

2198/2-79



ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

B - 61

11/vi-79

18 - 12235

Во Дак Банг, Хоанг Чунг Тхонг, Чан Дай Нгип

О ПРИМЕНЕНИИ  
ИМПУЛЬСНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ  
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ВОДОРОДА  
В ОГРАНИЧЕННЫХ СРЕДАХ

1979

18 - 12235

Во Дак Банг, Хоанг Чунг Тхонг, Чан Дай Нгиеп

О ПРИМЕНЕНИИ  
ИМПУЛЬСНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ  
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ВОДОРОДА  
В ОГРАНИЧЕННЫХ СРЕДАХ

*Направлено в журнал "Заводская лаборатория"*

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

Во Дак Банг, Хоанг Чунг Тхонг, Чан Дай Нгвеп 18 - 12235

О применении импульсного источника нейтронов для определения содержания водорода в ограниченных средах

Исследуется возможность использования импульсного источника нейтронов для определения содержания водорода в ограниченных средах. Приведен расчет для конкретного случая переменного содержания влаги в веществе. Изложены результаты экспериментов с нейтронной трубкой. Обсуждены преимущества и недостатки метода.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ и в Радиационной лаборатории института физики национального научно-исследовательского центра СРВ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Vo Dac Bang, Hoang Trung Thong, Tran Dai Nghiep 18 - 12235

On Using a Pulse Neutron Source for Measuring Hydrogen Content in Limited Medias

The possibility of using a pulse neutron source for measuring hydrogen content in limited medias was investigated. Calculations were made for the case of media with changed water concentrations. Experiments with a pulse sealed neutron tube were described. The advantages and shortcomings were considered.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR and the Radiation Laboratory of Physical Institute of Centre for Scientific Researches of Vietnam.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

При определении содержания водорода нейтронным методом с помощью изотопных источников, как правило, регистрируют стационарную плотность нейтронов, прошедших исследуемую среду или отраженных от нее. Вместе с тем известно, что импульсный режим работы источника нейтронов позволяет значительно повысить информативность метода. В настоящей работе исследуется возможность использования импульсного источника нейтронов для определения содержания водорода в ограниченных средах на примере песка с переменным содержанием влаги. Насколько нам известно, такие задачи, за исключением случая двухзонных сред, в литературе не рассматривались. С другой стороны, в ряде практических задач требуется определить содержание водорода именно в ограниченных объемах вещества, и предлагаемый здесь метод может явиться перспективным.

Как известно, плотность тепловых нейтронов, испущенных импульсным источником быстрых нейтронов, в ограниченном объеме вещества достаточно хорошо описывается двухгрупповым нестационарным уравнением диффузии, решение которого представляет собой суперпозицию бесконечного числа гармоник, каждая из которых затухает во времени по экспоненте с соответствующей постоянной релаксации. Для больших времен преобладает фундаментальная гармоника, спадающая с декрементом затухания

$$\lambda = \bar{v} \bar{\Sigma}_a + \bar{D} \bar{v} B^2 - C B^4 + \dots, \quad /1/$$

где  $\bar{\Sigma}_a \bar{v}$ ,  $\bar{D}$ ,  $C$  - усредненная по спектру вероятность поглощения нейтрона за 1 с, усредненный коэффициент диффузии

и коэффициент диффузионного охлаждения соответственно,  $B^2$  - геометрический параметр замедляющей системы,  $\bar{v}$  - средняя скорость нейтронов. В многокомпонентной среде соответственно имеем:

$$\bar{\Sigma}_a = \sum_{i=1}^n \bar{\Sigma}_{ai} (\rho_i / \rho_{oi}), \quad \bar{D} = \left[ \sum_{i=1}^n \frac{\rho_i}{\rho_{oi} \bar{D}_i} \right]^{-1} \quad /2/$$

где  $\bar{\Sigma}_{ai}$  и  $\bar{D}_i$  - нейтронные диффузионные параметры для  $i$ -того компонента при нормальной его плотности  $\rho_{oi}$ ,  $\rho_i$  - абсолютное содержание  $i$ -того компонента в среде,  $г/см^3$ . Член  $B^2$  для водородсодержащих замедлителей при не слишком малых объемах вещества вносит лишь небольшой вклад в значение  $\lambda$ , и для установления зависимости  $C$  от  $\rho$  сделаем грубое предположение о том, что  $D$  не зависит от энергии. В таком случае, согласно Нелкину<sup>/2/</sup>

$$C = \frac{\sqrt{\pi} \bar{D}^2}{2NM_2 \bar{v}}$$

где  $N$  - количество ядер замедлителя в  $1 см^3$ ,  $M_2$  - средний квадрат энергии обмена между нейтронами и средой в  $1 с$ . Для многокомпонентной среды:

$$C = \frac{\sqrt{\pi} \bar{D}^2}{2\bar{v} \sum_{i=1}^n N_i M_{2i}} = \left[ \sum_{i=1}^n \frac{\rho_i}{\rho_{oi} \bar{D}_i} \right]^{-2} / \sum_{i=1}^n \frac{\bar{D}_i^2 \rho_i}{C_i \rho_{oi}} \quad /3/$$

