

分段 γ 扫描自吸收校正法分析 残渣和废物中的铀、钚含量

吕峰 曹斌 辛标 张文良 吴昕
谭亚军 吕钊 李泽 朱荣保

(中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京, 102413)

叙述了用于非破坏分析残渣和废物中的铀、钚含量的分段 γ 扫描自吸收校正法(简称分段 γ 扫描法)。研究了分段 γ 扫描测量核工厂实物盘点中含铀、钚各类非均匀样品的刻度方法, 分析了各种测量条件对 γ 自吸收校正及测量结果的影响。本方法与化学破坏分析法进行了比对分析, 结果表明分段 γ 扫描自吸收校正法与化学破坏分析法的偏差为 -3.6% , 在分析误差范围内符合得很好。本分析方法成功地应用于核工厂实物盘点现场分析, 测量了 4 类中低密度含铀、钚的残渣和废物样品, 测量结果的不确定度为 5% 。

关键词 无损分析 分段 γ 扫描 核材料管理 核废物

中图法分类号 TL 271.99 TL 273

在核物料闭环衡算和控制中, 要求对核设施在生产过程中产生的大量残渣和废物中的铀、钚含量进行准确分析。这些含铀、钚的残渣和废物是非均匀样品, 很难用取样法获得代表性的样品进行化学破坏分析, 只能采用非破坏分析法对样品进行整体测定。这些残渣和废物样品的基质主要是石墨、氟化钙、棉纱、抹布、橡胶等中低密度混合物, 采用分段 γ 扫描非破坏分析法比较合适^[1], 但样品基质的密度不能太大, 否则 γ 自吸收效应将影响分析结果的不确定度。为此, 本工作以氟化渣为对象, 研究适合于分段 γ 扫描法测量的样品基体密度范围以及样品基体密度对测量结果的影响, 由于待测样品的几何形状很不规则, 测量中样品的刻度也是难题之一, 本工作采用不同刻度方案, 研究不规则几何形状刻度对测量结果的影响, 试图选取最佳刻度方案, 达到分析不确定度的目标。同时对不同核素的样品应选择何种合适的透射源, 选用透射源的哪几条 γ 能峰以及用何种数学模型来计算样品的透射率进行研究。

1 实验及结果

将已包装好的残渣或废物样品放在分段 γ 扫描测量装置的旋转平台上, 采用步进马达和

吕峰: 男, 58岁, 核物理专业, 副研究员

收稿日期: 1997-07-23 收到修改稿日期: 1997-09-16

自控系统实现样品沿径向均匀旋转、轴向自动分段,逐段旋转扫描。通过透射源挡束开关,定时测出每段样品在透射源开、闭两个状态 γ 射线全能峰的原始计数率,然后按文献[2]介绍的方法分别作计数率损失校正和 γ 自吸收校正,再用标样对装置的刻度因子,计算出样品中U或Pu的含量。

1.1 计数率校正源和透射源

1.1.1 计数率校正源的选取 在测量含 ^{235}U 和 ^{239}Pu 样品时,选择 ^{109}Cd 的88 keV γ 射线作为计数率校正监督峰最为合适。这是因为 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线和 ^{239}Pu 的413.7 keV γ 射线与 ^{109}Cd 88 keV γ 射线都同在低能区内,相互离得不远。

1.1.2 透射源的选取 一般对于含 ^{239}Pu 样品,透射源选取同位素 ^{75}Se 比较合适;对于含 ^{235}U 样品,透射源选取同位素 ^{169}Yb 比较合适。为了使选用的透射源适用于现场测量,本工作只选用半衰期较长(120 d)的1种同位素 ^{75}Se ,既作为含 ^{235}U 样品的测量的透射源,又作为测量含 ^{239}Pu 样品的透射源。由于 ^{75}Se 4条分支比较强的 γ 射线能量离 ^{235}U 185.7 keV γ 射线能量较远,利用测得的 ^{75}Se 4条 γ 射线的透射率来计算 ^{235}U 185.7 keV γ 射线透射率会引起较大误差。为了研究不同透射源对含 ^{235}U 样品测量结果的影响,实验中用同1个含 ^{235}U 的均匀样品分别采用 ^{169}Yb 和 ^{75}Se 作为透射源进行比对测量。比对测量的结果表明,两者数据仅差0.5%。

