

# 利用 3—5MeV $\gamma$ 射线测量核裂变数的可行性研究

胡广春<sup>1)</sup> 龚建 刘晓亚 熊宗华 郝樊华 向永春 李润东

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所 绵阳 621900)

**摘要** 提出了利用 3—5MeV 能区  $\gamma$  射线测量核裂变数的方法, 并且用浓缩铀样品堆照实验验证了该方法的可行性. 结果表明: 该方法可以应用于测量核裂变数, 依据通用方法的结果作为参考标准, 该方法测量不确定度小于 16%.

**关键词** 核裂变数 高能区 辐照实验 铀样品

## 1 引言

在放射化学定量分析中, 核燃料的裂变数通常是利用某些裂变核素的核数测定来确定的<sup>[1]</sup>. 但是由于安全或者其他一些特殊的要求, 对核燃料采取较厚的屏蔽措施, 使得低能区的特征  $\gamma$  射线很难探测到, 导致裂变核素的核数测定非常困难. 在这种情形下, 高能区缓发  $\gamma$  射线是高纯  $\gamma$  谱仪能够获取的带有核燃料裂变信息最具价值的依据. 为此探索一种利用高能区缓发  $\gamma$  射线, 例如 3—5MeV 缓发  $\gamma$  射线总放射性特征, 测量核裂变数的方法是非常有意义的. 本文通过实验方法验证了利用 3—5MeV 高能区缓发  $\gamma$  射线测量核裂变数方法的可行性, 为特殊条件下核燃料裂变数的测定开拓了新的思路.

## 2 定量方法

利用热中子辐照裂变材料发生裂变反应后产生大量不稳定的裂变核素. 裂变核素衰变而产生能域较宽的缓发  $\gamma$  射线. 3MeV 以下  $\gamma$  射线受本底干扰较大, 而在 5MeV 以上的  $\gamma$  射线衰变分支比较小, 为此在特定的探测条件下, 本文选择了利用裂变核素 3—5MeV 缓发  $\gamma$  射线对核裂变数的定量方法进行研究.

基于放射性衰变理论, 由探测器探测到的热中子辐照裂变材料发射 3—5MeV  $\gamma$  射线的计数率可表示为

$$I_{35}^T(t) = \frac{(C_{35}^T(t) - I_{35}^B(t) \cdot \Delta t) \cdot \lambda}{1 - e^{-\lambda \Delta t}}, \quad (1)$$

其中,  $I_{35}^T(t)$  是停止辐照后  $t$  时刻探测器探测到 3—5MeV 的计数率,  $C_{35}^T(t)$  是从停止辐照后  $t$  时刻开始测量  $\Delta t$  时间高能区 (3—5MeV) 的  $\gamma$  总计数,  $I_{35}^B(t)$  是停止辐照后  $t$  时刻探测器探测到 3—5MeV 的本底计数率, 主要是环境本底, 一般不随时间变化,  $\lambda$  为高能区 (3—5MeV)  $\gamma$  射线放射性衰变常量.

停止辐照后短期内 3MeV 以上的计数率远远大于本底计数率. 本底计数率是环境中的放射性核素的贡献, 是相对稳定的数值, 它可以通过放置样品前的本底测量确定. 放置样品后通过不同时刻的测量, 由 (1) 式可以拟合高能区衰变曲线, 从而获取任意  $t$  时刻探测到的高能区的计数率. 由此, 停止辐照时核裂变数为

$$N_f = \frac{I_{35}^T(t)}{\bar{\varepsilon} \cdot I_{35}^S(t)}, \quad (2)$$

式中  $\bar{\varepsilon}$  是 3—5MeV 缓发  $\gamma$  射线平均探测效率, 计算中假定每条射线对探测器贡献是等份额的, 可以通过等权修正获取,  $I_{35}^S(t)$  是停止辐照  $t$  时刻单位核裂变 3—5MeV 的  $\gamma$  总发射率, 可以通过理论计算或特定实验“刻度”获取.

