Agenzia nazionale per le nuove tecnologie, l'energia
e lo sviluppo economico sostenibile

Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Misure assolute di emissione neutronica mediante bagno di solfato di manganese - rapporto sulle attività teorico-sperimentali in ENEA

F. Pisacane, S. Loreti, M. Amendola

RdS/2012/150

MISURE ASSOLUTE DI EMISSIONE NEUTRONICA MEDIANTE BAGNO DI SOLFATO DI MANGANESE - RAPPORTO SULLE ATTIVITÀ TEORICO-SPERIMENTALI IN ENEA

F. Pisacane, S. Loreti ENEA

M. Amendola Tesista UNIROMA1 Presso ENEA

Settembre 2012

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Area: Governo, Gestione e Sviluppo**,** del Sistema Elettrico Nazionale

Progetto: Nuovo Nucleare da Fissione: Collaborazioni Internazionali e sviluppo Competenze in Materia Nucleare

Responsabile del Progetto: Massimo Sepielli,ENEA

Titolo

Misure assolute di emissione neutronica mediante bagno di solfato di manganese: rapporto sulle attività teorico-sperimentali in ENEA.

Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto Tecnico

Collocazione contrattuale: ACCORDO DI PROGRAMMA Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico PIANO ANNUALE DI REALIZZAZIONE 2011 Progetto 1.3.1: Energia nucleare: NUOVO NUCLEARE DA FISSIONE: COLLABORAZIONI INTERNAZIONALI E SVILUPPO COMPETENZE IN MATERIA NUCLEARE, PAR 2011.

Argomenti trattati: misure delle radiazioni ionizzanti, metodi Montecarlo

Sommario

Tra le attività della Metrologia, assume importanza basilare quella della definizione degli standards primari o campioni a cui riferire tutta la catena di misure e valutazioni. Nel campo della neutronica, recentemente sono state effettuate misure assolute dei ratei di emissione di sorgenti neutroniche quali ^{241}Am-Be e ^{252}Cf. Tali misure sono normalmente effettuate tramite il metodo del Bagno in Solfato di Manganese ($MnSO_4$), che attualmente è il metodo principale per la determinazione assoluta dei ratei di emissione di sorgenti neutroniche. L'efficienza del sistema è legata alla precisione nella determinazione dell'attività della sorgente di ^{56}Mn diluita, come detto, nel Bagno. L'Enea possiede, nel Centro della Casaccia, tale dispositivo; ma il suo utilizzo come standard primario presuppone una definizione precisa delle sue caratteristiche radiochimiche e degli opportuni fattori correttivi (fattore di fuga neutronica, assorbimento dei neutroni veloci, autoassorbimento neutronico). A tal scopo è stata effettuat una prima fase delle seguenti attività: a) determinazione dell'attività del Manganese (mediante l'utilizzo del reattore sperimentale TRIGA presente in Casaccia), b) stima dei fattori di correzione (mediante l'utilizzo del dispositivo presente nei laboratori dell'Unità METR dell'Enea), infine c) simulazioni Montecarlo per interpretare i dati sperimentali.

Note

Autori: F. Pisacane, S. Loreti, M. Amendola*

* Tesista Uniroma1 presso ENEA

Copia n. **In carico a:**

REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE
2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	25.9.2012	NOME	Fabrizio Pisacane	Massimo Sepielli	Massimo Sepielli
			FIRMA	Fabrizio Pisacane		

Indice

Introduzione ……..…… 3
Descrizione del dispositivo “Standard Neutronico” …… 4
Attività Sperimentali …… 7
Modello di simulazione e primi risultati ……..… 9
Conclusioni ……. 13

INTRODUZIONE

La misurazione assoluta dei ratei di emissione delle sorgenti neutroniche viene effettuata della cosidetta tecnica del bagno di solfato di manganese ($MnSO_4$). In tale tecnica, la quantità misurata è l'emissione totale in 4π sr. I neutroni della sorgente, dopo aver perso energia fino alla soglia della frazione di eV (termalizzati), vengono catturati dal manganese della soluzione producendo l'isotopo ^{56}Mn che tramite la

