

γ 能谱法在快堆新燃料 ^{235}U 富集度核实测量中的应用

何丽霞, 蒙延泰, 邵婕文, 郜 强

(中国原子能科学研究院 核保障技术重点实验室, 北京 102413)

摘要: 采用无损分析方法中最常用的 γ 能谱法及专用分析软件 PC/FRAM 核实了中国原子能科学研究院实验快堆新燃料中 ^{235}U 富集度的标称值。从实验角度出发, 首先对系统进行了标样测量验证, 在新燃料库房任取 8 根新燃料单棒, 分段取点测量, 计算得 8 根单棒的 ^{235}U 富集度与标称值偏差绝大部分在 3% 以内。以上结果提示, γ 能谱法用于快堆新燃料 ^{235}U 富集度测量的方法可取, 在核燃料设施加工与核电站进行新燃料组件交接方面可以推广应用。

关键词: 快堆新燃料组件; ^{235}U 富集度; γ 能谱法

中图分类号: TL271; TL817.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-7512(2008)01-0061-04

Application of γ -NDA Method in Fast Neutron Reactor Fresh Fuel's Uranium Enrichment Measurement

HE Li-xia, MENG Yan-tai, SHAO Jie-wen, GAO Qiang

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: γ -spectrometry in non-destructive assay field and special PC/FRAM code were used to verify fresh fuel rods' ^{235}U enrichment declared value, which will be used in Chinese experiment fast neutron reactor. The experiment required system should be validated by uranium standards. Different plots on 8 fresh fuel rods were measured. The results show that most of the ^{235}U enrichment deviation between measured value and declared are less than 3%. So, it can be concluded that γ -spectrometry is efficient in verifying ^{235}U enrichment in fuel rods which will be used in reactors; and this method should be widely used in fuel transfers between nuclear power plant and fresh fuel manufactories.

Key words: ^{235}U enrichment; fast neutron reactor fresh fuel; γ spectrometry

γ 能谱法用于测量含铀物料中 ^{235}U 富集度是一项比较成熟的无损检验 (Non-Destructive Assay, NDA) 方法。NDA 技术主要用在与一系列核燃料测量相关的测量分析领域^[1]。中国实验快堆新燃料组件作为一种典型的含铀物料, 其 ^{235}U 富集度要求为 64.4%, 而该组件从俄罗斯进

口, 为确保其 ^{235}U 富集度达到要求, 需要对该组件进行 ^{235}U 富集度的核实测量。本工作拟将核保障技术中的 NDA 方法用于反应堆燃料组件属性测量, 为我国今后核材料生产设施与核电站进行燃料组件交接提供核实方法。

1 测量装置介绍

本次测量选用 ORTEC 公司生产的高纯锗 (HPGe) 探测器, 分辨率 (Full Width at Half Maximum, FWHM) $FWHM @ 1\ 332\ keV < 2.0\ keV$; ORTEC 公司生产的 DSPEC-jr-2.0 数字化多道谱仪, 该谱仪具有自动最优化、数字化自动极零、内置虚拟示波器等功能。选用 MEAS-TRO 作为能谱获取软件, 数据分析选用铀、钚同位素专用分析软件 PC/FRAM。

2 测量分析原理^[2]

铀富集度指含铀物料中 ^{233}U 和 ^{235}U 质量与总铀质量的比, 用百分比表示^[3]。 ^{233}U 属于人工放射性同位素, 在天然铀矿中含量仅为 0.006%, 铀富集度通常指含铀物料中 ^{235}U 的质量分数。通过测量新燃料中 ^{235}U 和 ^{238}U 及其子体发射的 γ 能谱, 计算同位素原子数之比, 进而推算燃料中 ^{235}U 的质量分数。 γ 能谱法中, 同位素 i 发射的能量为 E_j 的特征 γ 射线的光电峰计数率可由 (1) 式表示:

$$C(E_j^i) = \lambda^i \cdot N^i \cdot BR_j^i \cdot \epsilon(E_j) \quad (1)$$

(1) 式中, $C(E_j^i)$ 为同位素 i 发射的能量为 E_j 的 γ 射线的计数率; λ^i 为同位素 i 的衰变常数; $\lambda^i = \ln 2 / T_{1/2}^i$, $T_{1/2}^i$ 为同位素 i 的半衰期; N^i 为同位素 i 的原子核数目; BR_j^i 为同位素 i 发射能量为 E_j 的 γ 射线分支比; $\epsilon(E_j)$ 为探测器对能量为 E_j 的 γ 射线的探测效率。

由 (1) 式可知, 同位素 i 与 k 的原子核数目之比可以通过测量同位素 i 发射的 γ 射线 j 的光电峰与同位素 k 发射的 γ 射线 l 的光电峰计数得到, 即:

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_l^k)} \cdot \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \cdot \frac{BR_l^k}{BR_j^i} \cdot \frac{RE(E_l)}{RE(E_j)} \quad (2)$$

(2) 式中, $RE(E)$ 是与射线能量相关的相对效率, 包含了样品的自吸收、样品与探测器之间材料的吸收以及探测器的本征效率。在同一次测量中, 几何参数相同, 所以要得到某同位素的质量分数, 只需得到其发射的不同能量 γ 射线的相对效率 $RE(E)$, 再利用相对效率推算原子核数目之比, 即 N^i/N^k 。

PC/FRAM 是美国 Los Alamos 国家实验室开发的一款专门用于铀、钚同位素分析软件, 用该软件分析 γ 能谱可以解析为两个步骤: 1) 内部刻度, 2) 分析谱数据。该方法利用响应函数拟合特征 γ 射线能峰, 根据峰形参数 (能量、半高

宽、尾巴等) 进行内部相对效率自刻度, 得到相对效率曲线, 用最小二乘法拟合计算同位素组成。

2.1 内部刻度

内部刻度软件针对某一能谱进行相应的能量、半高宽、尾巴函数刻度, 刻度得到的参数只与该能谱相关而与能谱获取过程中的几何状态相关的几何参数无关。能量刻度选用能谱中较强的单峰, 利用响应函数拟合能峰。

对高纯锗探测器来说, 由于平均电离能与粒子能量无关, 因此能量线性很好, 在 150~1 300 keV 范围内, 线性偏离小于 0.1~0.2 keV^[4], PC/FRAM 搭配同轴探测器测量铀样品时增益要求为每道 0.125 keV^[5]。高纯锗探测器获取的能谱中, 半高宽与能量成函数关系 (关系式 3), 利用半高宽计算最小二乘拟合能峰时的响应函数; 任意 γ 能峰均可描述为一个高斯函数与一个低能指数式尾巴函数的和, 由 (4) 式表示:

$$FWHM(E) = \sqrt{A_1 + (A_2 \cdot E) + (A_3/E)} \quad (3)$$

$$Y(J) = H_t \cdot \exp[\alpha \cdot (J - x_0)^2 + Tail(J)] \quad (4)$$

(3) 式中, $FWHM(E)$ 为能量 E 对应的能峰半高宽; A 为计算常数。

(4) 式中, $Y(J)$ 为能谱中第 J 道的净计数; H_t 为峰中心道 x_0 处的峰高; $\alpha = 2.772\ 59 / FWHM^2$; $Tail(J)$ 为尾巴函数, 幅度和形状都是能量的函数^[3]。

2.2 能谱分析

内部刻度为求解能谱提供了参数, 能谱分析首先需要利用响应函数计算峰面积, 之后再行相对效率刻度, PC/FRAM 相对效率拟合曲线表达式示于 (5) 式:

$$\ln \epsilon_i = c_1 + c_2 E_i^{-2} + \sum_{j=1}^3 (c_{j+2} (\ln E_i)^j) + \sum_{k=l}^m c_{k+5} \delta_{k+5} \sum_{l=1}^5 c_{l+5+m} \delta_{l+5+m} E_i^{-1} \quad (5)$$

