

文章编号: 1007-4627(2005)01-0127-05

密封容器中钚材料同位素丰度和年龄的测量

刘素萍, 龚建, 郝樊华, 伍怀龙, 胡广春, 向永春, 连仁德, 章建华
(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 根据相对效率法的原理, 利用 PC/FRAM 分析软件, 开展了用高分辨 γ 谱仪测量密封容器中钚材料的同位素丰度和年龄的实验研究. 研究表明, 同位素丰度和年龄的分析精度随能谱测量精度的提高而提高, 如果能谱的测量精度不够, 通过 PC/FRAM 分析得出的钚材料的同位素丰度和年龄有偏低的可能. 因此, 在能谱测量过程中, 建议通过监测某个特征峰的峰面积计数来判定 ^{239}Pu 丰度和年龄的测量精度是否已满足测量要求.

关键词: 相对效率法; 钚材料; 同位素丰度; 年龄

中图分类号: TL273 **文献标识码:** A

1 引言

用被动探测的方法, 在尽量短的时间内, 准确探测密封在容器罐中的钚材料的特征属性, 譬如质量、同位素丰度和钚的年龄(钚材料自 ^{241}Am 分离后的时间间隔)等, 是核材料控制的一个重要技术手段, 在防止核扩散、反恐和未来可能的核禁产、核裁军有着广泛的应用前景^[1, 2]. 用高分辨 γ 谱仪在钚材料密封容器外一定距离处进行一定时间的测量, 可以获得高分辨的 γ 射线能谱, 如果探测器的绝对探测效率已知, 则可以通过解谱分析获得钚材料的诸多信息^[3]. 遗憾的是, 获得探测器的绝对探测效率需要用标准源进行刻度, 这一要求在本应用中显然无法满足. 相对效率法利用核查对象的测量能谱现场刻度探测器的探测效率, 使得利用高分辨 γ 能谱核查测量密封容器中的钚材料的同位素丰度和年龄成为可能^[4, 5]. 相对效率法的应用只要求测量样品的组成成分分布均匀, 而对样品的形状和状态无任何要求.

2 相对效率法分析钚同位素丰度和钚年龄的原理

2.1 相对效率曲线

在用高分辨 γ 谱仪测到的 γ 能谱中, 某一能量

的 γ 光电峰峰面积计数可以写为^[6]

$$C(E_j^i) = \lambda^i N^i t P_j^i \varepsilon(E_j), \quad (1)$$

式中, $C(E_j^i)$ 为核素 i 发射的能量为 E_j 的 γ 射线 j 的光电峰峰面积计数, λ^i 为核素 i 的衰变常数 ($\lambda^i = \ln 2 / T_{1/2}^i$, $T_{1/2}^i$ 是核素 i 的半衰期), N^i 为核素 i 的核子数, t 为测量时间, P_j^i 为核素 i 发射的 γ 射线 j 的分支比, $\varepsilon(E_j)$ 为探测 γ 射线能量为 E_j 的光电峰的绝对效率. 对公式(1)变换形式, 得到

$$\varepsilon(E_j) = \left[\frac{1}{\lambda^i N^i} \right] \times \frac{1}{t} \times \left[\frac{C(E_j^i)}{P_j^i} \right], \quad (2)$$

定义相对效率为

$$\varepsilon_r(E_j) = \frac{C(E_j)}{P_j^i}. \quad (3)$$

相对效率是能量的函数. 对于一定测量时间的能谱而言, 选用某一核素(如 ^{239}Pu) 的多条 γ 射线的相对效率进行拟合, 能够得到能量与相对效率的关系曲线, 即探测器的相对效率曲线. 该相对效率曲线和绝对效率曲线只相差一个倍数因子, 因此对于任意两个能量 E_j 和 E_m , 其绝对探测效率之比等于相对探测效率之比, 即

$$\frac{\varepsilon(E_j)}{\varepsilon(E_m)} = \frac{\varepsilon_r(E_j)}{\varepsilon_r(E_m)}. \quad (4)$$

相对效率曲线和绝对效率曲线一样,在能量轴线上所取测量点的数量越多、间距越均匀和能量跨度越大,则曲线的准确性越高.但事实上,仅靠单一核素是很难满足上述要求的.因此,为了分析的准确性,常常有必要利用所能测量到的不同核素的不同能量点来建立效率曲线.

