een veel lagere energie splijten.

In de tweede fase van dit onderzoek is een nieuwe berekeningsmethode ontwikkeld om voorspellingen van massaverdelingen mee te kunnen doen. De methode is gebaseerd op een model dat in de jaren '80 ontwikkeld is door Brosa [53] voor zeer laagenergetische splijting. Door de deformatie energie van een kern te berekenen als functie van alle mogelijke vormen die hij aan kan nemen, ontstaat er een soort deformatie energie landschap met heuvels (zoals de splijtingsbarrières die in het begin van deze samenvatting beschreven zijn) en valleien (lager gelegen delen die minder energie kosten dan andere delen van het landschap). Als de kern vervormt wandelt hij als het ware rond in dit landschap van de ene vorm naar de andere. Het blijkt dat een kern hierbij kan kiezen tussen verschillende paden (of *splijtingsmodes*) die zoveel mogelijk de valleien aanhouden en daarmee energetisch gunstiger zijn dan de ontelbare andere wegen in het landschap. Sommigen van deze paden leiden naar asymmetrische splijting en andere naar symmetrische splijting. Dit is direct gekoppeld aan de vorm van de kern vlak voor splijting. Als de kern erg langgerekt is kan hij op veel plaatsen breken wat aanleiding geeft tot een brede massaverdeling. Bovendien zal de uiteindelijk massaverdeling asymmetrisch zijn als de voorgedemde fragmenten al veel in massa verschillen aan het einde van het pad. De asymmetrie van de kern en zijn lengte op het splijtingspunt leggen de massaverdeling dus vast. Tot dusver vormt alles nog onderdeel van het oorspronkelijke Brosa model.

De bijdrage van dit werk zit in een aantal uitbreidingen. Ten eerste is het model aangepast zodat er ook splijting van kernen met veel excitatie energie in beschreven wordt. Naarmate de kern meer excitatie energie heeft verandert het deformatie energie landschap. Eerst versmelten de verschillende asymmetrische modes en bij nog hogere energieën verdwijnt asymmetrische splijting helemaal. De symmetrische mode blijft dan alleen over. Hiermee is de basis gelegd om

Figuur 7 : Massaverdelingen voor neutron geïnduceerde splijting in uranium (^{238}U) bij 13.0 MeV, 100.0 MeV en 200.0 MeV. De cirkels corresponderen met de experimentele data [39] en de lijnen met de berekeningen.

de veranderingen in de massaverdelingen die experimenteel zijn waargenomen (zie Fig. 3) met een model te reproduceren. Ten tweede is het van belang dat het model de bijdragen van alle splijtingsmodes geeft. Dit maakt een tweede toevoeging aan het Brosa model noodzakelijk. Sommige paden voeren over hogere (en bredere) heuvels dan andere en zijn daarmee energetisch ongunstiger, waardoor de kern dat pad minder vaak zal kiezen. Als de hoogte en breedte van de barrières berekend zijn kan de relatieve bijdrage van elke mode bepaald worden. Door massaverdelingen te wegen met de relatieve bijdragen van de verschillende splijtingsmodes en op te tellen ontstaat de totale massaverdeling behorende bij een kern met een bepaalde excitatie energie. Ten derde moet voor hoogenergetische splijting de competitie met het afdampen van nucleonen worden meegenomen omdat dit vertelt welke kernen met hoeveel excitatie energie uiteindelijk splijten. Hiertoe is er een koppeling gemaakt met de computer code ALICE-91 [52] die in berekeningen splijting als onderdeel van een complete kernreactie beschouwt. De oorspronkelijke versie van ALICE-91 stopt na de bepaling van de splijtingswaarschijnlijkheid. De nieuwe versie die is uitgebreid met het aangepaste Brosa model geeft nu ook de massaverdeling van de splijtingsfragmenten.

Resultaten van dit soort berekeningen voor uranium kunnen worden gevonden in Fig. 7. Voor uranium komen de voorspellingen bijzonder goed overeen met de meetpunten. In het algemeen blijkt dat de nauwkeurigheid varieert tussen de 10% en 50%, maar in sommige gevallen lopen de afwijkingen op tot een factor 10 (met name in de flanken van massaverdelingen).

Dit onderzoek vormt een stap op de weg naar een dieper inzicht in het hoog-energetische splijtingsproces. Een combinatie van verdere verfijningen in de theoretische modellen en de juiste nieuwe experimenten zal uiteindelijk tot een antwoord kunnen leiden op de vraag naar de ware natuur van de waargenomen energie- en massa-afhankelijke overgang van asymmetrische naar symmetrische splijting.