



·蒙特卡罗方法及其应用·

引入源-样品距离影响的主动中子多重性质量反演公式

朱剑钰¹, 黄 孟¹, 赵德山²

(1. 中国工程物理研究院 战略研究中心, 北京 100088; 2. 中国工程物理研究院 核材料研究所, 四川 绵阳 621908)

摘 要: 主动中子多重性计数测量方法是常用的核材料质量无损测量方法, 已广泛应用于核材料衡算、核安保测量与军控核查等领域。我们通过对 JMCT 中子-光子输运程序的二次开发, 实现了对经典点模型铀样品质量估算实验的数值模拟, 并提出了改进的铀样品质量计算公式。该算法可以显著降低本实验中源-样品耦合与源中子反照等作用对铀样品质量估算精度的影响。建立了主动中子多重性计数测量探测系统模型和 32 个铀样品半球壳模型, 模拟得到了与铀样品距离不同的 DT 源和 AmLi 源主动中子多重性计数, 利用数值模拟手段检验了质量估算算法的有效性。数值模拟结果表明, 改进的铀质量估算算法可以使质量估算的平均偏差率降低到 10% 以下。

关键词: 中子多重性计数; 质量估算; 铀金属部件; 军控核查

中图分类号: TL816+.3

文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202234.210350

Mass estimation equation for active neutron multiplicity counting considering the source to object distance

Zhu Jianyu¹, Huang Meng¹, Zhao Deshan²

(1. Center for Strategic Studies, CAEP, Beijing 100088, China;

2. Institute of Materials, CAEP, Mianyang 621908, China)

Abstract: Active neutron multiplicity counting method could provide the multiplicity distribution of neutrons multiplied from one fission event induced by an external neutron source in nuclear components. The equivalent mass of material in uranium component can be obtained by substituting the neutron multiplicity counting into the mass inversion equation with the known characteristic parameters. Therefore, this method is widely used in nuclear material accounting, nuclear security measurement and arms control verification. In this paper, Mont Carlo neutron transport calculation was used to simulate the experiment of the uranium mass estimation by classical point model equation. Based on this, an improved equation is proposed, which could significantly reduce the effect of source-sample coupling and neutron back irradiation on the accuracy of uranium mass estimation for the experiment. The validity of the mass equation is tested by numerical method, and the deviation between real mass and estimated mass obtained by the original point model equation and the improved mass equation is compared. The active neutron multiplicity counting simulation calculation is realized based on the original neutron transport simulation software. A model of active neutron multiplicity counting detection system and 32 models of uranium metal hemispherical shell are established. The active neutron multiplicity counts of DT source and AmLi source with different distances from uranium components are simulated and the estimated mass of the object are obtained with the simulated results. The numerical simulation results show that the average deviation of the improved uranium component mass inversion is reduced to less than 10%.

Key words: neutron multiplicity counting; mass estimation; uranium metal component; arms control

随着中子符合测量技术的发展, 中子多重性计数 (NMC) 测量逐渐成为核材料衡算、核安保检测与军控核查等领域的重要测量手段^[1]。早期中子多重性计数探测装置主要基于³He 井型探测器, 测量慢化后的中子多重性计

* 收稿日期: 2021-08-13; 修订日期: 2021-12-26
基金项目: 四川省重点研发项目(2021YFSY008)
联系方式: 朱剑钰, zhujyu@126.com。
通信作者: 黄 孟, hm.max@126.com。

数^[2]。近年来,闪烁体快中子探测器成本下降和电子学信号处理能力提升,发展出的基于塑料闪烁体的快中子多重性探测系统,实现了快中子多重性计数探测能力,进一步拓展了中子多重性测量技术的应用领域^[3]。国外多家研究机构分别开发了 MCNP-DSP, MCNP-Polimi 等数值模拟软件开展中子多重性计数模拟研究^[4]。国内一些核物理实验室开展了相关的实验研究、平台搭建和数值模拟软件开发与应用等研究,取得了很多成果。中国工程物理研究院开发了结合 γ 测量与中子多重性计数测量的核部件质量测量系统^[5],并进行了数值模拟研究^[6]和针对大体积钚材料质量测量的系统优化研究^[7-8]。火箭军工程兵大学开展了中子多重性测量系统研发、核部件质量估算算法研究与数值模拟研究^[9]。中国原子能科学研究院、西安高技术研究所等单位开展了快中子多重性测量系统应用研究^[10-11]。

