

# 核安全保障非破坏性分析研究与发展(I)

朱荣保

(中国原子能科学研究院, 北京)

本文阐述了国外核材料安全保障非破坏性分析研究发展的最新情况, 包括技术开发的国际合作概况和部分重要研究课题的进展: (1)  $\gamma$ 能谱法测定钚同位素丰度; (2) 钚溶液的浓度测量技术; (3) 混合式K-边界密度计/XRF; (4) 乏燃料核查仪器; (5) 分段 $\gamma$ 吸收扫描法; (6) 无源中子符合计数法测定钚含量; (7) 有源中子质询法。

**关键词** 核安全保障, 核材料衡算, 非破坏性分析。

## 一、引言

核安全保障的目的在于防止核材料非法或不合条约的应用。在国际上, 国际原子能机构(IAEA)建立了核安全保障系统(INFCIRC/66/Rev, INFCIRC/153), 通过与成员国签订各种双边或多边核保障条约, 对成员国部分或全部核活动实行保障监督, 成为国际核安全保障体系的主要探测手段。除此以外, 尚有地区性监督机构, 如欧洲原子能联营核安全保障理事会(ESD)和国内监督机构, 如美国的核管会(NRC)、能源部(DOE), 苏联的国家原子能利用委员会(SCUAE), 日本的科技局(STA)和核材料控制中心(NMCC)等。

核安全保障是通过核查成员国或国内被监督核设施的部分或全部核活动来实现的。最基本的核查措施是对核材料的衡算, 结合使用封隔和监视作为辅助措施。国际或国家视察员使用各种非破坏性分析(NDA)仪器、仪表, 在现场对设施营运者所申报的核材料所在地、性质和数量进行核查。而设施营运者也采用各种NDA设备分析难于取样或需快速测定的核原料、废料和产品, 达到核材料衡算或工艺流程控制的目的。监督机构要求NDA仪器、仪表小型化、可携带、快速测定并对设施运行干扰小, 而为设施运行设计的设备主要考虑工厂流程控制的要求和便于维护、维修等。

60年代以后, 核材料NDA方法和设备研究已成为核安全保障和核材料管理方面最活跃的研究领域之一。有关的研究进展通常集中在下述国际会议上交流: (1) 由IAEA主办或联合举办的国际核材料安全保障技术讨论会或核燃料循环方面的其他会议; (2) 由核材料管理学会(INMM)主办的核材料管理学会年会; (3) 由欧洲核保障分析研究与发展协会

1989年7月17日收到。

(ESARDA) 主办的核安全保障及核材料管理年会; (4) 由美国核学会每三年举办的核安全保障专题会议。

## 二、核安全保障用NDA研究和发展概况

### 1. 核安全保障用NDA技术开发的国际合作

IAEA国际核保障技术开发主要依赖于成员国自愿提供的技术援助计划。自1979年以来, IAEA与澳大利亚、比利时、加拿大、法国、西德、意大利、日本、英国、美国、苏联等国家以及欧洲原子能联营签订了合作协议。这些联合开发计划1985年度的总经费为1400万美元, 1984—1985年总项目数为314项, 其中仪器、仪表、方法、技术占163项。由IAEA核安全保障司发展和技术支持处处长与成员国有关联络员具体联系, 每年至少进行一次双边审查会议, 讨论进展情况, 提出新课题。另外, 每两年举行一次所有援助计划协调员参加的会议, 讨论多边合作事宜, 并通报其他援助计划的进展。美国自1976年开始建立国际核安全保障技术援助计划(POTAS), 约承担IAEA全部仪器、方法、系统、训练等技术开发的一半。由美国国务院、能源部、核管会、军备控制与裁军署管辖的国际核保障项目办公室(ISOPO)协调每年约100个援助项目。其中A类为仪器、仪表、方法、技术的发展项目。由洛斯阿拉莫斯国立实验室(LANL), 布鲁克海文国立实验室(BNL), 阿贡国立实验室(ANL), 劳伦斯利弗莫尔国立实验室(LLNL), 橡树岭国立实验室(ORNL), 萨凡那河工厂(SRP), 爱达荷工厂(Idaho), 蒙特工厂(Mound), 国家标准局(NBS), 桑迪厄国立实验室(SNL)等承担, 并由Eberline, Canberra, National Nuclear和IRT等核仪器公司参与开发。IAEA还有一些多国合作研究计划, 开发一些重要的、耗资较多的核安全保障项目, 例如: (1) 后处理工厂近实时材料衡算国际合作组; (2) 同位素稀释树脂颗粒技术分析乏燃料溶解液; (3) 日本东海村先进的核安全保障论证实验(TASTEX); (4) 远程连续核查系统(RECOVER); (5)  $^{235}\text{U}$ 超离心浓缩厂安全保障项目; (6) 核安全保障有效性评价方法学; (7) NDA设备现场试验等。

### 2. 近年来正在执行或已完成的NDA援助项目

表1为1988年度正在执行或完成的IAEA核安全保障NDA项目表。所列项目不包括某些国家自筹的设施用NDA仪器、仪表、方法、技术的研究课题, 例如下述设施用大型设备或专用仪器: (1) 分段扫描式 $\gamma$ 吸收能谱装置(SGS); (2) 间歇中子质询缓发中子测定装置; (3)  $^{252}\text{Cf}$ 中子质询缓发中子或 $\gamma$ 射线铀棒扫描装置; (4) 在线 $\text{LiH}$ -边界或K-边界密度计; (5) 管线或设备内铀、钚滞留量测定仪器; (6)  $\gamma$ 源激发管道内可裂变材料X射线测定仪器; (7) 在线气体 $\text{PuF}_6$ ,  $\text{PuF}_4$ 中Pu同位素丰度测定装置; (8) 各种动态核材料衡算及控制系统等。

表1 国际核安全保障NDA技术开发分类项目表\* (部分)

| 类 别 | 项 目 内 容               | 承担国家、单位及项目编号                           |
|-----|-----------------------|----------------------------------------|
|     | $\gamma$ 能谱法测定Pu同位素丰度 | 美国LLNL (USA-A138)<br>西德KfK (GFR-C.3.1) |