1.2 样品 γ 射线透射率的计算

由于 γ 射线对样品的透射率是 γ 射线能量的函数,透射源的 γ 射线与被测样品 γ 射线的能量不同,两者的透射率也不同,两者 γ 射线能量相差越大,则透射率差别也越大。本工作选用 ^{75}Se 作为测量含 ^{235}U 样品的透射源, ^{75}Se 的121.1、135.6、264.6、279.6和400.1 keV 5条 γ 射线与 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线离得比较远,如何从 ^{75}Se 的5条 γ 射线的透射率比较准确地得到 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线的透射率是值得研究的。本工作为得到 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线的透射率,采用5种数学拟合计算方案对 ^{75}Se γ 射线透射率进行计算,同时把 ^{169}Yb 透射源的177.2 keV和198.0 keV两条 γ 射线的透射率线性内插计算出 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线透射率作为参考标准,与上述计算结果进行比较,计算结果列于表1。从表1可以看出,用 ^{75}Se 的135.6、264.6、279.6 keV 3个能量的 γ 射线透射率线性拟合或用135.6、264.6、279.6、400.1 keV 4个能量 γ 射线的透射率进行对数线性拟合,两个结果与参考值很接近。本工作在测量含 ^{235}U 样品时,采用 ^{75}Se 的135.6、264.6、279.6 keV 3个能量的 γ 射线透射率线性拟合计算 ^{235}U 的185.7 keV γ 射线的透射率。在测量含 ^{239}Pu 样品时,采用 ^{75}Se 的264.6、279.6和400.1 keV 3个能量 γ 射线透射率的对数线性拟合外推的方法计算 ^{239}Pu 413.7 keV γ 射线的透射率。

1.3 样品透射率 T 对测量结果的影响

分段 γ 扫描自吸收校正法只能测量中低密度样品,对高密度的样品,由于自吸收过大,即样品的透射率太小而使测量准确度受到影响。本工作研究了样品密度变化引起的 γ 射线透射率差异对测量结果的影响。实验中,用本方法测量了 ^{235}U 含量已知的7个不同密度样品,当样品 γ 射线透射率 $T=0.08$ 时测量结果与参考值的偏差小于5%;当样品 γ 射线透射率 $T=0.004$ 时,测量结果与参考值的偏差达到23%以上。实际测量中,对中等密度含 ^{235}U 或 ^{239}Pu 两种氟化渣样品测得的 γ 射线透射率大约为0.10—0.20。因此,从样品 γ 射线透射率的角度,对氟化渣这样密度的样品,测量不确定度将小于5% ($P=68.3\%$)。

表1 透射源不同能量 γ 射线透射率拟合计算 ^{235}U 185.7 keV γ 射线透射率结果

Table 1 Calculation results of transmission for ^{235}U 185.7 keV γ ray using transmission rate of ^{75}Se source for different γ ray energy

计算方法	^{75}Se 透射源 γ 射线				185.7 keV γ 射线透射率计算结果
	能量/keV	能量/keV	能量/keV	能量/keV	
三能量线性拟合	135.6	264.6	279.6		0.2739
三能量二次拟合	121.1	135.6	264.6		0.2632
三能量二次拟合	135.6	264.6	279.6		0.2821
四能量线性拟合	121.1	135.6	264.6	279.6	0.2789
四能量线性拟合	135.6	264.6	279.6	400.1	0.2910
四能量二次拟合	121.1	135.6	264.6	279.6	0.2611
四能量二次拟合	135.6	264.6	279.6	400.1	0.2910
对数线性拟合	135.6	264.6	279.6	400.1	0.2733
参考值	117.2	198.0			0.2735

1.4 待测样品与标准样品几何形状的差异对测量结果的影响

核工厂的待测样品是很不规则的,特别是含 ^{235}U 或 ^{239}Pu 氟化渣样品,它的形状是仿锥形,标样很难做到与待测氟化渣样品的形状、体积完全一样。为了对仿锥形氟化渣样品比较准确的刻度,制备了2套不同形状的 ^{235}U 标样,一套是直径与氟化渣样品“大头”直径相同的圆柱标样,另一套是形状大小完全与氟化渣样品一样的标样。用这两套标样的刻度数据来测定两个含 ^{235}U 氟化渣实际样品,测量结果列于表2。从表2可知,对于这种仿锥形氟化渣样品,由于刻度标样与待测样品形状不一致引起的测量结果偏差为1%左右。

表2 用2种不同几何形状标样刻度测得氟化渣样品中的铀含量

Table 2 Measurement results of uranium content for fluoride slag using calibration value of two standard samples for different geometry

