

文章编号: 0253-9950(2002)04-0214-04

探测封装浓缩铀属性的 γ 无损分析方法

李鲲鹏, 赵学军

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:通过探测 ^{232}U 衰变子体核素 ^{208}Tl 的2 614. 75 keV 特征 γ 射线能峰, 确定铀样品中存在的 ^{232}U 。用理论分析和 γ 能谱分析验证了从铀-钍循环中得到的浓缩铀会有少量 ^{232}U 的积累或玷污, 并且在较厚金属屏蔽的情况下也可以有效测定2 614. 75 keV 能峰。

关键词:核保障; 浓缩铀; γ 无损分析

中图分类号: O614. 62 **文献标识码:** A

高浓缩铀(HEU)是指 ^{235}U 的富集度 $\geq 20\%$ 的浓缩铀^[1], 它是制造核武器部件的关键裂变材料之一。在核保障现场视察中, 非常重视对浓缩铀属性的测量。目前通常运用 γ 射线探测器进行浓缩铀的富集度测量, 运用中子探测技术进行浓缩铀含量的测量^[2,3]。为了提高核保障中核查测量与核材料透明性监测技术的能力, 防止在核查的同时泄露有关的保密信息, 国际上相继开展了一些具有新特点的核材料核查技术的研究, 如在美俄双方的核材料透明监测中, 在核查测量仪器中设置了信息壁垒以保护保密信息。美国Lawrence Livermore 国家实验室开发了Pu-300、Pu-600及Pu-900等软件, 用以对含钍物料的生成年龄、同位素组成及形态进行分析^[4]。

γ 无损分析(以下简称NDA)是一种比较简便的分析技术, 具有不破坏、不改变样品形态的特点。运用 γ 射线探测器测量特种核材料(铀、钍)自身及衰变子体的特征 γ 射线, 可以分析核材料的有关信息(同位素富集度、年龄、历史等)^[5], 因此 γ 无损分析技术在核保障的核查测量以及核材料的透明性监测中得到了广泛的应用。

本文通过理论分析认为从铀-钍循环中得到的浓缩铀会有少量 ^{232}U 的积累或玷污, 并用实验

和 γ 能谱分析验证: 可以通过测定 ^{232}U 的子体 ^{208}Tl 的2 614. 75 keV 特征 γ 射线对封装浓缩铀属性进行辅助判断。

1 实验部分

1.1 实验原理

分析铀样品的富集度, 一般先测定铀样品 γ 射线自发能谱中 ^{235}U 的186 keV 和 ^{238}U 衰变平衡子体 $^{234}\text{Pa}^m$ 的1 001 keV 能峰的面积, 然后刻度探测效率, 最后通过计算相对活度可以得到 ^{235}U 的富集度。最新的能谱分析方法利用 ^{235}U 和 ^{238}U 衰变平衡子体的一族特征 γ 射线, 通过相对效率曲线刻度方法得到样品的富集度信息^[5]。

核材料通常存放于专门的容器中, 且核材料物件具有密实和分布不均匀的特点。 ^{235}U 的特征 γ 射线能量较低, 很难穿透较厚的封装屏蔽。因此, 使用一般的NDA方法, 无法确定封装容器中的裂变材料是否为高浓缩铀(HEU)。文献[6]中提到了一种可替代一般的分析铀属性的NDA方法, 即通过测定样品中可能包含的 ^{232}U 的衰变子体核素 ^{208}Tl 高能特征 γ 射线2 614. 75 keV 能峰来判断被测封装样品是否为HEU。

^{232}U 不是天然存在的, 它是堆照天然铀

收稿日期: 2002-03-26; 修订日期: 2002-04-29

作者简介: 李鲲鹏(1977—), 男, 河北深县人, 硕士, 核保障。

(^{234}U , ^{235}U , ^{238}U) 产生的核素。对于采用气体扩散工艺,使用从乏燃料中提取的铀作为原料进行浓缩生产的 HEU, ^{232}U 的存在可以被看作是 HEU 存在的一个判据。在浓缩过程中, ^{232}U 伴随 ^{235}U 进入轻同位素组份而被逐渐富集。在这个过程中,富集轻组分的管道中往往会有 ^{232}U 的沉积;对于使用并不含有 ^{232}U 的天然铀原料生产的 HEU,也会产生一定程度的玷污。对于后者, ^{232}U 在 HEU 中的含量通常较低。但由于 ^{232}U 的 α 衰变子体 ^{228}Th 及其一系列子体核素的半衰期都比较短,放射性比活度相对较高。因此,能够在 HEU 的 γ 射线谱中观测到能量为 2 614.75 keV 的 γ 射线峰。

^{232}Th 衰变系列是天然放射性本底的主要来源之一,是可能对 ^{232}U 及子体放射性测量产生干扰的主要因素。 ^{232}Th , ^{232}U 的衰变纲图示于图 1。由图 1 可见, ^{228}Th 也可以由 ^{232}Th 衰变产生^[6]。但是 ^{232}Th 衰变到 ^{228}Th , 先要经过 ^{228}Ac 的衰变。 ^{228}Ac 有较强的能量为 911 keV 的特征 γ 射线。因此,来自 ^{232}Th 衰变系列的 2 614.75 keV γ 射线要与 911 keV γ 射线相伴存在。由 ^{232}U 衰变至 ^{228}Th , 则不会产生 911 keV 的 γ 射线。所以通过对 2 614.75 keV 能峰的测定,并参看 911 keV 能峰是否存在,可以判断样品中是否含有 ^{232}U , 从而可以判定被测物料是不是 HEU。

