

# 用 Ge(Li) 探测器测量低浓铀 重水栅格的相对转化比

夏 翊 陈金章

本文叙述了用 Ge(Li) 探测器测量铀-239 特征  $\gamma$  能量峰及铀-235 裂变产物特征  $\gamma$  能量峰的方法, 从而得到相对转化比。对重水零功率堆特定栅格条件测量结果, 相对误差  $\pm 1\%$  至  $\pm 2\%$ 。对厚度为 2 mm 的金属铀探测片的  $\gamma$  自屏修正问题, 作者采用了一种简化处理方法, 结果与溶液源所测结果在实验误差范围内符合。

(关键词 Ge(Li) 探测器、栅格、相对转化比、裂变产物特征  $\gamma$  能量峰、铀-238 辐射俘获率)

## 一、引 言

在反应堆静态参数测量工作中, 相对初始转化比  $r_0$  是一个重要的物理参数。为简单起见, 也可以测量相对转化比(以 RCR 表示), 其定义为:

$$RCR = \frac{^{238}\text{U} \text{ 辐射俘获率}}{^{235}\text{U} \text{ 裂变率}} \Big|_{\text{栅格}} / \frac{^{238}\text{U} \text{ 辐射俘获率}}{^{235}\text{U} \text{ 裂变率}} \Big|_{\text{热柱}}$$

不论是测量  $r_0$  或者是测量 RCR, 都要测量铀-238 辐射俘获率, 六十年代发展了  $\gamma$ - $\gamma$  符合技术<sup>[1-2]</sup>, 放化分离技术<sup>[3-4]</sup>, 可以将这一参数测量得很准, 但这些方法本身尚存在一些问题。

用 Ge(Li) 探测器测量元素的  $\gamma$  活性, 快速简单, 精度高, 不受探测样品尺寸及含铀-235 浓度的影响, 没有名目繁多的修正, 也无需麻烦的放化分离工作。另外它还可以和计算机相接做在线处理, 从而实现自动化(在有些多道分析器中设有固定解谱程序, 可直接给出结果)。由于这些原因, 七十年代不少人都采用这一方法进行物理、化学等多方面的测量工作<sup>[5-8]</sup>。

## 二、测 量 原 理

Ge(Li) 探测器的突出特点是它具有很高的能量分辨率。与碘化钠晶体相比, 其能量分辨率可提高一个数量级<sup>[9]</sup>。这样就可以很容易地将我们所感兴趣的表征某些活化元素的  $\gamma$  峰从一个复杂的  $\gamma$  谱图中分辨开来。我们曾用含铀-235 为 20 ppm 的高贫化铀样品及铀-235 浓缩度为 95% 的高浓金属铀样品分别在待研究栅格及反应堆热柱上进行照射, 然后在 Ge(Li) 探测器上测量。其结果见图 1 及图 2。

可以认为, 图 1 中的  $\gamma$  谱主要是由  $^{238}\text{U}$  俘获一个中子以后, 由所产生的  $^{239}\text{Np}$  衰变的不同能量  $\gamma$  峰组成。而图 2 的  $\gamma$  谱, 除 185 keV 峰是由  $^{235}\text{U}$  自发蜕变所形成之外, 主要是由  $^{235}\text{U}$  裂变产物的不同能量的  $\gamma$  射线峰组成。由图 1 及图 2 可以发现  $^{239}\text{Np}$  有一个  $E_\gamma$

