

# О ВКЛАДЕ $\alpha$ -n РЕАКЦИИ В ИНТЕНСИВНОСТЬ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДВУОКИСИ ПЛУТОНИЯ

**В.В. Дулин, С.А. Забродская**

*ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск*



Изложена методика экспериментального определения доли выхода  $\alpha$ -n-нейтронов из двуокиси плутония с разным изотопным составом, основанная на использовании метода Росси- $\alpha$  (метода нейтрон-нейтронных совпадений). Измерения проведены на двух различных установках. В одной установке использовалось два высокоэффективных счетчика медленных нейтронов (He-3-счетчик), а в другой установке – три сцинтилляционных детектора быстрых нейтронов на основе кристаллов стильбена. Доля выхода  $\alpha$ -n-нейтронов определялась для двуокиси плутония с тремя различными изотопными составами. Одновременно проводились контрольные измерения образцом металлического плутония, в котором отсутствует реакция ( $\alpha$ , n) и двуокиси америция с нейтронами только от ( $\alpha$ , n) реакции.

Эта доля была получена экспериментально и сравнена с результатами расчета по двум программам.

Плутоний с разным изотопным составом из теплового реактора испускает нейтроны от спонтанных делений (от четных изотопов плутония). В то же время существуют нейтроны от ( $\alpha$ , n) реакций на ядрах кислорода, образующиеся из-за альфа-распадов всех изотопов плутония.

Знание доли выхода этих  $\alpha$ -n-нейтронов представляет интерес, как с точки зрения величины дозы нейтронного излучения при работе с таким топливом, так и при использовании метода Росси- $\alpha$  для определения коэффициента размножения нейтронов в подкритических системах [1]. В литературе имеются такие данные, полученные ранее [2]. Существует также несколько программ для расчета доли выхода этих нейтронов, используемых при проектировании реакторов. Представляло интерес провести измерения доли выхода нейтронов от ( $\alpha$ , n) реакции методом Росси- $\alpha$  (методом нейтрон-нейтронных совпадений) для проверки результатов, полученных другими методами [2] и правильности получаемых результатов с помощью расчетных программ.

Как известно, временное Росси- $\alpha$  распределение имеет вид, являющийся суммой некоррелированной и коррелированной составляющей, зависящей от времени  $t$ :

$$R(t)dt = Cdt + \frac{D(1-\beta)^2 \varepsilon^2 v^2 F}{2 \ell^2 c \alpha} \exp^{-\alpha|t|} dt, \quad (1)$$

где  $D = \frac{\bar{v}(\bar{v}-1)}{\bar{v}^2}$  – изотопный Дайвен-фактор ( $\bar{v}$  – среднее число нейтронов в одном акте деления),  $C$  – скорость счета детектора,  $\varepsilon$  – эффективность детектора,  $\ell$  – время жизни мгновенных нейтронов в образце,  $F$  – полная скорость делений,  $\alpha$  – постоянная спада нейтронной плотности.

Рассмотрим несколько случаев использования этого метода.

1. Существует источник спонтанных делений  $Q_{sp}$  (делений/с) в не размножающей среде, тогда  $F = Q_{sp}$ ,  $\alpha = 1/\ell$ . Интегрируя первое слагаемое правой части уравнения (1) в интервале  $\Delta t$ , а второе слагаемое в интервале от нуля до бесконечности, получим  $N = C \Delta t$  средний счет случайных совпадений (некоррелированная часть распределения) и  $S = \frac{D \varepsilon^2 v^2 Q_{sp}}{2 C}$  – интеграл под коррелированной составляющей соответственно. Таким образом, получаем

$$\frac{S}{N} = \frac{D \varepsilon^2 v^2 Q_{sp}}{2 C^2 \Delta t} = \frac{D}{2 \Delta t Q_{sp}},$$