Соотношения /1/, /2/, /3/ дают зависимость декремента затухания основной гармоник  $\lambda$  от плотностей компонентов в исследуемой среде. В общем случае для большинства веществ эта зависимость довольно слаба. Однако вследствие аномально высокого значения сечения рассеяния тепловых нейтронов на связанном атоме водорода /а значит, и малого коэффициента диффузии  $D$ / даже незначительное изменение концентрации водородсодержащих веществ в среде приводит к заметному изменению  $\lambda$ . На этом, в сущности, и основан метод определения содержания водорода в ограниченных средах, излагаемый в настоящей работе.

Если тепловые нейтроны, вытекающие из блока вещества, регистрируются временным анализатором, то число отсчетов в канале шириной  $\Delta t$ , очевидно, равно:

$$N = A_0 e^{-\lambda t_3} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) / \lambda \quad /4/$$

Здесь  $A_0$  - некий, не зависящий от времени, множитель, а  $t_3$  - задержка канала по отношению к моменту окончания импульса быстрых нейтронов.

Мы провели расчеты по формулам /1/, /2/, /3/, /4/ при  $B^2 = 0,03 см^{-2}$  для песка с различным абсолютным содержанием воды  $\rho$ . Диффузионные параметры песка брались из работы<sup>/3/</sup>. Коэффициент  $C$  был рассчитан приближенно по модели тяжелого газа, состоящего из чистого  $SiO_2$  с массой 60. Расчеты показали, что при малом содержании водорода  $\rho \approx 0,4 г/см^3$  с ростом  $\rho$  уменьшается /см. рис. 1/.

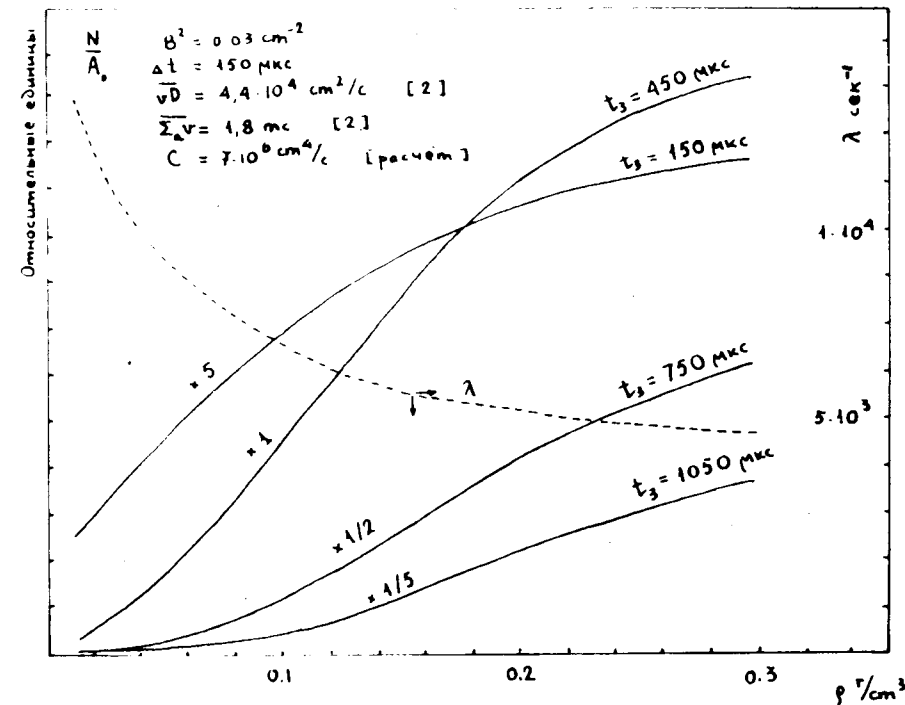


Рис. 1. Расчетные зависимости декремента затухания нейтронной плотности  $\lambda$ , а также числа зарегистрированных нейтронов в канале временного анализатора от абсолютного содержания воды  $\rho$  в песке.