$$^{55}Mn + n \rightarrow {}^{56}Mn \rightarrow {}^{56}Fe + \gamma + \beta^-$$

produce un γ che può essere facilmente rivelato, producendo così una misura indiretta dell'emissione neutronica della sorgente. Non tutti i neutroni emessi sono termalizzati e catturati dal manganese. Essi possono essere catturati dagli altri elementi della soluzione (O, S ed H) oppure sfuggire dal sistema di misura. L'entità delle catture e delle fughe deve quindi essere determinata tramite un calcolo od una misura appropriata. La stima di questi ultimi fattori consente di definire gli opportuni *coefficienti correttivi o di calibrazione* necessari ad una efficace misura assoluta.
I codici probabilistici di trasporto, quale il codice Montecarlo MCNP dei Los Alamos National Laboratories, sono strumenti raffinati per analisi delle fenomenologie caratteristiche di tali classi di problemi. L'utilizzo di tali strumenti per la modellazione e la simulazione del sistema fornisce un prezioso aiuto interpretativo al "tuning" dell'intero processo di misura e, non ultimo, per la messa a punto di nuove strategie operative.

DESCRIZIONE DEL DISPOSITIVO "STANDARD NEUTRONICO"

Il campione primario a bagno di solfato di manganese operante presso l'INMRI si basa sulla misura dell'attività della soluzione prodotta dal decadimento beta gamma del ^{56}Mn secondo la reazione

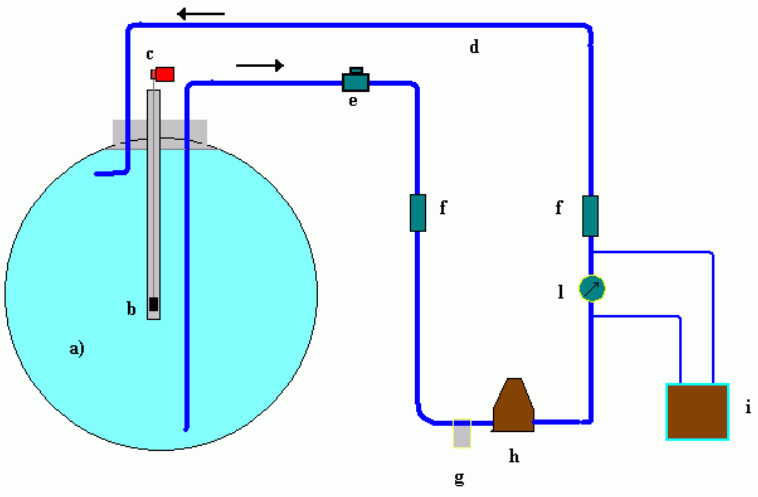
$$^{56}Mn \rightarrow {}^{56}Fe + \beta + \gamma$$

Il tempo di dimezzamento del ^{56}Mn è di 2,578 h. Il ^{56}Mn è il prodotto della reazione

$$^{55}Mn + n \rightarrow {}^{56}Mn$$

dovuta ai neutroni emessi dalla sorgente da tarare.

L'apparato è costituito da una sfera di acciaio con diametro di un metro riempita con una soluzione a titolo noto di $MnSO_4$, tipicamente 25% in peso.(fig. 1).