где  $C = \varepsilon v Q_{sp}$  – скорость счета детектора (нейтронов/с),  $\Delta t$  – ширина канала временного анализатора в секундах, откуда получаем абсолютную интенсивность источника спонтанных делений [1]:

$$Q_{sp} = \frac{D}{2 \Delta t S} N.$$

2. Существует источник спонтанных делений  $Q_{sp}$  в размножающей среде, тогда  $F = Q_{sp}/(1-k)$ ,  $\alpha = (1-k_p)\ell$ , где  $k_p = k(1-\beta)$ . Проинтегрировав, как и в первом случае, правую часть уравнения (1), получаем абсолютную интенсивность источника спонтанных делений [2]:

$$S = \frac{D}{2} \frac{\varepsilon^2 v^2 Q_{sp}}{(1-k)C(1-k_p)^2}, C = \varepsilon v Q_{sp}/(1-k) \frac{(1-k_p)^2}{1-k} Q_{sp} = \frac{D}{2 \Delta t S} N.$$

3. Имеется в не размножающей среде источник спонтанных делений  $Q_{sp}$  и источник нейтронов  $q_\alpha$ , появившихся в результате  $(\alpha, n)$  реакции. Тогда величина  $C$  увеличивается, а величина  $S$  остается прежней:

$$C = \varepsilon(vQ_{sp} + q_\alpha) = \varepsilon v Q_{sp} \left(1 + \frac{q_\alpha}{vQ_{sp}}\right)$$

$$\left(1 + \frac{q_\alpha}{vQ_{sp}}\right)^2 Q_{sp} = \frac{D}{2 \Delta t S} N. \quad (2)$$

4. Имеется в размножающей среде источник спонтанных делений  $Q_{sp}$  и источник нейтронов  $q_\alpha$ , появившихся в результате  $(\alpha, n)$  реакции, тогда

$$C = \varepsilon \frac{vQ_{sp} + q_\alpha}{1-k} = \varepsilon v \frac{Q_{sp} \left(1 + \frac{q_\alpha}{vQ_{sp}}\right)}{1-k}, \quad \alpha = (1-k_p)/\ell,$$

$$\frac{(1-k_p)^2}{1-k} Q_{sp} \left(1 + \frac{q_\alpha}{vQ_{sp}}\right)^2 = \frac{DN}{2S\Delta t}. \quad (3)$$

Количественную оценку  $\frac{q_{\alpha}}{\nu Q_{sp}}$  вклада нейтронов в реакции ( $\alpha$ , n) в полное количество нейтронов, испускаемых двуокисью плутония, наработанного в реакторе ВВЭР, можно получить согласно (3), измеряя временные Росси- $\alpha$  распределения, зная изотопный состав этих образцов (т.е. зная величину источника спонтанных делений  $Q_{sp}$  и выход нейтронов от них  $\nu$ ) и рассчитав эффективные коэффициенты размножения  $\frac{(1-k_p)^2}{1-k}$  для этих образцов.

Образцы из  $PuO_2$  представляют собой стальные тонкостенные полые цилиндры диаметром от 2.6 до 4.8 мм и длиной 112 мм. Масса двуокиси в них составляла от 1.2 до 11.4 гр.

Изотопный состав плутония представлен в табл. 1, 2 и 3.

Таблица 1

**Изотопный состав образцов «грязной» двуокиси плутония (далее  $PuO_2$  (67%)) на 10.02.2000**

Изотопы	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Am-241
% содержания	0,59	67,59	21,32	4,29	2,67	3,54
погрешность	$\pm 0,03$	$\pm 0,14$	$\pm 0,11$	$\pm 0,04$	$\pm 0,06$	$\pm 0,03$

Таблица 2

**Изотопный состав образцов двуокиси плутония «среднего» (далее  $PuO_2$  (78%)) состава на 11.04.2000**

Изотопы	Pu -238	Pu -239	Pu -240	Pu -241	Pu -242	Am-241
% содержания	0,23	77,86	16,76	2,26	1,02	1,87
погрешность	$\pm 0,03$	$\pm 0,14$	$\pm 0,14$	$\pm 0,04$	$\pm 0,04$	$\pm 0,03$

