

文章编号: 1007-4627(2012)01-0077-04

# 被动法高浓铀年龄测量技术研究

张宏俊<sup>1</sup>, 任忠国<sup>2</sup>, 胡碧涛<sup>2</sup>, 熊忠华<sup>1</sup>, 何西尧<sup>1</sup>, 莫钊洪<sup>1</sup>, 刘振汉<sup>1</sup>, 赵德山<sup>1</sup>

(1. 中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900;

2. 兰州大学核科学与技术学院, 甘肃 兰州 730000)

**摘要:** 利用 HPGe  $\gamma$  谱仪测量了多个年龄段的 HEU 样品, 获得了样品中  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  的值, 从而计算得到了 HEU 的年龄, 其测量结果与参考值吻合较好。最后结合实验结果, 系统分析了其它可能用于测量高浓铀年龄的方法, 并对各种方法的可行性进行了分析。结果表明,  $^{214}\text{Bi}/^{234}\text{U}$  比值法是最佳的选择。 $N(^{231}\text{Pa})/N(^{235}\text{U})$  法中对  $\gamma$  谱如何解谱还需作进一步研究。

**关键词:** 高浓铀; 年龄; 被动法;  $\gamma$  谱

**中图分类号:** TL817+.2      **文献标志码:** A

## 1 引言

通过测量高浓铀的年龄可得到铀浓缩活动的相关信息, 判断是否有新的高浓缩铀(HEU)生产活动或被测 HEU 是否被替代。一般认为铀年龄是从最后一次浓缩或化学分离至测量时的时间间隔。

核材料年龄测定的主要手段是借助于质谱仪的化学方法<sup>[1]</sup>。但质谱法属于破坏性测量, 在许多不允许取样的情况下, 这种方法是不可行的。近年来, 国外提出了运用 HPGe  $\gamma$  谱仪的非破坏性测量方法, 该方法是通过测量  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  的值来推断 HEU 的年龄<sup>[1-3]</sup>。国内也曾有人提出测量  $N(^{231}\text{Pa})/N(^{235}\text{U})$  值的方法。

根据国内外的相关文献, 测量对象通常为 1 g 至十几克的 HEU 氧化铀粉末或 100 mL 的硝酸铀溶液<sup>[1-6]</sup>, 测量的方法均为  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  比值法。1 g 铀样品在年龄大于 20 a 时, 测量的不确定度为 6.0%<sup>[4]</sup>。但是, 未见公斤级的纯 HEU 年龄的测量方法及结果的相关文献。

本实验室近年来开展了相关的研究工作, 利用 HPGe  $\gamma$  谱仪测量了公斤级的纯 HEU 样品。实验采用的是  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  法, 测量了多个不同年龄段的 HEU 样品, 获得了较好的结果。最后结合实验结果, 系统分析了其它可能用于测量高浓铀年龄的方法与可行性比较。

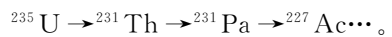
## 2 原理

### 2.1 理论基础

目前世界各国铀浓缩采用的几乎都是气体扩散法和离心法这两种技术。所以, 假设浓缩铀中的 Th 和 Pa 等核素都是在浓缩铀生产出来之后逐渐产生的, 这些核素在未到达平衡前其含量是随着时间增长的, 这是铀年龄测量的理论基础。实际上人们也未在新生产的高浓铀中测到 Th 和 Pa 等核素。此时, 若能测出子体核素与母体核素之比, 即可推算出浓缩铀的年龄。采用  $\gamma$  谱法测量浓缩铀年龄被提出来的方法主要有两种: 测量  $N(^{231}\text{Pa})/N(^{235}\text{U})$  和  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  的值。

### 2.2 $N(^{231}\text{Pa})/N(^{235}\text{U})$ 法

$^{235}\text{U}$  通过如下方式进行衰变:



根据核衰变的指数衰减规律以及级联衰变规律可得到各核素的量随时间变化的方程组:

$$\frac{dN(^{235}\text{U})}{dt} = -\lambda_{^{235}\text{U}} N(^{235}\text{U}), \quad (1)$$

$$\frac{dN(^{231}\text{Th})}{dt} = -\lambda_{^{231}\text{Th}} N(^{231}\text{Th}) + \lambda_{^{235}\text{U}} N(^{235}\text{U}), \quad (2)$$

收稿日期: 2011-08-25; 修改日期: 2011-09-18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(91026021)

作者简介: 张宏俊(1979-), 男, 江苏如皋人, 助理研究员, 硕士, 从事辐射探测研究; E-mail: zhje-mail@163.com

通讯联系人: 胡碧涛, E-mail: hubt@lzu.edu.cn

$$\frac{dN(^{231}\text{Pa})}{dt} = -\lambda_{^{231}\text{Pa}}N(^{231}\text{Pa}) + \lambda_{^{231}\text{Th}}N(^{231}\text{Th}) \quad (3)$$

