



核技术在核燃料非破坏性分析中的应用和进展

乔盛忠 朱荣保

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

描述了核燃料非破坏性分析技术的概况及核技术在这个领域内的典型应用和进展, 如核燃料和核废物中铀、钚含量的快速测定等。所采用的方法如无源 γ 射线法、X射线法、无源中子计数法及有源中子质询法等。介绍了这些方法的原理、特点和主要用途。

关键词: 核技术 核燃料 非破坏性分析 γ 射线分析 中子测量

目前国际上已广泛地开展核燃料的非破坏性分析仪器、仪表、方法及应用的研究工作^[1-4]。如国际原子能机构把这项技术作为对参加核不扩散条约成员国核设施核查的主要手段。如今国际上已有100多个国家参加了国际原子能机构的核不扩散条约。处在原子能机构的监视和控制之下的核材料有9t已分离的钚, 12t高浓铀, 约160t乏燃料中未分离的钚, 约25000t低浓铀和约50000t贫化铀及钍的原材料。这些核燃料遍布世界约900多个核设施和场所。除了日常的现场视察之外, 当核燃料的流失超过显著量[钚8kg, 高浓(浓度超过20%) ^{235}U 25kg, ^{233}U 8kg, 低浓(浓度低于20%) ^{235}U 75kg、天然铀10t, 贫化铀20t, 钍20t, 重水20t等效的 D_2O]时, 机构要严格地追查流失的原因。此外, 目前有不少核国家为了满足核事业的需要(如为了满足核燃料衡算的需要), 开展了一系列非破坏性分析研究工作。核燃料制造厂中的新燃料棒或组件, 可燃性废物中 ^{235}U 、 ^{238}U 的含量, 生产堆及动力堆中的乏燃料棒或组件的燃耗, 乏燃料棒或组件中铀和钚的含量, 核燃料后处理厂中的乏燃料溶解液中铀、钚的含量, 工艺流程设备以及废包壳中滞留量, 核废物处理设施中的低密度可燃性废物中铀、钚的含量, 高密度非均匀废物, 包括废料及退役设备中铀、钚含量等均可通过非破坏性分析进行测定。另外, 在核燃料循环中, 某些环节需要质量和流程控制, 如核燃料元件芯块 ^{235}U 的丰度, 元件芯块间的间隙, 元件棒或组件的装料长度, 乏燃料浸取工艺中溶解终点的控制等均需采用非破坏性分析技术。

核燃料的非破坏性分析技术的经济价值从以下实例即可见一斑。利用这一技术可准确分析乏燃料组件的燃耗或组件溶解料液中的铀和钚含量, 从而可确定问题在于核反应堆的计算还是在核燃料后处理厂的分析数据。在核燃料循环的工艺流程中, 某些部件和设备容易积压铀或钚, 当这些元素(特别是钚)达到临界反应的质量时, 对设备和人员都构成很大的威胁, 采用铀或钚的滞留量监测仪能够排除这种事故。在核燃料制造厂、核电站、核燃料后处

理厂都会产生一些核废物,最后都需固化装桶,然后分类进行处置,深埋 1m^3 的超铀 α 废物需费用数百万元(超铀 α 废物的标准为废物 α 放射性 $>3.7\text{MBq/kg}$,低于这个界线的废物属于非超铀废物),而处理 1m^3 的非超铀废物仅需费用数千元,因此,在这些核废物的处置前,必须采用非破坏性分析技术对它们进行严格的分类,否则会造成巨大的经济损失。因此,目前各有核国家不仅在核政策上加以高度重视,而且积极开展核物料衡算和管理以及核材料非破坏性分析研究工作,以使国家的核工业顺利发展。

1 核材料非破坏性分析的研究及发展概况

自1985年以来,我国陆续派专业人员参加了IAEA在维也纳、美国、日本等地举办的核材料衡算、核保障系统及核材料非破坏性分析培训班,还派了多人在洛斯阿拉莫斯国家实验室、布鲁克海文国家实验室等长期进修和从事这方面的工作。1987年IAEA拨款14万美金,支持我国开展核材料的非破坏性分析及衡算工作。1990年成立了能源部核材料管制办公室。八五期间,国防科工委拨专款开发有关核材料的管制及非破坏性分析的研究工作。1991年在中国原子能科学研究院成立了专门从事这方面工作的核保障技术研究室。

