



ВНИИНМ
РОСАТОМ

Расчет калибровочных коэффициентов метода множественности нейтронов измерения эффективной массы плутония-240

Владимиров Даниил Анатольевич, АО «ВНИИНМ», НИЯУ МИФИ
Рогожкин Владимир Юрьевич, АО «ВНИИНМ»
Власкин Геннадий Николаевич, АО «Прорыв»
Алеева Татьяна Борисовна, НИЯУ МИФИ

**Научно-практическая конференция «Нейтронно-физические
проблемы атомной энергетики (НЕЙТРОНИКА-2024)», 28.05-
31.05.2024 г**

Метод множественности нейтронов



Метод множественности нейтронов был предложен в развитие метода нейтронных совпадений для определения массы плутония при наличии фона нейтронов (α, n)-реакции в условиях вынужденного деления[1]. В нем оценивают эффективную массу плутония-240 по измеренным скоростям счета N_n совпадений кратности n , которые в модели метода связаны с факториальными моментами распределения множественности нейтронов соотношениями

$$N_n = S \varepsilon^n \chi_n \langle i(i-1) \dots (i-n+1) \rangle / n!$$
$$\chi_n = \chi^{n-1}$$

где S – скорость первичных событий (спонтанных делений и (α, n) – реакций);

Калибровочные коэффициенты: ε – эффективность регистрации нейтронов;

χ – коэффициент отбора двойных совпадений во временных воротах длительностью G ;

$\langle i(i-1) \dots (i-n+1) \rangle = \sum_{i=n}^{\infty} i(i-1) \dots (i-n+1) P(i)$ - факториальный момент порядка n ;

$P(i)$ - распределение множественности нейтронов, рождающихся в одном первичном событии, включая нейтроны реакций вынужденного деления, которые вызваны поглощением в образце;

Модель метода представляет собой систему из трех уравнений, которые связывают

три измеряемые скорости счета

N_1 – одиночные нейтроны,

N_2 – двойные совпадения,

N_3 – тройные совпадения

с тремя неизвестными параметрами объекта измерений:

S - скоростью спонтанных делений

(эффективной массой ^{240}Pu),

M - коэффициентом умножения нейтронов,

α - отношением числа (α, n) - нейтронов к числу нейтронов спонтанного деления,

Эффективная масса ^{240}Pu :

$$m_{eff} = m_{Pu} \cdot (2,52 \cdot ^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + 1,68 \cdot ^{242}\text{Pu})$$

$$m_{eff} = C \cdot S_{sp} \quad C = \frac{1}{473,5} \quad [\text{с} \times \Gamma]$$

где m_{eff} - эффективная масса ^{240}Pu ,

m_{Pu} - масса плутония,

^{238}Pu - м.д. изотопа ^{238}Pu ,

^{240}Pu - м.д. изотопа ^{240}Pu ,

^{242}Pu - м.д. изотопа ^{242}Pu ,

Решение уравнений точечной модели



ε – расчетная эффективность регистрации нейтронов

χ – расчетный коэффициент отбора совпадений

ν_{si} - факториальные моменты распределения

множественности нейтронов спонтанного деления, ядерные данные.

ν_{fi} - факториальные моменты распределения

множественности нейтронов вынужденного деления, ядерные данные

$$a + bM + cM^2 + M^3 = 0$$

$$a = \frac{-6N_3\nu_{s1}(\nu_{f1} - 1)}{\varepsilon^2\chi^2N_1(\nu_{s2}\nu_{f3} - \nu_{s3}\nu_{f2})}$$

$$b = \frac{2N_2[\nu_{s3}(\nu_{f1} - 1) - 3\nu_{s2}\nu_{f3}]}{\varepsilon\chi N_1(\nu_{s2}\nu_{f3} - \nu_{s3}\nu_{f2})}$$

$$c = \frac{6N_2\nu_{s2}\nu_{f2}}{\varepsilon\chi N_1(\nu_{s2}\nu_{f3} - \nu_{s3}\nu_{f2})} - 1$$

$$S_{sp} = \frac{\left[\frac{2N_2}{\varepsilon\chi} - \frac{M(M-1)\nu_{f2}N_1}{\nu_{f1} - 1} \right]}{\varepsilon M^2 \nu_{s2}}$$

$$m_{eff} = C \cdot S_{sp}$$

$$\alpha = \frac{N_1}{S_{sp}\varepsilon\nu_{s1}M} - 1$$

Счетчик множественности надтепловых нейтронов RENMC



Верхняя заглушка

Верхняя плита

Трубки с влагопоглотителем

Передняя плита

Светодиодные индикаторы

АМРТЕК

Регулируемые опоры

Эксперименты и расчеты проводились со счетчиком RENMC.

В счетчике имеются 115 газоразрядных детекторов с He-3 под давлением 10 атмосфер, диаметром 2,45 см и активной длиной 76 см, вставленных в полиэтиленовую матрицу. Число трубок в 1-м (от полости), 2-м, 3-м, 4-м кольцах составляет 24, 30, 29, 32 соответственно. Между полиэтиленовой матрицей с трубками с He-3 и измерительной полостью расположен слой кадмия, сверху и снизу измерительной полости расположены графитовые торцевые заглушки толщиной в 15,2 см. Между слоем кадмия и стенкой корпуса счетчика находится не менее 5 см полиэтилена.