解方程组可得：

$$N(^{231}\text{Pa}) = \lambda_{^{235}\text{U}}\lambda_{^{231}\text{Th}}N_0(^{235}\text{U}) \times \left[ \frac{e^{-\lambda_{^{235}\text{U}}t}}{(\lambda_{^{231}\text{Th}} - \lambda_{^{235}\text{U}})(\lambda_{^{231}\text{Pa}} - \lambda_{^{235}\text{U}})} + \frac{e^{-\lambda_{^{231}\text{Th}}t}}{(\lambda_{^{235}\text{U}} - \lambda_{^{231}\text{Th}})(\lambda_{^{231}\text{Pa}} - \lambda_{^{231}\text{Th}})} + \frac{e^{-\lambda_{^{231}\text{Pa}}t}}{(\lambda_{^{235}\text{U}} - \lambda_{^{231}\text{Pa}})(\lambda_{^{231}\text{Th}} - \lambda_{^{231}\text{Pa}})} \right] \quad (4)$$

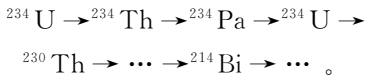
根据<sup>235</sup>U, <sup>231</sup>Th 和 <sup>231</sup>Pa 的衰变常数及高浓铀年龄小于 60 a, N(<sup>231</sup>Pa)可简化为

$$\frac{N(^{231}\text{Pa})}{N(^{235}\text{U})} = \lambda_{^{235}\text{U}}t = 9.85 \times 10^{-10}t \quad (5)$$

通过实验测得 N(<sup>231</sup>Pa)/N(<sup>235</sup>U)的值,即可通过式(5)算出铀年龄。

### 2.3 N(<sup>214</sup>Bi)/N(<sup>234</sup>U)法

<sup>234</sup>U 通过如下方式进行衰变：



根据放射性核素的衰变规律,以及 2.2 中推导的公式可得 t 时刻<sup>214</sup>Bi 的活度：

$$A_{^{214}\text{Bi}}(t) = A_{^{226}\text{Ra}}(t) = A_{^{234}\text{U}}(0)\lambda_{^{230}\text{Th}}\lambda_{^{226}\text{Ra}} \times \left[ \frac{e^{-\lambda_{^{234}\text{U}}t}}{(\lambda_{^{230}\text{Th}} - \lambda_{^{234}\text{U}})(\lambda_{^{226}\text{Ra}} - \lambda_{^{234}\text{U}})} + \frac{e^{-\lambda_{^{230}\text{Th}}t}}{(\lambda_{^{234}\text{U}} - \lambda_{^{230}\text{Th}})(\lambda_{^{226}\text{Ra}} - \lambda_{^{230}\text{Th}})} + \frac{e^{-\lambda_{^{226}\text{Ra}}t}}{(\lambda_{^{234}\text{U}} - \lambda_{^{226}\text{Ra}})(\lambda_{^{230}\text{Th}} - \lambda_{^{226}\text{Ra}})} \right] \quad (6)$$

简化后得<sup>[4]</sup>：

$$\frac{A_{^{214}\text{Bi}}(t)}{A_{^{234}\text{U}}(0)} = \frac{A_{^{226}\text{Ra}}(t)}{A_{^{234}\text{U}}(0)} = \frac{\lambda_{^{230}\text{Th}}\lambda_{^{226}\text{Ra}}t^2}{2} \quad (7)$$

## 3 实验

实验使用的是 Canberra 公司的便携式高纯锗 (HPGe) γ 谱仪,其能量分辨率见表 1。它的探头为同轴型锗探测器,灵敏区 φ80 mm×30 mm,可测能量范围为 45 keV~7 MeV。

表 1 γ 谱仪的能量分辨率

能量/keV	分辨率/eV
5.9	474
122	688
1 332	2 080

测量的 HEU 样品年龄参考值分别为 30, 27 和 15 a。测量时探头正对 HEU 样品,测量时间均为 5 400 s。考虑到死时间不能太大,探头与样品的距离为 60 cm。图 1 给出了<sup>234</sup>U 的特征峰 121 keV 的 γ 谱,图 2 给出了<sup>214</sup>Bi 的特征峰 609 keV 的 γ 谱。