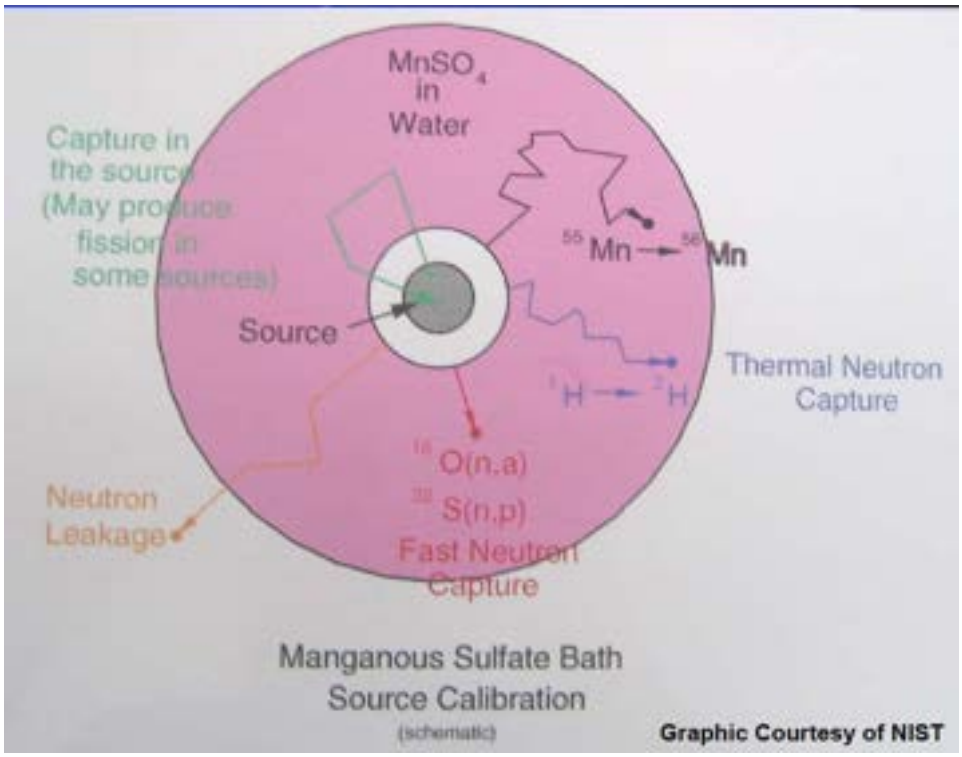


a) soluzione di Solfato di manganese
b) Sorgente di neutroni contenuta in un tubo di acciaio sigillato in fondo
c) motore a controllo remoto per la movimentazione della sorgente
d) tubi da 3/4"
e) elettrovalvola normalmente chiusa
f) coppia di flussimetri per il controllo del flusso differenziale (controllo perdite)
g) filtro
h) pompa di ricircolo da 1000 l/h
i) Becker di Marinelli e pozzetto gamma
l) rubinetto per regolazione flusso bypass

La soluzione è tenuta sotto agitazione da una pompa che fa circolare il liquido all'interno di un circuito chiuso ove è allocato un rivelatore γ NaI a scintillazione.
All'inizio della procedura si introduce la sorgente di neutroni al centro del contenitore sferico, i neutroni vengono moderati dall'acqua e in parte assorbiti dal ^{55}Mn presente nella soluzione. L'attività del bagno viene monitorata in tempo reale e dopo un tempo sufficientemente lungo, circa 12 ore, raggiunge asintoticamente l'equilibrio con la sorgente introdotta. A questo punto l'attività del bagno viene misurata con accuratezza mediante il rivelatore γ a scintillazione precedentemente calibrato misurando l'attività del bagno dopo l'introduzione di un quantitativo noto di ^{56}Mn precedentemente prodotto tramite attivazione neutronica utilizzando uno dei canali di neutroni termici disponibili al reattore TRIGA del CR Casaccia.

Come illustrato nella seguente figura 2 i neutroni emessi dalla sorgente possono interagire con gli elementi presenti nel sistema secondo diverse reazioni nucleari. Le principali sono:

- La cattura di neutroni termici da parte del ^{55}Mn con la successiva formazione del ^{56}Mn.
- La cattura di neutroni termici da parte dell' H.
- La cattura di neutroni veloci da parte del ^{16}O e del ^{32}S.
- Autoassorbimento dei neutroni da parte della sorgente.
- Fuga dei neutroni dal sistema.



La relazione che intercorre fra l'intensità di emissione q_n della sorgente e l'attività a saturazione $\boldsymbol{A}_{Mn}$ del ^{56}Mn è la seguente:

$$q_n = \frac{\boldsymbol{A}_{Mn}}{\boldsymbol{F}\,(1-\boldsymbol{C}_a)(1-\boldsymbol{C}_e)(1-\boldsymbol{C}_c)}$$

dove Ca, Ce, e Cc sono rispettivamente: il coefficiente per autoassorbimento nella sorgente dei neutroni termici, fuga di parte dei neutroni dal bagno e l'assorbimento di neutroni veloci da parte della soluzione. Il fattore F rappresenta la frazione di neutroni termici assorbita dal manganese che deve essere calcolata teoricamente per le specifiche condizioni sperimentali adottate. Nel caso in esame:

$$\boldsymbol{n}_{Mn}\,\boldsymbol{\sigma}_{Mn}$$

$$F = \frac{}{n_{Mn}\,\sigma_{Mn} + n_S\,\sigma_S + n_H\,\sigma_H}$$

dove sono considerati i tre possibili canali di reazione fra neutroni e H, S e Mn; n è il numero di nuclei per unità di volume e σ la sezione di cattura del nucleo in esame.
La sezione d'urto del Mn deve essere corretta per un fattore moltiplicativo (1+a) a causa di un assorbimento "risonante" a 337 eV. Si può trascurare la presenza dell'ossigeno in quanto la sua sezione d'urto per i neutroni è molto più piccola rispetto a quella degli altri elementi presenti.
Le sezioni di cattura tipiche sono :

- σ_{Mn} = 13.2 barn;
- σ_H = 0.33 barn;
- σ_S = 0.52 barn.

