

P13-2003-185

Б. А. Марцынкевич¹, А. М. Хильманович¹, В. С. Бутцев,
С. А. Густов, И. В. Мирохин, А. Г. Молоканов,
Д. Чултэм, С. В. Корнеев², С. Е. Чигринов²

**МЕТОД НАТРИЕВОГО БАКА ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ
ПОТОКА НЕЙТРОНОВ, ИСПУСКАЕМЫХ
В РЕЗУЛЬТАТЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ПРОТОНОВ
С ПРОТЯЖЕННОЙ СВИНЦОВОЙ МИШЕНЬЮ**

Направлено в журнал «Приборы и техника эксперимента»

¹Институт физики им. Б. И. Степанова НАН Белоруссии

²Объединенный институт энергетических и ядерных исследований
«Сосны» НАН Белоруссии

ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени становится очевидным, что электроядерный способ получения энергии на подкритических системах, содержащих делящееся вещество (U, Pu) и управляемых протонными ускорителями, позволит развивать в будущем безопасную ядерную энергетику. В подкритических системах коэффициент размножения нейтронов $k_{eff} < 1$, т. е. число нейтронов последующего поколения меньше числа нейтронов предыдущего. Следовательно, цепная реакция деления ядер является затухающей, а система, в которой происходит деление, безопасной. Для получения первичных нейтронов предполагается использовать высокопоточные ускорители протонов с энергией ~ 1 ГэВ. Пучок протонов направляется на мишень, содержащую химические элементы с большим атомным номером (Pb, Bi, W). В процессе взаимодействия протонов с мишенью рождаются быстрые нейтроны в количестве 10...50 нейтронов на 1 протон. Родившиеся нейтроны имеют широкий спектр – вплоть до энергии, равной энергии падающих протонов. Далее эти нейтроны, взаимодействуя с делящимися веществами, приводят к испусканию вторичных нейтронов и, в конечном счете, к выделению тепловой энергии. Прекращение подачи протонов ускорителя в подкритическую систему приводит к практически "мгновенному" затуханию цепной ядерной реакции.

Предполагается, что в подкритических системах помимо получения энергии будет проводиться "выжигание" (трансмутация) наиболее опасных в экологическом отношении долгоживущих радионуклидов с использованием для этих целей ядерных реакций на нейтронах. Очевидно, что весь процесс должен быть замкнутым, т. е. баланс энергии в итоге должен быть положительным.

Применительно к описанной выше схеме рассмотрены физические основы работы электроядерных установок. Для ее реализации должен быть решен ряд технических задач:

- выбраны энергия и поток протонного пучка и создан соответствующий ускоритель протонов;
- выбран материал мишени и создана конструкция для получения первичных нейтронов; исследованы скорости образования радионуклидов в результате взаимодействия пучка протонов с мишенью;
- разработана схема активной зоны и решены вопросы ядерной безопасности;
- исследовано пространственно-энергетическое распределение нейтронов в подкритической системе;
- определены скорости образования продуктов деления и актинидов;
- разработана технология трансмутации долгоживущих радионуклидов;
- разработана схема съема тепла, образующегося в активной зоне подкритической системы.

В этой связи задача определения потока нейтронов, испускаемых мишенью, становится весьма актуальной. Она может быть решена различными способами, например, с помощью измерения углового, пространственного и энергетического распределений поля нейтронов с помощью метода протонов отдачи и последующего интегрирования [1]. Для измерения потока нейтронов также используется активационный метод на веществах с разными энергиями пороговых реакций. Однако эти методы требуют знания эффективности регистрации или хода сечения реакции в широком диапазоне энергий нейтронов.

В целом, выводы выполненных ранее работ следующие: число испущенных нейтронов на один падающий на протяженную, толстую мишень протон пропорционально энергии протона; наиболее часто используемая энергия протонов

~1 ГэВ; оптимальными являются диаметр мишени ~80 мм и длина ~500 мм. Вместе с тем, вплоть до настоящего времени продолжаются исследования, связанные с решением первых двух названных выше задач: выбора энергии протонного пучка и выбора материала и конструкции мишени (диаметр, длина и пр.). Эти исследования вызваны необходимостью оптимизации условий работы будущих подкритических систем (получением максимального числа нейтронов на один упавший на мишень протон), а также вопросами дозиметрического характера (наработкой в результате ядерных реакций протонов с материалом мишени долгоживущих радионуклидов).