(5) 式中, \sum_k 为归一化后核素之和; \sum_l 为归一化的相对效率曲线; δ 为归一化因子。

3 系统验证及现场测量

3.1 探测器基本性能验证

PC/FRAM 分析同轴型 HPGe 探测器获取铀样品能谱数据时, 主要选用 ^{235}U 发射的能量为 143、163、185 和 205 keV 等多条 γ 射线和 ^{238}U 及其子体发射的能量为 258、742、766、880、883、945 和 1 001 keV 等多条典型 γ 射线, 进行

探测器的基本性能验证。相对效率曲线示于图 1。图 1 所示曲线符合同轴型 HPGe 探测相对效率的分布规律。

3.2 标准样品测量

进行现场测量之前,在实验室利用 20 世纪 90 年代本室从比利时引进的铀标样对测量系统进行了实验验证。铀标准样品共 5 个,采用封闭式双层铝壳包装 U_3O_8 粉末的柱状样品,直径 $\varphi = 28\text{ mm}$,高度 $h = 30\text{ mm}$,样品底部壁厚 2 mm。铀标准样品 CBNM 446 的两次测量结果列于表 1。由表 1 可知,测量分析误差在 $\pm 5\%$ 以内。

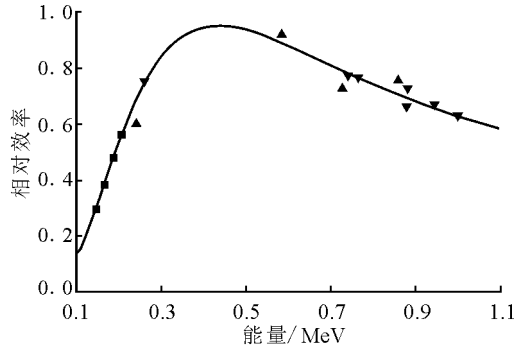


图 1 同轴型高纯锗探测器相对效率曲线

表 1 铀标样 CBNM 446 测量结果

测量序号	标样号	标称富集度/%	测量时间/s	^{235}U 富集度/%	相对偏差/%
1	CBNM 446	4.462 3	3 500	4.475 1	+0.3
2	CBNM 446	4.462 3	5 253	4.600 5	+3.0

表 1 数据表明本次选定的这套设备运行状态良好,测量数据真实可信,可以应用于现场测量。

3.3 实际测量

本次工作在中国原子能科学研究院实验快堆新燃料库房中进行,本底主要来源于其它燃料组件,测量时在探测器前端加铅屏蔽体,既有屏蔽效果也有准直功能;为了有效防止不同能峰符合相加的影响,燃料单棒距离探头设为 $30\text{ cm}^{[6]}$,组合结构示于图 2。

经向快堆新燃料库房管理人员确认,库房内确实有 ^{137}Cs 放射源存在。PC/FRAM 分析时,选用铀同位素的特征能量, ^{137}Cs 的存在并不影响分析结果。

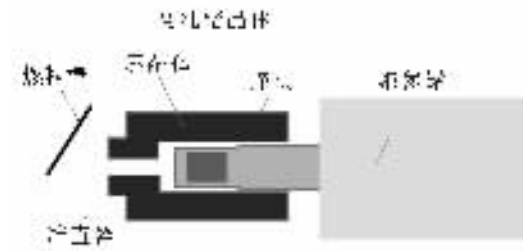


图 2 现场测量探测器与测量对象布局示意图

共对随意选取的 8 根燃料单棒进行了测量,在每个单棒 ^{235}U 富集度为 $64.4\%^{[7]}$ 的区域选取 6 个测量点,分别测量 4 h 以上,使 $1\ 001\text{ keV}$ 能峰净计数统计误差小于 0.5% 。快堆库房地底 γ 能谱示于图 3,8 根燃料单棒的 γ 能谱示于图 4。利用 PC/FRAM 软件分析图 4 所示能谱,可得到燃料棒 ^{235}U 的富集度,结果列于表 2。