Nella figura 3 è riportata la fotografia dell'attuale dell'attuale campione primario per il rateo di emissione di neutroni presente nei laboratori della Casaccia.



Fig. 3

ATTIVITÀ SPERIMENTALI

Allo scopo di calibrare il rivelatore a scintillazione presente nel bagno al MnSO4 si è preparato una serie di campioni solidi in polvere dal peso di circa 7 mg l'uno

contenuti in fiale di PVC sigillati. Le fiale sono state successivamente irraggiate singolarmente per trenta secondi nel flusso termico di neutroni prodotto dal reattore TRIGA utilizzando degli slot temporali appositamente riservati per questa attività. L'attività del ^{56}Mn così ottenuto era dell'ordine dei 6 MBq sufficiente per essere utilizzato nelle successive attività di misura.
Una volta introdotti i campioni in appositi pozzetti di piombo (fig. 4)




con l'assistenza degli addetti alla radioprotezione e verificata la bassa attività esterna ai pozzatti di protezione, i campioni sono stati trasferiti nel laboratorio di radiochimica dell'unità METR (fig. 5) per le successive preparazioni.
Uno dei campioni è stato portato in soluzione acquosa ottenendo una soluzione di ^{56}Mn omogenea. Da questa soluzione sono stati preparati un campione di peso noto è stato quindi portato nel laboratorio di emissioni γ per determinarne la concentrazione di attività mediante misura in camera a ionizzazione. L'altro campione è stato utilizzato per determinarne la purezza mediante spettroscopia γ.
La parte rimanente del campione è stata quindi versata in una fiala e dopo averne determinato il peso trasportata nel laboratorio di Metrologia Neutronica.
Si è proceduto quindi a versare il contenuto nel bagno al $MnSO_4$ mantenuto in agitazione e dopo ulteriore pesata della fiala vuota si è determinato precisamente il peso della soluzione introdotta nel bagno. A questo punto si è cominciato ad acquisire la misura γ dallo scintillatore NaI osservando nei primi istanti la crescita di attività conseguente al mescolamento della soluzione attiva e susseguentemente il calo di attività dovuto al decadimento del ^{56}Mn.
Le misure sono state acquisite tramite un digitizer a 250MHz che eleborando in modo digitale i segnali provenienti dal rivelatore ha permesso di registrare i singoli impulsi in tempo ed ampiezza consentendo di elaborare in un secondo momento i dati così ottenuti.

