

文章编号: 1007-4627(2003)03-0193-04

钚同位素成分及总质量测量的可行性探讨

师学明, 刘成安

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

摘要: 利用 MCNP4B 程序, 通过一个实例探讨了钚的同位素成分及总质量测量的理论可行性。首先利用假想的 γ 射线源确定出不同能量 γ 射线穿透容器的相对效率曲线; 然后将实际的钚样品放入容器, 通过容器外各种特征 γ 射线强度的测量可以推算出钚的同位素成分; 最后测量出系统总中子泄漏数, 便可求得钚的总质量。

关键词: 钚; 特征 γ 射线; 相对效率曲线

中图分类号: O571.5 **文献标识码:** A

1 引言

不可逆的核裁军过程中需要对一定类型的核弹头作拆卸处理, 拆卸出来的核弹芯要装在密封的容器中。当容器移出拆卸工厂时必须对放在其中的材料进行核查, 以判定材料的成分和重量是否符合条约所规定的弹头弹芯的特性。这是不可逆裁军的一个重要环节。本文利用 MCNP4B 程序, 从物理原理上研究了利用容器外钚同位素特征 γ 射线和总中子计数来推测密封容器中钚同位素的成分及质量的可行性。MCNP 程序系列是 Los Alamos 实验室研制的具有当今最高水平的中子、光子、电子耦合的大型通用蒙特卡罗 (MC) 输运计算程序, 非常适合粒子输运、屏蔽计算等场合。MC 方法也称随机抽样技巧, 特别适合求解本身就带有随机性的物理问题, 它通过直接模拟实际过程得到问题的解, 从而避免了由非确定性问题化为确定性问题以及求解方程所采用计算方法所必需作出很多近似假设 (如分群、离散化等)。MC 方法常被称为精确方法, 并且常以它的结果作为标准来衡量其他一些确定论方法的合理性和精确性。它的缺点是误差用概率误差表示; 对大的几何形状系统或小概率事件的计算结果往往不太好。本文的计算表明, MCNP 程序是材料核查中的有力工具。本文的研究对核材料探测也有一定的参考价值。

2 问题描述

一个圆柱形的钚样品置于圆柱形的不锈钢容器中央, 样品半径 2 cm, 高为 20 cm。容器内半径 30 cm, 外半径 35 cm, 高 35 cm, 上下底厚度均为 5 cm。样品初始时刻的实际成分为: ^{239}Pu 93.3%, ^{240}Pu 6.0%, ^{241}Pu 0.44%, O 0.255%。样品的密度为 19.47 g/cm³, 质量为 4.893 kg。要求不打开容器, 通过 (γ, n) 联合探测推测出某一时刻 (如 10 年后) 钚的各同位素成分比及钚的总质量。

3 理论模型

一般放射性核素都有若干特征 γ 射线, 设同位素 i 发出的能量为 E^j 的特征 γ 射线强度为 $C(E^j)$, 对应分支比为 BR_i^j , 则有^[1]

$$C(E^j) = \lambda_i N_i BR_i^j \epsilon_{\text{tot}}(E^j), \quad (1)$$

式中 j 为特征 γ 射线能量指标; λ 为同位素衰变常数; N 为同位素核密度; $\epsilon_{\text{tot}}(E^j)$ 为全能峰总探测效率, 它满足

$$\epsilon_{\text{tot}}(E^j) = \epsilon_{\text{sample}}(E^j) \epsilon_{\text{absp}}(E^j) \epsilon_{\text{int}}(E^j) \epsilon_{\text{geom}}, \quad (2)$$

式中 $\epsilon_{\text{sample}}(E^j)$ 为样品效率, 考虑了样品的自吸收; $\epsilon_{\text{absp}}(E^j)$ 为吸收效率, 考虑了容器的吸收; $\epsilon_{\text{int}}(E^j)$ 为探测器本征效率, 是指 γ 射线进入探测器后产生全能峰脉冲的概率; ϵ_{geom} 为几何效率, 是指射向探

收稿日期: 2002-11-21; 修改日期: 2003-01-14

作者简介: 师学明(1978-), 男(汉族), 甘肃靖远人, 工学硕士, 从事军控核查技术研究。

测器的 γ 射线份额, 该项与能量无关. 由(1)式可知同位素 i, k 的核密度比为

$$\frac{N_i}{N_k} = \frac{C(E_i^j) \cdot \lambda_k \cdot BR_k^m \cdot RE(E^m)}{C(E_k^j) \cdot \lambda_i \cdot BR_i^j \cdot RE(E^j)}, \quad (3)$$