按照公式(3)的定义,对于一定测量时间的能谱而言,不同核素给出的相对效率曲线互相平行,通过适当的平移,可以将它们归一到其中的任意一条曲线上.最小二乘法是常用的归一方法,利用它可以方便地得到由多个核素给出的探测器相对效率曲线.

2.2 相对效率法分析钚同位素丰度

对于核素 i 的 γ 射线 j 和核素 k 的 γ 射线 m , 根据公式(1)给出核素 i 和核素 k 的原子比:

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{\lambda^k}{\lambda^i} \times \frac{P_m^k}{P_j^i} \times \frac{\varepsilon(E_m)}{\varepsilon(E_j)} \quad (5)$$

在相对效率曲线上,公式(5)中的绝对效率比 $\varepsilon(E_m)/\varepsilon(E_j)$ 可以用相对效率比 $\varepsilon_r(E_m)/\varepsilon_r(E_j)$ 来代替.

对钚材料而言,主要的同位素有 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am 和 ^{237}U , 其中 ^{239}Pu 的 γ 辐射最为丰富. 设同位素的丰度为 $f^i = N^i/N$, 其中 N 为核材料的核子总数, N^i 为各同位素的核子数, 则对于纯钚材料, 有:

$$\frac{N^{238\text{Pu}}}{N^{239\text{Pu}}} + \frac{N^{240\text{Pu}}}{N^{239\text{Pu}}} + \frac{N^{241\text{Pu}}}{N^{239\text{Pu}}} + \frac{N^{241\text{Am}}}{N^{239\text{Pu}}} + \frac{N^{242\text{Pu}}}{N^{239\text{Pu}}} + \frac{N^{237\text{U}}}{N^{239\text{Pu}}} = \frac{1}{f^{239\text{Pu}}} - 1 \quad (6)$$

利用测量能谱, 根据公式(5)和(6), 可以算出各核素相对 ^{239}Pu 的丰度, 从而推算出 ^{239}Pu 的丰度 $f^{239\text{Pu}}$, 继而根据公式(7)推算出其他同位素的丰度.

$$f^i = \frac{N^i}{N^{239\text{Pu}}} \times f^{239\text{Pu}} \quad (7)$$

2.3 钚年龄的测量原理

刚分离出来的钚, 含同位素 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu 和 ^{241}Pu 等, 但不含 ^{237}U 和 ^{241}Am , 随着时间的推移, 钚材料中的 ^{241}Pu 衰变产生 ^{237}U 和 ^{241}Am (衰变链参见

图1)^[7], 因此可以利用 ^{241}Pu 衰变过程产生的子体核 (^{237}U 和 ^{241}Am) 的放射性来推断钚自分离算起的年龄, 简称钚年龄. ^{237}U 的半衰期只有 6.75 d, 经过 3—5 个半衰期后就与母核 ^{241}Pu 达到动态平衡, 因此用 ^{237}U 只能推算新分离钚的年龄 (大约 30 d 内). 对于分离时间较长的钚, 可用 ^{241}Am 的含量进行年龄推算.

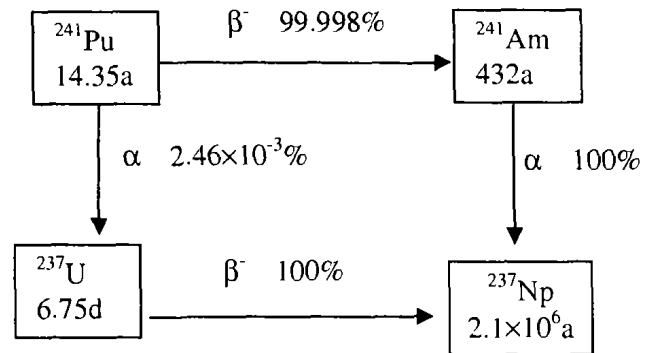


图 1 ^{241}Pu 衰变产生 ^{237}U 和 ^{241}Am 的衰变链

根据衰变链可知, 在任何时刻 t , ^{241}Pu 和 ^{241}Am 的核子数分别为

$$N(p) = N_0(p) e^{-\lambda_p t} \quad (8)$$

$$N(a) = \frac{e^{(-\lambda_a t)} - e^{(-\lambda_p t)}}{\lambda_p - \lambda_a} \times \lambda_p f N_0(p) \quad (9)$$

式中, p 和 a 为分别代表同位素 ^{241}Pu 和 ^{241}Am , $N(i)$ 为同位素 $i(p, a)$ 的核子数, $N_0(p)$ 为同位素 ^{241}Pu 的初始核子数, $\lambda(i)$ 为同位素 $i(p, a)$ 的衰变常数, f 为 ^{241}Pu 衰变成子体 ^{241}Am 的分支比.