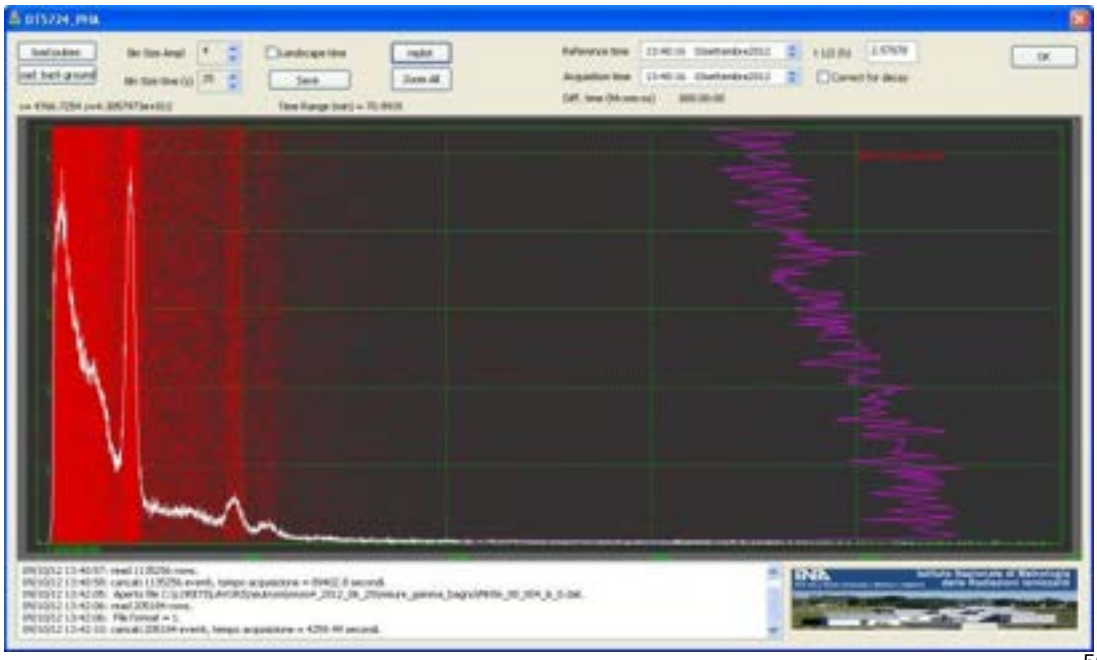


Fig. 6 spettro γ (linea bianca) ottenuto dopo l'inoculazione della soluzione di ^{56}Mn.

Conoscendo quindi il peso della soluzione attiva introdotta nel bagno e la sua densità di attività misurata nel laboratorio γ è possibile quindi calcolare la costante di proporsionalità che ci consente di mettere in relazione l'attività assoluta presente nel bagno e le misure effettuate tramite lo scintillatore NaI presente nel nostro sistema.

La conoscenza di questa costante rende possibile la misura dell'attività del ^{56}Mn generato da una sorgente di neutroni immersa nella soluzione di cui si vuole determinare il rateo di emissione.

MODELLO DI SIMULAZIONE E PRIMI RISULTATI

Contestualmente alle attività sperimentali si è proceduto alla definizione del modello del sistema ed alle successive simulazioni.
Per tale attività si è scelto di usare un codice nucleare di trasporto Montecarlo, quindi di tipo probabilistico, tra i più usati in ambito nucleare: il Monte Carlo N-Particles, o MCNP, è un codice sviluppato dai laboratori americani LANL (Los Alamos Nuclear Laboratories) ormai da svariate decine di anni ma costantemente aggiornato e perfezionato. Il codice, nella doppia versione MCNP (MonteCarlo N-Particle) ed MCNPX, è stato sviluppato per affrontare ed analizzare problemi (anche di tipo accoppiato) di trasporto di neutroni, fotoni ed elettroni. Le interazioni sono descritte mediante sezioni d'urto (valutate) in formato tabellare. I neutroni sono trattati sia con approccio free-gas, sia con S(α,β). La fenomenologia dei fotoni tiene in conto scattering coerente ed incoerente, emissione fluorescente dopo assorbimento fotoelettrico, assorbimenti in produzione di coppie. Per gli elettroni è prevista la deflessione angolare per interazione coulombiana e la produzione di particelle secondarie (K x-rays, Knock-on, Auger). Per un numero limitato isotopi è disponibile la fisica fotonucleare.
Per il modello si è perseguito un approccio di tipo incrementale: da una prima versione con sorgente neutronica puntiforme posta al centro del sistema, si è passati ad una sorgente cilindrica sempre al centro del sistema entrambe del tipo Am-Be. Tale sorgente produce neutroni grazie alla emissione spontanea di particelle α dell'americio e, successivamente, tramite la reazione (α,n) dal berillio. Lo spettro energetico, riportato nella successiva figura 7, è aderente allo standard ISO 8529.