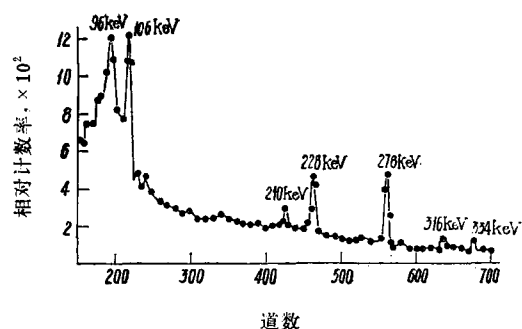


图 1  $^{233}\text{U}$  活化  $\gamma$  谱图  
高贫铀, 冷却时间 16 小时。

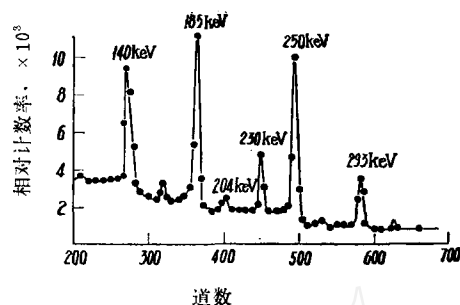


图 2  $^{235}\text{U}$  活化  $\gamma$  谱图  
高浓铀, 冷却时间 34 小时。

= 278 keV 的峰, 裂变产物  $^{143}\text{Ce}$  有一个  $E_{\gamma} = 293$  keV 的峰。若将此两峰面积之比作为我们所需要的  $^{238}\text{U}$  辐射俘获率与  $^{235}\text{U}$  裂变率之比, 将有较多的优点。例如, 由于这两个  $\gamma$  峰能量相近, 故  $\gamma$  自屏效应相近; 又如其能量较高, 探测器对这两个能量  $\gamma$  射线有相近的探测效率等等。可见采用这两个具有代表性的  $\gamma$  峰值并进行处理, 就可以减少修正量, 提高测量精度。

实验时, 将两片与待测栅格的元件成分相同的探测片分别放到待研究栅格及热柱进行照射, 然后在 Ge(Li) 探测器上测量  $\gamma$  谱, 选取  $E_{\gamma} = 278$  keV 及 293 keV 的两个峰进行处理, 即可得到 RCR。使用常规仪器测量时所需要进行的各项修正, 如质量归一修正、仪器分辨率、死时间修正等在本测量中可不予考虑。

### 三、在 101-2 重水零功率堆栅格上的测量

**1. 测量仪器** 采用体积为  $70\text{ cm}^3$ , 直径  $\phi = 40$  mm 的同轴 Ge(Li) 探测器, 用多道分析器记录。仪器内部可对分辨时间自动进行修正。在 200 至 300 keV 处, 能量分辨率为 1—2%。在每次测量之前皆用  $^{75}\text{Se}$  放射源对仪器进行线性刻度。

**2. 栅格照射** 元件结构见图 3。左边为铝制节流塞及星形架, 右边为燃料元件 (已加工铣出四个缺口)。其具体数据如下:

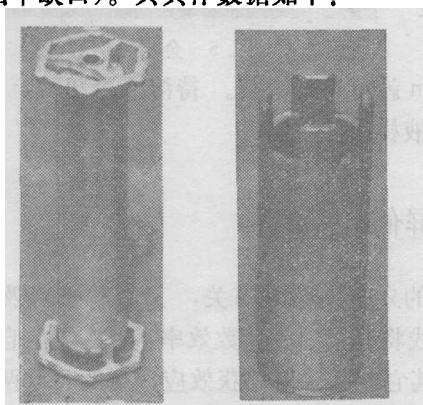


图 3 元件外观

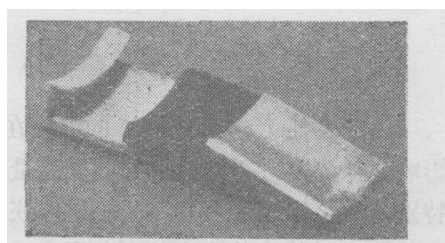


图 4 探测片结构

燃料: 金属铀;  $^{235}\text{U}$  浓缩度: 3%; 燃料尺寸: 外径 = 35 mm, 内径 = 31 mm; 包壳

层材料：铝；包壳层厚度：1 mm。

由图 3 右边可见，元件顶部铣出四个尺寸为 14 mm × 14 mm 的缺口，用以安放探测片。

图 4 为探测片及其包壳的结构，照片中白色物即为铝包壳，黑色物即为金属铀探测片，其成分与元件相同，尺寸为 14 × 14 × 2 mm。安装时需先将该铀片放入可拆开的铝包壳片中，然后将四片如此装好的探测片镶入图 3 所示的元件缺口中。为防止沾污，对探测片及元件缺口处都喷镀一层厚约数微米的铝膜。为防止重水进入缺口，在探测片外围包上玻璃胶纸及橡皮膏布。装配完毕，将节流塞装入元件中，即可放至待研究栅格进行照射。照射条件为：中子通量约  $1 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ，照射时间为 2 h。为避免短半衰期裂变产物的影响，冷却时间选为 48 h。