## 3 实验方法和结果

### 3.1 实验方法

验证实验是在中国工程物理研究院核物理与化学研究所 300# 反应堆进行, 实验采用的样品为 87 $\mu$ g 的高浓铀 ( $U_3O_8$  粉末,  $^{235}U$  含量是 90%),

2006 - 02 - 09 收稿

1) E-mail: hugc.caep@sina.com

将其封装在内径为  $\phi 3\text{mm}$ 、壁厚为  $1\text{mm}$ 、长度为  $30\text{mm}$  的石英管内，石英管用铝箔进行包裹，然后将其放置于 300# 反应堆 A9 孔道辐照，考虑到定量分析的需求，对样品辐照位置的中子注量率采用金箔活化法<sup>[2]</sup>进行测量，注量率测量结果由表 1 给出。

表 1 中子注量率测量结果

辐照时间/s	注量率/ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	热中子注量率/ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	镅比	不确定度 (%)
30	$5.72 \times 10^{12}$	$3.90 \times 10^{12}$	4.66	11

样品在停止辐照后 5min 拿到  $\gamma$  测量间进行测量，此时由于铝箔的活化峰较强，测量位置和屏蔽措施不利于测量裂变产物的  $\gamma$  射线，样品冷却 19min 后获取了较为有用的测量数据。

实验测量仪器为 CANBERRA 公司生产的同轴型高纯锗探测器(对 1.33MeV 处的相对效率为 85%)，探测器前表面距离样品为 360mm，样品盒与探头同轴，浓缩铀集中在样品盒前端，如图 1 所示。探头前端套有 4mm 铜、2mm 镅及 1mm 聚乙烯套筒。

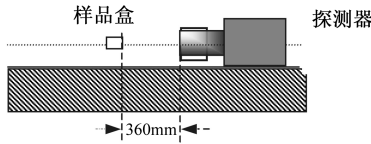


图 1 测量实验布置

### 3.2 测量结果

放置样品盒前对测量间环境本底进行测量，其中 3—5MeV  $\gamma$  射线本底计数率为  $2.558\text{s}^{-1}$ ，放置样品后在不同的时间点进行能谱测量，测量结果由表 2 给出。

表 2 3—5MeV  $\gamma$  总计数率随时间的变化

开始时刻/s	测量时间/s	总计数	计数率/ $\text{s}^{-1}$
1140	227	16901	71.625
1560	406	17529	40.603
2160	616	16259	23.840
3000	606	10708	15.106
3720	1050	12271	9.129

由表 2 可知，高能区 3—5MeV  $\gamma$  射线总计数率随时间衰减，拟合获得衰变常量  $\lambda = 7.523 \times 10^{-5}$ ，拟合相关系数为 0.98。符合放射性衰变理论，该能区缓发  $\gamma$  射线可以作为测量核裂变数的依据。

## 4 数据分析

### 4.1 高能区射线计算核裂变数

由公式 (2) 计算核裂变数时，除了获取  $t$  时刻探测到的高能区的计数率以外，还需要知道两项关键量：

3—5MeV  $\gamma$  射线平均探测效率和停止辐照后  $t$  时刻单位核裂变时 3—5MeV  $\gamma$  射线理论上的总发射率。

对于平均探测效率，采用实验室无源刻度方法 (LabSOCS, Laboratory Sourceless Calibration Software)。效率刻度软件是基于蒙特卡罗方法的一个成熟的效率刻度软件，该软件集成于 GENIE-2K，它带有本次实验所用的、标定过的探测器几何参数，在效率计算中可直接调用，在模型的设计上，全面考虑了实验条件。在图 1 实验条件下的计算结果由表 3 给出。由于 3—5MeV 能区计数是连续谱的贡献，计算中不妨假设是等权的连续谱贡献，则通过等权修正，高能区射线探测效率为  $2.108 \times 10^{-4}$ 。

表 3 探测效率

能量/MeV	探测效率( $\times 10^{-4}$ )	不确定度(%)
2.90	2.664	2
3.25	2.453	2
3.75	2.197	2
4.25	1.980	2
5.00	1.714	2

停止辐照  $t$  时刻 3—5MeV 的  $\gamma$  射线总发射率是多种裂变产物及其子体的综合贡献，可以通过理论上获取，在理论计算方面北京应用物理与计算数学研究所<sup>[3]</sup>和西北核技术研究所<sup>[4]</sup>都做过相应的研究工作。在理论计算中需要考虑多个衰变链，假设第  $k$  个裂变核素连续衰变  $n$  代，即有  $n$  代子体  $k_i, i = 1, \dots, n$ ，对应的衰变常量为  $\lambda_{k_i}$ ，核数为  $N_{k_i}$ 。对于一个裂变核产生的第  $k$  个质量链的初始裂变产物连续衰变  $n$  次满足递次衰变方程

$$\begin{cases} \frac{dN_{k_1}}{dt} = -\lambda_{k_1} N_{k_1} \\ \frac{dN_{k_i}}{dt} = -\lambda_{k_{i-1}} N_{k_{i-1}} - \lambda_{k_i} N_{k_i} \end{cases} \quad i = 1, \dots, n \quad (3)$$