由(8), (9)式可得:

$$\frac{N(a)}{N(p)} = f \times \frac{\lambda_p}{\lambda_p - \lambda_a} \times \frac{e^{(-\lambda_a t)} - e^{(-\lambda_p t)}}{e^{(-\lambda_p t)}} \quad (10)$$

利用相对效率曲线, 根据公式(5)可以测量出 $N(a)/N(p)$, 将衰变常数 λ_p 和 λ_a 代入(10)式, 可以推算出钚的年龄 (以天为单位) 为^[8]

$$t = 7\,819.176 \times \ln \left(0.966\,933\,5 \times \frac{N(a)}{N(p)} + 1 \right) \quad (11)$$

3 实验测量

3.1 罐装钚材料同位素丰度和钚年龄的实验测量

3.1.1 实验布局

探测器支架呈“方桌”形, 在 4 个“脚”所围成空间的中心放置测量源, 在“桌面”上挖孔, 将探测

器的探头倒插在里面. 探测器为 E G&G ORTEC 公司生产的同轴型高纯锗 γ 射线探测器, 其灵敏体积为 ($\phi 5.38 \text{ cm} \times 6.83 \text{ cm}$, 相对效率为 30%, 对 1.33 MeV γ 射线的能量分辨率为 1.85 keV. 与探测器配合使用的多道分析系统为 NORMAD PLUS. 测量源为装有钚材料的专用储存容器罐. 测量采用批处理, 每隔 100 s 电脑将会按规定的文件名称序列自动保存一次能谱文件. 实验使用 PC/FRAM 分析软件来分析钚材料的同位素丰度和年龄.

3.1.2 实验数据的处理

在探测距离为 152.1 cm 的位置, 对罐装钚材料进行了长达 11 450 s (活时间为 9 208 s) 的能谱测量, 获得系列能谱 Pu80000—Pu80099. 利用该系列能谱研究了测量时间对 ^{239}Pu 丰度和年龄测量结果的影响 (见图 2).

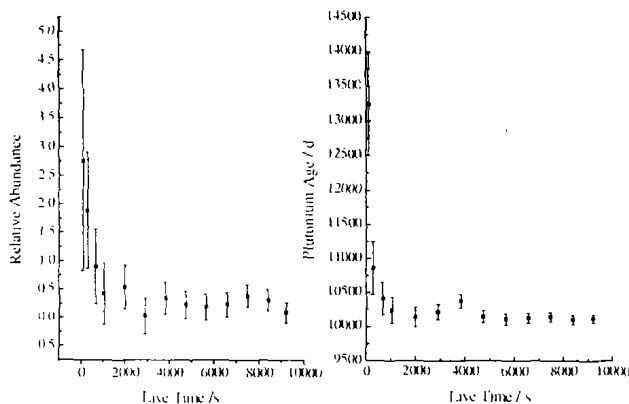


图2 测量时间对 ^{239}Pu 丰度和年龄测量结果的影响

图 2(b) 的纵坐标给出了 ^{239}Pu 丰度测量值与某一常数的差值, 这样处理数据只是为了作脱密处理, 并不影响研究问题的讨论. 从图 2 可以清楚地看到, 随着测量时间的增加, 钚材料同位素丰度和年龄的测量标准误差逐渐减小. 在测量时间达到 4 723 s (对应能谱 Pu80050) 以后, ^{239}Pu 丰度和年龄的测量精度渐趋稳定.

测量过程中, 可以通过监测某个特征峰的峰面积计数来判定 ^{239}Pu 丰度和年龄的测量精度是否已满足测量要求. 例如, 在上例中, 选取 ^{239}Pu 的主峰 375 keV 作为考察峰, 在测量时间大于 4 723 s 的测量能谱中, 该峰的峰面积计数相对标准误差为 0.14%, 此时, ^{239}Pu 丰度和钚年龄的测量标准误差分别低于 0.26% 和 0.88%.