Таблица 3

**Изотопный состав образцов двуокиси плутония-240 (далее  $PuO_2$  (9%)) на 03.06.2000**

Изотопы	Pu -239	Pu -240	Pu -241	Pu -242	Am-241
% содержание	9,13	89,22	,99	0,16	,50
погрешность	$\pm 0,08$	$\pm 0,17$	$\pm 0,04$	$\pm 0,03$	$\pm 0,02$

В нашем распоряжении для измерения временного Росси- $\alpha$  распределения имелись две разных установки, в которых использовались два разных типа детектора: в одной установке – два высокоэффективных счетчика медленных нейтронов (He-3-счетчик, длина 27 см), а в другой установке – три сцинтилляционных детектора быстрых нейтронов с дискриминацией гамма-лучей по времени высвечивания с кристаллами стильбена (диаметр кристалла 6 см). Поэтому для улучшения надежности проводимых экспериментов было решено проводить измерения на обеих установках.

В одном случае образцы помещались между двумя He-3-счетчиками, которые были придвинуты друг к другу. Вся система находилась в полиэтиленовом блоке.

В другом случае сцинтилляционные детекторы располагались под углом  $90^\circ$  друг относительно друга и находились на расстоянии  $\approx 50$  мм от изучаемого образца. Поскольку образцы двуокиси плутония имели очень большую  $\gamma$ -активность, на много порядков превышавшую интенсивность n-излучения, то между ними и сцинтилляторами помещалась пластина свинца толщиной 40 мм. Это позволяло получить срав-

нимые потоки нейтронов и  $\gamma$ -лучей, что, как известно, является желательным при применении этой методики (см. например, [3]).

Для того, чтобы понять как меняется форма временного распределения в присутствии реакции ( $\alpha$ , n), было решено для сравнения провести измерения с образцом металлического плутония, в котором отсутствует реакция ( $\alpha$ , n). В качестве примера на рис. 1 и 2 приведены временные распределения, полученные при измерении с образцом «грязной» двуокиси ( $\text{PuO}_2$  67%) и с образцом металлического плутония.

Временное распределение, полученное с помощью сцинтилляционных детекторов быстрых нейтронов представлено на рис. 1, а на рис. 2 – временное распределение, полученное с помощью счетчиков медленных нейтронов (He-3-счетчики). В обоих случаях в счетном канале использовалась линия задержки. Для сцинтилляционных детекторов она была равна 3 мкс, а для He-3 счетчиков – 30 мкс.

Для металлического плутония некоррелированный фон (область постоянного фона) связан с такими нейтронами, которые появляются после (или до) актов деления, регистрация которых вызывает старт развертки временного анализатора. На рис. 1 этому соответствуют отсчеты от 10 до 512 (и с 1 по 5) канала. Для получения полной величины коррелированной составляющей временного распределения (2S согласно формуле (2)) поканально вычиталась средняя величина счета в канале некоррелированной составляющей.

В данном случае в обоих временных распределениях рис. 1 величина коррелированной составляющей распределения 2S одинакова. Но при этом видно, что для  $\text{PuO}_2$  некоррелированный фон больше, чем для металлического плутония. Именно эта раз-

ница некоррелированных фонов обязана регистрации нейтронов от реакции ( $\alpha$ , n). Действительно, поскольку в реакции ( $\alpha$ , n) при попадании альфа-частицы в ядро кислорода вылетает только один нейтрон ( $\nu = 1$ ), а для регистрации коррелированной составляющей необходимо хотя бы два (см. второе слагаемое формулы (1)). Таким образом при старте ВА от такого зарегистрированного нейтрона будет регистрироваться только фон случайных совпадений (некоррелированный фон) от других реакций ( $\alpha$ , n) на других ядрах кислорода.