本文利用数值模拟手段,研究利用中子多重性符合计数估算铀样品质量方法,提出与源-样品距离和源中子锥角参数相关铀样品质量估算改进算法,并对该算法进行了检验。

1 经典点模型质量算法

Ensslin 等人于 1998 年发表的文章中总结了其所在研究团队在利用中子多重性计数测量钚材料质量的方法,提出了用于钚质量测量的“被动中子多重性点模型”公式^[1]。但是,用于钚部件质量测量的“点模型”公式成立的限制比较多,测量系统需要满足以下三个条件:

- (1) 源诱发裂变各向同性、裂变中子各向同性(点);
- (2) 井型探测器(探测器效率与裂变位置无关);
- (3) 自发裂变中子能谱与诱发裂变中子能谱差别不大。

对于铀样品,由于铀样品自发中子放射性较小,需要引入外中子源诱发铀样品产生裂变中子,进而开展中子多重性计数测量,这种方法被称为主动中子多重性方法。在反演铀材料质量时,“被动中子多重性点模型”公式成立条件不能得到满足,因此 Krick 等人改进了该公式,提出了主动中子多重性计数测量铀样品质量的算法^[12]。首先,定义裂变触发率 F 为一个源粒子诱发 1 kg 钚材料裂变产生的裂变中子数,这些直接由源中子诱发产生的裂变中子在部件内增殖诱发 FM 个出射中子,其中 M 为泄漏中子增殖系数。

F 与 ^{235}U 等效质量 m 、中子源计数率 Y 、耦合因子具有如下关系

$$F = CmY \quad (1)$$

基于点模型近似,可以推导出,单重(S)、双重(D)、三重(T)计数率与核部件特征之间的关系

$$\begin{aligned} S &= S_0 + B + S_{\text{scat}} + F\varepsilon_f M\nu_{s1} \\ D &= \frac{F\varepsilon_f^2 f_d}{2} M^2 \left[\nu_{s2} + \frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \nu_{s1}\nu_{i2} \right] \\ T &= \frac{F\varepsilon_f^3 f_t}{6} M^3 \left[\nu_{s3} + \frac{M-1}{\nu_{i1}-1} (3\nu_{s2}\nu_{i2} + \nu_{s1}\nu_{i3}) + 3 \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right)^2 \nu_{s1}\nu_{i2}^2 \right] \end{aligned} \quad (2)$$

式中: S_0 为无样品时,主动外源对单重计数率的贡献; B 为本底对单重计数率的贡献; S_{scat} 为被测样品对源散射和吸收对 S_0 的影响; F 为样品中的诱发裂变率; M 为泄漏中子增殖系数; ν_{s1} , ν_{s2} 和 ν_{s3} 为主动外源诱发材料裂变中子分布的一阶、二阶和三阶阶乘矩; ν_{i1} , ν_{i2} 和 ν_{i3} 为外源中子分布的一阶、二阶和三阶阶乘矩; f_d 为双重门因子; f_t 为三重门因子。

$$\begin{aligned} f_d &= e^{-\frac{P}{\tau}} (1 - e^{-G/\tau}) \\ f_t &= f_d^2 \end{aligned} \quad (3)$$

式中: τ 为探测器死时间; G 为移位寄存器门宽度; P 为移位寄存器预延时。

考虑到本底和探测效率影响,裂变中子多重性可以由实际测量得到的中子偶然符合多重性计数率和真实符合计数率阶乘矩得到

$$\begin{aligned} S &= r_0 = f_0 - b_0 \\ D &= S(f_1 - b_1) \\ T &= S[f_2 - b_2 - 2b_1(f_1 - b_1)]/2 \end{aligned} \quad (4)$$