В связи с этим в настоящей работе нами развит метод натриевого бака для измерения потока нейтронов, испускаемых протяженной, толстой мишенью, облучаемой протонами. В рассматриваемом методе используется только сечение для области энергий тепловых нейтронов, что существенно упрощает процедуру измерений. Ранее метод натриевого бака применялся, как правило, для измерения потока нейтронов от "точечных" источников [2, 3]. В отличие от метода, использовавшегося для измерения потока нейтронов ^{252}Cf , Pu(Be) и др., испускающих нейтроны с энергией, не превышающей 10-15МэВ, в случае протяженной мишени, облучаемой высокоэнергетичными протонами, испускаются нейтроны с энергией вплоть до 150-200МэВ.

В настоящем эксперименте, как и в работе [4], данный метод используется для источника нейтронов значительных размеров (свинцовый цилиндр диаметром 80 мм и длиной 500 мм). При этом для получения нейтронов необходимо ввести внутрь бака, где находится свинцовая мишень, пучок протонов с энергией 660МэВ без их значительного рассеяния или поглощения раствором.

В методе натриевого бака [2, 3] обычно облучается нейтронами водный 1-2-процентный раствор двууглекислой соды NaHCO_3 . Используется положение, согласно которому быстрые нейтроны, испущенные источником, в результате упругих

столкновений с ядрами водорода термализуются, мигрируют и полностью захватываются ядрами химических элементов раствора, в основном водорода. В результате реакции радиационного захвата тепловых нейтронов ядрами натрия образуются радионуклиды ^{24}Na , имеющие удобный для регистрации период полураспада $T_{1/2} = 14,96$ ч и энергии γ -квантов $E_\gamma = 1396$ кэВ и 2754 кэВ. При известном соотношении в растворе ядер водорода и натрия, а также известных ядерно-физических характеристиках входящих в раствор химических элементов можно определить среднюю скорость реакций и поток нейтронов.

Отметим, что резонансный интеграл сечения реакции радиационного захвата медленных нейтронов ядром ^{23}Na мал по сравнению с другими традиционно используемыми для таких целей активационными детекторами. Это позволяет упростить процедуру расчета плотности потока тепловых нейтронов.

Очевидно, что для выполнения условия полного поглощения нейтронов бак должен иметь значительные размеры: 50-100 см по каждому из направлений. Для таких размеров вместимость бака составляет 250-1000 л.

ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

В методе натриевого бака для определения потока нейтронов используется равенство числа испущенных источником в единицу времени нейтронов Φ числу поглощенных в единицу времени нейтронов ядрами атомов химических элементов A , входящих в раствор (сумме скоростей ядерных реакций). Очевидно, что для выполнения этого необходимо, чтобы размеры бака соответствовали длине поглощения нейтронов максимальной энергии в спектре во всех направлениях. Так как в нашем случае ось свинцовой цилиндрической мишени совпадает с осью протонного пучка, то преимущественное направление испускания первичных нейтронов – вперед по оси цилиндра.

С учетом сказанного нами были рассмотрены два варианта конструкции ванн: 400×400×1000 мм и 550×550×500 мм (рис. 1, 2). Далее рассмотрим первый вариант.

Разобьем объем бака на l слоев ($i=1,2,\dots,l=10$) шириной по 10 см каждый и перпендикулярных оси OZ . Далее, объем каждого слоя разобьем на K подобъемов ($k=1, 2,\dots, K=4$), начиная от оси OZ .

Значения подобъемов: $v_{i1}=502,7 \text{ см}^3$; $v_{i2}=2638,9 \text{ см}^3$; $v_{i3}=3926,0 \text{ см}^3$; $v_{i4}=8931,4 \text{ см}^3$.

Таким образом, объем бака с раствором соды V можно записать как

$$V = \sum_{i=1}^l \sum_{k=1}^K v_{ik}. \quad (1)$$

Пусть a_{ik} означает суммарную скорость реакций радиационного захвата медленных нейтронов на всех l -х изотопах раствора NaHCO_3 в воде и свинцовой мишени

$$a_{ik} = \sum_{l=1}^l b_{ikl}. \quad (2)$$

В формуле (2) b_{ikl} – удельная скорость реакций (число реакций в 1 см^3 в 1с) l -х изотопов.