选取某个特征峰的峰面积作为考察对象可以回

避测量距离和测量时间的细节. 换言之, 当测量距离较远时, 测量时间可适当延长, 使得测量结果满足要求的统计精度, 反之亦然. 对正放着的罐装钚材料, 改变探测器的探测距离 (88.9, 121.4, 152.1, 175.7 和 201 cm), 对上述推论进行了实验验证. 分析结果见表 1. 在除 152.1 cm 的其它 4 个距离的测量中, 88.9 和 121.4 cm 的测量时间够长, ^{239}Pu 的 375 keV 的峰面积计数的相对标准误差不大于 0.14%. 对于测量时间不足的两个测量距离, 表 1 列出了它们的最长测量时间对应能谱的分析结果.

表1 丰度和年龄的分析精度与测量距离、测量时间、峰面积

谱文件	距离 /cm	活时间 /s	相对标准差 (%)		
			钚年龄	^{239}Pu	375 keV 峰面积
Pu16032	88.9	1 650	0.83	0.26	0.13
Pu16030		1 536	0.85	0.27	0.13
Pu49033	121.4	2 648	0.88	0.28	0.14
Pu80099	152.1	9 208	0.62	0.19	0.1
Pu80050		4 723	0.88	0.26	0.14
Pu80048		4 540	0.89	0.27	0.14
Pu103036	175.7	3 413	1.15	0.36	0.19
Pu128041	201	4 045	1.24	0.37	0.20

从表 1 可以看到, 375 keV 的峰面积计数的相对标准误差不大于 0.14% 的能谱共有 6 个, 它们的 ^{239}Pu 丰度和钚年龄的测量精度分别好于 0.28% 和 0.89%, 与上述推论基本一致.

3.2 不详特材的核查测量

利用相对效率法, 我们曾对某一存放多年的不详特材密封件进行过核查认证. 核查实验使用了一台便携式 N 型高分辨高纯锗 γ 谱仪. 在不打开密封件外包装的前提下, 用 γ 谱仪对密封件进行核素分辨测量, 定性鉴别出密封件的內装物是钚材料. 之后, 利用相对效率法, 对密封件进行定量测量, 分析 ^{239}Pu 丰度和钚材料年龄. 定量测量时, 对样品进行 7 次独立的重复测量, 每次测量活时间为 2 000 s. 同位素丰度和钚年龄分析采用相对效率法, 其相对效率曲线是对每个测量能谱的选定特征峰通过最小二乘法拟合得到的, 拟合曲线的不同会造成重复测量的测量精度不同. 换言之, 就同位素丰度和钚

年龄分析而言, 对每个样品的重复测量是一种不等精度的间接测量. 实验数据列于表 2.

表 2 不详特材密封件的核查实验数据

序号	^{239}Pu 丰度/(%)		钚年龄/d	
	测量值	标准差	测量值	标准差
1	90.457	0.755	10 988.5	300.2
2	90.506	0.796	12 168.7	260.5
3	90.465	0.825	11 560.8	291.9
4	92.653	0.827	11 731.4	281.4
5	92.104	0.756	11 907.9	282.4
6	89.576	0.773	10 729.9	291.9
7	92.573	0.754	12 601.6	255.8
测量结果	最佳估计值	标准不确定度	最佳估计值	标准不确定度
	91.193	0.464	11 730.9	247.6

从定量分析的结果来看, ^{239}Pu 丰度的测量结果为 $(91.193 \pm 0.464)\%$, 对应的相对标准误差为 0.51%; 钚年龄的测量结果为 $(11 730.9 \pm 247.6)$ d, 对应的相对标准误差为 2.11%. ^{239}Pu 375 keV

峰面积计数的相对标准误差为 0.44%, 与罐装钚材料的测量能谱 Pu80004 (测量活时间为 473 s) 的对应值相同.

不详特材的 ^{239}Pu 丰度和钚年龄的测量值与已有信息相比, 都有些偏小. 据相关人员回忆, 该密封件的核材料约在 1967 年 (距今已是 37 a 之久) 使用过, 且 ^{239}Pu 丰度比核查测量结果偏高. 这可能是由于测量时间不足, 测量能谱未达到测量精度造成的.