Некоррелированный фон на рис. 2 определяется счетами далее 200 ка-

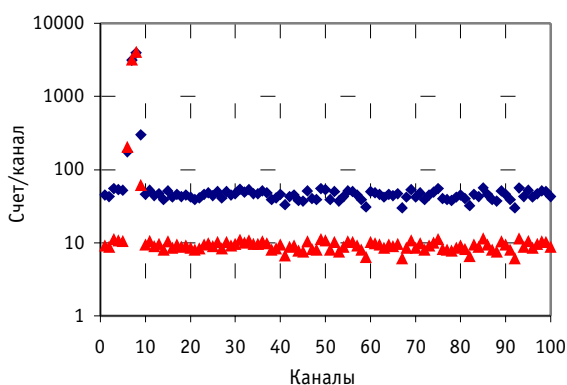


Рис. 1. Временное Росси- $\alpha$  распределение, полученное с помощью сцинтилляционных детекторов ( $\Delta t = 0.4$  мкс – ширина канала временного анализатора):  
◆ –  $\text{PuO}_2$  (67%); ▲ – Pu (89%)

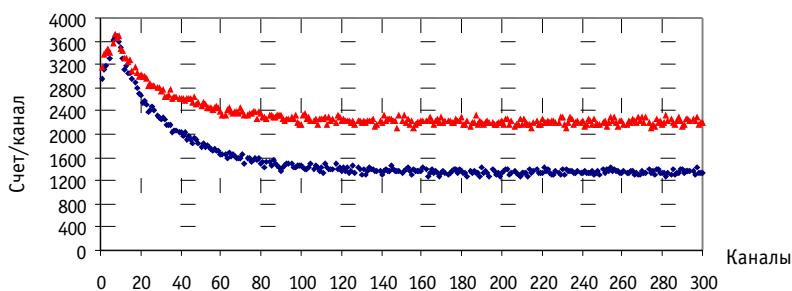


Рис. 2. Временное Росси- $\alpha$  распределение, полученное с помощью He-3-счетчиков в полиэтиленовом блоке ( $\Delta t = 3.2$  мкс): ◆ – Pu (89%); ▲ –  $\text{PuO}_2$  (67%)

нала. Половина коррелированной составляющей  $S$  определяется интегралом отсчетов от 9 до 200 канала после поканального вычитания среднего счета в канале некоррелированного фона.

Видно, что статистическая точность определения коррелированной составляющей временного распределения, полученного с помощью сцинтилляционных детекторов, выше полученной с помощью счетчика медленных нейтронов (He-3-счетчик). Это следует из того, что амплитуда фона под коррелированной составляющей при использовании сцинтилляционных детекторов составляет порядка одного процента от амплитуды пика, а в случае использования He-3-счетчиков примерно равна ему.

В табл. 4 представлены величины скоростей спонтанных делений  $Q_{sp}$ , полученные из периодов полураспада четных изотопов плутония и содержания этих изотопов в исследуемых образцах (третий столбец), результаты измерений (четвертый столбец), полученные по формуле (3) с использованием значения  $D = 0.817$ , экспериментальное отношение  $q_{\alpha}/vQ_{sp}$  (см. формулу (2)) – пятый столбец и соответствующие расчетные отношения – шестой столбец.

Расчеты с использованием изотопного состава образцов двуокиси плутония (табл. 1–3) производились по двум программам: отечественной программе CARE [4] и американской программе ORIGEN [5] из расчетного комплекса SCALE. Обе эти программы используются для проектных расчетов изменения состава и радиоактивности топливных элементов.