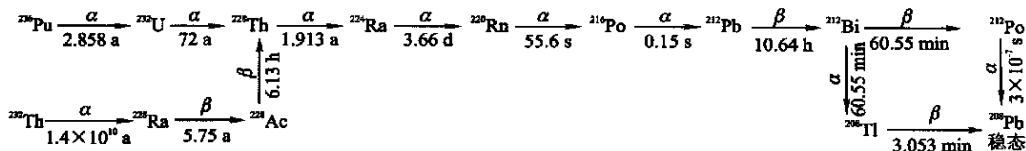


图 1 ^{232}Th , ^{232}U 的衰变系列

Fig. 1 Decay series of ^{232}Th and ^{232}U

1.2 实验样品

金属高浓铀样品 2 个,圆片状,直径 16 mm,质量为 1 g 左右,铝箔包装;粉末状高浓铀样品 1 个,含 U_3O_8 粉末 2.38 g,用直径为 12 mm,高 32 mm,厚度 1 mm 的铝质柱状容器包装;低浓铀样品 1 个,含 UO_2 粉末 2.00 g,用直径为 12 mm,高 30 mm,厚度 1 mm 的聚乙烯柱状容器包装;贫化铀样品 1 个,含 UO_2 粉末 1 g,圆片状,直径 16 mm,质量为 1 g 左右,铝箔包装;天然铀样品 1 个,为国际标准样品 CBNM071。

1.3 仪器与实验条件

美国 CANBERRA 公司 GX3019 同轴型高纯锗探测器,ORTEC 公司 GMX-20190 同轴高纯锗探测器,相对探测效率分别为 30%, 20%; ORTEC 公司的 DSPEC 谱仪;Gamma Vision 32 软件,用于获取数据以及进行初步的峰面积计算;Pc/FRAM 软件,用于分析样品的富集度。

测量环境:HPGe 探测器的周围用 5 cm 厚的铅进行屏蔽,样品至 HPGe 探测器前端面的距离为 4 cm,样品与探测器之间放置 1 mm 厚的铜和 1 mm 厚的镉吸收片以降低 X 射线的强度,测定环境本底时未加任何屏蔽体和吸收片。

仪器参数设置:测量样品的 HPGe 探测器工作偏压为 - 3 000 V,ADC 设置为 8 192 道。谱仪增益调整为 0.125 keV/道时,调节极零补偿,使其能量分辨达到最佳,进行同位素富集度分析;将谱仪增益调整为 0.388 5 keV/道,以便能测到 2 614.75 keV 的 γ 射线峰,其它测量条件均不变,进行峰面积分析。每次测量时间均为 2 h。

2 结果和讨论

以 ^{235}U 的 186 keV, ^{228}Ac 的 911 keV, ^{238}U 的 1 001 keV, ^{232}U 的 2 614.75 keV 为特征峰,在相同条件下测量并计算相应能峰的净计数率。分别用 GammaVision, Pc/FRAM 软件计算能谱的峰面积,样品的富集度实验分析结果与标称富集度在 2% 的误差内一致。使用 GMX20190 高纯锗探测器,在未加屏蔽体的情况下,测量环境本底 7 h,在环境本底能谱中可以看到 2 614.75 keV 峰和 911 keV 峰。在相同条件下,使用 GX3019 高纯锗探测器,在加 5 cm 厚铅屏蔽体的情况下测量环境本底 2 h,基本看不到 911 keV 峰。

在加屏蔽体的条件下,使用 GX3019 高纯锗探测器测量各样品的结果列入表 1。从表 1 可以

看出：

(1) 低浓铀样品和贫化铀样品的能谱中，2 614. 75 keV能峰的计数率很低，说明所探测到的 2 614. 75 keV 峰的计数率主要来自天然本底的贡献。在这 2 个样品的能谱中，都未能测到 911 keV 峰的计数。其主要原因是使用了 5 cm 厚的铅屏蔽体。高浓铀的 2 614. 75 keV 峰的计

数率与低浓铀和贫化铀相差较大。

(2) 在探测器和金属高浓铀样品之间，增加 6 mm 厚的不锈钢吸收片后，²³⁵U 的 186 keV 能峰计数率衰减四分之三还强，²³⁸U 的 1 001 keV 的能峰计数率衰减约二分之一，而 2 614. 75 keV 的能峰计数率只衰减约三分之一。

表 1 铀样品的感兴趣能区计数率
Table 1 The counting rates of the interest region of uranium samples