Тогда полную скорость реакций во всем объеме бака можно представить как

$$A^{(1)} = \sum_{i=1}^l \sum_{k=1}^K v_{ik} \sum_{l=1}^l b_{ikl}. \quad (3)$$

Рассчитаем значения b_{ikl} для всех элементов раствора и свинца и сравним их между собой. Присвоим номера: H – $l=1$; Na – $l=2$; C – $l=3$; O – $l=4$; Pb – $l=5$. В 1 см^3 раствора ($1 \text{ г } \text{H}_2\text{O} + 0,0128 \text{ г } \text{NaHCO}_3$) содержится: H – $m_1=0,1113 \text{ г}$; Na – $m_2=0,00342 \text{ г}$; C – $m_3=0,00179$; O – $m_4=0,08896 \text{ г}$. В 1 см^3 содержится $m_5=11,3 \text{ г}$ свинца. Число ядер в 1 см^3 рассчитывается по формуле

$$n_l = \frac{m_l N_A}{M_l}, \quad (4)$$

где N_A – число Авогадро; M_l – атомная масса l -го элемента. Подставив физические константы в (4), получим число ядер в 1 см^3 (см. таблицу).

При известных значениях плотности потока тепловых нейтронов F_{ik} , сечений реакции $(n, \gamma) \sigma_l$ и числа ядер в 1 см^3 n_l скорость реакции b_{ikl} рассчитывается как

$$b_{ikl} = F_{ik} \sigma_l n_l. \quad (5)$$

В таблице приведены значения n_l , σ_l и произведения $n_l \sigma_l$.

Значения числа ядер в 1 см^3 n_l , сечений реакций $(n, \gamma) \sigma_l$, величин $n_l \sigma_l$ и их относительных значений

| l | Химический элемент | n_l , $1/\text{см}^3$ | σ_l , см^2 | $n_l \sigma_l$, $1/\text{см}$ | $\frac{n_l \sigma_l}{n_1 \sigma_1}$ |
|-----|--------------------|----------------------------|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|
| 1 | H | $6,70 \cdot 10^{22}$ | $0,332 \cdot 10^{-24}$ | $2,22 \cdot 10^{-2}$ | 1 |
| 2 | Na | $8,96 \cdot 10^{19}$ | $0,531 \cdot 10^{-24}$ | $4,76 \cdot 10^{-5}$ | 0,0021 |
| 3 | C | $8,96 \cdot 10^{19}$ | $3,5 \cdot 10^{-27}$ | $3,14 \cdot 10^{-7}$ | 0,000014 |
| 4 | O | $3,35 \cdot 10^{22}$ | $0,19 \cdot 10^{-27}$ | $6,36 \cdot 10^{-6}$ | 0,00029 |
| 5 | Pb | $3,28 \cdot 10^{22}$ | $0,17 \cdot 10^{-24}$ | $5,58 \cdot 10^{-3}$ | 0,25 |

Из таблицы следует, что основной вклад в поглощение нейтронов химическими элементами раствора вносит водород. Поглощением нейтронов остальными элементами можно пренебречь.

В отношении свинца (см. табл.) отметим следующее. Термализация нейтронов происходит в объеме раствора, в основном за счет упругих столкновений с водородом. После этого часть тепловых нейтронов может вернуться в свинцовую мишень. Объем свинцовой мишени, составляющий половину суммы первых подобъемов, равен $2,5 \cdot 10^3 \text{ см}^3$, а объем суммы вторых близких к свинцу подобъемов раствора равен $2,6 \cdot 10^4 \text{ см}^3$. Таким образом, сумма вторых подобъемов раствора превосходит объем

свинцовой мишени более чем в 10 раз. Следовательно, вклад свинцовой мишени в поглощение тепловых нейтронов по сравнению с водородом составляет менее 2% и в первом приближении им можно пренебречь. То же относится и к вкладам реакций типа (n, α) , (n, p) и др. на кислороде.

Ядро водорода ${}^1_1\text{H}$ в результате реакции радиационного захвата нейтрона



превращается в стабильное ядро дейтерия и им нельзя воспользоваться как активационным детектором.