Были проведены эксперименты и расчеты со следующими образцами:

- 5-ью образцами металлического плутония из комплекта АО 95 505/531-44-2021;
- образцами АО 95 505/531-44/406 и АО 95 505/531-44/506 в свинцовом чехле с толщиной стенки 2 мм;
- стандартным образцом металлического плутония СП-1;
- 2-мя образцами диоксида плутония из комплекта ГСО 8454-2003;
- 3 упаковками из ТУК-30 с диоксидом плутония ПО «Маяк»;
- 5 контейнерами ВНИИНМ с диоксидом плутония ПО «Маяк», перетаренным из контейнера «Маяк-1» ;



Образцы металлического плутония



Образец диоксида плутония



Контейнер ВНИИНМ



Контейнер Маяк

Постановка задачи

Развитый способ калибровки позволяет использовать точечную модель суперделений для анализа протяженных объектов. Однако для этого необходимы стандартные образцы с близкими к анализируемым нейтронно-физическими свойствами, что вызывает проблему их большого количества с присущей им сложной процедурой изготовления и аттестации.

Для внесения поправок в калибровочные коэффициенты с целью уменьшения потребности в количестве стандартных образцов в настоящей работе рассматривается применение программного комплекса SERPENT[2], реализующего метод Монте-Карло, для моделирования нейтронных процессов в счетчике RENMC.

Цель работы заключается в расчете калибровочных коэффициентов ϵ (эффективность регистрации нейтронов) и χ (коэффициент отбора совпадений) с учетом их зависимости от нейтронно-физических свойств анализируемых образцов.

Обоснование работоспособности разработанной математической модели проводится путем сравнения расчетов с экспериментальными данными для стандартных образцов, для контейнеров ТУК-30 и контейнеров ВНИИНМ с диоксидом плутония ПО «Маяк».

В экспериментах измеряли скорости счета одиночных нейтронов $N_{1э}$, двойных $N_{2э}$ и тройных $N_{3э}$ нейтронных совпадений. По результатам измерений методом, описанным в работе [3], были выполнены оценки экспериментальных значений: калибровочных коэффициентов $\varepsilon_э$ и $\chi_э$, коэффициента умножения нейтронов утечки из образца $M_э$ (отношение числа вылетевших из образца нейтронов к числу нейтронов, родившихся в первичных событиях - в результате спонтанного деления и (α, n) - реакции), $\alpha_э$.

Модель счетчика множественности надтепловых нейтронов RENMC разработана в программной среде SERPENT с использованием комбинаторной геометрии. Расчеты проведены на основе библиотек ядерных данных ENDF/B-VII.0 и JEFF-3.1.1 [4]. Спектр и выход нейтронов (α, n) - реакций рассчитан по программе NEDIS 2.0[5]. Рассчитанный спектр по NEDIS 2.0 задавался в SERPENT как внешний источник.

Построение модели счетчика RENMC в программном комплексе SERPENT

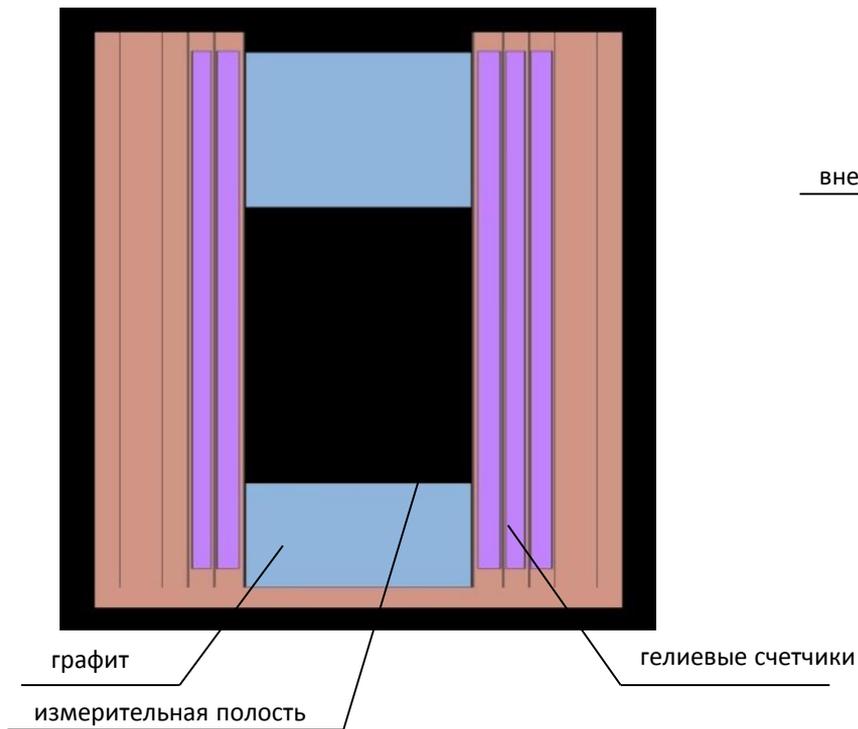


Рис.1.- построенная при помощи программного комплекса SERPENT геометрия счетчика RENMC в разрезе