样品 (Samples)	富集度 (Enrichment) / %	N / s ⁻¹			
		186 keV	911 keV	1 001 keV	2 614. 75 keV
高浓铀 (HEU)	90	678. 03	-	0. 07	15. 26
低浓铀 (LEU)	2. 94	18. 96	-	0. 81	0. 13
贫化铀 (Depleted uranium)	0. 32	2. 31	-	0. 50	0. 03
金属高浓铀 (Metal HEU)	90	788. 66	-	0. 09	2. 75
金属高浓铀 (Metal HEU) *	90	211. 25	-	0. 05	1. 72

注 (Note) : “*”表示加吸收片 (The absorber is used)

对于封装浓缩铀样品，使用常规的 γ 非破坏性方法无法得到铀样品的属性时，可以通过对 2 614. 75 keV γ 能峰的测定来定性判断被测铀样品是否为高浓铀。但这种方法仅限于曾使用过堆后料为原料的铀扩散浓缩厂生产出来的高浓铀。且在执行过程中，还有以下几点值得注意：

(1) 本方法适用于核燃料循环中铀回收利用阶段的核材料保障问题，区别于堆照元件的核查测量，因为低浓铀经过堆的照射，也会含有可探测量的²³²U，对于这一部分的封装核材料的核查测量问题，必须提出进一步的解决方案。

(2) 目前富集高浓铀的生产工艺主要有两种：扩散法和离心法。由于实验条件的限制，本实验只能够验证使用扩散法工艺生产的，利用堆后料为原料的高浓铀中是否有²³²U，通过离心法生产的高浓铀是否可以通过本方法进行检测还要进一步通过实验进行验证。并且，由于铀元件的浓缩跟生产厂的生产历史相关，因此高浓铀²³²U 的含量并不是一个固定的常数。

(3) 从图 1 可以看到，²³⁶Pu 的半衰期为 2. 9 a，通过 α 衰变为²³²U 并存留在部件容器中，在测量对象未知的情况下，可以探测到 2 614. 75 keV 能峰，在生产武器级钚的过程中会有微量的²³⁶Pu，但是这种情况并不会出现虚警，因为对钚的探测有更具体的方法^[4]。

3 结 论

使用或者曾经使用堆后料作为浓缩铀的原料时，原料中的²³²U 或者生产管道中玷污的²³²U，在扩散工艺的生产过程中，会被富集到高浓铀中。本文验证了可以通过探测 2 614. 75 keV γ 能峰来测定铀样品中的²³²U，从而确定封装浓缩铀样品的属性。

致谢：本实验是在唐培家研究员和刘大鸣研究员的精心指导下完成的，在此表示衷心的感谢。

参考文献：

[1] International Atomic Energy Agency. IAEA/SG/INF/1 (Rev. 1). IAEA Safeguards Glossary [S]. 1987. 11.

[2] SAMPON T E. Gamma-Ray Isotopic Analysis Development at Los Alamos [R] : LA-13667. Los Alamos : LANL ,1999.

[3] International Atomic Energy Agency. IAEA/SG/INF/5. Safeguards Techniques and Equipment [S]. 1984.

[4] LUKE S J , ARCHER D E. Gamma Attribute Measurement- Pu-300 ,Pu-600 ,Pu-900[Z]. [s.l.] : s. n.

[5] REILL Y Doug , ENSSLH Norbert , SMITH Hastings. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials[Z]. Office of Nuclear Regulatory Research ,



1991.

子能出版社,1982. 433 ~ 439.

[6] 刘运祚. 常用放射性核素衰变纲图[M]. 北京:原

RESEARCH ON A METHOD OF SHIELDED HEU ATTRIBUTION MEASUREMENT

LI Kun-peng, ZHAO Xue-jun

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(48), Beijing 102413, China

Abstract: A special assay method that determining the high energy gamma ray 2 614. 75 keV from ^{208}Tl , the daughter of ^{232}U is presented. By which the attributes of uranium can be learned about. The theoretical analysis and experiment results prove that HEU from U-Pu cycle contains a few ^{232}U . The gamma ray 2 614. 75 keV can be detected even under the condition of thick shield. It is proved that this method is feasible to determine HEU.

Key words: nuclear safeguards; HEU; gamma ray non-destructive assay

“第九届环境和生物样品中 铀系元素及长寿命核素低水平测量国际会议”通知

The 9th International Conference on Sampling and Low Level Measurements

由中国核学会主办,中国原子能科学研究院及国内相关单位承办的“第九届环境和生物样品中铀系元素及长寿命核素低水平测量国际会议”(自第 9 届会议开始,会议英文名改为“9th sampling and low level measurement”)定于 2003 年第三季度在北京举行。具体日期另行通知,现将会议有关事宜通知如下:

学术研讨和交流内容包括:(1)样品采集;(2)方法学进展;(3)废物处理及退役中的分析监控技术;(4)内照射生物监测及评价;(5)体内核素的分布;(6)环境行为;(7)质量控制。

论文经审稿合格后,拟装订成册,请参加会议者准备论文详细摘要(两份)及软盘(或光盘),务请于 2003 年 3 月 31 日前寄至:北京 275 信箱 24 分箱,赵志强收(邮编:102413);也可通过电子邮件发送(E-mail:liunu@iris.ciae.ac.cn)。

中国核学会国际会议组委会

2002 年 8 月 25 日