Ядро ${}^{23}\text{Na}$ в результате реакции



превращается в радиоактивное ядро ${}^{24}\text{Na}$. По активности ${}^{24}\text{Na}$ можно определить плотность потока тепловых нейтронов F_{th} [5] и, далее, рассчитать скорость поглощения нейтронов водородом b_{ik1} и другими химическими элементами.

Выполнив суммирование (3) по всем элементам объема v_{ik} , получим значение числа нейтронов $A^{(1)}$, поглощаемых в баке за одну секунду.

Суммирование (3) можно упростить, выполнив усреднение

$$A^{(1)} = \sum_{i=1}^I \sum_{k=1}^K v_{ik} b_{ik1} = \langle b_{ik1} \rangle \sum_{i=1}^I \sum_{k=1}^K v_{ik} = \langle b_{ik1} \rangle V. \quad (8)$$

Значение $\langle b_{ik1} \rangle$ можно найти, перемешав после активации раствор, т. е. выполнив физическое усреднение по объему и взяв небольшой объем пробы раствора $V_{\text{проба}} = 10^2 \dots 10^3 \text{ см}^3$. Измерив активность ${}^{24}\text{Na}$, можно рассчитать среднюю плотность потока тепловых нейтронов и, далее, среднюю скорость поглощения нейтронов водородом единицей объема раствора

$$\langle b_{ik1} \rangle = n_1 \sigma_1 \langle F_{ik} \rangle. \quad (9)$$

Так как используемый бак имеет небольшие размеры, то часть тепловых нейтронов может покинуть его через стенки. В этом случае необходимо определить плотность потока нейтронов через боковые поверхности всех i -х слоев F_i , а также плотности потоков через передний $F_{передн}$ и задний $F_{задн}$ по отношению к пучку протонов торцы бака. Выполнив суммирование, получим значение потока тепловых нейтронов, покидающих бак

$$A^{(2)} = \sum_{i=1}^I S_i F_i + S_{передн} F_{передн} + S_{задн} F_{задн} \quad (10)$$

Поток нейтронов, испущенных свинцовой мишенью, представим в виде суммы двух слагаемых

$$\Phi = A^{(1)} + A^{(2)}. \quad (11)$$

В описанном подходе не учитывается часть быстрых нейтронов, рожденных мишенью при взаимодействии протонов с ядрами свинца и поглощенных самой мишенью, вследствие того, что они не могут быть использованы в будущих подкритических системах для получения энергии. Иными словами, в эксперименте определяется количество быстрых нейтронов, выходящих из свинцовой мишени.

СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТА И РЕЗУЛЬТАТЫ

Пучок нейтронов проходит через торцовую стенку бака, вытеснитель воды цилиндрической формы диаметром 80 мм и длиной 200 мм и падает на свинцовую мишень.

Пучок протонов мониторировался с помощью алюминиевой и свинцовой фольг. Фольги располагались после профилометра и внутри ванны после вытеснителя воды на торце свинцовой мишени.

В 156 литрах дистиллированной воды растворялось 2000 г двууглекислой соды NaHCO_3 . Концентрация соды в воде составляет 1,28%, что значительно меньше полного насыщения, равного 6% при температуре 18 °С. Однако в процессе эксперимента периодически выполнялось перемешивание раствора. Время облучения протонами свинцовой мишени составило 3 часа 25 минут. Число протонов, упавших на поверхность ванны и определенных с помощью профилометра, составило $1,3 \cdot 10^{14}$. После окончания облучения раствор соды был тщательно перемешан и из него отобрана проба объемом 1000 см^3 . Спектр γ -излучения ^{24}Na регистрировался с помощью германиевого спектрометра.

Активность ^{24}Na , находящегося в растворе объемом 1 л, составила $2,34 \cdot 10^5$ Бк. Абсолютная погрешность измерения активности равняется $\Delta = 1 \cdot 10^4$ Бк. Зная концентрацию Na в растворе и ядерно-физические константы реакции радиационного захвата нейтронов, можно рассчитать среднее по объему бака значение плотности потока тепловых нейтронов: $\langle F_{th} \rangle = 9,8 \cdot 10^6$ нейтрон/см²·с. С учетом формул (5) и (8) получим значение числа нейтронов $A^{(1)}$, поглощаемых химическими элементами раствора ванны за 1 секунду: $A^{(1)} = 8,8 \cdot 10^{10}$ нейтрон/с.