Основной вклад в  $\lambda$  вносит член  $\bar{v} \bar{D} B^2$ . С ростом  $\rho$  возрастает относительная доля члена  $\bar{\Sigma}_a \bar{v}$ . Член  $B^2$  при всех  $\rho$  остается малым. Так, при  $\rho = 0,01 г/см^3$   $\bar{\Sigma}_a \bar{v}$  составляет

лишь 5% от  $\bar{v} \bar{D} B^2$ , а СВ<sup>4</sup> - 6%. Соответствующие цифры при  $\rho = 0,3 \text{ г/см}^3$  равны 70% и 0,5%. Счет в 150-микросекундном канале ( $\Delta 1$ ) временного анализатора с ростом  $\rho$  увеличивается, достигая в районе  $\rho \approx 0,3 \text{ г/см}^3$  насыщения для малых временных задержек. С увеличением  $t_3$ , во-первых, область насыщения отодвигалась в район все больших  $\rho$ , во-вторых, относительное изменение счета становилось более значительным. Так, при увеличении  $\rho$  на  $0,05 \text{ г/см}^3$  в интервале от  $0,01 \text{ г/см}^3$  до  $0,3 \text{ г/см}^3$  счет в 150-микросекундном канале при  $t_3 = 150 \text{ мкс}$  может увеличиться максимум на несколько десятков процентов, для  $t_3 = 450 \text{ мкс}$  увеличение составляет уже несколько раз, для  $t_3 = 750 \text{ мкс}$  оно доходит до десяти, а для  $t_3 = 1050 \text{ мкс}$  - до нескольких десятков раз. Таким образом, при наличии интенсивного нейтронного источника можно надеяться, что чувствительность к содержанию водорода будет повышаться при увеличении задержки регистрируемого канала.

Сказанное выше относится к области малых концентраций водорода. Расчеты показывают, что при больших его концентрациях /  $\rho \geq 0,4 \text{ г/см}^3$ / декремент затухания  $\lambda$  должен, наоборот, расти, причем почти линейно с ростом  $\rho$ , за счет члена  $\Sigma_a \bar{v}$  соответствующего поглощению в среде. Область средних концентраций, где эффекты диффузии и поглощения сравнимы, оказывается малочувствительной к содержанию водорода в веществе. Границы этой области зависят от конкретной замедляющей среды. Например, для песка она находится в районе  $\rho \approx 0,3 \text{ : } 0,5 \text{ г/см}^3$ .

Для проверки изложенного были проведены эксперименты в области малых концентраций водорода. При этом использовалась стандартная аппаратура ИГН-4 для импульсного нейтронного каротажа нефтяных скважин /ИННК/. Выход отпаянной нейтронной трубки УГН-1 был оценен с помощью счетчика Мак-Таггарта, откалиброванного по выходу Pu-Be-источника, а также нейтронного генератора НК-3 /венгерского производства/. Абсолютный выход Pu-Be источника определялся методом водяного бака с использованием золотых и индиевых фольг для измерения, соответственно, абсолютного значения потока тепловых нейтронов и его пространственного распределения. Выход же НК-3 определялся активацией медных фольг по реакции  $^{63}\text{Cu}(n, 2n)^{62}\text{Cu}$  с регистрацией аннигиляционного  $\gamma$ -кванта /  $E_\gamma = 0,511 \text{ МэВ}$ ,  $T_{1/2} = 10 \text{ мин}$ /. Процедура

измерений выхода НК-3 выполнялась в полном соответствии с Техасским соглашением (Texas Convention). Коррекция энергетической чувствительности счетчика Мак-Таггарта была проведена путем измерения его эффективного центра по отношению к нейтронам с энергией 14 МэВ и к нейтронам со спектром Pu-Be источника. Измерения показали, что выход УГН-1 составлял  $2,0 \pm 0,6 \cdot 10^6 \text{ н/с}$ . Содержание влаги в песке, выбранном в качестве исследуемой среды, изменялось путем добавления дозированных порций воды, и контролировалось просушкой пробы /при  $+120^\circ \text{C}$ / и взвешиванием. Установка, в которой песок облучался нейтронами, представляла собой железный ящик в форме прямоугольного параллелепипеда с размерами  $37 \times 30 \times 26 \text{ см}^3$ , соответствующего  $N^2 = 0,025 \text{ см}^{-2}$  для сухого песка, без учета кристаллизационной воды/. Защита установки от рассеянных нейтронов состояла из двух слоев: листового кадмия толщиной 0,5 мм и парафина толщиной 5 см. В середине одной из сторон /в кадмии/ был сделан вырез - в этом месте помещался детектор тепловых нейтронов - 3 параллельных пропорциональных гелиевых счетчика СНМ-18. При каждом новом значении содержания влаги установка облучалась быстрыми нейтронами в течение 5-6 мин. Результаты записывались с интервалом в минуту. Кривые распада нейтронной плотности после корректирования на фон аппроксимировались экспоненциальной функцией  $\exp(-\lambda t)$  с помощью метода наименьших квадратов на мини-ЭВМ ТРА-70. Полученные таким образом декременты затухания  $\lambda$ , в зависимости от содержания воды, представлены на рис. 2, где приведены также кривые зависимости счета в каналах от  $\rho$ , взятого по отношению к счету в интегральном канале, используемом как монитор.

