

基于小型中子发生器研究堆燃料组件²³⁵U 富集度的测量方法研究

张 敏, 曹芳芳, 阙 骥

核与辐射安全中心核燃料与放射性废物部, 北京, 100082

摘要: 燃料组件中²³⁵U 富集度测量方法普遍采用中子活化法和质谱法。由于中子活化法测量设备庞大和质谱法破坏样品的缺点, 无法作为快速、便携测量燃料组件²³⁵U 富集度的有效手段, 不适于作为燃料组件管理和运输过程中铀同位素富集度的测量验证手段。为此, 研发一种以小型中子发生器(14 MeV 中子源)为激发源的快速、便携测量燃料组件²³⁵U 富集度方法。依据特定裂变核素平均产额之比与²³⁵U 富集度的近似线性相关性, 成功地测量了²³⁵U 富集度范围为 10%~90%铀样品。

关键字: 研究堆; ²³⁵U 富集度; 裂变产物; 小型中子发生器(密封中子管)

中图分类号: TL275 **文献标志码:** A

0 前 言

燃料组件²³⁵U 富集度测量普遍采用质谱法^[1-2]和中子活化法^[3]。质谱法需要处理样品进行分析, 是一种破坏性分析方法。堆中子活化法的中子源是反应堆, 样品需要放置到反应堆中子活化通道中进行测量, 不能对²³⁵U 富集度直接测量; 同位素中子源活化法的中子能谱固定, 能量连续不可调节且存在中子源运输和贮存问题, 限制了其使用范围。

为了解决燃料组件²³⁵U 富集度测量方法中存在的不足, 需选取可用于现场活化分析、能量单一稳定的激发源进行²³⁵U 富集度测量。小型中子发生器(密封中子管)是一种非常好的活化分析激发源, 具有体积小、携带方便、可通过电源开关控制其开启等优点, 已越来越被广泛用作现场活化分析(如测井)的常用中子源, 可作为燃料组件²³⁵U 富集度现场测量的激发源。目前尚未见到应用中子发生器激发产生的 14 MeV 中子诱发裂变测量²³⁵U 富集度的报道, 本研究以中子发生器 T(d,n)He 反应产生的 14 MeV 中子作为激发源, 对²³⁵U 富集度范围为 10%~90%铀样品进行测量计算, 研究诱发裂变铀样品产生的 2 种裂变核素平均裂变产额之比与铀样品中²³⁵U 富集度之间可能存在的关联; 结果表明 2 者间近似呈线性关系, 为运用小型中子发生器进行研究堆燃料组件²³⁵U

富集度的测量方法研究提供了实验基础。

1 14 MeV 中子测量²³⁵U 富集度的方法原理

中子诱发²³⁵U 裂变质量分布图和不同裂变质量分布图^[4]表明, 14 MeV 中子照射不同富集度铀样品时, 对于²³⁵U、²³⁸U 特定的某个裂变核素, 其裂变产额是不同的。据此可以假设: 铀样品裂变产生的 2 种裂变核素平均裂变产额之比与铀样品中²³⁵U 富集度之间存在某种关系。由平均裂变产额计算公式可知, 2 种裂变核素平均裂变产额之比与²³⁵U 富集度的关系函数较为复杂。

$$\bar{Y}_i = \frac{Y_{i^{235}\text{U}} H_0 \delta_{235\text{U}} + Y_{i^{238}\text{U}} (1 - H_0) \delta_{238\text{U}}}{H_0 \delta_{235\text{U}} + (1 - H_0) \delta_{238\text{U}}} \quad (1)$$

式中, \bar{Y}_i 表示某裂变核素的平均裂变产额; $Y_{i^{235}\text{U}}$ 表示²³⁵U 裂变后某裂变核素的产额; $Y_{i^{238}\text{U}}$ 表示²³⁸U 裂变后某裂变核素的产额; H_0 表示²³⁵U 的富集度; $\delta_{235\text{U}}$ 表示²³⁵U 的裂变截面; $\delta_{238\text{U}}$ 表示²³⁸U 的裂变截面。

为了使本文方法能较好地适用于现场²³⁵U 富集度的测量, 选取与²³⁵U、²³⁸U 裂变后的裂变产额有较大差异的核素⁸⁸Rb 和¹⁰⁴Tc, 计算不同²³⁵U 富集度(富集度范围 10%~90%)裂变产生⁸⁸Rb 和¹⁰⁴Tc 的平均裂变产额。通过拟合这 2 种核素平

均裂变产额比值与不同 ^{235}U 富集度的关系,发现在 10%~90% ^{235}U 富集度范围内, ^{235}U 富集度与 2 种核素平均裂变产额比值之间近似呈线性关系,相关系数为 0.9998 (图 1)。该理论结果一定程度上简化上述 2 个变量间的关系,为开展后续试验奠定了基础。