Одной из задач настоящих исследований являлась разработка оптимальной методики эксперимента. Под этим понимается определение таких размеров ванны, при которых часть нейтронов, выходящих из поверхности ванны была бы незначительной (например, 10...20%), а масса раствора в баке была бы относительно небольшой (порядка 200 кг).

В связи с этим было измерено распределение плотности потока тепловых и быстрых нейтронов для точек с координатами r, Z внутри бака. В качестве активационных детекторов использовались индиевые фольги, с помощью которых можно было бы одновременно измерять потоки тепловых и быстрых нейтронов. Такое

расположение активационных детекторов позволяет изучить градиент плотности потока нейтронов и тем самым более детально и точно измерить плотность потока на поверхности бака.

Для определения утечки нейтронов из объема бака на боковых и торцовых поверхностях располагались активационные детекторы из золотых фольг. Полученные результаты показывают, что наиболее значительная часть медленных нейтронов покидает бак через боковую поверхность в районе 3-го слоя. Это означает, что поперечное значение ванны (40×40 см) является недостаточным. Нейтроны, выходящие через боковую поверхность в 8-м и 9-м слоях, а также нейтроны, выходящие через боковую и торцовую поверхности 10-го слоя, составляют незначительную часть по отношению к предыдущим слоям. Полученные результаты дают значение потока нейтронов, выходящих через поверхность бака за 1 секунду: $A^{(2)}=3,7 \cdot 10^{10}$ нейтрон/с. В соответствии с формулой (11) поток нейтронов, выходящих из свинцовой мишени, составляет $\Phi=(1,25 \pm 0,1) \cdot 10^{11}$ нейтрон/см²·с.

Таким образом, число нейтронов, покидающих свинцовую мишень, на один падающий на нее протон составляет $(12,2 \pm 1,4)$ н/р, что хорошо согласуется с известными результатами [6 – 8].

В целом, относительное распределение количества медленных нейтронов следующее:

- поглотилось водородом – 70%;
- поглотилось свинцовой мишенью – 1%;
- утекло через боковые стенки – 23%;
- утекло через переднюю стенку – 6%;
- утекло через заднюю стенку – 0,06%.

Для второго варианта бака (рис. 2) размером 55×55×50 см предложена конструкция, позволяющая уменьшить активность образующегося ²⁴Na. Она основана на

азимутальной симметрии системы относительно оси OZ . Это позволяет заполнять раствором соды не весь объем, а небольшой сектор с вершиной на оси OZ , в то время как основной объем заполняется обычной дистиллированной водой. Во втором варианте были использованы активационные детекторы, изготовленные из сурьмы, размещенные на поверхности бака для определения утечки нейтронов. Благоприятные спектрометрические характеристики образующегося нуклида ^{124}Sb позволяют рекомендовать сурьму наряду с фольгами из золота для проведения таких измерений.

В результате проведенного эксперимента получено значение $(13,0 \pm 2,0)$ п/р, близкое к значению, полученному в первом варианте.

Результаты расчетов с помощью кода [9, 10] характеристик полей нейтронов для двух вариантов баков хорошо согласуются с полученными экспериментальными значениями потока нейтронов.

На основе анализа этих результатов был сделан вывод о том, что для протонов с энергией 660 МэВ, падающих на свинцовую мишень, находящуюся в баке, необходимо увеличить поперечное сечение бака до 55×55 см и уменьшить длину бака до 80 см (с учетом вытеснителя воды длиной 20 см). Объем такого бака составит 242 л. Для протонов с энергией 660 МэВ также можно ограничиться длиной свинцовой мишени, равной 40 см.

В методе натриевого бака процедура измерения простая, позволяющая получить результат измерения потока нейтронов с небольшой относительной погрешностью $\sim 10\%$.