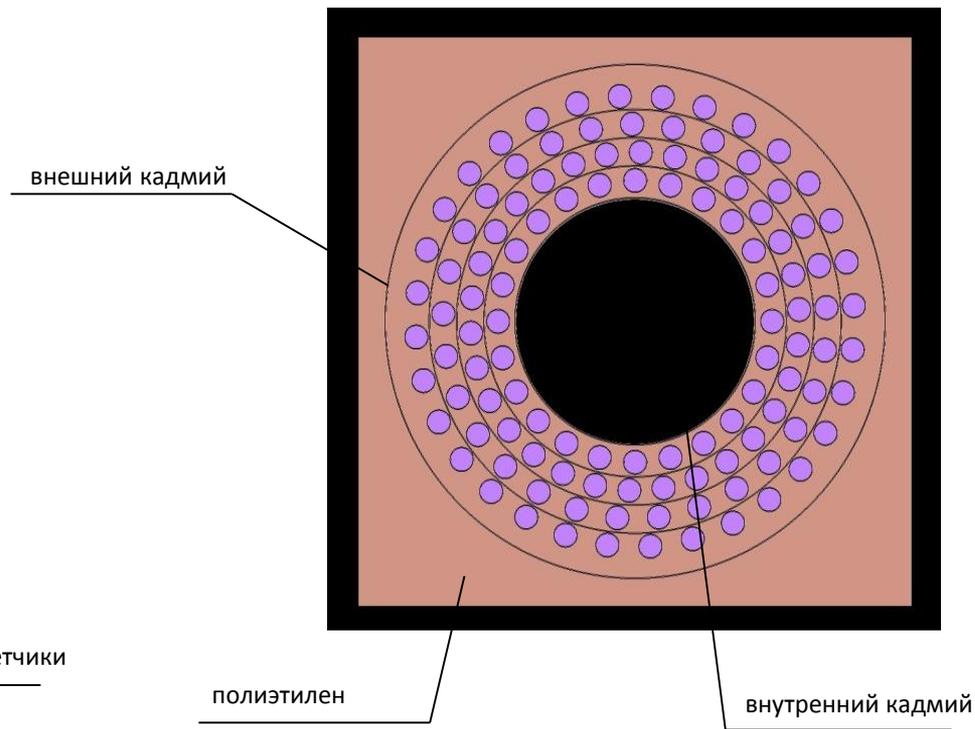


Рис.2. - построенная при помощи программного комплекса SERPENT геометрия счетчика RENMC в виде сверху

Обоснование работоспособности математической модели счетчика RENMC

По программе SERPENT рассчитывали средний поток нейтронов в детекторе, коэффициент размножения нейтронов и скорости следующих процессов: поглощения в ^3He -счетчиках (скорость счета нейтронов), (n, f) - реакций вынужденного деления в источнике, рождения нейтронов вынужденного деления, (n, γ) - реакций поглощения в источнике, утечки нейтронов из детектора. По результатам численного расчета оценивали эффективность регистрации нейтронов и коэффициент отбора совпадений (через время жизни нейтрона в установке).

Эффективность регистрации нейтронов определяли, как отношение скорости счета к суммарной мощности источника (спонтанное деление, (α, n) - реакция, вынужденное деление). Для всех образцов расчеты эффективности регистрации нейтронов были выполнены по формуле:

$$N_{1p} = \varepsilon_p \left[v_{cn} S_{cn} (1 + \alpha_p) + v_f S_f \right]$$

Для образцов металлического плутония принимали $\alpha_p = 0$. Для контейнеров с диоксидом плутония значения α_p рассчитывались по программе NEDIS 2.0.

Коэффициент умножения M_p оценивали по мощности источника первичных нейтронов и рассчитанным скоростям реакций вынужденного деления и радиационного захвата в образце.

Метод расчета коэффициента отбора совпадений

Для всех типов образцов по времени жизни нейтрона в установке τ рассчитывали по формуле коэффициента отбора совпадений $\chi_p[1]$:

$$\chi_p = e^{-\frac{P}{\tau}} (1 - e^{-\frac{T}{\tau}})$$

где τ – время жизни нейтрона в установке, с

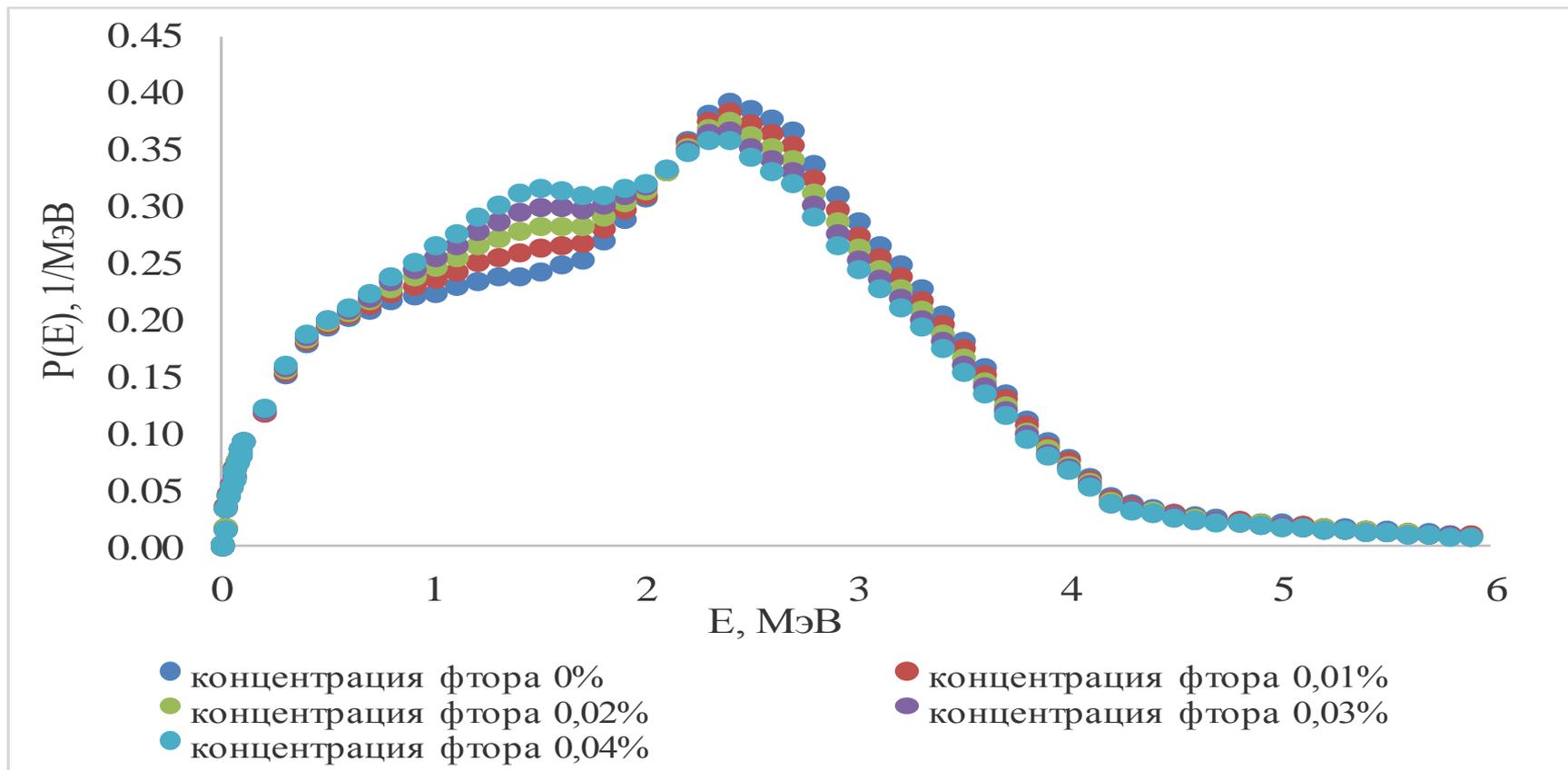
Время жизни рассчитывали из уравнения баланса нейтронов в стационарном состоянии для гомогенизированной системы, макросечения реакций и спектр нейтронов в которой формируются программой SERPENT по результатам расчета Монте-Карло:

$$\tau = \sum_{i=1}^{273} \tau_i = \sum_{i=1}^{273} \frac{\Phi_i(E_i) \times V}{\nu_i(E_i) \times [\nu_{cn} S_{cn} (1 + \alpha_p) + \nu_f S_f] - S_y}$$

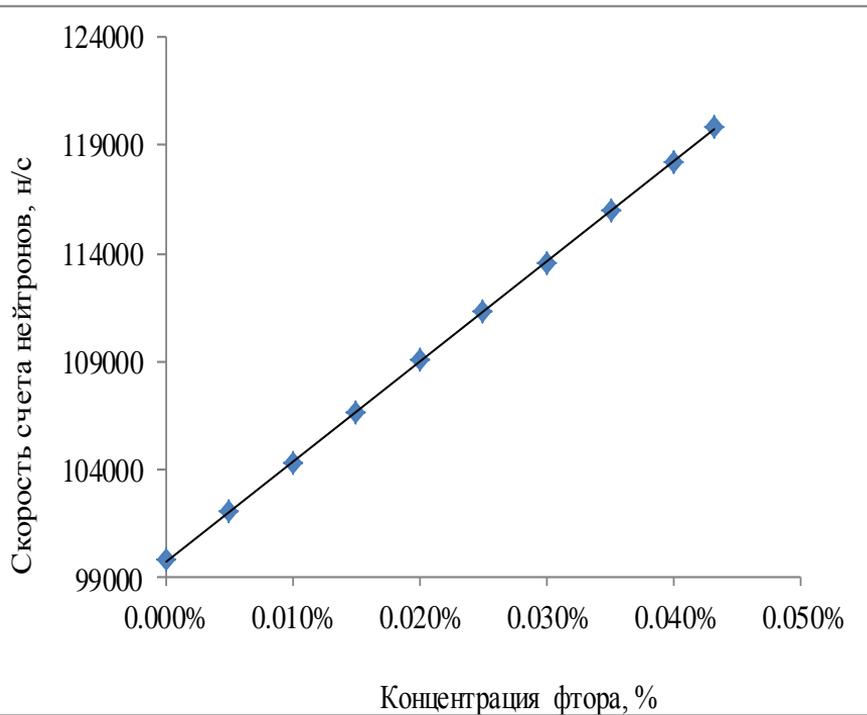
Сравнение рассчитанных и экспериментальных скоростей счета показало, что для всех типов образцов их расхождение не превышает 4%, кроме контейнеров Маяк-1, Маяк-2 и Маяк-3, для которых измеренная скорость счета выше рассчитанной на 7-18%.