其中, RE 为相对效率, 显见该式中没有 ϵ_{geom} 的贡献, 即

$$\begin{aligned} \frac{RE(E^m)}{RE(E^j)} &= \frac{\epsilon_{\text{tot}}(E^m)}{\epsilon_{\text{tot}}(E^j)} \\ &= \frac{\epsilon_{\text{sample}}(E^m) \epsilon_{\text{absop}}(E^m) \epsilon_{\text{int}}(E^m)}{\epsilon_{\text{sample}}(E^j) \epsilon_{\text{absop}}(E^j) \epsilon_{\text{int}}(E^j)}. \end{aligned}$$

不失一般性, 令 $\epsilon_{\text{int}}(E^j) = 1$. 这样 RE 就只包含样品和容器的贡献.

对铀的同位素而言, 有 $N_{\text{Pu}} = N_{238} + N_{239} + N_{240} + N_{241}$, 若定义同位素成分比

$$f_i = \frac{N_i}{N_{\text{Pu}}}, \quad i = 238, 239, 240, 241$$

则有

$$\begin{aligned} \frac{1}{f_{241}} &= \frac{f_{238}}{f_{241}} + \frac{f_{239}}{f_{241}} + \frac{f_{240}}{f_{241}} + 1 \\ &= \frac{N_{238}}{N_{241}} + \frac{N_{239}}{N_{241}} + \frac{N_{240}}{N_{241}} + 1. \quad (4) \end{aligned}$$

显见, 只要计算三次同位素核密度比, 便可得到各同位素的成分比.

3.1 容器的相对效率

由于 $\epsilon_{\text{samp}}(E^j)$ 与样品的成分和形状有关(当样品几何形状比较规则时, $\epsilon_{\text{samp}}(E^j)$ 近似与样品形状无关^[2]), 而对探测而言, 这些量恰恰是未知的. 实际分析中, 可以用迭代的办法来减少样品自吸收带来的误差. 本文把容器和样品的吸收一起考虑, 即在实际样品中放入假想 γ 射线辐射源(假设源强为 1), 利用 MCNP4B 可以计算出系统外任意点的不同能量的出射特征 γ 射线强度(点通量). 这样做的目的是避免样品自吸收的影响. 这样, 如果假设某一特定能量 E^j 的 γ 射线的吸收效率为

$$\epsilon_{\text{absop}}(E^j) \cdot \epsilon_{\text{samp}}(E^j) = 1,$$

则任意能量 E^m 相对能量 E^j 的效率, 即容器相对效率, 可表示为

$$RE(E^m) = \frac{C(E^m)}{C(E^j)}.$$

3.2 同位素成分

铀的特征 γ 射线主要来自同位素核的自发衰

变, 第 i 核的衰变满足如下关系:

$$\frac{dN_i}{dt} = A_{i,i-1} N_{i-1} - A_{i,i} N_i, \quad (5)$$

式中 $A_{i,i-1} = \lambda_{i-1} f_{i-1,i}$, $A_{i,i} = \lambda_i$, λ_i 为 i 核衰变常数, $f_{i-1,i}$ 为 $i-1$ 核到 i 核的分支比. 方程(5)的系数由各同位素的衰变链决定. 令 $\tau = t - t_0$, t_0 为起始时刻, 则通过逐级解方程, 可得该时间间隔内如下形式的通解^[3]:

$$N_i(\tau) = \sum_{j=1}^i C_{i,j} e^{A_{j,j} \tau}, \quad (6)$$

式中的系数 $C_{i,j}$ 满足如下关系:

$$C_{i,j} = \frac{A_{i,i-1} C_{i-1,j}}{A_{j,j} - A_{i,i}}, \quad j < i \quad (7)$$

$$C_{1,1} = N_1(0), \quad (8)$$

$$C_{i,i} = N_i(0) - \sum_{j=1}^{i-1} C_{i,j}, \quad i > 1 \quad (9)$$

求出任意时刻同位素核密度后, 便可得到各个能量的 γ 射线强度. 以此作为源强, 用 MCNP 求解光子输运问题, 便可得到系统外任意点的出射 γ 射线强度 $C(E_i^j)$, 结合(3)和(4)式便可推算出同位素的成分比.