Поскольку среда была размножающая, то при обработке результатов приходилось использовать формулу (3 – поправки на размножение в образцах). Расчетные оценки показали, что величина коэффициента размножения  $k = 0.04$ ; 0.05 и 0.02 для образцов  $PuO_2$  67, 78 и 9% обогащения соответственно. Результаты, полученные по

Таблица 4

**Результаты измерений исследуемых образцов и соответствующие им расчетные отношения**

Тип детектора	Образец, обогащение по $^{239}Pu$ , масса	$Q_{sp}$ , дел/с	$\frac{D}{S} \frac{N}{\Delta t}$ *	Эксперимент $q_{\alpha}/v Q_{sp}$	Расчет $q_{\alpha}/v Q_{sp}$
Стильбен	$PuO_2$ (67%) $m = 39.68$ гр	4569	$13400 \pm 200$	$0.71 \pm 0.01$ ( $0.75 \pm 0.01$ )	0.816 (CARE) 0.872 (ORIGEN)
He-3	$PuO_2$ (67%) $m = 20.17$ гр	2322	$7468 \pm 145$	$0.790 \pm 0.019$ ( $0.84 \pm 0.02$ )	
Стильбен	$PuO_2$ (9%) $m = 45.08$ гр	17069	$22700 \pm 400$	$0.153 \pm 0.010$ ( $0.156 \pm 0.011$ )	0.158 (CARE) 0.168 (ORIGEN)
He-3	$PuO_2$ (9%) $m = 11.16$ гр	4226	$5688 \pm 230$	$0.160 \pm 0.022$ ( $0.163 \pm 0.023$ )	
He-3	$PuO_2$ (78%) $m = 28.37$ гр	2243	$5909 \pm 69$	$0.62 \pm 0.02$ ( $0.65 \pm 0.02$ )	0.686 (CARE) 0.731 (ORIGEN)
Стильбен	$Pu$ (89%) $m = 52.8$ гр	$\overline{2599}$	$2570 \pm 40$	—	—
He-3	$Pu$ (89%) $m = 52.8$ гр		$2709 \pm 44$	—	—

\*  $\frac{D}{S} \frac{N}{\Delta t}$  для стильбена

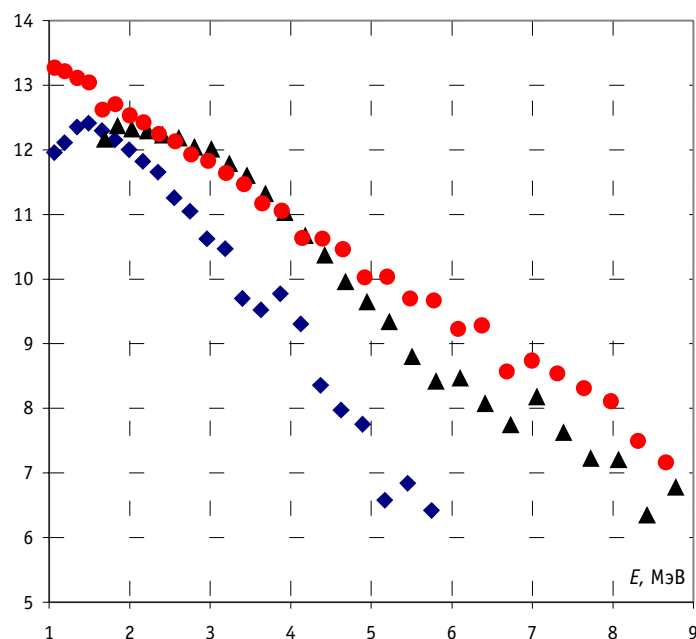


Рис 3. Аппаратурные спектры металлического плутония (89%), двуокиси плутония (67%) и двуокиси америция:  $\blacklozenge$  –  $\text{AmO}_2$ ;  $\blacktriangle$  –  $\text{PuO}_2$  (67%);  $\bullet$  –  $\text{Pu}$  (89%)

формуле (3), приведены в пятом столбце в скобках.