На рисунке видно, что эти параметры с ростом  $\rho$  увеличиваются, причем ход кривых неплохо согласуется с расчетными. При увеличении задержки зависимость счета в канале анализатора от  $\rho$ , как и ожидалось, становилась более сильной. Так, при  $t_3 = 150 \text{ мкс}$ , счет увеличивался лишь на 6-7% /при увеличении влажности на 1%/, в то время как при  $t_3 = 450 \text{ мкс}$  - на ~25% при том же увеличении влажности. Изменение в  $\lambda$  составляло ~ 5,4% на 1% влажности. Следует заметить, что при  $t_3 = 750 \text{ мкс}$  и  $t_3 = 1050 \text{ мкс}$  зависимость счета от  $\rho$  при малых ее значениях не так сильна, как можно

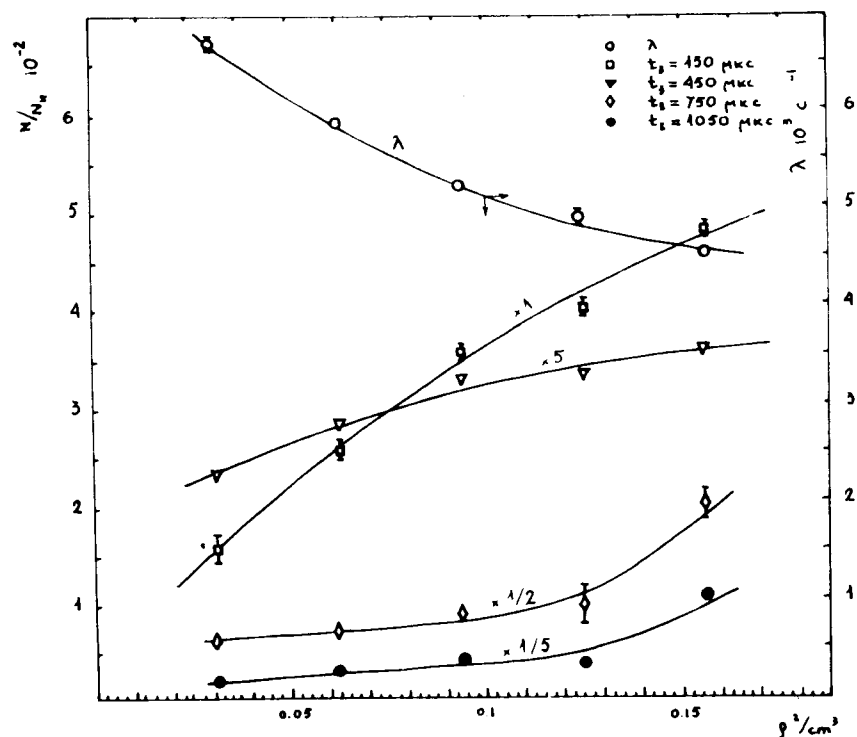


Рис. 2. Экспериментальные зависимости декремента затухания  $\lambda$  и счета в каналах временного анализатора /взятого по отношению к счету в интегральном канале/ от содержания влаги  $\rho$ .

было бы ожидать. Это объясняется трудностью учета малой полезной информации при сравнительно большом фоне.

Для сравнения укажем, что нейтронный влагомер, разработанный в нашей лаборатории на основе Pu-Be источника с выходом  $1 \cdot 10^6$  н/с, дает изменение счета 3,5% на 1% изменения влажности песка. Оценка чувствительности импульсного варианта по критерию  $3\sigma/\Delta N$ , /где  $\sigma$  - стандартная ошибка,  $\Delta N$  - изменение счета на 1% влажности/ показывает, что приведенная схема эксперимента дает максимальную чувствительность /для  $t_3 = 450$  мкс/, почти на порядок лучшую, чем чувствительность упомянутого выше влагомера.

Полученные результаты указывают на возможность применения импульсного нейтронного источника для определения со-

держания водорода в ограниченных средах по изложенной выше методике. Область наибольшей чувствительности метода лежит в районе малых концентраций водорода. При приблизительно равной интенсивности источников нейтронов импульсный вариант обеспечивает лучшую чувствительность по сравнению с обычно применяемым методом, основанном на замедлении быстрых нейтронов от изотопных источников.

Авторы выражают признательность И.Зваре за ценные замечания, а также Као Зунгу за расчет на ТРА-70.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Антонов А.В. и др. В кн.: Нейтронная физика. Материалы 3-й Всесоюзной конференции по нейтронной физике. Киев, 9-13 июня, 1975 г. ЦНИИАтоминформ, М., 1976, ч.6, с.333.
2. Nelkin M. J. Nucl. Energy, 1958, 8, p.48.
3. Физические основы импульсных нейтронных методов исследования скважин. "Недра", М., 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел  
8 февраля 1979 года.