3.3 同位素质量计算

可以用迭代的方式计算同位素质量. 铀的自发裂变主要来自 ^{240}Pu , 已知 ^{240}Pu 的自发裂变率为 $R_{\text{sf}} = 54\ 708 / (\text{kg} \cdot \text{s})$, 设同位素的总质量 W 的第 k ($k=0, 1, 2, \dots$) 次估计值为 $W^{(k)}$ ($W^{(0)}$ 可事先估计), 则可引入如下关系

$$W^{(k+1)} = \frac{R_{\text{sf, measure}}}{R_{\text{sf}} M^{(k)} f_{240}}, \quad (10)$$

式中, $R_{\text{sf, measure}}$ 为系统外实测的总泄漏中子数(本文用 MCNP 按照实际样品计算得到), $M^{(k)}$ 为 $W^{(k)}$ 所对应的系统净增殖. 系统净增殖 $M = 1 + G_f + G_x$, 其中 G_f 和 G_x 分别代表一个中子在裂变材料和非裂变材料中的平均增殖. 当连续几次估计质量不发生变化时, 可以认为迭代收敛.

4 计算实例

本文对第 2 节中描述的系统做了计算. 容器的相对效率曲线如图 1 所示, 图中给出了垂直于样品轴线、距离样品 $r=60, 100$ 和 120 cm 的 3 个环上

的相对效率曲线，这里假设能量为 0.662 MeV 处特征 γ 射线的相对效率为 1。由图 1 可见，不同距离上求得的相对效率基本上是一致的，这正体现了相对效率与 ϵ_{geom} 无关。

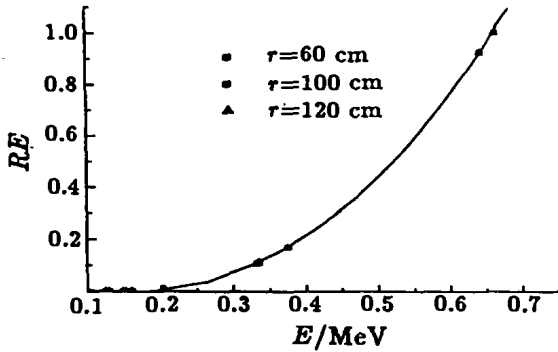


图 1 容器相对效率曲线

表 1 中的 3, 4 和 5 列分别给出了采用假想 γ 源时，上述 3 个圆环上的 11 个特征 γ 射线的点通量计算值；各位置容器的相对效率基本一致，故只给出 $r=100$ cm 处的值(详见表 1 第 6 列)。

系统外各点的实际特征 γ 射线强度 $C(E_i)$ 是以 10 年后实际铀样品的辐射源强作输运计算得到的。由公式(5)可计算出 10 年后铀样品的实际同位素成分为： ^{238}Pu 0.004 641%， ^{239}Pu 93.701 5%， ^{240}Pu 6.021 2%， ^{241}Pu 0.272 7%；进一步算出样品的实际质量为 4.846 kg。将此铀块置入密封容器中作为待测样品，用 MCNP 程序计算出容器外样品的 γ 射线谱，其结果见表 1 最后一列。然后用公式(3)和(4)可推算出铀样品的同位素成分为： ^{238}Pu 0.004 639%， ^{239}Pu 93.732 1%， ^{240}Pu 5.990 6%， ^{241}Pu 0.272 6%。最后，以此成分再对样品作中子输运计算，设中子源为 ^{240}Pu 的自发裂变，计算得到系统泄漏的总中子 $R_{\text{leak, measure}} = 3.122 9 \times 10^4$ ， $M = 1.980 4$ 。表 2 给出了迭代过程中估计质量的变化情况。由表 2 可见，迭代 10 次以后，相邻两次估计质量相差很小，此时认为已经基本收敛，可以停止迭代。取第 13 次迭代值 4.825 4 kg 为样品总质量的推测值。比较可见，利用 MCNP 推算的同位素成分和总质量与样品实际值均吻合较好。