样品号	测量结果/g		偏差/%
	圆柱形标样	仿锥形标样	
1	3.48	3.51	1
2	4.00	4.04	1

1.5 刻度

1.5.1 参考标准样品 将 ^{235}U 富集度约为90%的硝酸铀酰溶液,用万分之一天平称重,用控制电位库仑法测定总铀量,用质谱法测定 ^{235}U 的富集度,分别制成含 ^{235}U 浓度为8.8725、4.4361、2.2142、1.1111和0.5730 g/L 5个样品作为测定含 ^{235}U 氟化渣待测样品的参考标样。参考标样的直径与含 ^{235}U 氟化渣最大直径处相同,标样的容器材料采用3mm厚的聚乙烯。对于无规则形状的石墨块待测样品,采用石墨粉作介质分别制成了含铀10g和40g两个参考标样。这两个参考标样的外包装材料是3mm厚、直径为146mm的铝。对于含Pu氟化渣、含Pu棉纱和抹布废物样品,特制了1个含Pu量为5g、介质为石墨粉的均匀混合参考标样,其外包装材料是3mm厚、直径为100mm的不锈钢。

1.5.2 刻度因子K的测定 对于含 ^{235}U 氟化渣待测样品,用上述5个硝酸铀酰标样,在大准直孔(50mm×10mm×75mm)和小准直孔(10mm×10mm×75mm)两个几何条件下进行刻度。刻度时,首先在透射源闭束状态下测量标样中 ^{235}U 185.7 keV全能峰计数率,再在透射源开束和闭束两个状态下分别测出有标样和无标样时 ^{75}Se 透射源的 γ 能谱,然后计算 ^{75}Se 的

135.6, 264.6 和 279.6 keV 3 个能量 γ 射线的透射率, 用上述三能量线性拟合计算出 ^{235}U 的 185.7 keV γ 射线的透射率。

按照三维近立体角自吸收校正和内标 γ 射线计数率损失校正方法得到样品无自吸收、无计数率损失情况下的计数率。以 ^{235}U 含量(g)为横坐标, 校正后的计数率为纵坐标, 用最小二乘法线性拟合得到示于图 1 的刻度曲线。图 1 中, 大小 2 种准直孔刻度曲线的线性非常好, 其线性回归值均为 0.999997, 刻度因子 K 值误差均为 1% ($P=68.3\%$)。对含铀石墨块待测样品, 用上述 10 g 和 40 g 两个标样在大准直孔(50 mm \times 10 mm \times 75 mm)条件下, 用上述刻度程序进行刻度。对含 Pu 的氟化渣、棉纱与抹布废物样品, 由于条件限制只用了上述 5 g 的 Pu 和石墨粉均匀混合参考标样, 在大准直孔(50 mm \times 10 mm \times 75 mm)几何条件下对 ^{239}Pu 413.7 keV γ 射线进行刻度。用 ^{239}Pu 的 413.7 keV γ 射线校正后的全能峰计数率与钚质量之比作为刻度因子 K 值, K 值的测量误差为 1.5% ($P=68.3\%$)。

1.6 分段 γ 扫描法(SGS)与化学破坏分析法(DA)的比对测量

为了验证本方法分析中、低密度核废料、核废物数据的准确度和可靠性, 从核工厂取了两个含 ^{235}U 氟化渣实际待测样品, 先用本方法测定两个样品中的实际含铀量, 然后把其中一个氟化渣样品完全溶解, 采用流动注射、X 荧光和高压液相色谱 3 种化学分析方法同时进行比对分析。3 种化学破坏法(DA)分析结果和分段 γ 扫描法分析比对结果列于表 3。从表 3 可以看到, 非破坏法与化学破坏法的偏差为-3.6%。

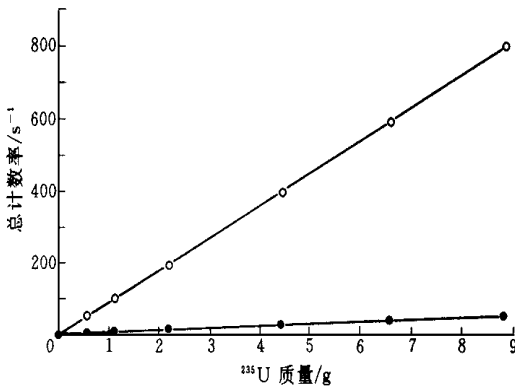


图 1 ^{235}U 185.7 keV γ 射线在两个不同准直器条件下的质量刻度曲线

Fig. 1 The mass calibration curves of ^{235}U 185.7 keV γ ray for two collimator
 ——大准直孔刻度曲线; ——小准直孔刻度曲线