式中： f_0, f_1, f_2 分别为总符合计数的0, 1, 2阶阶乘矩； b_0, b_1, b_2 分别为随机符合计数的0, 1, 2阶阶乘矩。

样品质量 $m(i)$ 、样品中的诱发裂变率 $F(i)$ 和中子源计数率 Y 满足

$$m(i) = \frac{F(i)}{C(i)Y} \quad (5)$$

式中： $C(i)$ 为第 i 个部件的源-样品耦合因子。

在实际反演过程中，可利用测量得到的总符合计数和随机符合计数阶乘矩，根据式(2)和式(4)即可获得样品的泄漏增殖系数估计值 M_{est} ，进而利用式(2)可以得到源诱发样品裂变的裂变率 F 。由于铀样品与源中子的耦合作用复杂，源-样品耦合因子的估计值 $C(i)$ 一般通过对探测器的预先标定的算法获得。Krick等人给出了确定铀样品源-样品耦合因子的方法。对于不同增殖系数的核部件， $M_{\text{est}}(i)$ 和 $C_{\text{est}}(i)$ 满足

$$C_{\text{est}}(i) = a - \frac{b(M_{\text{est}}(i) - 1)}{1 + c(M_{\text{est}}(i) - 1)} \quad (6)$$

式中： a, b 和 c 是待定参数。

2 数值模拟与改进的质量估算模型

我们利用基于时序探测事件统计方法计算中子多重性计数的软件JMCT_NMC开展数值模拟计算。JMCT_NMC可以准确给出不同源粒子诱发的探测器响应事件可能形成偶然符合事件，更准确的给出实验得到的中子多重性计数测量结果。时序探测事件处理方法不需大量存储粒子信息，在解决中子多重性模拟受内存限制问题的同时，可以提升计算效率^[13]。

在分析Ensslin和Krick等人工作的基础上，我们编写了利用主动中子多重性计数测量结果估算铀样品质量的程序，算法流程图见图1。主要计算过程包括：首先要确定探测系统相关参数、测量系统时间窗宽带与核材料特征参数等信息，再根据探测得到的总符合计数(用 $R+A$ 表示)、偶然符合(用 A 表示)计数率计算得到核部件中子多重性分布的一重、二重和三重符合特征参数(S, D 和 T)，进而得到增殖系数(M)、裂变率(F)和源-部件耦合常数(C)等核部件中子多重性特征参数，最后使用估算公式计算得到部件增殖系数和质量信息。

为了研究质量估算与源-样品距离的依赖关系，我们建立了出射中子能谱、距离探测器距离和出射中子锥角不同的中子源。源中子分别采用14.1 MeV的单能中子和AmLi中子源。源到部件距离分别为10, 20, 30, 40和50 cm。

主动中子探测系统内，大量源中子穿透核部件辐照到探测器内壁，经探测器慢化材料慢化后可能诱发探测器响应或诱发核部件发生裂变反应。经慢化的中子诱发核部件反应的数目与源中子辐照到探测器内壁数目及中子反照率等因素相关。由于本模型中限定源中子出射角正好覆盖核部件外径，因此慢化中子对结果影响可由源-样品距离，源中子出射锥角相关表达式近似给出。因此我们引入了新的质量公式

$$m_k(i) = \frac{F}{k(i)C(i)Y} \quad (7)$$

式中： i 为核材料样品序号； $k(i)$ 为中子自增殖的空间不均匀性校正因子， $k(i)$ 具有以下形式

$$k(i) = \left(\alpha \frac{1}{d(i)\tan(\phi(i))} + \beta d(i) \right)^2 \quad (8)$$

式中： $d(i), \phi(i)$ 分别为中子源与部件距离和中子源锥角，在测量过程中是已知参数。通过对DT源和AmLi源模拟数据的拟合，可以确定参数 α 和 β 。