续表1

| 类 别              | 项 目 内 容                                                                                                                   | 承担国家, 单位及项目编号                                                                                                                                                                                                                                        |
|------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 无源<br>γ射线<br>计数法 | 乏燃料切伦科夫观察镜<br><br>后处理厂废包壳中残留铀测定<br>核废料γ计数装置<br>UF <sub>6</sub> 桶γ计数装置<br>WWER-440燃料元件γ计数装置                                | 欧洲原子能联营ENEA<br>比利时SCK/CEN, TRC (BEL-M.5)<br>意大利ENKE, ENKA (A.03, A.07)<br>加拿大AECL-AECB (V-2, 8, 9)<br>日本CRIEPI (JD-10)<br>美国ISPO (USA-E58)<br>意大利ENEA (D-03)<br>意大利ENEA/R.O./I, Cogema (A-05)<br>法国SCMN-CEA (FRA-A-03)<br>苏联RSRIRI, Riga (SSR-2-3-1) |
| 有源<br>γ射线<br>计数法 | K-边界密度计<br><br>混合式K-边界密度计/XRF<br><br>双能量L-边界X射线吸收计<br>无源γ计数/XRF UF <sub>6</sub> 管线丰度测定<br>γ透射/压力-温度法测定 <sup>235</sup> U丰度 | 美国LANL (USA-A.114), (USA-A.79)<br>西德KfK (GFR-C.2)<br>英国UKAEA (A-2)<br>西德KfK (GFR-C.17, C.22)<br>美国LANL<br>意大利ENEA/R.O./I (A-01)<br>日本PNC (JC-6)<br>日本PNC (JC-8)                                                                                      |
| 无源<br>中子计数<br>法  | 无源中子符合计数器(HLNCC, PHONID)<br><br>乏燃料核查仪 (ION-1 FORK)                                                                       | 美国LANL (USA-A.115, A.121)<br>苏联SRIAR (SSR-2-6)<br>比利时SCK/CEN, JRC (BEL-M8.9)<br>美国LANL (USA-A.97, A.130)<br>法国SEN-CEA (FRA-A-02)<br>比利时SCK/CEN, Tihange (BEL-M8.9)                                                                                   |
| 有源<br>中子质<br>询法  | 中子质询/中子符合计数装置<br>(AWCC, NCC, PHONID4)<br><br>中子质询/γ能谱计数装置                                                                 | 美国LANL (USA-A150, A154)<br>英国UKAEA (B.1, B.4)<br>欧洲原子能联营JRC Ispra<br>苏联USRII (SSR-2-5)                                                                                                                                                               |
| 其<br>它<br>类      | 大型Pu量热计及快速测定法<br><br>超声测量D <sub>2</sub> O浓缩度<br>测压元件称重UE <sub>6</sub> 桶<br>后处理厂首端计量罐体积, 密度测量<br><br>FBR MOX组件远程连续监督       | 美国ANL (USA-A141)<br>美国LANL (USA-A110)<br>英国UKAEA (B.13)<br>欧洲原子能联营JRC Ispra<br>美国BNL/TSO (USA-A111)<br>美国MMES/ORNL (USA-A137)<br>美国BNL/TSO (USA-A152)<br>意大利ENEA (AD.04)<br>日本JAERI (JA-1)<br>美国LANL (USA-A131, A149)                                |

• 注: 1988年完成或正在执行的项目。

### 三、核安全保障NDA若干研究课题的进展情况

#### 1. $\gamma$ 能谱法测定Pu同位素丰度

1974年美国LLNL的R. Gunnink<sup>[1,2]</sup>首次发表了高分辨 $\gamma$ 能谱仪用于分析固体或液体样品中Pu的同位素丰度的结果。并于1975年设计了计算机程序RATIO以分析 $^{240}\text{Pu}$ 含量较低样品的Pu同位素比率。1979年又发展了MGA专用软件包,该软件包需要低能和中能两个探测器,其中中能探测器用于测定332—345keV和367—380keV区域能谱。1987年R. Gunnink<sup>[3]</sup>推出了改进的MGA2,只需要一个HPGe探测器,覆盖59—208keV能区。该软件包的特点是充分利用94—104keV区域Pu的多种同位素与 $^{241}\text{Am}$ 的14条很强的 $\gamma$ 或X射线。将方法的应用范围扩大到:

- (1) 新分离的Pu样品,其中 $^{237}\text{U}$ 未达到平衡, $^{241}\text{Am}$ 量很少,正在生长;
- (2) 适用于不同的样品尺寸、形状、Pu浓度、化学组分、均匀度及源与探测器之间的物质吸收;
- (3) 适用于从生产堆到动力堆不同燃耗深度的Pu同位素级别;
- (4) 可探测Pu以外的其他核素,例如 $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ — $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{243}\text{Am}$ — $^{239}\text{Np}$ 和少量的裂变碎片同位素。

MGA2主要提出了新的“本征效率函数”的概念,以考虑覆盖能区内三种物理过程:

(1)  $\gamma$ 射线与探测器的相互作用;(2) 吸收体及介质的作用;(3) 样品中Pu的自吸收效应。在59—208keV区域的10个所选择的峰上建立下述分析函数,然后利用线性最小二乘法解谱,即:

$$A_j = \sum_{k=1}^{3/4} (B_{j,k} \cdot X_k) \cdot e^{-\mu_j^{\text{Cd}} \cdot \text{CD}} \times \frac{1}{\mu_j^{\text{Pu}} \cdot \text{PU}} (1 - e^{-\mu_j^{\text{Pu}} \cdot \text{PU}}) \times \text{eff} (1 + bE_j + cE_j^2)$$

其中  $A_j = j$ 峰面积;

$B_{j,k} = j$ 峰 $k$ 成份的 $\gamma$ 射线分支比率;

$X_k = k$ 成份的每分衰变数;

$\mu_j^{\text{Cd}} = j$ 峰Cd的质量吸收系数;

$\text{CD} = \text{Cd}$ 吸收体的质量 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ );

$\mu_j^{\text{Pu}} = j$ 峰Pu的质量吸收系数;