探测片取出后放到聚乙烯小盒中，直接放到 Ge(Li) 探测器探头上部进行测量。每片总共测量 20~30 min。

**3. 热柱照射** 将尺寸为 14 × 14 × 2 mm 的金属铀片放入铝制密封罐，然后将此罐放到游泳池式反应堆热柱孔道进行照射。该处铀的钆比约为 1500 左右。热柱照射通量与栅格照射通量相近。照射时间为 2 h。

我们在热柱上的照射只进行了一次，不同栅格照射结果皆与该次结果相比。

**4. 溶液样品的制备** 由于溶液样品的测量结果可以真实反映实际情况，为与片状探测片所得结果进行比较，我们将在栅距为 9.2 cm 的典型位置上照射后的金属铀片进行了溶解处理，制成了体积为  $\phi 70 \times 7 \text{ mm}$  的溶液样品。溶解液为 5 N HCl 与 1 N HNO<sub>3</sub> 混合液共 30~50ml。溶解温度控制在 100°C 至 120°C 的范围。溶解装置见图 5。图中底部为加热用电炉。有两套溶解用三颈瓶浸在甘油液中，可同时溶解两片铀探测片。上部为冷凝器，反应时产生的气体经氢氧化钠溶液及硝酸银溶液过滤后由抽气器抽走。

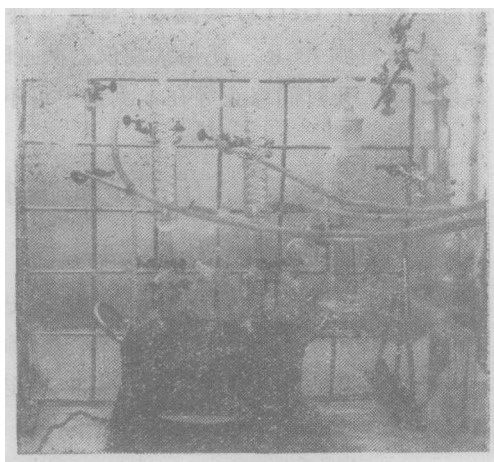


图 5 金属铀溶解装置

整个装置放在通风柜中。一般加热 20 min 就可全部溶解。待溶液冷却后，倒至内径为 70 mm 的有机玻璃盒中，加盖密封即成溶液样品。

## 四、 $\gamma$ 自屏修正问题

由于表征  $E_{\gamma} = 278 \text{ keV}$  的铀核在元件中的分布与位置有关，又由于  $\gamma$  自吸收效应的影响，探测器对不同地点的同样能量的  $\gamma$  射线将有不同的计数效率，这就是  $\gamma$  自屏效应。特别是由于铀核是由共振区辐射俘获效应与其它能区辐射俘获效应产生的，这两部分形成的铀核在元件中的分布并不相同。由反应堆基本理论可知<sup>[10]</sup>，一个自慢化剂进入铀块的中子，表面与内部对它的吸收情况不同，共振吸收效应主要发生在铀块表面，而其它能量（主要是热能区）中子造成的铀核则在铀块内部形成一个分布。另外，栅格照射条件可以认

为是一个各向同性中子场，而热柱照射条件为各向异性中子场，二者条件不同，这对于目前我们使用厚度为 2 mm 的金属铀探测片来说，必须进行相应修正。对于表征  $E_\gamma = 293 \text{ keV}$  的  $^{143}\text{Ce}$  核来说也不例外，我们统称为  $\gamma$  自屏修正。

根据相对转化比定义，有：

$$\text{RCR(理论值)} = \frac{{}^8R_l(V) + {}^8R_l(S)}{{}^5R_l(V)} \cdot \frac{{}^5R_l(V)}{{}^8R_l(V)} \quad (1)$$

$$= \frac{{}^8R_l(V){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} + \frac{{}^8R_l(S){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \quad (2)$$

式中， $R$  为反应率；下角标  $l$  为栅格、 $t$  为热柱； $V$  为对应体分布效应； $S$  为对应面分布效应；左上角标 8 为  $^{238}\text{U}$  辐射俘获情况、5 为  $^{235}\text{U}$  裂变情况。实验测量后有：

$$\text{RCR(实验值)} = \frac{{}^8A_l}{{}^5A_l} \cdot \frac{{}^5A_l}{{}^8A_l} = \frac{{}^8R_l(V){}^8\varepsilon_l(V) + {}^8R_l(S){}^8\varepsilon_l(S)}{{}^5R_l(V){}^5\varepsilon_l(V)} \cdot \frac{{}^5R_l(V){}^5\varepsilon_l(V)}{{}^8R_l(V){}^8\varepsilon_l(V)} \quad (3)$$