3 质量估算结果与讨论

首先，我们统计了裂变中子和源中子诱发铀材料出射中子多重性分布，并根据阶乘矩定义，分别计算出中子多

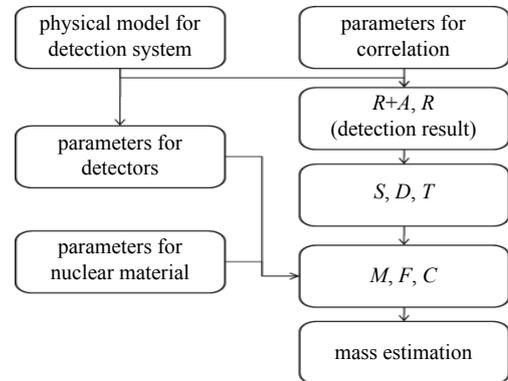


Fig. 1 Process of uranium mass estimation by neutron multiplicity counting method

图1 利用中子多重性计数方法估算铀样品质量的流程

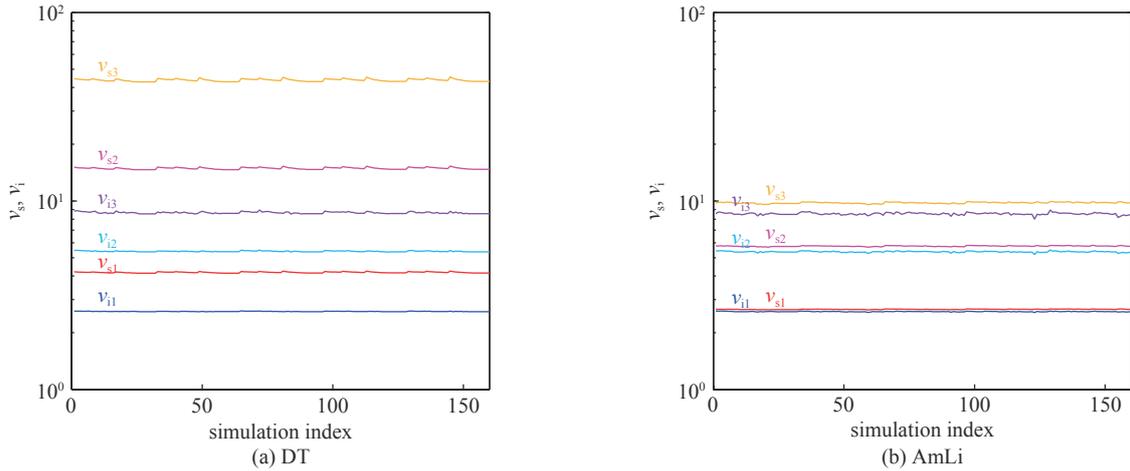


Fig. 2 Factorial moment of neutron multiplicity distribution for fission neutrons

图 2 裂变中子多重性分布的阶乘矩

重性分布阶乘矩 v_{i1} , v_{i2} , v_{i3} 和 v_{s1} , v_{s2} , v_{s3} , 计算结果如图 2 所示。图 2(a)为利用 DT 源诱不同核部件发生裂变反应后, 分别统计出的源诱发裂变中子和裂变中子诱发裂变中子的多重性分布阶乘矩; 图 2(b)为 AmLi 源诱发结果。统计得到的中子多重性分布结果将作为参数在质量反演过程中使用。

利用数值模拟软件, 我们分别得到了 DT 中子源和 AmLi 中子源在 5 种源-样品距离时的对 32 个部件进行探测的总符合计数和偶然符合计数多重性分布, 并计算得到了各阶阶乘矩 f_0, f_1, f_2, b_0, b_1 和 b_2 , 再利用式(4)计算中子多重性分布, 即所得到的 DT 源和 AmLi 源中子多重性分布分别结果。

在确定式(7)中 $M_{est}(i)$ - $C_{est}(i)$ 关系式参数时, 先将计算得到的 $M_{est}(i)$ 与部件质量 $m_{obj}(i)$ 代入式(6)确定所有样品质量求出每个样品真实耦合因子 $C_{obj}(i)$, 获得 M_{obj} - C_{obj} 关系图。再通过最优化算法, 确定 $M_{est}(i)$ - $C_{est}(i)$ 关系参数。图 3 为 DT 源和 AmLi 源测量情况的模拟结果和参数拟合结果。