对于一个裂变核，方程(3)的初始条件由

$$N_{k_i}(0) = Y_{k_i}, \quad i = 1, \dots, n \quad (4)$$

给出。式中  $Y_{k_i}$  为裂变产物  $k_i$  的裂变产额 (累积产额或独立产额)。由此  $t$  时刻衰变方程可以写为<sup>[4]</sup>

$$N_{k_n}(t) = Y_{k_n} e^{-\lambda_n t} + \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_n - \lambda_{n-1}} [e^{-\lambda_{n-1} t} - e^{-\lambda_n t}] \times Y_{k_{n-1}} + \dots + Y_{k_m} \cdot \left( \sum_{i=m}^n \frac{\prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j e^{-\lambda_j t}}{\prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n (\lambda_j - \lambda_i)} \right) + \dots + Y_{k_1} \cdot \left( \sum_{i=1}^n \frac{\prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j e^{-\lambda_j t}}{\prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n (\lambda_j - \lambda_i)} \right), \quad (5)$$

由此  $t$  时刻衰变子体的放射性活度为

$$A_{k_n}(t) = \lambda_{k_n} \cdot N_{k_n}(t), \quad (6)$$

$\gamma$  射线总强度公式为

$$I_{k_n}(t) = \sum_j A_{k_n}(t) \cdot P_{k_n}^j, \quad (7)$$

式中  $P_{k_n}^j$  是  $k_n$  核素衰变产生的第  $j$  条  $\gamma$  射线与  $\gamma$  射线分支比。

本文引用北京应用物理与计算数学研究所相关文献资料<sup>[3]</sup> 计算了停止辐照后  $t$  时刻 3—5MeV  $\gamma$  射线的总发射率。该文的裂变产额数据选用 JENDL-3<sup>[5]</sup>, 衰变常量取自核数据和参数, 核科学的计算机应用中的相关数据。计算结果由表 4 第 3 列给出, 其中 1140 和 3720s 的计算结果是外推结果, 将其计算结果代入公式(2)的核裂变数计算结果由表 4 的第 4 列给出。

表 4 验证实验核裂变数计算结果

时间/s	3—5MeV 能区的总强度	单个核裂变放出 3—5MeV $\gamma$ 射线强度	停止辐照时核裂变数
1140	71.625	$1.975 \times 10^{-5*}$	$1.72 \times 10^{10}$
1560	40.603	$1.423 \times 10^{-5}$	$1.35 \times 10^{10}$
2160	23.840	$8.850 \times 10^{-6}$	$1.28 \times 10^{10}$
3000	15.106	$6.347 \times 10^{-6}$	$1.13 \times 10^{10}$
3720	9.129	$5.133 \times 10^{-6*}$	$8.44 \times 10^9$
	平均核裂变数(个)		$1.27 \times 10^{10}$

注: 加\*表示外推结果。

表 4 给出利用修正后探测效率计算平均核裂变数的结果是  $1.27 \times 10^{10}$  个。从高能区  $\gamma$  射线贡献来看, 在相对较低能区  $\gamma$  射线贡献较大, 因此测量值在较大程度上靠近取 3.25MeV 处效率的计算结果。另外从计算结果可以看出, 核裂变数随时间有一个递减的趋势, 除了外推的两个点之外, 其余几点的相对误差小于 10%, 这种减小趋势的原因有两个, 其一是高能区  $\gamma$  能量随时间发生变化, 而效率没有做相应的变化引起的, 这部分贡献比较小; 其二是 3—5MeV 单位裂变  $\gamma$  总发射率的理论计算部分还存在一种系统偏差, 这方面工作需要通过进一步的实验工作加以修正。

#### 4.2 一般方法的计算结果

核燃料的裂变数通常是利用某些裂变核素的核数来测定的。为了验证高能区测量方法的可行性, 本文采用两种可靠的测量方法对核裂变数进行计算, 即选定裂片核素和通过测量热中子注量率。在验证实验中使用金箔活化法测量了样品辐照处的热中子注量率, 堆照样品辐照参数由表 1 给出, 代入(8)式可以计算核

裂变数,

$$N_f = N_0 \phi \sigma_f t, \quad (8)$$

式中  $N_f$  是核材料的裂变数,  $N_0$  是裂变材料初始核数,  $\sigma_f$  是裂变材料的裂变截面,  $\phi$  是中子注量率,  $t$  是辐照时间, 单位为 s。