式中， $A$  为测量活性； $\varepsilon$  为考虑  $\gamma$  自屏修正后的相对计数效率。上式还可写为：

$$\begin{aligned} \text{RCR(实验值)} &= \frac{{}^8R_l(V){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \cdot \frac{{}^8\varepsilon_l(V){}^5\varepsilon_l(V)}{{}^5\varepsilon_l(V){}^8\varepsilon_l(V)} + \\ &+ \frac{{}^8R_l(S){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \cdot \frac{{}^8\varepsilon_l(S){}^5\varepsilon_l(V)}{{}^5\varepsilon_l(V){}^8\varepsilon_l(V)} \end{aligned} \quad (4)$$

由于表征  $^{239}\text{Np}$  的  $E_\gamma = 278 \text{ keV}$  与表征裂变核  $^{143}\text{Ce}$  的  $E_\gamma = 293 \text{ keV}$  两者能量相近，可以认为：

$$\frac{{}^8\varepsilon_l(V){}^5\varepsilon_l(V)}{{}^5\varepsilon_l(V){}^8\varepsilon_l(V)} = 1; \quad \frac{{}^5\varepsilon_l(V)}{{}^8\varepsilon_l(V)} = 1.$$

于是公式 (4) 可改写为：

$$\text{RCR(实验值)} = \frac{{}^8R_l(V) + {}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V) + {}^8R_l(V)} + \frac{{}^8R_l(S){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \cdot \frac{{}^8\varepsilon_l(S)}{{}^5\varepsilon_l(V)} \quad (5)$$

将 (2)、(5) 式联立得：

$$\text{RCR(理论值)} = \frac{{}^8R_l(V){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} + \left[ \text{RCR(实验值)} - \frac{{}^8R_l(V){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \right] \cdot \frac{{}^5\varepsilon_l(V)}{{}^8\varepsilon_l(S)} \quad (6)$$

整理后得到：

$$\text{RCR(理论值)} = \text{RCR(实验值)} \cdot \frac{{}^5\varepsilon_l(V)}{{}^8\varepsilon_l(S)} + \frac{{}^8R_l(V){}^5R_l(V)}{{}^5R_l(V){}^8R_l(V)} \cdot \left[ 1 - \frac{{}^5\varepsilon_l(V)}{{}^8\varepsilon_l(S)} \right] \quad (7)$$

${}^5\varepsilon_l(V)$  的计算方法如下：假设探测片可看成无限大平板，无外源情况，此时热中子在板内分布满足下列扩散方程<sup>[10]</sup>：

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} - K^2 \phi(x) = 0,$$

解为：

$$\phi(x) = A \text{ch } Kx.$$

但扩散方程得到的结果比较粗糙，实际上热中子在无限大平板内分布趋势还要急剧些。考虑迁移方程修正<sup>[12]</sup>后，则有

$$\phi(x) = A \text{ch } K'x.$$

经计算  $K' = 12$ 。产生的裂变产物特征核  $^{143}\text{Ce}$  就按此分布于铀片内。按[13]的数据，对于  $E_\gamma = 293 \text{ keV}$  的  $\gamma$  射线，可推算出其线性衰减系数为  $\mu = 9 \text{ cm}^{-1}$ 。

假设探测片上各点对探测器所张立体角  $\Omega$  相等，且等效的有效作用深度相同，我们

有如下修正公式：

$${}^5e_i(V) = \frac{1}{\Omega} \cdot \frac{\int_{\Omega} \int_{-0.1}^{0.1} \text{ch } K' x e^{-\frac{\mu x}{\cos \Omega}} dx d\Omega}{\int_{-0.1}^{0.1} \text{ch } K' x dx}$$

经数值积分可以求得  ${}^5e_i(V) = 0.479$ 。

在计算  ${}^8e_i(S)$  时，假设  ${}^{238}\text{U}$  共振辐射俘获皆产生于元件表面，经计算， ${}^8e_i(S) = 0.552$ 。

将这些值代入式(7)得：

$$\text{RCR}(\text{理论值}) = 0.868 \text{RCR}(\text{测量值}) + 0.15\% \quad (8)$$

### 五、数据处理与结果

我们对栅格距为 9.2 cm、燃料浓度为 3% 方案的典型元件位置的测量结果，用计算机与数值法分别进行了处理，结果见表 1。修正后的值与溶液样品测量值在 1.5% 以内符合。