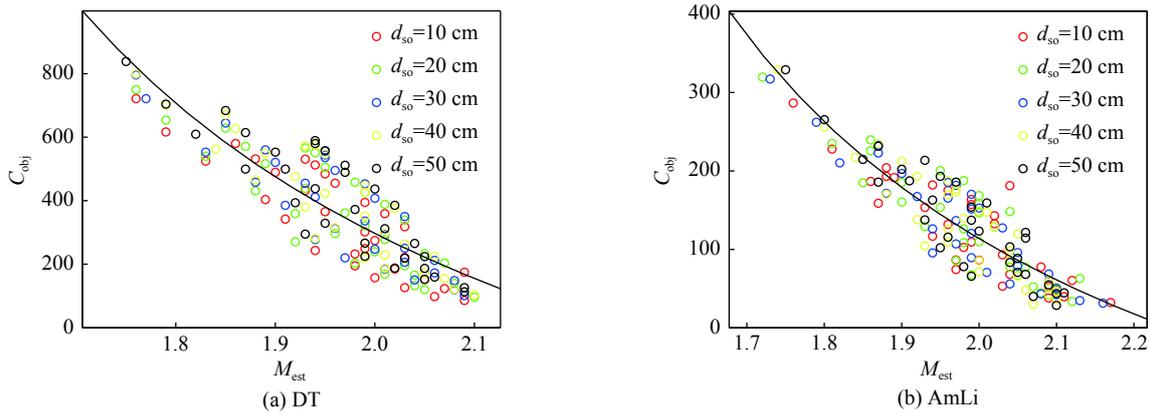


Fig. 3 Fitting result for C - M relation function

图 3 C - M 关系方程拟合结果

对 DT 和 AmLi 中子源中子源, $M_{est}(i)$ - $C_{est}(i)$ 关系参数见表 1。

表 1 两种中子源的 C - M 关系方程参数

Table 1 Parameters for C - M relation functions for two kinds of neutron sources

source type	a	b	c
DT	-1.00×10^4	6.75×10^4	-7.54
AmLi	-6.90×10^3	8.44×10^4	13.0

最后, 利用计算得到的 $M_{est}(i)$ 和 $C_{est}(i)$ 代入式(6)即可得到部件质量 $m_{est}(i)$ 。图 4 为利用经典点模型公式计算得到的估算质量与铀样品实际质量的对比图, 图 4(a), (b)分别为利用 DT 中子源和 AmLi 中子源照射铀样品产生中

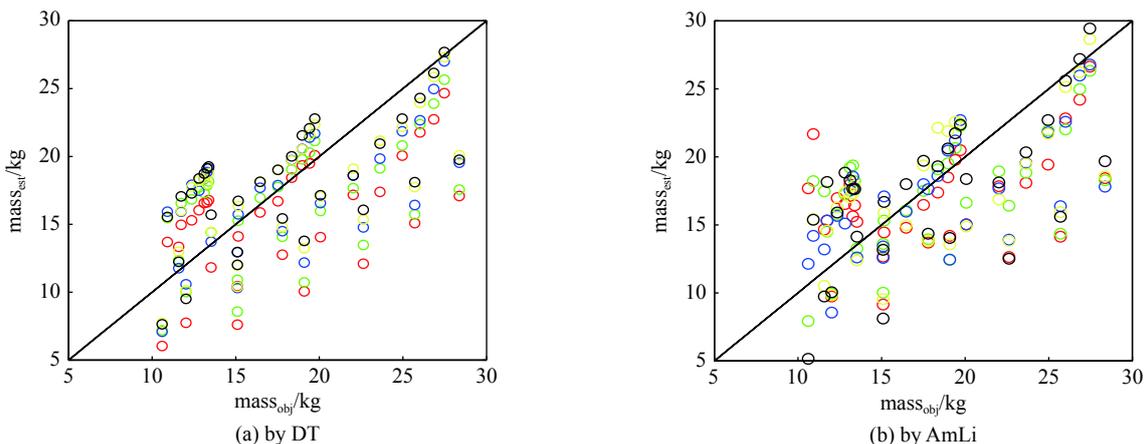


Fig. 4 Mass estimation results by classical point model function

图 4 经典点模型公式的质量估算结果

子多重性计数反演轴样品质量的结果。

针对每种源, 利用 160 个模拟结果, 通过最优化算法, 可以确定式 (8) 中子自增殖的空间不均匀性校正因子, 对 DT 源拟合结果如图 5 所示。增加的中子自增殖的空间不均匀性校正因子能够反映出源-探测器距离以及源中子出射锥角参数对质量反演偏差率的影响, 拟合得到的校正因子参数值见表 2。