当  $^{235}\text{U}$  裂变截面取为 578b 时, 由热中子注量率  $3.92 \times 10^{12}/\text{cm}^2/\text{s}$  计算核裂变数结果为  $1.15 \times 10^{10}$  个, 由总中子注量率  $5.72 \times 10^{12}/\text{cm}^2/\text{s}$  计算核裂变数结果为  $1.68 \times 10^{10}$  个, 则实际核裂变数在区间  $1.15 \times 10^{10}$ — $1.68 \times 10^{10}$  内。图 2 给出  $^{235}\text{U}$  裂变截面数据<sup>[5]</sup>, 图中的圆点表示  $^{235}\text{U}$  热中子 (0.0253eV) 裂变截面, 显然它比超热中子裂变截面大, 超热中子注量率占总中子注量率的 31.4%, 而在堆照实验中没有给出超热中子谱, 因此核裂变数为  $1.68 \times 10^{10}$  个是这次堆照裂变数的极大值。

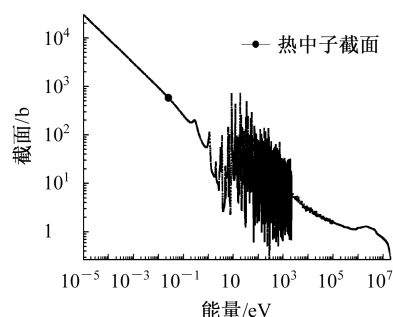


图 2  $^{235}\text{U}$  (n,f) 裂变截面

利用对样品后期跟踪测量能谱, 可以准确地解出通常用于确定核裂变数的核素  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  和  $^{99}\text{Mo}$  等裂变核素的活度, 本文利用这些裂变核素确定的热中子辐照核裂变数为  $1.506 \times 10^{10}$  个。

## 5 结论

本文给出了 3 种核裂变数测量方法的结果的比较, 由 3—5MeV 能区  $\gamma$  射线测量的核裂变数为  $1.27 \times 10^{10}$  个, 包含于从  $1.15 \times 10^{10}$ — $1.68 \times 10^{10}$  区间, 而且它与裂变核素测定结果  $1.506 \times 10^{10}$  个偏差小于 16%, 这表明利用高能区  $\gamma$  射线测量核裂变数的方法是可行的。但是值得注意的是由于该方法计算中较多的依赖于理论计算, 涉及较多的不确定度因素, 尤其是单位核裂变  $\gamma$  总发射率的确定。因此利用高能区射线测量核裂变数的不确定度会随着对 3—5MeV 单位裂变  $\gamma$  总发射率的深入研究而逐步减小。

## 参考文献(References)

- 1 GU Dang-Chang. Method & Technology of Measurement of Radioactive Nuclide Activity. Beijing: Science Press, 1994. 316(in Chinese)  
(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. 316)
- 2 DING Da-Zhao, YE Chun-Tang, ZHAO Zhi-Xiang et al. Neutron Physics—Principle, Method & Application. Beijing: Atomic Energy Press, 2001. 203(in Chinese)  
(丁大钊, 叶春堂, 赵志祥等. 中子物理学——原理、方法与应用. 北京: 原子能出版社, 2001. 203)
- 3 ZHAO Guo-Xiang, XIE Dong. Research into the Radioactivity's Features of Fission Products
- 4 QU De-Cheng. Atomic Energy Science and Technology, 2004, **38**(1): 1(in Chinese)  
(曲德成. 原子能科学技术, 2004, **38**(1): 1)
- 5 Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Cooperation & Development. Java-Based Nuclear Information Software. <http://www.nea.fr/janis>

## Investigation of Feasibility of Measurement of Nuclear Fission Number by Using 3—5MeV $\gamma$ -Rays

HU Guang-Chun<sup>1)</sup> GONG Jian LIU Xiao-Ya XIONG Zong-Hua  
HAO Fan-Hua XIANG Yong-Chun LI Run-Dong

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

**Abstract** A new method is established for measuring nuclear fission number. In this method, the gamma ray total counts of 3—5MeV energy region is utilized. In this paper, the feasibility of this method is verified by irradiation experiment of enriched uranium sample. The results show that this method can be used to measure number of nuclear fission. Compared with the result of general method, the uncertainty in the measurement of this method is less than 16%. It is of worth-while further research.

**Key words** nuclear fission number, high energy region, irradiation experiment, uranium sample