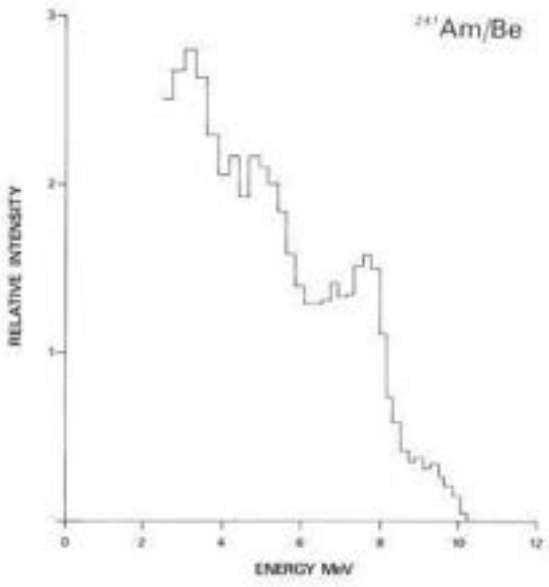


Fig. 7 : spettro di emissione della sorgente Am-Be

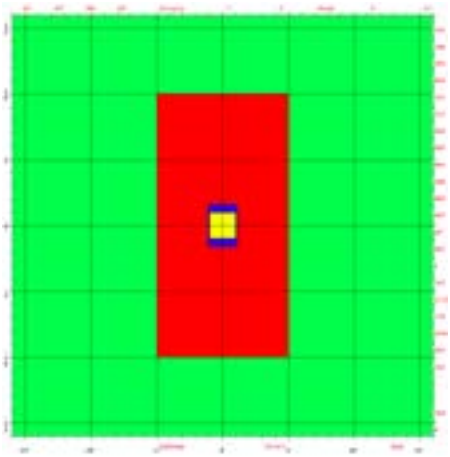


Figura 8 : modello della sorgente Am-Be

Come illustrato nella figura 8, la sorgente (in giallo) è immersa in acciaio AISI 306 L (sezione blu) ed incapsulata in un contenitore di Teflon (colore rosso), tutto in geometria cilindrica.
Il modello del bagno consiste in una sfera cava di acciaio dello spessore di 5 mm con diametro di 100 cm ed all'interno la soluzione $MnSO_4$ (figura 9).

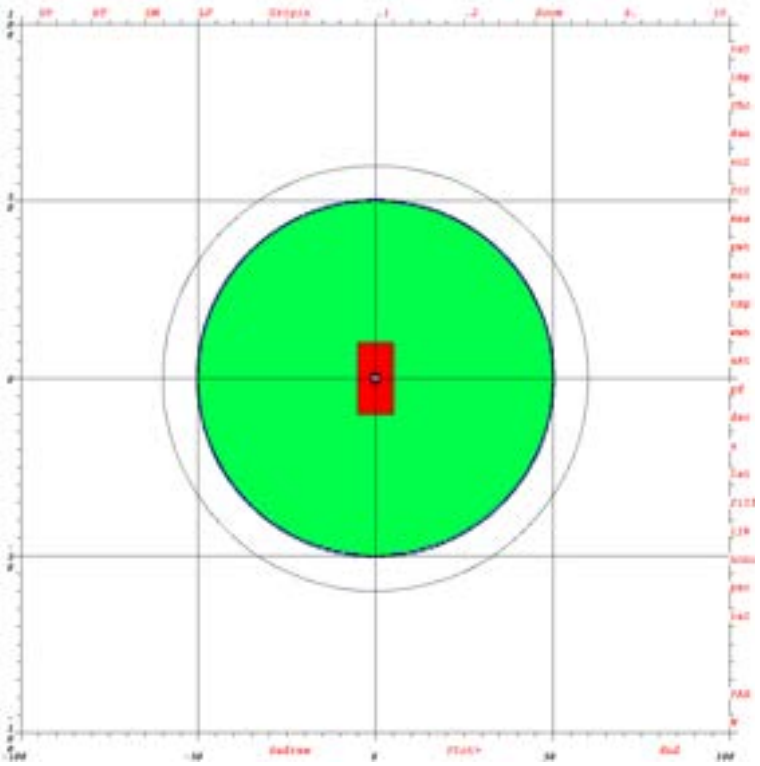


Figura 9 : modello totale del sistema.

Le principali caratteristiche fisiche del sistema sono le seguenti :

1. densità acciaio 306L: 7.958 g/cm^3
2. densità soluzione acquosa $MnSO_4$: 1.15 g/cm^3
3. densità teflon: 2.15 g/cm^3
4. densità sorgente: 2.58 g/cm^3
5. concentrazione $MnSO_4$ in acqua: 1.15 moli/l

Sono stati effettuati calcoli con statistiche da 1 milione di passi montecarlo (storie) ottenendo bassissimi errori finali intorno allo 0.05%.
Dalle prime simulazioni sono stati ottenuti dei risultati preliminari che indicano una buona aderenza del modello con il dispositivo sperimentale. In particolare sono stati calcolati gli andamenti del flusso neutronico all'interno della soluzione acquosa $MnSO_4$ (figura 10)