При измерениях с контейнером Маяк-1 было выявлено несоответствие измеренного в ходе эксперимента параметра α рассчитанному на основании паспортных данных о составе образцов. С порошком диоксида плутония были выполнены гамма-спектрометрические измерения, в результате которых была обнаружена линия 1275 кэВ, образующаяся при реакциях $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}(\beta^+)^{22}\text{Ne}$ и $^{19}\text{F}(\alpha, p)^{22}\text{Ne}$. Оцененная по этим данным концентрация фтора не менее 0,020%. Обнаруженная примесь фторсодержащего соединения распределена неоднородно – ее в 2-3 раза меньше в нижней части исходной упаковки. Помимо этого, возможно образование влаги - до 2,5% массы порошка диоксида плутония.

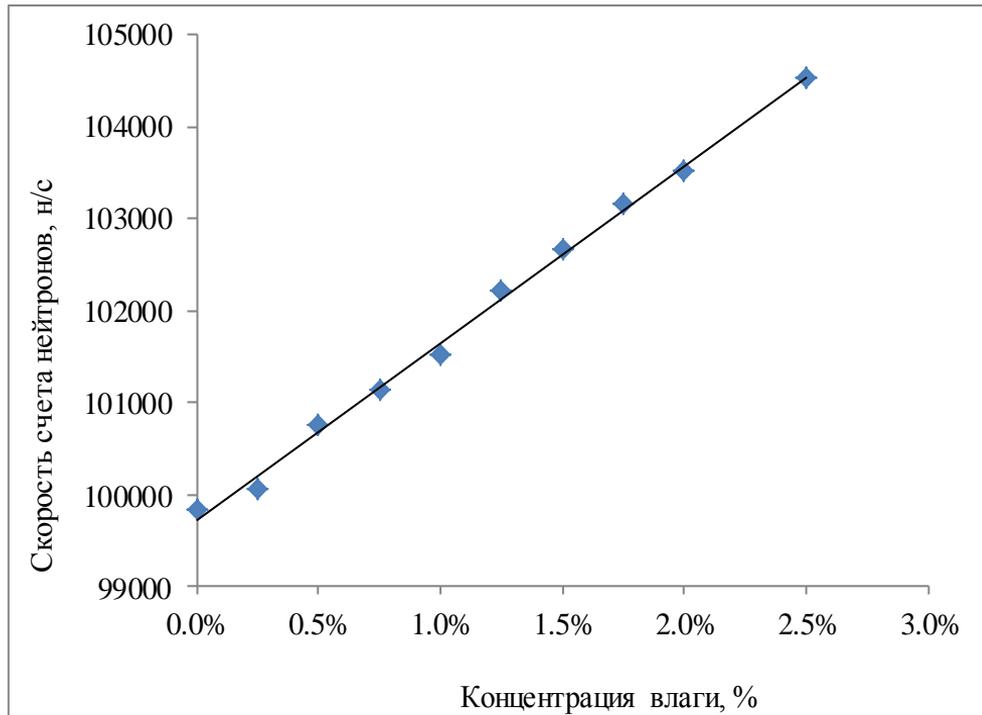
Для устранения несоответствия скоростей счета в контейнерах Маяк-1, Маяк-2 и Маяк-3, а также П-1, П-3, П-4, П-9 и П-11 при помощи программного комплекса NEDIS 2.0 проведен учет (α, n) – реакции на кислороде и фторе: при расчете характеристик источника нейтронов предполагалось, что в порошке диоксида присутствуют примеси фтора и влаги в такой концентрации, что рассчитанные скорости счета и значения α равны экспериментальным.



Рассчитанные по NEDIS 2.0 спектры нейтронов в зависимости от концентрации фтора для контейнера Маяк-1



Зависимость скорости счета нейтронов от концентрации фтора для контейнера Маяк-1



Зависимость скорости счета нейтронов от концентрации влаги для контейнера Маяк-1

Значения экспериментальных и рассчитанных значений скоростей счета, эффективности регистрации, коэффициентов умножения нейтронов утечки и отношение числа (α , n) - нейтронов к числу нейтронов спонтанного деления