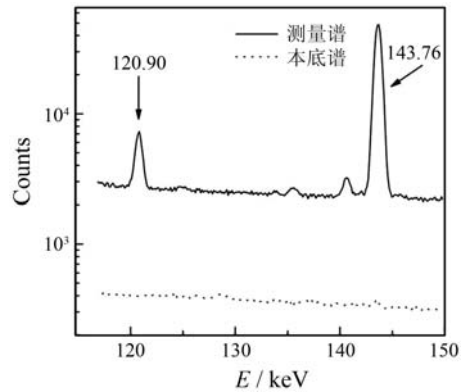


图 1 HEU 样品的<sup>234</sup>U 特征 γ 谱

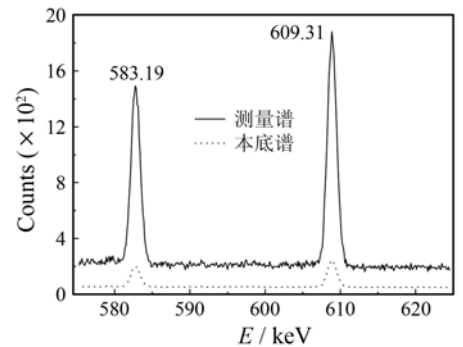


图 2 HEU 样品 609 keV 峰的 γ 谱

## 4 结果与讨论

### 4.1 N(<sup>214</sup>Bi)/N(<sup>234</sup>U)法的年龄测量结果及其分析

由式(5)与式(7)可知,测量铀年龄须测量母核与子核数量或活度之比。利用 γ 谱仪进行测量时,由于自吸收、立体角和屏蔽衰减等因素,使得不同能量的 γ 射线的探测效率存在差异。测量时须对探测器进行效率刻度,才能得到被测对象的活度。

根据式(7)测量铀年龄时,利用相对效率自刻度法<sup>[4-5]</sup>,可以较好地解决效率刻度的问题。首先采用 MGA++/U<sup>235</sup> 软件分析获得 <sup>234</sup>U/<sup>235</sup>U 和 <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U 的值。再通过 <sup>238</sup>U 子体 <sup>234m</sup>Pa 测量获得 400~2 000 keV 能量范围内  $\gamma$  谱仪的相对探测效率曲线,见图 3。

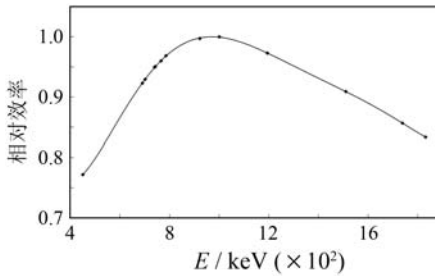


图 3 相对探测效率拟合曲线

将 <sup>214</sup>Bi 的 609 keV  $\gamma$  射线的峰面积代入计算,获得 <sup>214</sup>Bi/<sup>238</sup>U 的相对活度比,最后通过式(8)换算得到 <sup>214</sup>Bi/<sup>234</sup>U 的值,由式(7)算得铀年龄。

$$\frac{{}^{214}\text{Bi}}{{}^{234}\text{U}} = \frac{{}^{214}\text{Bi}}{{}^{238}\text{U}} \frac{{}^{238}\text{U}}{{}^{235}\text{U}} \frac{{}^{235}\text{U}}{{}^{234}\text{U}} \quad (8)$$

利用  $N({}^{214}\text{Bi})/N({}^{234}\text{U})$  法测量多个 HEU 样品年龄的结果见表 2。

表 2 HEU 样品年龄的测量结果

序号	参考年龄/a	测量年龄/a	偏差(%)
1	30±1	28.2±2.1	-6.0
2	27±1	23.0±2.5	-14.8
3	15±1	13.8±4.2	-8.0

由表 2 可以看出,测量结果与年龄参考值的可能最小年龄吻合较好,但是测量结果均偏小。测量结果均偏小的原因是:参考年龄为浓缩的时间节点。根据本研究小组最新的研究分析来看,经过熔炼的 HEU 材料其年龄测量结果会严重偏小,因此在下一阶段的工作中将分析熔炼对 HEU 年龄测量结果的影响。

#### 4.2 其它方法可行性分析

##### (1) <sup>235</sup>U 衰变链

选择用于计算年龄的子核主要考虑两个方面的因素:1)半衰期是否合适;2)能否发出可测量的  $\gamma$  射线。在 <sup>235</sup>U 衰变链中,有可能用来测量 HEU 年

龄的子核是 <sup>231</sup>Pa, <sup>227</sup>Th, <sup>223</sup>Ra, <sup>219</sup>Rn 和 <sup>211</sup>Bi。在 246~335 keV 能区内的谱线不仅复杂,而且强度较低。将其解谱时,需要考虑的因素较多。当测量时间延长至 12 h,虽然峰形的统计特征提高了,解谱仍然具有较大难度。<sup>211</sup>Bi 发出的 351.06 keV  $\gamma$  射线,其周围虽然谱形较简单,但是该谱线被 <sup>214</sup>Pb 发出的 351.92 keV  $\gamma$  射线淹没了(其强度可参考与其活度相同的 <sup>214</sup>Bi 发出的 609.31 keV 的  $\gamma$  射线的峰形)。因此,利用 <sup>235</sup>U 衰变链来计算 HEU 年龄从理论上是可行的,但是在实际测量、解谱中会遇到较大的难度。