$\text{PU} = \text{样品中Pu的质量} (\text{g}/\text{cm}^2)$ ;

$\text{eff}$  = 由标准效率曲线获得的探测器效率,  $b$ 和 $c$ 为系数;

$E_j = j$ 峰能量。

MGA2用于液体或 $\text{PuO}_2$ 样品,当 $^{240}\text{Pu}$ 丰度为7.9—24.3%范围内时, $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ 丰度和 $^{241}\text{Am}$ 含量的标准误差分别为0.6%, 0.01%, 0.4—0.7%, 0.3—0.5%, 0.4—0.7%。目前欧洲原子能联营 (EURATOM) 的JRC Ispra准备了多种Pu样品和核能和平利用能源委员会 (ENEA) (Casaccia) 合作评价了各种现有的软件包,例如PUIC (JRC), LAPIS (LANL), GRPAUT (Maund Laboratory), MGA (LLNL) 等在核安全保障分析中应用的性能。美国LLNL最近为IAEA的SAL提供了计算机程序

GRPANAL, 用于分析视察员从现场带回的Pu样品的 $\gamma$ 能谱。

## 2. Pu溶液浓度测量技术 (X射线吸收边界密度计和Pu同位素内标比率法)

重元素的质量吸收系数在(L<sub>III</sub>)和K电子结合能附近有阶跃性变化。1978年美国 LANL 的 T. R. Canada 等<sup>[4]</sup>将这一原理使用到 U, Pu 溶液浓度的非破坏性测定, 并发展为吸收边界密度计<sup>[5,6]</sup>。U, Pu 的 L<sub>III</sub>-边界能量分别为 17.17keV, 18.05keV。边界附近  $\Delta\mu$  值分别为 54.60cm<sup>2</sup>/g 和 51.90cm<sup>2</sup>/g。而 U, Pu 的 K-边界能量分别为 115.60keV, 121.76keV。  $\Delta\mu$  值分别为 3.65cm<sup>2</sup>/g 和 3.39cm<sup>2</sup>/g。L<sub>III</sub>-边界密度计通常使用低能 X 射线光管为透射源, 使用 Si (Li) 探测器测量通过样品后的 X 射线透射谱。在 K-边界密度计中, 则在 Pu K-边界两侧分别采用 <sup>76</sup>Se (121.1keV) 和 <sup>57</sup>Co (122.1keV) 作为透射源, 也可采用 140keV X 射线光管作为透射源。可以采用 HPGe 探测器作为 K-边界密度计透射谱探测器。U 或 Pu 的浓度可按式计算:

$$\rho = \frac{-\ln(T_2/T_1)}{\Delta\mu \cdot X}$$

其中  $T_2/T_1$  = 边界前后样品透射率之比;

$\Delta\mu$  = 边界前后质量吸收系数的变化;

$X$  = 样品厚度。

L<sub>III</sub>-边界密度计通常用于低密度 U, Pu 溶液浓度测量 (10—90g/l), 20min 计数的精度为  $\pm 0.5\%$ 。K-边界密度计可用于较宽的浓度范围 (5—200g/l), 当浓度范围为 30—100g/l 时, 40min 计数的精度为  $\pm 0.5\%$ 。K-边界密度计已用于美国 SRP 工厂、日本 Tokai-Mura 工厂和英国 Dounreay 残渣回收厂的在线 Pu 浓度测量。美国 LANL 为 IAEA 视察员现场使用设计了小型可携带 K-边界密度计<sup>[7]</sup>。

除上述吸收边界密度计以外, 常用于 NDA 法测定 Pu 浓度的方法有 X 射线荧光分析 (XRF) 和无源计数技术。但这三种方法用于很宽的浓度范围 (如 5—300g/l) 时均需要外加 X 或  $\gamma$  射线透射源, 或者测定 K-边界前后透射率的变化, 或者校正样品的自吸收。同时, 有些装置也外加一个计数率监督源来校正计数率损失。因此, 上述三种方法都不是真正的无源计数技术。为了实现无源单探头 Pu 同位素丰度和浓度的同时测定, 1988 年美国 LANL 的 S. T. Hsue 等<sup>[8,9]</sup>发展了一种新的高精度 Pu 浓度测量方法, 称为 Pu 同位素内标比率法 (也称为 Poor Men's Densitometry)。该法不需要任何 X 射线光管或  $\gamma$  射线源作为透射源, 而是利用 Pu K-边界两侧 Pu 样品本身具有的 111keV X 射线 (<sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu 的 UK<sub>L</sub> 线) 和 129keV <sup>239</sup>Pu  $\gamma$  射线峰面积比率变化来测定 Pu 浓度 ( $\Delta E = 18\text{keV}$ ,  $\Delta\mu = 2.2\text{cm}^2/\text{g}$ )。在远距离立体角条件下, 两峰面积比率为:

$$\frac{I(111)}{I(129)} = \frac{\varepsilon(111)}{\varepsilon(129)} \frac{\sum_i X_i f_i}{g_0 f_0} \frac{CF(AT)_{129}}{CF(AT)_{111}}$$

其中  $\varepsilon(111)$ ,  $\varepsilon(129)$  为 111, 129keV 探测效率;

$X_i$  = 各 Pu 同位素 111keV X 射线强度;

$f_i$  = 各 Pu 同位素重量比率;

$g_0$  = <sup>239</sup>Pu 129keV  $\gamma$  射线强度;

$CF(AT)_{111}$ ,  $CF(AT)_{129}$  为 111, 129keV 吸收校正因子。

Pu同位素内标比率法也可以与Pu同位素丰度计算软件连用,正确计算出 $\sum X_i f_i$ ,  $f_i$ 等参数。 $CF(AT)_{129}/CF(AT)_{111}$ 则因两种能量 $\mu$ 值差别大而与Pu浓度之间存在着强烈的函数关系。实验室论证工作表明,对浓度为10—300g/l范围内的浅燃耗Pu样品, $I(111)/I(129)$ 与Pu浓度刻度曲线的拟合精度为 $\pm 0.2\%$ 。实际应用中,对纯Pu产品溶液的预期精度好于 $\pm 1\%$ 。同位素内标比率法测定Pu浓度具有不要求严格的刻度条件的优点:(1)当距离大于2倍样品直径后,所测得比率与样品-探测器距离无关;(2)与探测器的绝对探测效率无关;(3)对低Z或中等Z的样品介质和样品包装,吸收体的变化不灵敏;(4)样品厚度超过15cm后与样品厚度无关。由于上述特点,Pu同位素内标比率法测定Pu浓度可望在核安全保障NDA仪器发展中获得重要的应用,制成供视察员使用的可携带式仪器或安装在后处理厂在线监测管道中或罐中溶液的Pu浓度。