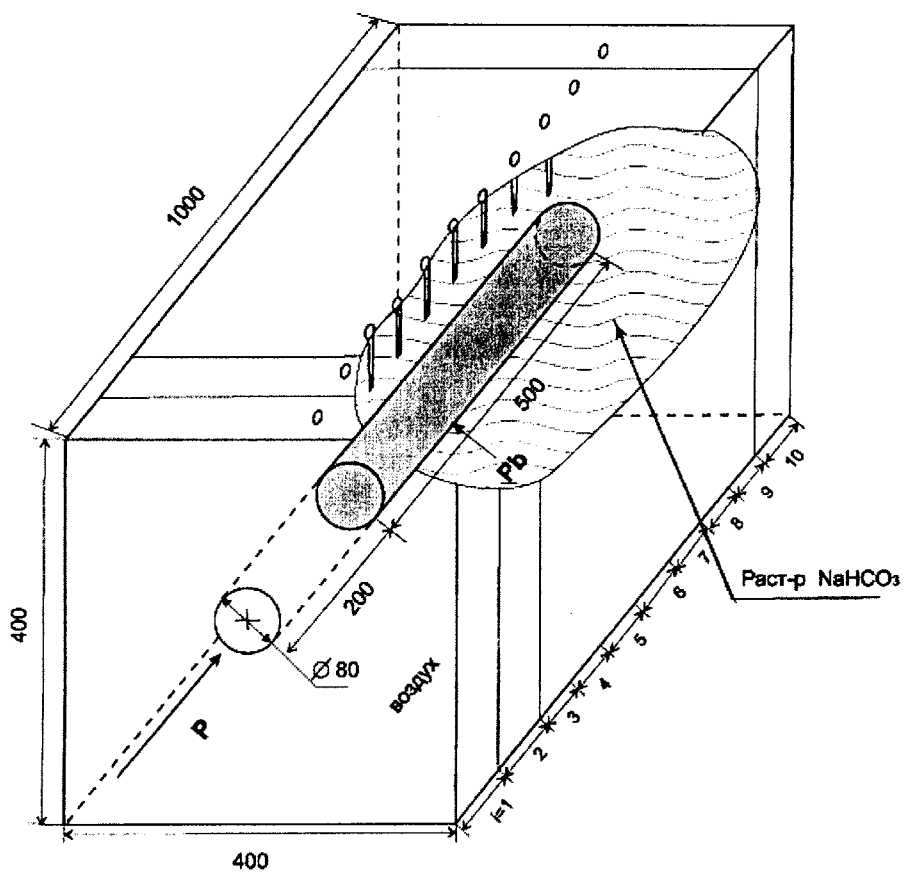


Рис. 1. Схема эксперимента и форма бака размером 40×40×100 см

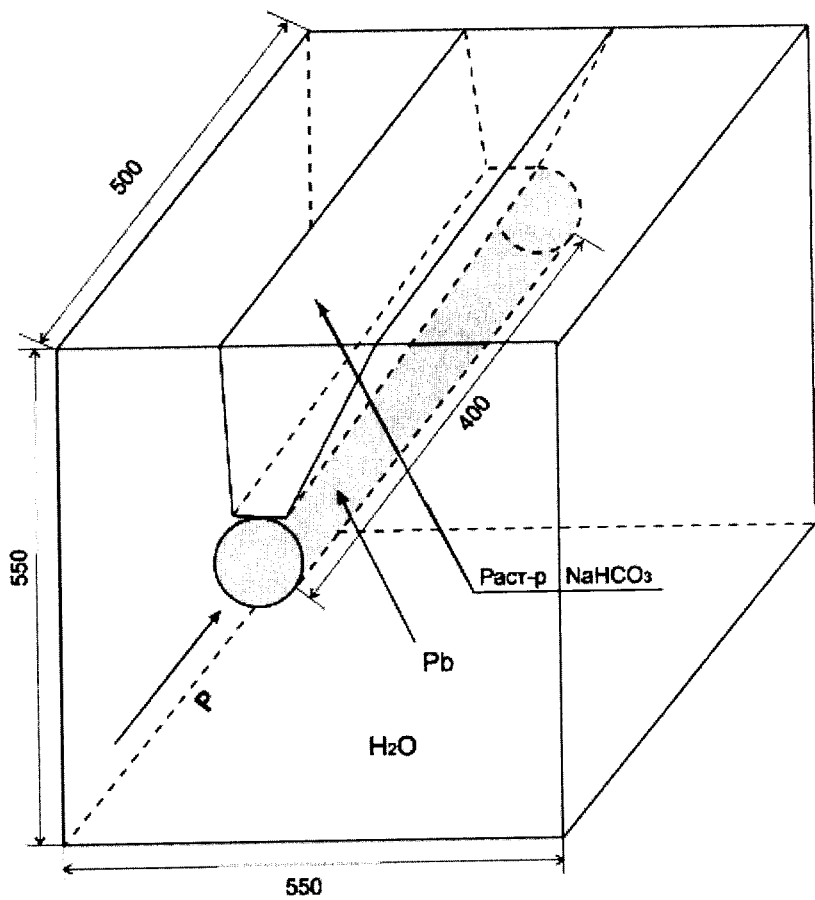


Рис. 2. Схема эксперимента и форма бака размером 55×55×50 см.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bamblevski V.P., Krylov A.R., Polansky A. et al.* P. 1. Preprint JINR E1-2000-307. Dubna, 2000; P. 2. Preprint JINR E1-2000-308. Dubna, 2000; P. 3. Preprint JINR E1-2000-309. Dubna, 2000.
2. *Уолт М.* Физика быстрых нейтронов. Техника эксперимента. Т. 1./ Пер. с англ. под ред. Дж. Мариона и Дж. Фаулера. М.: Госатомиздат, 1963. С. 37.
3. *Бекури К., Вирту К.* Нейтронная физика. М.: Атомиздат, 1968. С. 314.
4. *Chultem D., Damdinger Ts., Dyachenko V.M. et al.* Preprint JINR E1-94-407. Dubna, 1994.
5. *Gryntakis E., Cullen D.E., Mundy G.* Handbook on Nuclear Activation Data. Tech. Reports Series № 273. IAEA, Vienna, 1987. P. 199.
6. *Васильков Р.Г., Гольданский В.И., Гришкевич Я.В. и др.* //Атомная энергия. 1968. Т. 25. Вып. 6. С. 244.
7. *Letourneau A., Galin J., Goldenbaum F. et al.* //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2000. V. B 170. P. 299.
8. *Ledoux X., Borne F., Bourdard. A. et al.* Phys. Rev. Letters. 1999. V. 82, № 22. P. 4412.
9. *J.F. Briesmeister.* MCNP – A general purpose N-particle transport code version 4B. – Report LA-12625-M. Los Alamos National Laboratory, 1997.
10. *Prael R.E., Lichtenstein H.* User guide to LCS: the LAHET code system. Report LAUR-89-3014. Los Alamos National Laboratory, 1989.

Получено 30 сентября 2003 г.

Марцынкевич Б. А. и др.

P13-2003-185

Метод натриевого бака для измерения потока нейтронов, испускаемых в результате взаимодействия протонов с протяженной свинцовой мишенью