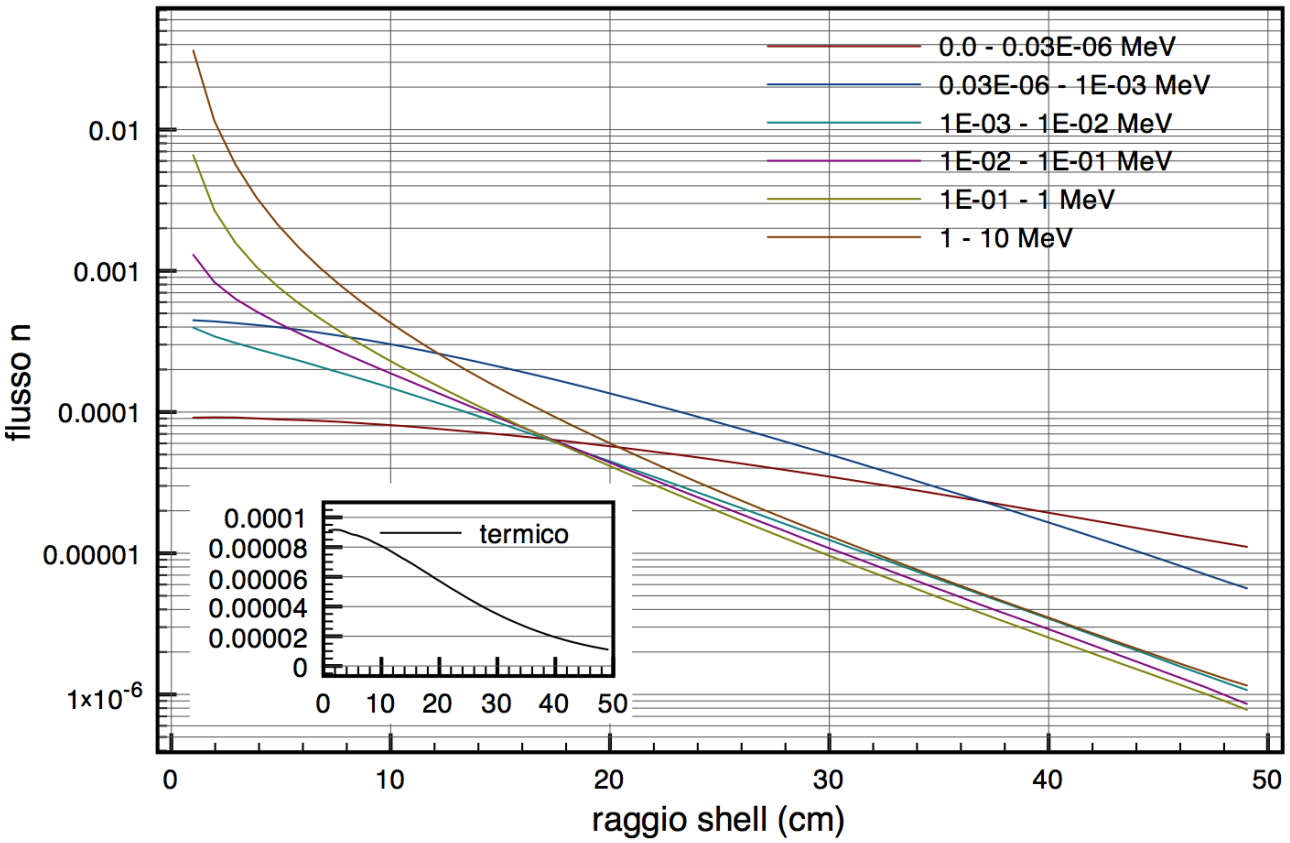


Figura 10 : andamenti di flusso neutronico all'interno della sfera per intervallo energetico.

E' stata inoltre stimata la cattura neutronica da parte del manganese (fig. 11); poiché tale cattura avviene nel regime termico, si nota come ciò avvenga giaà nei primi centimetri di distanza dalla sorgente, in coincidenza del massimo della distribuzione. Ciò conferma il dato ben noto della termalizzazione dei neutroni in acqua che avviene appunto in qualche centimetro.