### 3. 混合式K-边界密度计/XRF

1986年,西德KfK的H.Ottmar等<sup>[10]</sup>首先将K-边界密度计和X射线荧光分析两种技术结合在一起研制出混合式K-边界密度计/XRF,旨在解决后处理厂乏燃料溶解液中U, Pu浓度的同时分析,以代替目前IAEA采用的同位素稀释树脂颗粒技术或者设施中常规采用的同位素稀释质谱技术。在这一装置中,以X光管为光源,利用上述K-边界密度计原理,通过测定穿透乏燃料溶解液后的X射线谱在115.6keV U K-边界能量处出现的“断层”来分析铀浓度。同时,在与初始X射线束成 $120^\circ$ 角方向引出在样品中激发的X射线荧光束。借助于X射线荧光谱上Pu  $K\alpha_1$ X射线峰与U  $K\alpha_2$ X射线峰面积比率来获得乏燃料溶解液中Pu/U比率,从而达到同时非破坏性分析U, Pu浓度的目的。H.Ottmar等<sup>[11]</sup>将该装置安装于欧洲超铀元素研究所热室后区,测定从WAK获得的燃耗为30—35GWd/tU的PWR燃料溶解液。其中U/Pu比率为100—150,冷却时间为3年,总 $\beta, \gamma$ 放射性强度为 $(4-7) \times 10^{12}$  Bq/l。当测量1h, U浓度的精度为 $\pm 0.25\%$ 。U/Pu比率测定精度为 $\pm 0.7\%$  (U/Pu=100)。

混合式K-边界密度计/XRF实际用于后处理厂在线分析,不仅需要解决一些管理问题,例如与同位素稀释质谱法方案比较,设备的现场维修、维护;也需解决一些技术问题,例如,样品取样、输送及样品代表性等。采用更快速的脉冲分析电路,可以进一步提高XRF的计数率和Pu  $K\alpha_1$ 峰的精度,从而提高Pu浓度测定精度。意大利支助项目A-04,先进的快脉冲处理器(ENEA/I)和西德支助项目GFR-C14.9, Harwell脉冲处理器系统试验(JRC-Ispra, KfK)均为解决这一问题而设置的。

### 4. 乏燃料核查仪器(CVD和ION-1叉型探测器)

目前IAEA使用切伦科夫观察镜(CVD),用于常规视察活动中定性核查乏燃料燃耗深度和冷却时间。同时,有限度地使用ION-1叉型探测器,例如在乏燃料贮存池存量的连续性被破坏时,重新盘点其存量。

(1) CVD 第一台Javelin 222型乏燃料夜视器是由美国LANL的N.Nicholson<sup>[12]</sup>于1979年研制的,用于观察乏燃料中裂变碎片核素 $\gamma$ 放射性在水中形成的切伦科夫图象。该仪器主要由长聚焦镜头和图象放大管等组成。在现场使用中,主要困难在于无法在设施照明灯光下观察弱的切伦科夫图象。80年代后IAEA从三种途径来解决这一问题:(1)选通脉冲光源法;(2)滤波法;(3)采用对日光不灵敏的光阴极材料。

由LANL提出的选通脉冲光源法设想在设施中安装选通脉冲光源,其频率足够高,使肉眼不感到有明显的闪烁。在CVD镜头前加上斩光器,与选通脉冲光源反同步,使得只有照明灯熄灭时,切伦科夫光可进入CVD。由于该法需要较复杂的设备并需改动设施照明系统,给实际应用增加了困难。1982年加拿大AECL的D. G. Boase<sup>[13]</sup>, 1984年J. Skalyo等<sup>[14]</sup>提出了滤波法,采用UG11等滤波镜使得CVD只能通过300—380nm的经贮存池水层滤波之后的切伦科夫光,而对某些常用照明灯谱不灵敏。1983年日本CRIEPI的A. Nakaoka等提出采用石英透镜和特制的移象管观察220nm附近的切伦科夫光,而对日光完全不灵敏。近年来加拿大已制成Mark I, II, III型CVD<sup>[15]</sup>,日本制成UVII型CVD<sup>[16]</sup>供IAEA试用。由于乏燃料组件中切伦科夫光的高度准直性以及相邻组件之间的串光效应,使得CVD局限于定性测定乏燃料 $\gamma$ 放射性强度。

**(2) ION-1叉型探测器** 1980年J. R. Phillips等<sup>[17]</sup>提出了用无源中子和 $\gamma$ 技术来核查乏燃料的概念。经过多年的反复论证和改进,使ION-1叉型探测器和软件系统逐步定型(USAA. 130)。这种专用仪器采用裂变室和电离室作为中子和 $\gamma$ 探测器,测量乏燃料中 $^{244}\text{Cm}$ 的自发裂变中子和裂变碎片同位素的 $\gamma$ 放射性,即:

$$N_{\text{corr}} = \alpha E^{\beta}$$

$$N_{\text{corr}} = N_{\text{meas}} \cdot F_1 \cdot F_2 \cdot F_3$$

$$\gamma/E = aT^{-b}$$

其中:  $N_{\text{corr}}$ ,  $N_{\text{meas}}$  = 校准的和测量到的中子计数率;

$E$  = 乏燃料燃耗;

$\gamma$  =  $\gamma$ 总计数率;

$T$  = 冷却时间;

$\alpha$ ,  $\beta$ ,  $a$ ,  $b$  = 拟合常数;