4 实验结果

从罐装钚材料实验和不详特材密封件的核查认证实验可以看到, 利用相对效率法和高分辨 γ 射线能谱可以分析出密封容器中钚材料的同位素丰度和年龄, 且分析精度随能谱测量精度的提高而提高. 如果能谱的测量精度不够, 通过 PC/FRAM 分析得出的钚材料的同位素丰度和年龄有偏低的可能. 因此, 在能谱测量过程中, 可以通过监测某个特征峰的峰面积计数来判定 ^{239}Pu 丰度和年龄的测量精度是否已满足测量要求.

参 考 文 献:

- [1] David Spears, Arden Dougan, Gorgiana M A. Office of Nonproliferation Research and Engineering. Technology R & D for Arms Control, Published by U. S. Department of Energy, National Nuclear Security Administration, Defense Nuclear Nonproliferation Programs, Spring 2001.
- [2] Christine Comley, Mike Comley, Peter Eggins, *et al.* Confidence, Security and Verification: The Challenge of Global Nuclear Weapons Arms Control, AWE/TR/2000/001.
- [3] 古当长. 放射性核素活度测量的方法和技术. 北京: 科学出版社, 1994, 262 - 294.
- [4] 龚建, 郝樊华, 熊宗华等. 核电子学与探测技术, 2001, 21 (4): 287.
- [5] Tian Dongfeng, Xie Dong, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A. 2000, 449: 500.
- [6] Sampson T E. Plutonium Isotopic Composition by Gamma-ray Spectroscopy: A review. LA - 10750 - MS. Sep. 1986.
- [7] Richard B F, Virginia S S, Editor; Frank Chu S Y, CD - ROM Editor. Table of Isotopes (CD-Rom edition), Version 1.0, March, 1996.
- [8] EG&G ORTEC, PC/FRAM-BI Plutonium and Uranium Isotopic Analysis Software. Software User's Manual Software Version 2.3.

(下转第 134 页)

- (4): 421.
- [5] 赵维娟, 李融武, 郭敏等. 原子核物理评论, 2004, 21 (3): 253.
- [6] 雷勇, 冯松林, 徐清等. 核技术, 2002, 25 (10): 822.
- [7] 冯向前, 冯松林, 徐清等. 核技术, 2002, 25 (10): 827.
- [8] 范东宇, 冯松林, 冯向前等. 核技术, 2002, 25 (10): 833.

Application of Nuclear Analysis Techniques in Ancient Chinese Porcelain*

FENG Song-lin, XU Qing, FENG Xiang-qian, LEI Yong, CHENG Lin, WANG Yan-qing
(*Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China*)

Abstract: Ancient ceramic was fired with porcelain clay. It contains various provenance information and age characteristic. It is the scientific foundation of studying chinese porcelain to analyze and research the ancient ceramic with modern analysis methods. According to the property of nuclear analysis technique, its function and application is discussed.

Key words: nuclear analysis technique; ancient ceramic

(上接第 130 页)

Measurement of Isotopic Abundance and Age of the Plutonium Material in a Sealed Container

LIU Su-ping, GONG Jian, HAO Fan-hua, WU Huai-long, HU Guang-chun,
XIANG Yong-chun, ZHE Ren-de, ZHANG Jian-hua

(*Institute of Nuclear Physics Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, Sichuan, China*)

Abstract: Based on the concept of relative detection efficiency, some experiments have been conducted to measure the isotopic abundance and the age of the plutonium material in a sealed container by a high-resolution γ -ray spectrometer. The study shows that the analysis precision of the isotopic abundance and the age will rise as the spectral measurement precision increases, and that if the spectral measurement precision is not enough, the analyzed results by the PC/FRAM software might be lower. Hence, the study suggests that a spectral peak is monitored to shed lights on the spectral measurement precision during the process of spectrum acquirement.

Key words: relative detection efficiency; plutonium material; isotopic abundance; age

* **Foundation item:** Knowledge Innovative Program of Chinese Academy of Sciences(KJ CX-No4); National Natural Science Foundation of China(10075060, 10135050); LNAT; BSRF