表 1 实验数据处理结果

方 法	数 值 法 处 理			计 算 机 处 理		
	溶液样品	元 件 片 样 品		溶液样品	元 件 片 样 品	
		修正前	修正后		修正前	修正后
RCR 值	2.176 ±0.020	2.333 ±0.046	2.182	2.167 ±0.016	2.274 ±0.036	2.131

关于数值法处理数据，文献[14]介绍了 7 种方法，我们用前 5 种方法进行了处理。从结果看，以 Wasson-Sterlinski 法为最好，表 1 中所列值就是采用这种方法处理的结果。本底道数值的选取是在峰谷处选 5 道计数，取其平均值作为对应最靠近峰谷道的计数率值。在一个峰的左右两边的本底一般不在同一水平，将两边本底做直线就可求出中心各道所对应的本底。

由表 1 可见，计算机处理结果较数值法为好，相对误差稍有下降，国外对此也有所探讨，特别是作为重叠峰的解谱，计算机有突出的优越性。但对于孤立峰，且构成峰的各道计数率较高，不做光滑处理亦不会引起很大误差，又由于处理手续简单，不需要复杂设备，所以数值法仍不失为一种有效的处理手段。

我们曾计算能量为 300 keV 的  $\gamma$  射线穿过溶液样品的情况，由于其线性衰减系数很小，又由于溶液样品呈体均匀分布，有相同的几何修正因子及  $\gamma$  自屏因子，在公式(6)中，相对计数效率这一项可以消去，这样可以认为厚度约为 7 mm 的溶液样品所得的结果就是所求的相对转化比的真值。为证明这一结论，我们将一个样品分成三种厚度进行测量，即  $\sim 2.4$  mm， $\sim 4.4$  mm， $\sim 7.2$  mm 三个厚度。由于没有准确测量溶液总厚度，只是在实验中分两次各移去 10 ml 溶液，反过来估计相应高度，所以上面讲到的厚度数值仅是一个估计。但由结果看，三种不同溶液高度所得结果在千分之一误差以内相符合，外推零溶液

厚度也是如此。这说明在 7 mm 左右厚度范围内, 测量结果与厚度无关, 厚度估计值的不准确也不影响结论的成立, 即溶液样品所得结果 RCR 值就是所求相对转化比的真值。

表 2 不同栅距 RCR 结果

栅 距	9.2cm	13cm	18.4cm
RCR (测量值)	$2.745 \pm 0.025$	$1.788 \pm 0.035$	$1.498 \pm 0.01$
RCR (修正值)	2.540	1.701	1.442

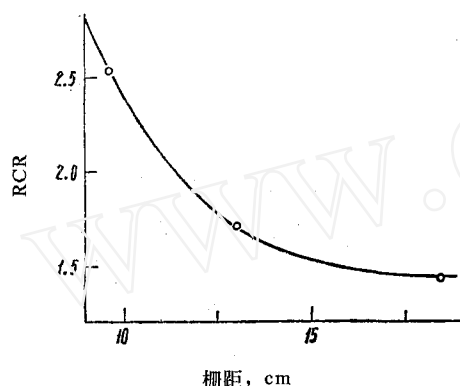


图 6 不同栅距的 RCR 结果  
样品在径向中心。

由于栅格照射与热柱照射停堆时间不同, 在数据处理时还需进行半衰期的修正。

另外, 我们还对 9.2 cm, 13 cm, 18.4 cm 三种不同栅距 (燃料浓缩度为 3%, 样品位于堆径向中心) 分别进行了实验测量, 结果见表 2 及图 6。

中子温度采用计算结果, 对前两种方案进行了中子温度修正。对最后一种方案, 因为中子温度已经很低, 没有进行这项修正。据初步估算, 引入的误差不超过实验误差。

在测量中发现有时仪器稳定度较差, 甚至发现过对前后同一样品, 整个谱计数率涨落达 35%, 这是误差偏大的主要原因。

## 六、结 束 语

本测量所使用的同轴 Ge(Li) 探测器, 能量响应范围很宽, 与平面 Ge(Li) 相比, 其峰-康比比较低 (甚至比后者低一半多), 为进一步提高低能范围测量精度, 采用平面 Ge(Li) 探测器将会更理想。在实验过程中, 有半数以上结果相对误差约为 0.7%, 所以将仪器调试可靠, 使相对误差减小到 1% 以下是完全可能的。