$F_1$ ,  $F_2$ ,  $F_3$  =  $^{244}\text{Cm}$ 衰变校正因子, 中子份额和燃料初始浓缩度校正因子。

由于除 $^{244}\text{Cm}$ 以外, 乏燃料中子发射体还有寿命较短的 $^{242}\text{Cm}$  (165d) 和Pu的偶核。因此 $F_2$ 与燃料组成、反应堆中辐照历史密切相关。视察员需要根据设施营运者申报的反应堆功率史、燃料初始浓缩度和乏燃料辐照、冷却史采用专用软件进行数据处理。经过校准的测量数据分别与所申报的燃耗值和冷却时间进行数据拟合, 获得 $\alpha$ ,  $\beta$ 等刻度参数。IAEA采用 $4\sigma$ 准则来鉴别燃耗申报值是否可以接受。近年来, Tihange和Coviisa<sup>[18]</sup>的实验证明, 中子计数的 $4\sigma$ 范围为20—25%, 这包含了中子计数统计涨落, 组件轴向和两对侧面的不均匀性和设施对燃耗申报值的不确定度。这一误差范围可以大致反应方法对核材料量的测定精度。但是, 问题的复杂性在于所承认的燃耗申报值的精度为 $\pm 5\%$  ( $1\sigma$ ), 而中子计数率的测量精度为 $\pm 3\%$ 。折算到对中子计数率预期值偏离的不确定度为

$$\sigma_d = [\sigma_N^2 + b^2 \sigma_E^2]^{0.5} \approx 0.202 \quad (\text{设 } b=4)$$

所以如 $d=4\sigma_d$ 则 $d=0.808$ 或者 $0.446 \leq N/N_{\text{adj}} \leq 2.243$ 。因此, 目前有些专家对ION-1叉型探测器能否用于定量核查乏燃料中可裂变材料含量产生怀疑。目前对ION-1的讨论及寻求核查乏燃料的新途径仍在继续<sup>[19]</sup>。

## 5. 分段 $\gamma$ 吸收扫描法

在核燃料循环中, 经常遇到U, Pu含量、介质种类和密度都不均匀的核中间产品, 回收料

和废物需要测量。1977年E. R. Martin等<sup>[20]</sup>设计了分段 $\gamma$ 吸收扫描装置 (SGS)。装置包括样品旋转和升降平台、透射源屏蔽体、关闭器、计数率校正源、各种准直器、步进马达、马达驱动器、HPGe探测器、多道及计算机。其中计算机用来自动操作各部件,使相互配合达到全程扫描,使多道数据获取,数据处理自动化。并可以根据透射源特征峰计算样品各段的自吸收校正因子。通常在样品轴向分为数十段,在扫描的每一阶段分析其中一段。根据所测样品的 $\gamma$ 射线能量,选择 $^{75}\text{Se}$ ,  $^{169}\text{Yb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ 等作为透射源。其主要的计算式为  $TCR = FEIR \times CF(AT)$ 。其中TCR, FEIR和CF(AT)分别为校正了透射的计数率,全能峰反应率和自吸收校正因子。

对于远距离情况下的园柱形容器,自吸收校正因子为

$$CF(AT) = \frac{1}{2} \frac{\mu l D}{I_1(\mu l D) - L_1(\mu l D)}$$

其中 $L_1$  = 修正的struve函数一次项;

$I_1$  = 修正的贝塞尔函数一次项;

$D$  = 样品直径;

$\mu l$  = 样品线性吸收系数。

对于近距离立体角,需用三维模式积分处理。因此采用专门的计算机程序来计算样品的自吸收校正因子<sup>[21]</sup>。在实际应用中,可以通过测定外加透射源 $^{169}\text{Yb}$ 的177keV和198keV的透射率来内插样品中 $^{235}\text{U}$  186keV的自吸收校正因子。因样品种类、性质、尺寸、密度和不均匀程度的变化,SGS所达到的精度相差很大。

美国LANL最近为SRP制造了一套SGS,对尺寸为 $\phi 38 \times 15\text{cm}$ ,含有15—300g  $^{235}\text{U}$ 的刻度样品,获得的测量精度为 $\pm 0.37$ — $0.87\%$ 。在SRP实际应用中,对装有办公室废物的 $50 \times 50 \times 50\text{cm}$ 纸箱的灵敏度为 $0.03\text{g } ^{235}\text{U}$ 。对装工作走廊废物,用过的鞋、口罩和经分类的流程碎屑的纸箱( $40 \times 40 \times 80\text{cm}$ ),当U量为1g时,2min计数的精度为 $\pm 10\%$  ( $1\sigma$ )。另一台低密度碎屑SGS,用于测量SRP装有碎屑的 $\phi 40 \times 40\text{cm}$ 园桶或者 $30 \times 30 \times 15\text{cm}$  HEPA过滤器,灵敏度为 $0.2\text{g } ^{235}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ 含量为5g时,精度为 $\pm 1\%$  ( $1\sigma$ )。

SGS可以部分地解决可裂变材料和介质分布不均匀的问题。但是,有些样品中含有尺寸、形状、密度均未知的含可裂变材料块状物,目前尚需要新的计算方法来校准穿透块状物时 $\gamma$ 射线的自吸收。由于块状物的几何结构异常复杂,并且不能事先知道,给解决这一问题带来了困难。近年来美国LANL和ANL正在开展新的研究课题,其中LANL提出了利用 $^{239}\text{Pu}$ 的特定能量 $\gamma$ 射线透射谱的比率来校正块状物的自吸收,改进了SGS的测定精度。

## 6. 无源中子符合计数法测定Pu含量

1985年美国LANL的H. O. Menlove<sup>[22]</sup>在1979年设计的高计数率中子符合计数器(HLN-CC)的基础上重新设计了HLNCC II。除改用快速的AMPTEK前置,配备漂移寄存符合单元(系统允许计数率达1300k/s)以外,将埋设18个 $^3\text{He}$ 计数管的聚乙烯慢化反射层的上下部加厚,并设计了上下端盖,大大改善了中子计数的轴向响应性能。HLNCCII已成为IAEA常规视察仪器之一,该仪器所测量到的中子符合计数率 $R$ 与有效 $^{240}\text{Pu}$ 质量 $M_{240}$ 有下述关系

$$R = a_0 + a_1 M_{240} + a_2 M_{240}^2$$

$$M_{240} = 2.52^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + 1.68^{242}\text{Pu}$$