Описан метод измерения потока нейтронов, образующихся при взаимодействии релятивистских протонов с протяженной свинцовой мишенью — метод натриевого бака. Рассмотрены вопросы оптимизации размеров бака, а также минимизации наведенной активности облучаемого раствора при выполнении эксперимента. По сравнению с другими методами определения потока нейтронов в методе натриевого бака процедура измерения более проста и позволяет получить результат с относительной погрешностью ~10 %.

Работа выполнена в Лаборатории физики частиц ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2003

Перевод авторов

Martsinkevich B. A. et al.

P13-2003-185

Sodium Tank Method for Measurement of Neutron Flux in Extended Lead Target Irradiated by 660 MeV Proton Beam

A method for measuring neutron flux produced in the interaction of protons (660 MeV) with an extended lead target — the sodium tank method — is described. Subjects related to optimization of the tank size and minimization of induced radioactivity in the contained sodium are considered. The method and procedure of measuring within the sodium tank are much simpler in comparison with other methods applied. The relative error of measurements does not exceed 10 %.

The investigation has been performed at the Laboratory of Particle Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2003

Редактор *М. И. Зарубина*
Макет *Н. А. Киселевой*

Подписано в печать 21.10.2003.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.
Усл. печ. л. 0,87. Уч.-изд. л. 0,98. Тираж 320 экз. Заказ № 54145.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru
www.jinr.ru/publish/