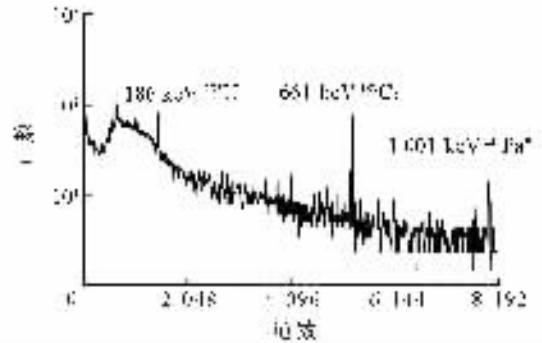


图 3 快堆新燃料库房地底谱

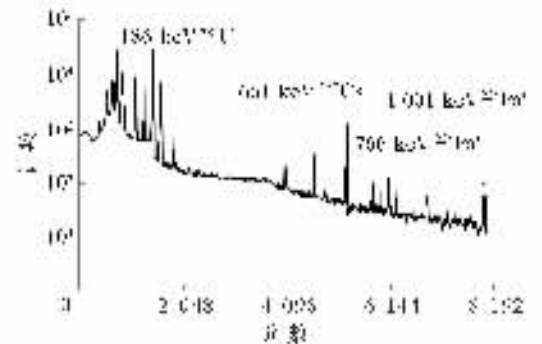


图 4 快堆新燃料 γ 能谱

图 3 和图 4 中均存在 661 keV 射线的能峰。

表 2 ^{235}U 富集度测量值与标称值偏差

单棒号	测量值/%	标称值/%	相对偏差/%
069028	62.3	64.4	-3.2
069070	63.2	64.4	-1.8
069072	66.1	64.4	+2.7
069076	62.7	64.4	-2.7
069084	62.4	64.4	-3.1
069071	62.1	64.4	-3.5
069075	63.8	64.4	-0.9
069080	61.6	64.4	-4.4

由表 2 可以看出, γ 能谱法测量得到的快堆新燃料 ^{235}U 富集度与标称值偏差 $< 5\%$, 大部分在 3% 以内, 说明实验快堆新燃料 ^{235}U 富集度与标称值 64.4% 在误差范围内相符, 测量误差主要源自系统误差以及分析误差。

4 结 论

中国实验快堆新燃料组件是一种典型的含铀物料, 采用 γ 能谱法对其中的 ^{235}U 富集度进行核实测量, 测量值与标称值之间的偏差均在 5% 以内, 测量结果得到快堆的认可。该工作也为今后核材料生产设施与核电站进行燃料组件

交接提供了参考验证方法。

参考文献:

- [1] DOUG Reilly, NORBERT Ensslin, HASTINGS Smith, et al. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials: LA-UG-90-732 [M]. New Mexico: LANL, 1991; vii.
- [2] MOREL J, ETCHEVERRY M, RIAZUELO G. Uranium Enrichment Measurement by X- and γ -ray Spectrometry With the "URADOS" Process [J]. Applied Radiation and Isotopes, 1998, 49(9-11): 1251.
- [3] IAEA. IAEA Safeguards Glossary [M]. Vienna: IAEA, 2002: 33.
- [4] 复旦大学, 清华大学, 北京大学编. 原子核物理实验方法 [M]. 北京: 原子能出版社, 1997: 259.
- [5] SAMPSON TE. Application Guide to Gamma-ray Isotopic Analysis Using the FRAM Software; LA-14018 [Z]. New Mexico: LANL, 2003: 71.
- [6] 唐培家, 李鲲鹏. γ 能谱法测定铀、钚同位素丰度 [J]. 同位素, 2001, 14(3-4): 166.
- [7] 徐铖. 我国的快堆技术发展和实验快堆 [J]. 核动力工程, 2000, 21(1): 34-38.