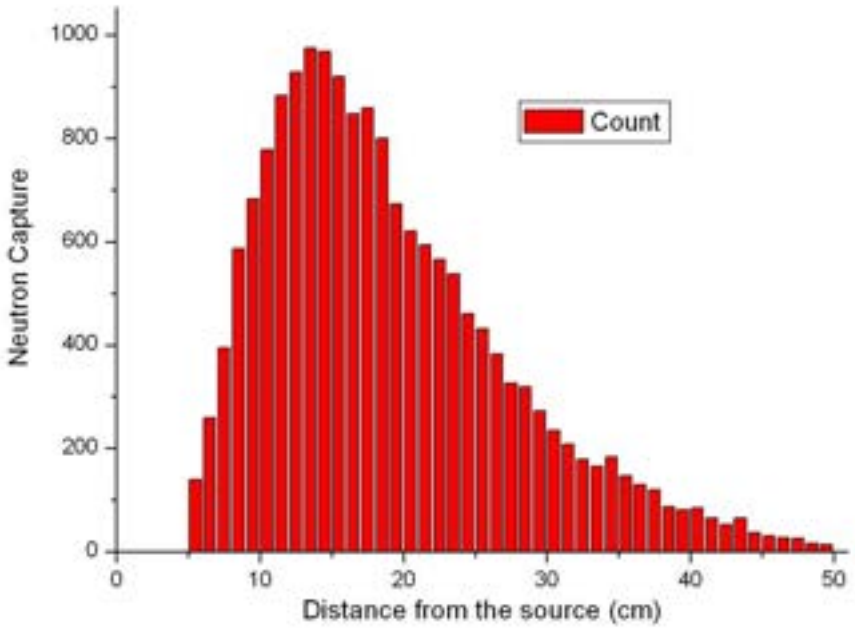


Figura 11: Cattura neutronica nella soluzione di manganese.

E' stato effettuato inoltre un calcolo di variazione, lungo l'asse Z, di sorgente. I risultati (vedi fig. 12) evidenziano una forte variazione della fattore di fuga, una sostanziale costanza (intorno al punto percentuale) della cattura nello zolfo e nell'ossigeno ed una diminuzione nel manganese e nell'idrogeno per la sorgente posta in estrema periferia.

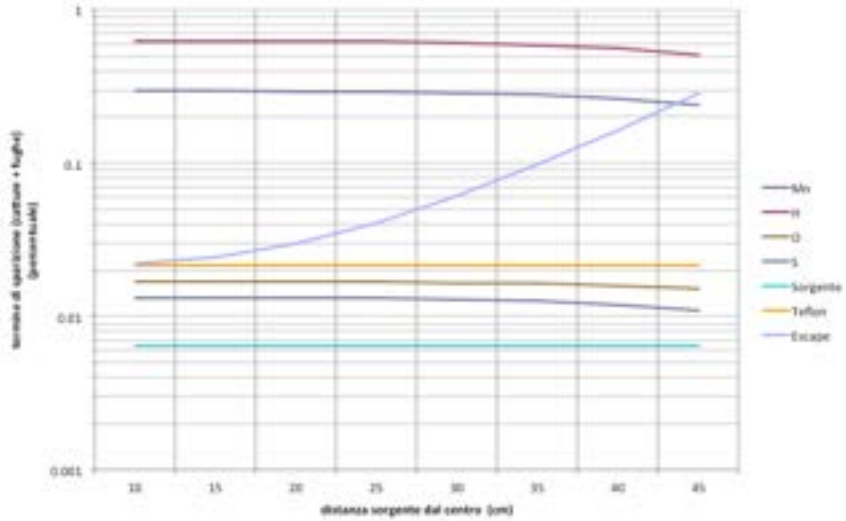


Figura 12: cattura e fuga in funzione della variazione assiale della sorgente

CONCLUSIONI

I primi risultati e le prime analisi indicano la coerenza interna del modello adottato e la sua buona aderenza ai risultati sperimentali. Tali risultati sono da considerarsi preliminari negli aspetti più propriamente fisici e fenomenologici. Approfondimenti verranno effettuati sui rispettivi tassi di cattura dei vari elementi presenti nel sistema. Verrà inoltre condotto uno studio di sensibilità al variare di alcuni parametri del sistema (concentrazione del manganese, posizione della sorgente). Una parte importante sarà dedicata all'analisi di alcuni aspetti dinamici, quale l'estrazione della sorgente, con lo scopo di valutare l'acquisizione di nuove informazioni a partire da differenti possibilità operative.