其中 $a_0, a_1, a_2$  = 拟合常数;

$^{238}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu}, ^{242}\text{Pu}$  = 各种Pu同位素的质量。

Pu质量测定的主要困难在于只有两个观察量, 即总计数率 $T$ 和符合计数率 $R$ 。然而, 未知量却有三个,  $M_{240}$ ,  $(\alpha, n)$  反应率与自发裂变率之比 $\alpha$ 和中子增殖因子 $M$ 。因此, 在解方程时, 不得不将 $\alpha$ 值或 $M$ 值作为已知量处理。这对A类样品(少量Pu,  $M$ 值变化小)和B类样品(中、小量Pu, 无杂质和水份)引入的误差不大。但对C类样品(中等或大量Pu, 不纯, 含有大量水份)和D类样品(中等或大量Pu, 大量杂质,  $(\alpha, n)$  反应率高, 诱发裂变率大于自发裂变率)将引入较大误差。对于诱发裂变率较高的样品, 采用下式表示的有效 $^{239}\text{Pu}$ 质量

$$M_{239} = 0.786^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + 0.515^{240}\text{Pu} + 1.414^{241}\text{Pu} + 0.422^{242}\text{Pu} + 0.545^{241}\text{Am} + 0.671^{235}\text{U} + 0.082^{238}\text{U}$$

其中通常的核素符号表示该核素的质量。

表2 常用的HLNCC II刻度方法

| 方法编号 | 方 法 类 别                   | 物 理 表 达 式                                                 |
|------|---------------------------|-----------------------------------------------------------|
| 1    | 未校正的真实符合计数法               | $R = a_0 + a_1 M_{240} + a_2 M_{240}^2$                   |
| 2    | 校正增殖的真实符合计数法              | $R_{mc} = a M_{240}$                                      |
| 3    | 校正 $(\alpha, n)$ 反应的真实符合法 | $M_{240} + \frac{\rho_0 T}{a(1+\alpha)M}$                 |
| 4    | 自质询法                      | $R = a M_{240} + T \cdot \frac{A M_{239}}{1 + B M_{239}}$ |
| 5    | 总计数-校正的真实符合计数法            | $R = \alpha M_{240} + a_1 X_1 + a_2 X_2$                  |

H. Menlove等<sup>[23]</sup>汇集了A—C类大量样品的测量结果( $\text{PuO}_2$ 粉末、Pu金属、MOX芯块、MOX颗粒等), 用商用SAS统计软件评价了通常用于无源中子符合技术的刻度方法1—5(表2)。评价结果表明, 方法1对A类样品给出好的结果; 方法2对B类样品给出好的结果; 而对C类样品, 只有方法3, 5给出最佳结果。目前倾向于对样品分类采用不同的刻度方法来处理数据。但是显然需要有一种通用的更精确的刻度技术, 或者可根据实验结果自动分类调正刻度方法的软件。由于在核安全保障中所遇到的Pu样品种类繁多, Pu含量、杂质、盐类、水份、密度、体积、形状、包装, 甚至周围反射体对无源中子符合计数器的响应均有影响。除改进数据处理方法外, 尚需对C类样品探索新的测量和计算方法<sup>[24]</sup>, 即(1)高矩技术(High Moment) 采用中子快符合装置和电路, 不仅探测2个中子符合事件, 而且也分别纪录3个、4个中子符合事件, 由此直接测定诱发裂变事件; (2)加源法 通过比较系统对增加和不增加一个 $^{252}\text{Cf}$ 外源的响应变化来直接计算系统的中子增殖因子 $M$ ; (3)蒙特卡罗计算法 由已知质量和尺寸计算增殖因子 $M$ 。无源中子符合计数法的另一种趋势是设计各种专用装置来获得有关测定对象的最佳响应性能。由于世界核燃料循环中样品种类繁多, 这方面的研究课题也不少。例如美国LANL除HLNCC II以外, 还设计了下列专用装置: (1)库存样品符合计数器(INVS); (2)快临界装置燃料符合计数器(Channel Counter); (3)MOX燃料罐符合计数器(Canister Counter); (4)瓶装硝酸钚计数器; (5)快增殖堆

燃料组件计数器；(6) 鸟笼式中子符合计数器；(7) MOX燃料组件总Pu测量用符合环；(8) 55加仑桶计数器；(9) 在贮存盘中MOX燃料元件细棒中子符合计数器。

## 7. 有源中子质询法

有源中子分析系统种类繁多，就用途而言，大型装置可分析乏燃料组件或55加仑废物桶中的可裂变材料含量，小型装置可分析小瓶中固体或液体样品。由于其中探测系统对有源和无源操作是同一套，所以常常使有源和无源两种方式配合使用来测定物料中的两种主要成份，例如 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 或MOX燃料中的 $^{235}\text{U}/\text{Pu}$ 。有源中子质询装置一般由三部份组成：中子源、慢化/屏蔽体和探测器。中子源可以是加速器（静电加速器、高压倍加器或直线加速器）、(D, T)中子产生器、密封管中子产生器，也可以是放射源（ $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{241}\text{AmLi}$ 或 $^{124}\text{SbBe}$ ）。从质询中子讯号中甄别诱发裂变中子主要采用能量甄别法、符合甄别法和时间甄别法。

**(1) 能量甄别法** 1979年美国LANL<sup>[45]</sup>曾研制了装有4个强度为 $10^9\text{n/s}$ 的 $^{124}\text{SbBe}$ 中子源的质询系统，用于测定快增殖堆乏燃料组件中的可裂变材料，达到了5%的精度。80年代初期JRC Ispra实验室开始发展了多种型号的 $^{124}\text{SbBe}$ 中子质询装置(PHONID I—IV)来测定各种样品。因为 $^{124}\text{SbBe}$ 源中子能谱较软(23keV)，所以很容易被甄别掉而只记录核材料的诱发裂变中子。