№ образца	N_s , 1/с	N_p , 1/с	ε_s	ε_p	M_s	M_p	α_s	α_p
АО 95 505/531-44/106 без чехла	69,5±0,1	70,3	0,586±0,007	0,569	1,060±0,003	1,045	0,078±0,032	0
АО 95 505/531-44/206 без чехла	172,6±0,1	175,7	0,575±0,006	0,565	1,076±0,004	1,062	0,038±0,029	0
АО 95 505/531-44/306 без чехла	592,3±0,2	602,5	0,576±0,006	0,557	1,118±0,004	1,097	0,049±0,055	0
АО 95 505/531-44/406 без чехла	1991,0±0,3	2020,2	0,565±0,006	0,546	1,175±0,006	1,152	0,022±0,050	0
АО 95 505/531-44/506 без чехла	5889,0±1,1	5979,2	0,556±0,004	0,533	1,272±0,007	1,235	0,056±0,022	0
АО 95 505/531-44/406 в чехле	2002,0±0,3	2045,6	0,565±0,007	0,549	1,182±0,004	1,159	0,018±0,020	0
АО 95 505/531-44/506 в чехле	5936,0±0,5	6074,1	0,556±0,006	0,534	1,278±0,002	1,247	0,007±0,020	0
ГСО-03.1.02	181,2±0,2	179,9	0,602±0,016	0,562	1,032±0,006	1,012	0,748±0,070	0,885
ГСО-03.4.02	496,1±0,1	490,2	0,557±0,014	0,568	1,010±0,005	1,011	0,466±0,049	0,412
СП-1	48680,0±3,9	50532,8	0,578±0,015	0,555	1,138±0,13	1,109	-0,013±0,043	0
П-1	8782±0,7	8949	0,537±0,002	0,543	1,066±0,008	1,046	1,44±0,06	1,43
П-3	9245±0,8	9351	-	0,543	1,068±0,007	1,047	1,454	1,418
П-4	8723±0,7	8807	-	0,542	1,067±0,007	1,046	1,408	1,379
П-9	8360±0,7	8519	-	0,540	1,067±0,007	1,047	1,258	1,268
П-11	8472±0,7	8604	0,547±0,012	0,539	1,077±0,010	1,047	1,19±0,09	1,23
Маяк-1	120200±4	122065	0,540±0,002	0,522	1,143±0,011	1,124	1,636±0,039	1,608
Маяк-2	175800±3	178459	0,533±0,003	0,513	1,180±0,013	1,164	1,260±0,036	1,225
Маяк-3	193200±2	194188	0,521±0,002	0,512	1,195±0,015	1,171	1,339±0,036	1,225

Значения коэффициентов отбора совпадений

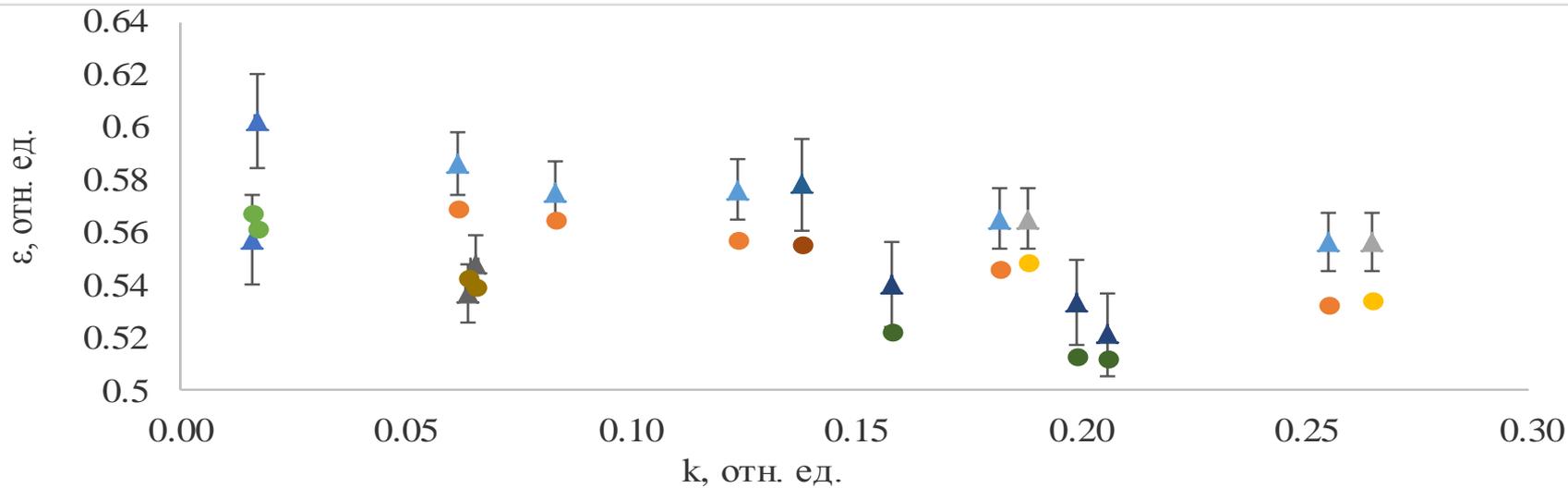
№ образца	$\chi_э$	χ_p
АО 95 505/531-44/106 без чехла	0,589±0,023	0,619
АО 95 505/531-44/206 без чехла	0,611±0,024	0,621
АО 95 505/531-44/306 без чехла	0,600±0,022	0,624
АО 95 505/531-44/406 без чехла	0,625±0,026	0,629
АО 95 505/531-44/506 без чехла	0,624±0,025	0,634
АО 95 505/531-44/406 в чехле	0,645±0,033	0,632
АО 95 505/531-44/506 в чехле	0,618±0,032	0,637
ГСО-03.1.02	0,538±0,084	0,604
ГСО-03.4.02	0,699±0,069	0,608
СП-1	0,597±0,074	0,627
П-1	0,603±0,064	0,638
П-3	-	0,638
П-4	-	0,638
П-9	-	0,637
П-11	0,560±0,121	0,637
Маяк-1	0,646±0,048	0,627
Маяк-2	0,652±0,041	0,632
Маяк-3	0,636±0,040	0,632

Сравнение расчетов с экспериментом показало, что:

- рассчитанная эффективность регистрации совпадает с измеренной эффективностью в пределах 5%;
- различия между расчетными и экспериментальными значениями коэффициента умножения нейтронов не превышают 3%;
- рассчитанные коэффициенты отбора совпадений и измеренные согласуются в пределах погрешности – примерно 10%.