利用改进公式计算得到的部件质量与真实部件质量比较见图 6。图 6(a), (b) 分别为利用 DT 中子源和 AmLi 中子源照射轴样品产生中子多重性计数反演轴样品质量的结果。

利用式 (9) 给出的平均质量偏差率计算公式, 可以定量比较经典质量估算公式和改进后质量公式的质量估算效果。

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{m_{est}(i) - m_{obj}(i)}{m_{obj}(i)} \right| \quad (9)$$

质量估算平均偏差率结果见表 3。

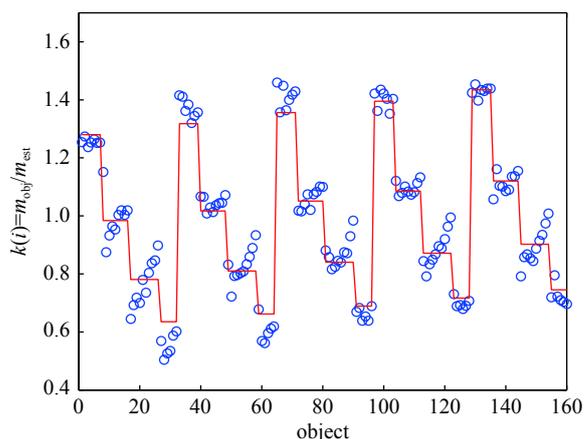


Fig. 5 Mass correction factors and its fitted results for DT source

图 5 DT 源的质量修正因子及其拟合结果

表 2 两种中子源的质量校正因子

Table 2 Mass correction factors for two kinds of neutron sources

neutron source	α	β
DT	7.80	1.64×10^{-3}
AmLi	8.20	5.00×10^{-5}

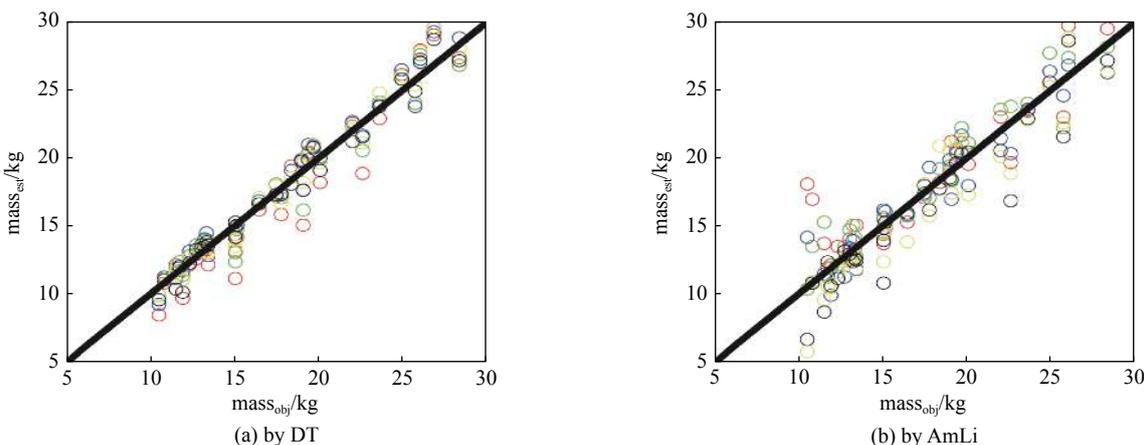


Fig. 6 Mass estimation for improved mass function

图 6 改进质量公式的质量估算结果

表 3 两种中子源的质量估算平均偏差率

Table 3 Average mass divergence rate for two kinds of neutron sources

neutron source	average mass divergence rate by point model/%	average mass divergence rate by our model/%
DT	21	4
AmLi	19	9