在本实验中, 赵品台、王振邦、张章百、孟宪华、杨秀敏等同志参加了部分运行工作。王德安同志进行了计算机的程序编排及计算工作。溶解金属铀装置的建立得到了廖言仲同志的帮助。

## 参 考 文 献

- [1] P. R. Tumnicliff, *Nucl. Sci. Eng.*, **15**, 258 (1963).
- [2] D. Canalini & P. F. Celchi, *Nucleonik*, **6**, 327 (1968).
- [3] KR-84 (1964).
- [4] KR-124 (1969).
- [5] BNWL-1637 (1972).
- [6] A. M. Bresesti, *J. Nucl. Energy*, **23**, 379 (1969).
- [7] Yoshiyuki Sekiguchi et al., *J. Nucl. Sci., Tech.*, **7**, 541 (1970).
- [8] A. J. Beynon et al., *J. Br. Nucl. Soc.*, **13**, 241 (1974).
- [9] UCRL-50156 (1967).

(下转第 462 页)

为 0.14 N (硝酸浓度约为 0.34 N), 加入闪烁液(含 TOPO 4.0 克/升) 中样品体积不超过 0.7 毫升时, 对  $^{241}\text{Am}$  的测定不带来显著干扰 (计数效率约为 99%)。实际上, 含有 TOPO 时, TOPO 将待测核素萃取入闪烁液, 而干扰离子大部份仍留在分相后的水溶液中, 这就是萃取液闪烁测定法的优点所在。

从以上无机盐的干扰实验中可看出, 水溶液样品的液闪法存在一些弱点, 一是样品中的一些可溶性无机盐、无机酸和水随待测核素一起溶入闪烁液, 增加了猝灭效应。由于样品的来源不同, 其化学成份各不相同, 所含的无机盐、无机酸及其他成份的量也各不相同, 致使计数体系的脉冲高度不稳定。猝灭严重时, 还会导致计数效率的不稳定。另外, 当这些无机盐和无机酸含量较高时, 样品不能与闪烁液完全相混溶 (分相或析出无机盐), 致使待测核素不能全部进入闪烁计数液, 影响测定结果。如采用有机溶剂萃取-液体闪烁法, 就能分离掉干扰及猝熄离子, 并将待测核素有选择性地定量萃入闪烁液。

#### 四、结 论

用国产 FJ-353G1 型双道液体闪烁计数器, 可以对单一的  $\alpha$  核素进行定量测定, 探测下限低于 20dpm (相应的  $^{233}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Am}$  的量分别为  $9.3 \times 10^{-10}$ 、 $1.5 \times 10^{-10}$  和  $2.6 \times 10^{-12}$  克)。如使用石英测量瓶和脉冲形状甄别技术降低本底计数, 测定灵敏度还会有很大提高。20dpm 的测定误差小于 10%,  $2 \times 10^3$ dpm 的测定误差小于 1%。

当无机离子含量较高时, 则需用有机溶剂萃取-液闪法。采用高分辨能力的单光电倍增管探头和高分辨能力的闪烁剂, 有可能同时鉴定、鉴别, 并定量测定数个  $\alpha$  核素。本方法适用于任何  $\alpha$  核素的测定。

雷金玲、陈毅东和王莉萍等同志参加了部分实验工作。本工作得到我所朱永贻教授的指导, 郭聚豪等同志的帮助, 在此一并致谢。

#### 参 考 文 献

- [1] D. L. Horrocks et al., *Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting*, Academic Press, New York and London, p. 879, 1971.
- [2] 生物物理所, *生物化学与生物物理进展*, 1, 68 (1979).
- [3] D. L. Horrocks et al., *Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting*, Academic Press, New York and London, p. 951, 1971.
- [4] D. L. Horrocks, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 17, 441 (1966).

(编辑部收到日期: 1980 年 9 月 8 日)

(上接第 479 页)

- [10] 格拉斯登、爱德仑著, *原子核反应堆理论纲要*, 科学出版社, 1958 年, 192 页.
- [11] AECL-1101 (1956).
- [12] DP-817 (1963).
- [13] ANL-5800 (1958), p. 653.
- [14] P. A. Baedeker, *Activation Analyses in Geochemistry and Cosmochemistry*, University for Laget, 1970, p. 175.
- [15] K. Liebscher, *Anal. Chem.*, 40, 1999 (1968).

(编辑部收到日期: 1980 年 8 月 29 日)