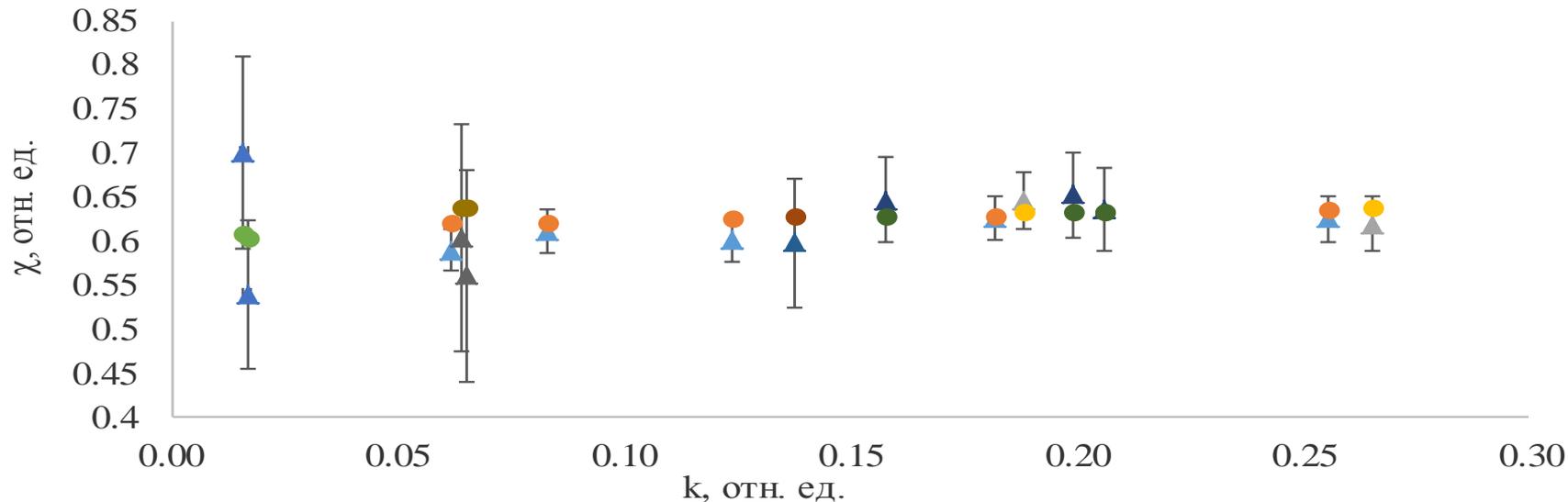
Таким образом, результаты расчета скоростей счета подтвердили работоспособность разработанной математической модели счетчика множественности надтепловых нейтронов RENMC.

Представляет интерес сравнение калибровочных коэффициентов для разных образцов. Такое сравнение можно наглядно проводить в зависимости от вероятности поглощения нейтронов в образце, которую характеризует коэффициент размножения k . Наблюдается уменьшение эффективности регистрации с ростом k . Увеличение коэффициента отбора совпадений с ростом k проявляется более слабо на фоне погрешности измерений.



- ▲ Эксперимент металлический плутоний
- ▲ эксперимент металлический плутоний в свинце
- ▲ эксперимент диоксид плутония ГСО
- ▲ Эксперимент СП-1
- ▲ Эксперимент контейнеры ВНИИНМ
- ▲ Эксперимент контейнеры Маяк
- расчет металлический плутоний
- расчет металлический плутоний в свинце
- Расчет диоксид плутония ГСО
- Расчет СП-1
- Расчет контейнеры ВНИИНМ
- Расчет контейнеры Маяк

Зависимость эффективности регистрации нейтронов для различных типов источников от коэффициента размножения нейтронов для положения в центре измерительной полости



- ▲ Эксперимент металлический плутоний
- ▲ Эксперимент металлический плутоний в свинце
- ▲ Эксперимент диоксид плутония ГСО
- ▲ Эксперимент СП-1
- ▲ Эксперимент контейнеры ВНИИНМ
- ▲ Эксперимент контейнеры Маяк
- Расчет металлический плутоний
- Расчет металлический плутоний в свинце
- Расчет диоксида плутония ГСО
- Расчет СП-1
- Расчет контейнеры ВНИИНМ
- Расчет контейнеры Маяк

Зависимость коэффициента отбора совпадений для различных типов источников от коэффициента размножения нейтронов для положения в центре измерительной полости