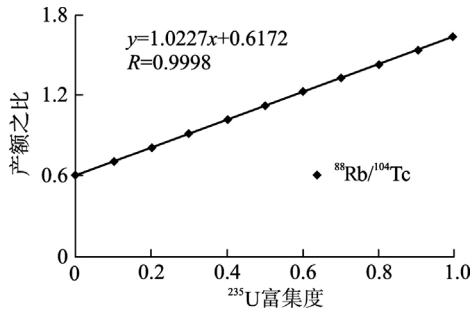


图 1 裂变产物 ^{88}Rb 和 ^{104}Tc 的平均产额之比与 ^{235}U 富集度关系曲线

Fig. 1 Curve Relating Average Yield Ratio of Fission Products ^{88}Rb and ^{104}Tc to ^{235}U Abundance

2 实验结果与讨论

2.1 试剂与样品制备

将标准物质 U_3O_8 (GBW-04205, 富集度 0.71%) 和 90.2% 的高浓铀 (^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{236}U 、 ^{238}U 的质量富集度分别为 1.1%、90.2%、0.3%、8.4%) 按一定比例配制成不同 ^{235}U 富集度的 9 个样品 (表 1)。样品质量在 1.7 g 左右,在其中加入 5% 的纤维素,经研磨后,用压片机压制制成直径为 18 mm 的圆片。

表 1 混合标准样品成份

Table 1 Mixed Standard Sample Components

标准物质 质量/g	高浓铀质量 /g	样品片净质量 /g	^{235}U 富集度 /%
0	1.8076	1.7744	0.722
0.089	1.7159	1.7484	5.16
0.1803	1.6201	1.7424	9.73
0.3582	1.4358	1.6129	18.7
0.5384	1.2537	1.6108	27.7
0.7175	1.0927	1.7544	36.3
1.1020	0.7241	1.7498	54.9
1.4423	0.3651	1.7532	72.2
1.7987	0	1.7452	90.2

注:富集度的不确定度约为 1%

2.2 测量与讨论

2.2.1 分析测量方法 样品经 14 MeV 中子照射后,分别测量 9 个样品中的 8 个监测体 (其中 1 个样品作为验证) 中 2 种裂变核素平均产额比 ($^{92}\text{Sr}/^{135}\text{I}$ 、 $^{92}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$ 、 $^{87}\text{Kr}/^{104}\text{Tc}$ 、 $^{88}\text{Rb}/^{104}\text{Tc}$ 、

$^{105}\text{Ru}/^{107}\text{Rh}$ 、 $^{88}\text{Rb}/^{107}\text{Rh}$ 、 $^{92}\text{Sr}/^{104}\text{Tc}$), 绘制它们与 ^{235}U 富集度的关系曲线,结果表明: $^{92}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$ 平均产额比与铀同位素富集度 (10%~90%) 存在很好的线性关系^[5-6],线性相关系数为 0.992。经铀同位素富集度为 72.2% 的模拟样品验证,表明该曲线可作为 ^{235}U 富集度测量的工作曲线 (图 2)。

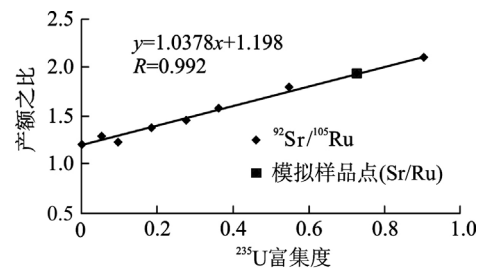


图 2 裂变产物 ^{92}Sr 和 ^{105}Ru 的平均产额之比与 ^{235}U 富集度关系曲线

Fig. 2 Curve Relating Average Yield Ratio of Fission Products ^{92}Sr and ^{105}Ru to ^{235}U Abundance

2.2.2 分析方法精密度 针对研究堆燃料组件 ^{235}U 富集度大多在 10%~20% 范围内的情况,为验证该方法在 ^{235}U 富集度为 20% 附近的精密度,对 ^{235}U 富集度为 27.7% 的样品分别做了 3 个平行样品测量。表 2 显示出该分析方法的精密度优于 3%。

表 2 方法精密度数据

Table 2 Precision Data

监测体	样品 1 富集度	样品 2 富集度	样品 3 富集度	相对标准 偏差/%
$^{92}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$	26.2%	23.7%	28.7%	2.5

2.2.3 铝器壁干扰实验 为满足研究堆燃料组件 ^{235}U 富集度的测量要求,本分析方法还考虑了燃料组件 ^{235}U 富集度测量过程中组件包壳的影响。实验采用厚度为 3 mm 的铝片模拟研究堆燃料组件包壳,分别对 ^{235}U 富集度为 0.722%、27.7% 和 90.2% 的监测体进行分析 (图 3)。图 3 表明有铝器壁干扰情况下的关系曲线整体依旧呈线性相关,有无铝器壁的测量结果相对误差小于 1.81%。结果表明关系曲线 ($y=1.0378x+1.198$) 能满足研究堆铝包壳燃料组件 ^{235}U 富集度的测量。