Видно, что различие результатов экспериментов, полученных по разным методикам, для  $\text{PuO}_2$  (67%) составляет десять процентов, а для  $\text{PuO}_2$  (78%) и  $\text{PuO}_2$  (9%) примерно пять процентов. Если для них эта разница не слишком отличается от статистической точности измерений, то для  $\text{PuO}_2$  (67%) она заметно превышает ее. Эта разница может быть связана с различием в эффективности регистрации сцинтилляционным детектором быстрых нейтронов от  $(\alpha, n)$  реакции и от нейтронов спектра деления. Счетчики же He-3 в полиэтиленовом блоке регистрируют в основном сильно замедлившиеся и тепловые нейтроны (кадмиевое отношение в блоке  $\approx 30$ ) и для регистрации этих нейтронов различие спектров быстрых нейтронов от  $(\alpha, n)$  реакции и от нейтронов деления несущественно. Кроме того, результаты методик по-разному могут быть чувствительны к размерам образцов [6]. Поэтому, несмотря на худшую статистическую точность методики с He-3-счетчиками, ее результаты более надежны.

Таким образом, в качестве результирующих экспериментальных данных, учитывающих размножение среды, мы можем взять значения методики с He-3 счетчиками. Тогда экспериментальное значение  $q_\alpha/v Q_{sp} = 0.84 \pm 0.02$  для  $\text{PuO}_2$  (67%),  $0.65 \pm 0.02$  – для  $\text{PuO}_2$  (78%) и  $0.163 \pm 0.023$  – для  $\text{PuO}_2$  (9%), что хорошо совпадает с результатами расчета по программе ORIGEN и несколько выше, чем по CARE.

Одновременно с измерением временного распределения (параллельно, см. [3]) на установке со сцинтилляционными детекторами быстрых нейтронов проводились измерения амплитудных распределений протонов отдачи для металлического плутония (89%), двуокиси плутония (67%) и двуокиси америция.

Полученные из них путем дифференцирования спектры нейтронов приведены на рис.3. По оси абсцисс отложена энергия нейтронов  $E_n$ , а по оси ординат – спектр нейтронов в шкале  $\ln(\phi(E_n)/\sqrt{E_n})$  ( $\phi(E_n)$  – спектр плотности потока нейтронов). В двуокиси америция нейтроны возникают только от  $(\alpha, n)$  реакции. Для металлического плутония спектр совпадает с испарительным спектром, для двуокиси америция спектр с увеличением энергии нейтронов  $E_n$  спадает быстрее.

Видно, что спектр для двуокиси плутония может быть представлен в виде суперпозиции этих двух спектров. Выше 6 МэВ он совпадает по форме с испарительным спектром, а примерно с 5 МэВ и ниже в нем присутствует добавка от от нейтронов ( $\alpha$ ,  $n$ ) реакции на кислороде  $PuO_2$ . Эти измерения проводить достаточно трудно и-за большого гамма фона и невысокой точности измерений спектров, поэтому они имеют *иллюстративный характер*.

Тем не мене из результатов сравнения этих нейтронных спектров (определения доли ( $\alpha$ ,  $n$ ) нейтронов в спектре  $PuO_2$  (67%)) удалось показать, что  $q_{\alpha}/v Q_{sp}$  примерно равно  $0.9 \pm 0.2$ . В том случае, когда неизвестно, является ли образец металлом или двуокисью, измерения спектра нейтронов могут быть также полезными.