Корректировка калибровочных коэффициентов

Результаты моделирования нейтронных процессов в счетчике множественности нейтронов могут быть использованы для передачи размера от аттестованного объекта к анализируемым образцам с целью уменьшения количества стандартных образцов в методиках измерений [6]. Корректировка осуществляется по формулам:

$$\varepsilon = \varepsilon_{\text{э ст}} \times \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_{p \text{ ст}}}$$

$$\chi = \chi_{\text{э ст}} \times \frac{\chi_p}{\chi_{p \text{ ст}}}$$

где ε и χ – значения калибровочных коэффициентов с поправкой;

$\varepsilon_{\text{э ст}}$ и $\chi_{\text{э ст}}$ – экспериментальные калибровочные коэффициенты для стандартного образца;

ε_p и χ_p – расчетные калибровочные коэффициенты анализируемого образца;

$\varepsilon_{p \text{ ст}}$ и $\chi_{p \text{ ст}}$ – расчетные калибровочные коэффициенты для стандартного образца.

Для демонстрации возможности применения скорректированных калибровочных коэффициентов были выполнены оценки эффективной массы плутония-240 для всех рассмотренных образцов. В качестве стандартного образца для корректировки был взят АО 95 505/531–44/106. Следует обратить внимание, что масса плутония в образце АО 95 505/531–44/106 2,24 г сильно отличается от массы плутония в образцах АО 95 505/531–44/506 – 160,93 г и от массы плутония в контейнерах ТУК-30 - до 3 кг.

Результаты применения скорректированных калибровочных коэффициентов для оценки эффективной массы плутония-240 представлены в таблице: m_{effn} – опорная (измеренная или оцененная по имеющимся параметрам образца) эффективная масса плутония–240, m_{eff} – эффективная масса плутония–240, рассчитанная с использованием скорректированных калибровочных коэффициентов, δ – относительное отклонение результатов расчета эффективной массы плутония-240 от опорного значения;

Результаты расчетов показали, что для всех рассмотренных вариантов эффективная масса плутония-240, оцененная с использованием скорректированных калибровочных коэффициентов – расхождения для всех типов образцов не превышают 5%.

Значения эффективной массы плутония-240

Образец	$m_{\text{effn}}, \text{Г}$	$m_{\text{eff}}, \text{Г}$	$\delta, \%$
АО 95 505/531–44/206	0,276	0,276	-0,01
АО 95 505/531–44/306	0,917	0,929	1,27
АО 95 505/531–44/406	2,925	2,994	2,36
АО 95 505/531–44/506	8,073	8,314	2,99
АО 95 505/531–44/406 в свинце	2,925	2,985	2,04
АО 95 505/531–44/506 в свинце	8,073	8,332	3,21
СП-1	73,48	74,13	0,89
П-1	6,17	5,87	-4,98
П-3	6,41	6,11	-4,69
П-4	6,17	5,88	-4,61
П-9	6,30	6,03	-4,27
П-11	6,45	6,20	-3,86
Маяк-1	72,42	72,82	0,56
Маяк-2	121,21	120,96	-0,20
Маяк-3	130,81	127,31	-2,68

Выводы

В программной среде SERPENT построена математическая модель счетчика множественности надтепловых нейтронов RENMC. Полученные по ней результаты показали удовлетворительное согласие с экспериментальными данными.

При помощи программного комплекса NEDIS 2.0 проведен учет влаги и (α, n) -реакции на фторе и кислороде, тем самым достигнуто согласие в расчетных и экспериментальных данных для контейнеров Маяк.

Расчетным путем подтверждена зависимость эффективности регистрации от вероятности поглощения нейтронов в образце – наблюдается выраженное уменьшение эффективности регистрации с ростом коэффициента размножения нейтронов. Зависимость коэффициента отбора совпадений от k проявляется более слабо на фоне погрешности измерений.

Результаты работы служат обоснованием возможности передачи размера от аттестованных объектов к анализируемым образцам с использованием в качестве методики сравнения построенной математической модели. Полученные результаты могут быть использованы в методиках измерений и для оптимизации конструкции детекторов.

Список использованных литературных источников

1. Ensslin N., Harker W., Krick M. e.a. Application Guide to Neutron Multiplicity Counting. LA-13422-M, 1998.
2. Jaakko Leppänen. Serpent — a Continuous-energy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code, User's Manual, VIT Technical Research Centre of Finland, 2015
3. Горбунова А.Ю., Рогожкин В.Ю. Калибровка детекторов множественности нейтронов. — Атомная энергия, 2015, т. 119, вып. 3, с. 168—173
4. Научно–методическая информационная база для ядерно-технологических расчетов – URL: http://ndc.gstu.by/data_rus.html (дата обращения: 18.04.2024)
5. G. N. Vlaskin, Yu. S. Khomyakov, V. I. Bulanenko *Neutron yield of the reaction (α, n) on thick targets comprised of light elements*, Atomic Energy, Vol. 117, No. 5, March, 2015 (Russian Original Vol. 117, No. 5, November, 2014)
6. ОСТ 95 10597-2005 «Учет и контроль ядерных материалов. Аттестация стандартных образцов методом передачи размера.

Спасибо за внимание

Владимиров Даниил Анатольевич
Научный сотрудник П-393

Тел.: +7 (499) 190 89 99, доб. 8074

Моб. тел.: +7 (916) 389 16 87

E-mail: DaAVladimirov@bochvar.ru

www.bochvar.ru