表 3 含 ^{235}U 氟化渣非均匀样品分段 γ 扫描法与化学破坏法分析比对结果

Table 3 The results of segmented gamma scanning assay compared with destructive assay

分析方法	分析结果/g	分析不确定度/%
流动注射法(FIA)	3.69	2.0
X 荧光法(XRF)	3.68	3.8
高压液相色谱法(HPLC)	3.56	2.8
DA 平均值	3.64	2.9
分段 γ 扫描法(SGS)	3.51	5.0

1.7 样品分析

本方法成功地应用于核工厂核材料现场实物盘点分析。在核工厂现场, 分析了含 ^{235}U 石墨块、含 ^{235}U 氟化渣、含 ^{239}Pu 氟化渣和含 ^{239}Pu 棉纱与抹布废物 4 大类样品, 总计 73 件。

1.8 测量误差分析

测量误差主要来源于下列 5 个方面: 测量计数统计误差、刻度误差、自吸收校正因子 CF(AT) 误差、样品容器尺寸引起的误差、样品的几何位置引起的误差。刻度误差主要来自物料和介质的不均匀分布和标样刻度误差。上述误差采用均方和合成法, 其测量总的不确定度为:

含²³⁵U 氟化渣和石墨块样品相对测量不确定度为 4 % ($P=68.3\%$);

含²³⁹Pu 氟化渣和棉纱与抹布废物样品相对测量不确定度为 4.2 % ($P=68.3\%$)。

2 结论

1) 在核工厂实物盘点现场应用测量中采用盲样检验和 SGS 与 DA 比对分析方法, 验证了实物盘点现场测量的所有 73 件样品数据是准确、可靠的。

2) 适用于测量透射率(与密度相关)大于 0.01 的所有中低密度非均匀样品, 其测量误差与物料分布不均匀性有关。

3) 本方法如配有很合适的标样, 测量准确度还可更好。

4) 最好经过多次化学破坏法比对测量, 使其在实际应用分析中进一步扩大测量样品类型和品种。

感谢四 四厂的王笑莲、徐向东、王福庆以及物料管理组的所有工作人员为本工作做了大量工作, 刘大鸣、唐培家、金惠民、陈连仲为本工作提出了许多宝贵意见。

参 考 文 献

- 1 Doug Reilly, Norbert Ensslin. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials: NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732
- 2 朱荣保, 谭亚军, 袁晓鑫, 等. 大型高分辨率分段 γ 扫描装置的研制. 原子能科学技术, 1994, 28(1): 16

ASSAY OF THE URANIUM AND PLUTONIUM CONTENT IN PROCESS RESIDUES AND WASTES USING THE CORRECTION FOR SAMPLE SELF ATTENUATION IN SEGMENTED GAMMA SCANNING SYSTEM

L üFeng Cao Bin Xin Biao Zhang Wenliang Wu Xin
Tan Yajun L üZhao Li Ze Zhu Rongbao

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275, Beijing, 102413)

ABSTRACT

A method of the correction for sample self attenuation used in segmented gamma scanner (SGS) is described. The method of calibration for assaying the uranium and plutonium contents of each category of heterogeneous process residues and wastes in nuclear facilities is studied. The effect of variable measurement parameter on measurement results is also studied. The measurement results of SGS assay is compared with that of the destructive assay (DA), which is aimed at evaluating SGS method for assaying uranium and plutonium content in process residues and wastes. The deviation of two assay results is 3.6%. The SGS assay results and DA assay results both are coincided well in error limits. Four category of heterogeneous process residues and wastes in nuclear facilities have assayed successfully in physical inventory. The uncertainty of measurement results for uranium and plutonium content in process residues and wastes is 5% with 68.3% of confidence level.

Key words Non-destructive assay Gamma scanning Nuclear materials Nuclear wastes

沸腾传热与两相流(第2版)

Boiling Heat Transfer and Two-phase Flow

著者: Tong L. S. 和 Tong Y. S.。1997年 Taylor & Francis 出版社出版。

本书考察了以下几个方面的进展: 池沸腾与流动沸腾; 两相流模化; 强迫对流沸腾临界值的计算; 沸腾临界或接近临界时的实验法; 流动不稳定性研究; 高于临界热流温度时的传热和沸腾装置的热力学性状计算。此外, 书中还对液态金属沸腾研究进行了评述。

本书主要目次: 1 绪论; 2 池沸腾; 3 两相流的水力学; 4 流动沸腾临界; 5 两相流的不稳定性。

摘自中国原子能科学研究院《科技信息》