**(2) 符合甄别法** 随机激励器(Random Driver)是有源中子分析技术用于核安全保障的首次尝试。该仪器由美国LANL<sup>[26]</sup>开始研制，用于橡树岭Y-12厂。装有一个 $5 \times 10^6\text{n/s}$ 的AmLi源。将塑料闪烁体中子探测器埋于铅中以降低对γ的灵敏度。采用中子符合计数技术将核材料的诱发裂变中子与AmLi源单个中子相区别。此类装置的样品室可以设计容纳几升至200升的样品。

近年来，美国的POTAS计划为IAEA设计了一系列中子符合探测装置(AWCC, UNCL等<sup>[27,28]</sup>)，其特点是不采用铅作为γ屏蔽，采用AmLi中子源和 $^3\text{He}$ 计数管，并用聚乙烯作为中子慢化、反射层。IAEA视察员可以携带这类装置在世界各地现场测量。AWCC由两个 $5 \times 10^4\text{n/s}$  AmLi源、48个 $^3\text{He}$ 计数管、HEC-100漂移寄存符合电路和HP-97计算机组成。用于核查铀金属、铀-铝合金和 $\text{UO}_2$ 粉末的库存量。UNCL则用于核查PWR和BWR新燃料组件中的 $^{235}\text{U}$ （有源方式）， $^{238}\text{U}$ （无源方式）含量。

**(3) 时间甄别法** 在早期研究工作中，常用加速器（甚至反应堆作为中子源）来分析新燃料或乏燃料中可裂变核素含量。此类设备常用50%负载周期反复间歇质询，在间歇期间测定缓发中子（半衰期为0.25—56s， $^{235}\text{U}$ ， $^{239}\text{Pu}$ 的缓发中子/瞬发中子比率为1/120和1/335）和缓发γ射线（裂变产物核素）。但设备成本高，现场维修和维护也有困难。60年代以后，随着 $^{252}\text{Cf}$ 源生产能力的扩大，出现了各种类型的 $^{252}\text{Cf}$ 间歇质询缓发中子测量装置(Shuffler)<sup>[29,30]</sup>，这种装置包括一个 $5\mu\text{g}$ — $2\text{mg}$ 的 $^{252}\text{Cf}$ 源( $1.25 \times 10^7$ — $2.5 \times 10^9\text{n/s}$ )，U形源输送管-马达驱动装置，中子屏蔽、反射、慢化体， $^3\text{He}$ 计数管，中子计数用电子仪器和计算机等部件。实际运行时，由马达带动电缆将源输送到照射位置，照射数秒后撤至屏蔽位置，启动计数单元记录缓发中子，当源返回照射位置时，停止计数，整个过程反复循环。通常照射和计数各10s，但应根据样品特点选用最佳循环周期和占空因子。间歇质询缓发中子测定装置是目前最有效的NDA手段之一，用于难度较大的乏燃料、元件厂非均匀返料和

固体废物测量。 $^{252}\text{Cf}$ 源的强度主要取决于所需要的测量灵敏度,与所含的核材料量和样品中铀及超铀元素中子本底有关。目前已使用的各种间歇质询缓发中子测定装置的主要参数列入表3。

表3  $^{252}\text{Cf}$ 间歇质询缓发中子测定装置分类<sup>[31]</sup>

| 系 统 类 别   | $^{252}\text{Cf}$ 源强度 <sup>(1)</sup> , $\mu\text{g}$ | 应 用                  | 灵敏度 <sup>(2)</sup> ( $^{235}\text{U}$ ) | 中子能量   |
|-----------|------------------------------------------------------|----------------------|-----------------------------------------|--------|
| 小罐样品分析装置  | 500                                                  | $\leq 5\text{l}$ 容器  | 40mg<br>0.5mg                           | 快<br>热 |
| SRP分析装置   | 800                                                  | $\leq 10\text{l}$ 容器 | 1g                                      | 快      |
| 55加仑桶分析装置 | 400                                                  | 55加仑桶                | 0.2g<br>3mg                             | 快<br>热 |
| 在线分析装置    | 100                                                  | 小罐                   |                                         | 快      |
| 液样分析装置    | 30                                                   | 在线料液                 | 1mg                                     | 热      |
| 乏燃料分析装置   | 2000                                                 | 反应堆乏燃料               |                                         | 快      |
| 废包壳分析装置   | 2500                                                 | 后处理厂废物               |                                         | 热      |
| 小型分析装置    | 5                                                    | 芯块或小瓶                | 4mg                                     | 热      |

注: (1) 所列源强为设计典型值,  $1\mu\text{g}^{252}\text{Cf}=2.34\times 10^6\text{n/s}$ ; (2) 灵敏度定义为1000s计数本底的 $3\sigma$ 。

另一种时间甄别法的例子是元件厂的燃料棒扫描器,采用1—10mg $^{252}\text{Cf}$ 源诱发可裂变核素裂变。当燃料棒退出质询器后用NaI(Tl)或中子计数器记录裂变产物的 $\gamma$ 射线或缓发中子。这种装置主要用于检验装棒芯块浓缩度的均匀性,扫描速度可达457.2cm/min。因为可获得的计数率高,标准棒和待测棒的匹配性好,棒内 $^{235}\text{U}$ 总量的测定精度可达 $\pm 0.2\text{—}0.5\%$ 。