3 结 论

(1) 在中子活化基础上提出了用 T(d,n)He 反应产生的 14 MeV 中子诱发裂变铀样品测量 ^{235}U 富集度的方法。该分析方法利用 ^{235}U 富集度与特定裂变产物 ($^{92}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$) 平均产额比近似呈线性

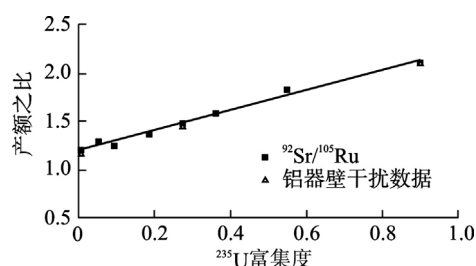


图3 铝器壁工作曲线

Fig. 3 Working Curve of Aluminum Wall

关系的特点 ($y=1.0378x+1.198$) 进行 ^{235}U 富集度测量, 通过 ^{235}U 富集度 72.2% 样品验证和 ^{235}U 富集度 27.7% 3 个平行样的测量, 表明对于 ^{235}U 富集度 27.7%, 精密度优于 3%。

(2) 针对我国大多研究堆燃料组件的铝包壳, 本文对 ^{235}U 富集度测量工作曲线进行了铝器壁干扰实验, 结果表明铝器壁对 ^{235}U 富集度测量结果影响较小, 与无铝器壁测量结果的相对误差不大于 1.81%, 且总体仍呈线性关系。

(3) 本文主要针对 ^{235}U 富集度在 10%~90% 范围的样品进行了实验, 结合我国研究堆燃料组件 ^{235}U 富集度的范围 (10%~20%), 表明本分析

方法适用于研究堆燃料组件 ^{235}U 富集度的测量验证。

(4) 本分析方法为以小型中子发生器 (密封中子管) 为激发源建立一种快速、便携地测量研究堆燃料组件 ^{235}U 富集度的方法和装置提供了实验基础。

参考文献:

- [1] Moral J, Etcheverry M. Uranium enrichment measurement by X-and γ -ray spectrometry with the "URADOS" process[J]. Appl Radiat Isot, 1998, 49(9-11): 1251-1256.
- [2] 唐培家, 李鲲鹏. γ 能谱法测定铀、钚同位素富集度[J]. 同位素, 2001, 14: 3-4.
- [3] 张存和, 刘伯里. 用中子活化分析法测定铀同位素富集度比[J]. 核化学与放射化学, 1982, 4(3): 25-28.
- [4] 张丕禄. 裂变化学[M]. 北京: 原子能出版社, 1996.
- [5] 雷巴可夫 B B, 西道洛夫 B A. 快中子能谱测量[M]. 中国科学院原子核科学委员会编辑委员会译. 北京: 科学出版社, 1961.
- [6] 卢玉楷. 简明放射性同位素应用手册 [M]. 北京: 原子能出版社, 2001.

Study on Measurement Method of ^{235}U Isotope Abundance of Fuel Assembly for Research Reactor Based on a Compact Neutron Generator

Zhang Min, Cao Fangfang, Que Ji

Nuclear and Radiation Safety Center, MEP, Beijing 100082, China

Abstract: Neutron activation analysis and mass spectrometry are used as ^{235}U isotope abundance of fuel assembly. Neutron activation analysis and mass spectrometry can't be used as an effective measurement means of the ^{235}U Isotope Abundance of Fuel Assembly. Meanwhile they aren't also used as a verification mean of ^{235}U isotopic abundance the fuel assembly management and transportation because of their shortcomings of large measurement equipment and sampling. So based on a compact neutron generator, a rapid and portable measurement method for ^{235}U Isotope Abundance of Fuel Assembly is significant. According to the linear correlation relating the ratio of average yield for the specific fissile nuclides to ^{235}U Isotope Abundance, the samples whose ^{235}U Isotope Abundance is 10%~90% are successfully measured. It provides the experimental basis for the verification of ^{235}U Isotope Abundance of the fuel assembly for the research reactor.

Key words: Research reactor, ^{235}U Isotope abundance, Fission product, Compact neutron generator (sealed neutron tube)

作者简介:

张敏 (1982—), 男, 工程师。2009 年毕业于中国原子能科学研究院核燃料循环与材料专业, 获硕士学位。现在主要从事核燃料循环设施和放射性物品运输活动的审评工作。

曹芳芳 (1980—), 女, 高级工程师。2005 年毕业于北方交通大学运输管理专业, 获硕士学位。现在主要从事放射性物品运输活动的审评工作。

阙骥 (1982—), 男, 工程师。2006 年毕业于中国原子能科学研究院核燃料循环与材料专业, 获硕士学位。现在主要从事核燃料循环设施的审评工作。

(责任编辑: 刘君)