##### (2) <sup>238</sup>U 和 <sup>234</sup>U 衰变链

<sup>238</sup>U 衰变链中包括 <sup>234</sup>U,中间子核半衰期均较短,很快就会达到平衡,不适合用来测量年龄。<sup>234</sup>U 的衰变后其衰变子核与母核之比随时间的变化,理论上可用来测量年龄的核素有 <sup>214</sup>Pb, <sup>210</sup>Bi 和 <sup>214</sup>Bi。根据实际测量的  $\gamma$  谱,<sup>210</sup>Bi 的 265.6 keV  $\gamma$  射线虽然强度较高,但周围干扰较多,准确计算其峰面积有不小的难度。<sup>214</sup>Bi 的 609 keV 这条  $\gamma$  射线不仅发射率高,而且周围几乎没有干扰峰。因此在此衰变链中,采用 <sup>214</sup>Bi/<sup>234</sup>U 比值法是最好的选择。

##### (3) <sup>232</sup>U 和 <sup>236</sup>U 衰变链

<sup>236</sup>U 特别是 <sup>232</sup>U 虽然在 HEU 中所占的比重很少,但是如果其衰变链中能寻找到发出可测量的  $\gamma$  射线的子体,同样可以用来测量 HEU 的年龄。利用  $\gamma$  谱法测量 <sup>236</sup>U 本身就比较困难,所以不适合用来测量年龄。百分含量在  $10^{-8}$  量级的 <sup>232</sup>U,其自身衰变发出的  $\gamma$  射线同样很难测量。<sup>232</sup>U 和 <sup>236</sup>U 的衰变链中有一个共同的子体 <sup>228</sup>Th, <sup>228</sup>Th 的衰变子体寿命均较短,无法用来测量 HEU 的年龄。

## 5 结论

通过对整个 HEU 中的各种同位素 <sup>232</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U 和 <sup>238</sup>U 各自衰变链中可用于测量年龄的核素作了全面的理论分析。结果认为, <sup>214</sup>Bi/<sup>234</sup>U 比值法是最佳的选择。 $N({}^{231}\text{Pa})/N({}^{235}\text{U})$  法中对  $\gamma$  谱如何解谱还需作进一步研究。

$N({}^{214}\text{Bi})/N({}^{234}\text{U})$  法测年龄准确性较好。影响测量结果的因素较多。例如,公式近似、仪器误差、所测 HEU 均匀性等。所以有关 HEU 年龄的研究工作仍需开展下去。

## 参考文献 (References):

- [1] CONG T N. Nucl Instr & Meth, 2005, **B229**: 103.
- [2] CONG T N, JÓZSEF Z. Nucl Instr & Meth, 2006, **B243**: 187.
- [3] CONG T N, JÓZSEF Z. Nucl Instr & Meth, 2006, **B246**: 417.
- [4] LÜ Xuesheng. Study on Age-dating of Enriched Uranium by Gamma Spectroscopy[D]. Beijing: China Institute of Atomic Energy, 2007, 27.
- (吕学升.  $\gamma$ 能谱法测量浓缩铀样品年龄的方法研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2007, 27.)
- [5] LÜ Xuesheng, JIN Huimin, LIU Daming, *et al.* Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2008, **30**(4): 243(in Chinese). (吕学升, 金惠民, 刘大明, 等. 核化学与放射化学, 2008, **30**(4): 243.)
- [6] HE Zhonguo, LI Anli, FAN Xianhua, *et al.* Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2005, **27**(2): 91 (in Chinese). (何周国, 李安利, 范显华, 等. 核化学与放射化学, 2005, **27**(2): 91.)

## Passive Detection of HEU Age

ZHANG Hong-jun<sup>1</sup>, REN Zhong-guo<sup>2</sup>, HU Bi-tao<sup>2</sup>, XIONG Zhong-hua,

HE Xi-yao<sup>1</sup>, MO Zhao-hong<sup>1</sup>, LIU Zhen-han<sup>1</sup>, ZHAO De-shan<sup>1</sup>

(1. *China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, Sichuan, China;*

2. *School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

**Abstract:** The HEU sample was measured by HPGe  $\gamma$ -spectrometry. By analyzing the detected  $\gamma$ -spectrum, the  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  of the HEU sample was acquired, and the age of HEU samples was determined, which was coincided with the reference value. At last, the other potential methods of determining the age of HEU were analyzed systematically.  $N(^{214}\text{Bi})/N(^{234}\text{U})$  is more feasible, and algorithm of spectrum-decomposition in  $N(^{231}\text{Pa})/N(^{235}\text{U})$  should be studied further.

**Key words:** HEU; age; passive;  $\gamma$ -spectrometry