4 结 论

本文研究了主动中子多重性计数估算铀样品质量算法,改进了中子输运软件,实现中子多重性计数模拟功能,实现了经典点模型近似质量估算,提出了算法改进方案,并利用数值模拟手段检验了该方法的估算精度。在经典点模型近似质量估算公式的基础上,我们引入了与源与核部件距离和源中子出射锥角相关的质量调节因子,对于DT中子源的模拟结果,改进后的铀样品质量估算平均偏差率降低到5%以下;对于AmLi中子源改进后的质量估算偏差率也降低到10%以下。

参考文献:

- [1] Ensslin N, Harker W C, Krick M S, et al. Application guide to neutron multiplicity counting[R]. LA-13422-M, 1998.
- [2] Langner D G, Krick M S, Stewart J E, et al. The state-of-the-art of thermal neutron multiplicity counting[R]. LA-UR-97-2734, 1997.
- [3] di Fulvio A, Shin T H, Basley A, et al. Fast-neutron multiplicity counter for active measurements of uranium oxide certified material[J]. *Nucl Instrum Methods Phys Res A*, 2018, 907: 248-257.
- [4] Pozzi S A, Padovani E, Marseguerra M. MCNP-PoliMi: a Monte-Carlo code for correlation measurements[J]. *Nucl Instrum Methods Phys Res A*, 2003, 513(3): 550-558.
- [5] 张昌繁, 陈利高, 刘晓波, 等. 基于NPL-NMC系统的 γ 测量子系统的建模与优化[J]. *原子能科学技术*, 2016, 50(4): 698-704. (Zhang Changfan, Chen Ligao, Liu Xiaobo, et al. Modeling and optimization of gamma measurement subsystem based on NPL-NMC system[J]. *Atomic Energy Sci Technol*, 2016, 50(4): 698-704)
- [6] 朱剑钰, 谢文雄, 李刚, 等. 核查技术数值实验平台中的时间关联符合测量与中子多重性测量[J]. *计算物理*, 2015, 32(2): 213-219. (Zhu Jianyu, Xie Wenxiong, Li Gang, et al. Time correlation and neutron multiplicity counting measurement in numerical experiment platform on verification technologies[J]. *Chin J Comput Phys*, 2015, 32(2): 213-219)
- [7] Xie Wenxiong, Li Jiansheng, Gong Jian, et al. Experimental study on the measurement of uranium casting enrichment by time-dependent coincidence method[J]. *Chin Phys C*, 2013, 37: 106202.
- [8] Chen Ligao, Gong Jian, Wang Kan, et al. Variance analysis for passive neutron multiplicity counting[J]. *Nucl Sci Tech*, 2015, 26(2): 54-58.
- [9] 苏祥华, 张全虎, 侯素霞, 等. 基于快中子多重性计数器的Pu样品属性测量研究及改进[J]. *原子能科学技术*, 2020, 54(10): 1961-1968. (Su Xianghua, Zhang Quanhu, Hou Suxia, et al. Research and improvement of Pu sample property measurement based on fast neutron multiplicity counter[J]. *Atomic Energy Sci Technol*, 2020, 54(10): 1961-1968)
- [10] Zhou Hao, Lin Hongtao, Liu Guorong. A neutron multiplicity analysis method for uranium samples with liquid scintillators[J]. *Nucl Instrum Methods Phys Res A*, 2015, 797: 70-76.
- [11] Li Xinshe, Yao Junping, Ma Junchun. Analysis of measurement model of uranium multiplicity based on the liquid scintillators[J]. *J Phys Conf Ser*, 2018, 1053: 012067.
- [12] Krick M S, Ensslin N, Langner D G, et al. Active neutron multiplicity analysis and Monte Carlo calculations[R]. LA-UR-94-2440, 1994.
- [13] 朱剑钰, 李瑞, 黄孟, 等. 用时序探测事件模拟提升中子多重性计算效率[J]. *强激光与粒子束*, 2018, 30: 026003. (Zhu Jianyu, Li Rui, Huang Meng, et al. Improving calculation efficiency of neutron multiplicity counting by sequential detection events simulation[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2018, 30: 026003)