### **Литература**

1. Дулин В.В., Матвеев И.П. Определение глубоко подкритических состояний размножающих сред методом Росси-альфа // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2002. – № 1. – С. 9-18.
2. Райлли Д., Энслин Н., Смит мл. Х., Крайнер С. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. – М.: БИНОМ, 2000.
3. Дулин В.В., Матвеев И.П., Кулабухов Ю.С., Ткачук Н.Н. Об одной возможности контроля плутониевых изделий в контейнерах / Препринт ФЭИ– 2827. – Обнинск, 2000.
4. Кочетков А.Л. Программа CARE – расчет изотопной кинетики, радиационных и экологических характеристик ядерного топлива при его облучении и выдержке / Препринт ФЭИ 2431. – Обнинск, 1995.
5. Hermann O.W. COUPLE: SCALE system module to process problem-dependent cross sections and neutron spectral data for ORIGEN-S analyses // NUREG/CR-0200, Revision 4, V. 2, Section F6, 1995.
6. Дулин В.В. К вопросу об определении абсолютной интенсивности протяженных источников методом совпадений // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2002. – № 4. – С. 32-38.

Поступила в редакцию 28.02.2002

## ABSTRACTS OF THE PAPERS

### УДК 621.039.532.21

*Constituents of the Spatial-Distributed Source of Heat Discharge in the Graphite Structures of the Nuclear Power Installations* \ V.I. Boiko, P.M. Gavrilov, V.A. Lyzko, V.N. Nesterov, I.V. Shamanin, A.V. Ratman; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 6 pages, 3 tables, 4 illustrations. – References, 2 titles.

The calculation analysis of the heat discharge process in graphite of nuclear reactors is carried out. As the basic there are singled out two constituents of the heat discharge – by the neutron moderation and by the absorption of the  $\gamma$ -quantum's energy. In the constituents calculations the heterogeneity of the reactor's cell and the  $\gamma$ -quantum's spectrum peculiarities were taken in to account. The values of densities of the heat discharge caused by the each of the constituents in the graphite bricklaying of RBMK and ADE reactors are determined. Differences between parameters of the heat discharge in the bricklaying's graphite that are caused by the neutrons and  $\gamma$ -quantum's spectrum's peculiarities in the core are founded out.

### УДК 539.125.5: 621.039.51

*The Neutron-Physical Aspects of the Uranium-Thorium and Plutonium-Thorium Alloys Handlement* \ V.I. Boiko, V.V. Shidlovskiy, P.M. Gavrilov, I.V. Shamanin, M.G. Gerasim, V.N. Nesterov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 9 pages, 3 illustrations. – References, 12 titles.

The possibility of the safe storage of the alloys of the raw nuclide  $\text{Th}^{232}$  with the basic odd-even nuclides  $\text{U}^{235}$  and  $\text{Pu}^{239}$  is analyzed in the paper. The correlation for determination of the limit permissible values of concentration of the nucleus of uranium and plutonium in alloys are obtained, the results of the neutron-physical calculations are presented.

### УДК 621.039.543.6

*About Contribution of  $\alpha$ -n Reaction to Intensity of Neutron Radiation of Dioxide of Plutonium* \ V.V. Doulin, S.A. Zabrodskaja; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 7 pages, 4 tables, 3 illustrations. – References, 6 titles.

The technique of experimental definition of  $\alpha$ -n neutrons output from different isotope structure plutonium dioxide, using of a method of Rossi- $\alpha$  (a method of neutron-neutron coincidence) is stated. Measurements are carried out on two various installations. In one installation it was used two highly effective counters of slow neutrons (He-3 counter), and in other installation - three fast neutrons detectors, using the stilben scintillators.

The parts of  $\alpha$ -n neutrons output was determined for dioxide of plutonium with three various isotope structures. Control measurements by a sample of metal plutonium in which there is no  $\alpha$ -n reaction and dioxides of americium with neutrons only from  $\alpha$ -n reactions were simultaneously carried out. These parts have been received experimentally and compared with results of calculation under two programs.

### УДК 621.039.512: 539.125.5

*To a Problem of Identification of Integral Equations of a Kinetics* \ A.G. Yuferov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 9 pages, 4 illustrations. – References, 17 titles.

The work is devoted to the formulation of the schemes of identification for the integral equations of a point neutron kinetics on the basis of an autoregression and the analysis of parametrical complexes as criteria of adequacy of constants of delaying neutrons.