表 1 容器的相对效率

| 能量 /MeV | 核素 | 环上的 γ 点通量(采用假想的 γ 源) | | | $RE(E_i)$ | $C(E_i)$ |
|---------|-------------------|------------------------------------|------------------------|------------------------|-----------------------|-----------------------|
| | | $r=60$ cm | $r=100$ cm | $r=120$ cm | | |
| 0.125 | ^{241}Am | 1.02×10^{-12} | 3.82×10^{-13} | 2.51×10^{-13} | 7.85×10^{-5} | 5.46×10^{-9} |
| 0.130 | ^{239}Pu | 1.60×10^{-12} | 5.52×10^{-13} | 3.86×10^{-13} | 1.14×10^{-4} | 1.56×10^{-6} |
| 0.149 | ^{241}Pu | 9.13×10^{-12} | 3.26×10^{-12} | 2.26×10^{-12} | 6.71×10^{-4} | 2.13×10^{-9} |
| 0.153 | ^{238}Pu | 1.18×10^{-11} | 4.36×10^{-12} | 3.04×10^{-12} | 9.19×10^{-4} | 2.63×10^{-8} |
| 0.160 | ^{240}Pu | 1.95×10^{-11} | 7.23×10^{-12} | 4.96×10^{-12} | 1.50×10^{-3} | 3.10×10^{-7} |
| 0.204 | ^{239}Pu | 1.23×10^{-10} | 4.51×10^{-11} | 3.09×10^{-11} | 9.25×10^{-3} | 1.14×10^{-5} |
| 0.332 | ^{239}Pu | 1.42×10^{-9} | 5.16×10^{-10} | 3.58×10^{-10} | 0.106 | 1.18×10^{-4} |
| 0.335 | ^{241}Am | 1.46×10^{-9} | 5.30×10^{-10} | 3.71×10^{-10} | 0.110 | 9.27×10^{-7} |
| 0.375 | ^{239}Pu | 2.24×10^{-9} | 8.12×10^{-10} | 5.62×10^{-10} | 0.167 | 5.79×10^{-4} |
| 0.642 | ^{240}Pu | 1.24×10^{-8} | 4.47×10^{-9} | 3.10×10^{-9} | 0.924 | 5.95×10^{-6} |
| 0.662 | ^{241}Am | 1.33×10^{-8} | 4.85×10^{-9} | 3.36×10^{-9} | 1.00 | 6.19×10^{-6} |

表 2 铀同位素质量迭代表

| 迭代次数(k) | $W^{(k)}$ / kg | $M^{(k)}$ | 迭代次数(k) | $W^{(k)}$ / kg | $M^{(k)}$ |
|---------|----------------|-----------|---------|----------------|-----------|
| 0(初值) | 1.223 2 | 1.319 9 | 7 | 4.934 5 | 1.987 9 |
| 1 | 7.317 8 | 2.765 9 | 8 | 4.800 4 | 1.971 5 |
| 2 | 3.450 1 | 1.690 8 | 9 | 4.840 4 | 1.982 0 |
| 3 | 5.643 9 | 2.203 8 | 10 | 4.814 7 | 1.975 2 |
| 4 | 4.329 8 | 1.864 1 | 11 | 4.831 3 | 1.977 6 |
| 5 | 5.119 2 | 2.055 2 | 12 | 4.825 5 | 1.977 8 |
| 6 | 4.643 2 | 1.933 9 | 13 | 4.825 4 | |

5 小结

本文的计算结果是比较令人满意的, 它说明利用对(γ , n)联合探测推断铀的成分和总质量在理论

上是可行的. 今后可以对核材料核查中的其他一些方法进行理论分析, 并尽可能的与实际要求相结合.

参 考 文 献:

- [1] Doug Rely, Norbert Ensslin, Hastings Smith. Passive Non-destructive Assay of Nuclear Materials [M]. Washington, U S Government Printing Office, 1991, 243—248.
- [2] Tian Dongfeng. Fissile Material Isotopic Composition by γ Ray Spectra[J]. Nucl Instr and Meth, in Physics Research, 2000, A449: 500.
- [3] 谢仲生. 核反应堆物理分析(上册)[M]. 第三版, 北京: 原子能出版社, 1994, 245—247.

Feasibility Analysis on Isotopic Composition and Mass Measurement for Plutonium

SHI Xue-ming, LIU Cheng-an

(Beijing Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

Abstract: One possible method of measurement of isotopic composition and mass for plutonium is discussed and its feasibility in theory is demonstrated by the MCNP4B package in this paper. The relative efficiency ratio curve for the container where the plutonium sample is put in can be computed by assigning an arbitrary γ ray source in the sample. Once the relative efficiency ratio for the container is known, the isotopic components for plutonium can be induced by assigning the real γ ray source in the sample and analyzing the characteristic γ ray intensity outside the container. Furthermore, if the total neutron counts outside the container is known, the total mass of plutonium in the sample can be estimated.

Key words: plutonium; characteristic γ ray; relative efficiency ratio curve