### 参 考 文 献

- [1] Gunnink, R. et al., A System for Plutonium Analysis by Gamma-Ray Spectrometry, LLNL Report UCRL-51577, 1974.
- [2] Gunnink, R. et al., Plutonium Isotopic Measurements by Gamma-Ray Spectrometry, LLNL Report UCRL-75105, 1973.
- [3] Gunnink, R. MGA2: A One-Detector Code for Rapid High-Precision Plutonium Isotopic Measurements, LLNL Report UCRL-96016, 1987.
- [4] Canada, T.R. et al., ACS Symp. Ser., (70), 1978.
- [5] Cowder, L.R. et al., An Instrument of Plutonium Concentration And Isotopics of Product Solutions at Tokai Mura, Proc. Second Annual Symp. on Safeguards & Nuclear Material Management, Edinburgh Scotland, March 26-28, 1980, p.119.
- [6] Smith, H.A. et al., Development of In-Line Plutonium Solution NDA Instrumentation at the Savannah River Plant, Proc. Second Annual Symp. on Safeguards & Nuclear Material Management, Edinburgh Scotland, March 26-28, 1980, p.123.
- [7] Fager, J.E., IAEA Non-Destructive Assay Measurement Techniques, State System of Accounting for & Control of Nuclear Material, Taskhent, USSR, 14-25 Nov., 1988.
- [8] Hsue, S.T. And Zhu, R.B., Poor Man's Densitometry, Proc. INMM 30th Annual Meeting, Orlando, Florida, July 9-12, 1989.
- [9] Hsue, S.T. And Zhu, R.B., Novel Methods to Determine Pu Concentration, to be published,

- Proc. Second Karlsruhe International Conference on Analytical Chemistry in Nuclear Technology, Karlsruhe, FRG, June 1989.
- [10] Ottmar, H. et al., How to Simplify the Analytics for Input-Output Accountability Measurements in a Reprocessing Plant, KfK Report 4012, 1986.
  - [11] Ottmar, H. et al., Demonstration of NDA Technology for Reprocessing Input Analytical Measurements, Proc. INMM 27th Annual Meeting, New Orleans, Louisiana, June 22-25, 1986.
  - [12] Nicholson, N., JAVELIN Model 222 Night Vision Device Spent Fuel Viewing Procedures Manual, LANL Report, Q-2-79-788 (ISPO-78), 1979.
  - [13] Boase, D.G. et al., Proc. Nuclear Safeguards Technology, A Symp. of International Atomic Energy Agency, Vienna, Nov. 8-12, 1982, Vol. 1, p. 431.
  - [14] Skalyo, J. et al., Wavelength Selective Observation and Interpretation of Cerenkov Radiation in LWR Spent Fuel Assemblies, ISPO-218, May 1984.
  - [15] Chen, J.D. et al., Measurement of Cerenkov Radiation from Used CANDU Fuel, Proc. International Symposium on Nuclear Material Safeguards, IAEA-SM-293-91, Vienna, 10-14 Nov., 1986.
  - [16] Nakaoka, A. et al., Development and Experimental Results of Cerenkov Radiation Viewing Device, Proc. International Symposium on Nuclear Material Safeguards, IAEA-SM-293-39, Vienna, Nov. 10-14, 1986.
  - [17] Phillips, J.R. et al., Application of Nondestructive Gamma-Ray & Neutron Techniques for the Safeguarding of Irradiated Fuel Materials, LANL Report, LA-8212 (ISPO-77), 1980.
  - [18] Rinard, P.M., Spent Fuel Verification with Los Alamos Fork Detector, LANL Report, LA-UR 87-2970, 1987.
  - [19] Lu, M.S. et al., Unreported Plutonium Production in Light Water Reactors, ISPO-282, 1988.
  - [20] Martin, E.R. et al., Gamma-Ray Measurements with the Segmented Gamma Scanner, LANL Report, LA-7059-M, 1977.
  - [21] Parker, J.L., The Use of Calibration Standards and the Correction for Sample Self-Attenuation in Gamma-Ray Nondestructive Assay, LANL Report, LA-10045, August 1984.
  - [22] Menlove, H.O. et al., A High-Performance Neutron Time Correction Counter, Nuclear Technology Vol. 71, Nov. 1985.
  - [23] Menlove, H.O. et al., The Analyses of Neutron Coincidence Data to Verify Both Spontaneous-Fission and Fissionable Isotopes, LANL Report, LA-11639-MS (1989).
  - [24] Menlove, H.O., JNMM., Vol. XV, No. 5, October, 1987, p. 20.
  - [25] Ragan, G.L. et al., *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **28**, 128 (1978).
  - [26] Foley, J.E., Application of Random Source Interrogation System (Random Driver) at The Oak Ridge Y-12 Plant, Preliminary Results, LANL Report, LANL-5078-MS (1972).
  - [27] Menlove, H.O., Application of the Active Well Coincidence Counter (AWCC) to High-Enrichment Uranium Metal, LANL Report, LA-8621-MS, (ISPO-121), August, 1981.
  - [28] Menlove, H.O., Description and Performance Characteristics for the Neutron Coincidence Collar for the Verification of Reactor Fuel Assemblies, LANL Report, LA-8939-MS (ISPO-142), August, 1981.
  - [29] Menlove, H.O., et al., *Nucl. Instrum. Method.*, **152**, 549 (1978).
  - [30] Crane, T.W., Liquid Sample Shuffler for Gamma Active Solutions, LANL Report, LA-10925-MS, (1987).
  - [31] Menlove, H.O., JNMM, Vol. XV, No. 4, July 1987., p. 83.

## RESEARCH AND DEVELOPMENT ON NDA IN SAFEGUARDS(I)

ZHU RONGBAO

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

### ABSTRACT

The recent progress of research and development on NDA in safeguarding nuclear materials is described in this paper, including the general information about international cooperation in technique developments and some important research topics as follows: (1) plutonium isotopic measurements by gamma-ray spectrometry; (2) plutonium concentration measurements for solution samples; (3) hybrid K-edge densitometer/XRF; (4) spent fuel verification techniques; (5) segmented gamma-scanner; (6) passive neutron coincident counting for plutonium measurements; (7) neutron interrogation methods.

**Key words** Safeguards, Nuclear material accounting, Nondestructive assay.

---

(上接第71页, Continued from p.71)

and raising efficiency. It is important to reduce the amount of liquid wastes as much as possible, to collect and treat them separately in accordance with radioactivities and compositions of liquid wastes. Evaporation, ion-exchange and filtration have been widely used in the treatment of liquid wastes. In the field of solidification, research and development activities are focused on developing processes with high volume reduction and better performance. Cementation and bitumenization methods are being developed. Under favorable geological condition, the option integrating solidification with disposal, owing to its simplified operation and low cost has been given great attention in some countries.

**Key words** Treatment, Solidification, Disposal.