八五期间,国内将有数十位专业人员及数百万的研究经费从事和用于核材料的非破坏性分析技术及核燃料循环的物料衡算的开发和研究工作。1992年我国又加入了国际核不扩散条约。我国已将中国原子能科学研究院的101堆、492堆、秦山核电厂等核设施提交国际原子能机构进行监督和核查。估计在不久的将来,这方面的工作会得到国家更大的重视和发展。

60年代以后,国际上核材料非破坏性分析方法和设备研究已成为活跃的研究领域之一。国际原子能机构、核材料管理学会、欧洲核保障分析研究及发展学会、美国核学会等机构每年或定期举办大型学术会议来讨论核材料非破坏性分析技术、核燃料循环的物料衡算和管理等方面的问题。

国际原子能机构的核材料的非破坏性分析技术是国际核保障技术的重要组成部分。它主要依赖于成员国提供的技术资助。70年代以来,国际原子能机构与美国、前苏联、日本、英国、德国、法国及欧洲原子能联营签订了合作协议。联合开发计划开发项目(1984—1985)共314项,总经费(1985年度)为1400万美元。而且国际核保障司技术发展及合作有关负责人每年至少与成员国有关联络员进行一次双边审查和协调会议,讨论进展情况,并提出新的技术开发研究课题。近年来已完成或正在执行下列非破坏性分析资助项目。

(1)无源 γ 射线计数法: γ 能谱法测定Pu同位素丰度;乏燃料切伦科夫观察镜;后处理厂废包壳中残留铀的测定;核废料 γ 计数装置;UF₆桶 γ 计数装置;WWER-440燃料元件 γ 计数装置。

(2)有源 γ 射线计数法:K-边界密度计,混合式K-边界密度计/XRF,双能量L-边界X射线吸收计,无源 γ 计数/XRF UF₆管线丰度测定, γ 透射/压力-温度法测定²³⁵U丰度。

(3)无源中子计数法:无源中子符合计数器(HLNCC, PHONID),乏燃料核查仪(ION-1 FORK)。

(4)有源中子质询法:中子质询/中子符合计数装置(AWCC, NCC, PHONID),中子质询/ γ 能谱计数装置。

(5)其它测量方法:大型Pu量热计及快速测定法等。

自1976年以来,美国承担国际原子能机构国际核保障技术开发项目的一半。由国务院、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协调每年约100个资助项目。并由洛斯阿拉莫斯国家实验室、布鲁克海文国家实验室、阿贡国家实验室、劳伦斯利弗莫尔国家实验室、橡树岭国家实验室、萨凡那河工厂、爱达荷工厂、国家标准局以及Canberra核仪器公司等承担和参与非破坏性分析仪器、仪表、方法和技术的研究和开发。

除上述国际合作开发项目外,各有核国家的一些研究单位和工厂,如美国的洛斯阿拉莫斯国家实验室、沙湾那河后处理工厂、普茨茅斯气体扩散厂、爱达河FAST、西平谷核工厂;英国的唐端后处理工厂、哈威尔国家实验室、温茨凯尔工厂;法国的UP2、UP3后处理工厂;德国的卡尔斯鲁厄实验室;日本的东海村原子能所;意大利的JRC Ispra等都根据本国核事业的需要,开发一些特殊用途的非破坏性分析技术。如大型的 ^{252}Cf 源中子质询缓发中子测定装置;分段扫描 γ 吸收能谱装置(SGS);后处理设施管线或设备内铀、钚滞留量测定仪;在线气体 PuF_4 、 PuF_6 中钚同位素丰度测定装置;水下乏燃料组件燃耗测定装置等。

2 用于核材料非破坏分析的仪器和方法

长期以来各有核国家根据自己的国情以及核燃料循环中不同的条件和情况,从核燃料制造厂到核废物处理厂先后开展了一系列的核材料非破坏性分析课题的研究,下面列举部分典型的分析仪器和应用^[6-13]。

2.1 非破坏性分析在核燃料制造厂中的应用

燃料制造厂一般将含有一定量 ^{235}U 的燃料制造成生产堆用的燃料棒或动力堆用的燃料芯块、燃料棒和燃料组件(对于后一种情况包括铀钚混合氧化燃料)。在制造过程中,加入的铀量、 ^{235}U 的丰度、低密度可燃性废物中损失的铀量以及碎屑中的U的含量一般采用下述方法进行分析。

2.1.1 有源井型符合中子计数器(AWCC)。AWCC用于浓缩铀材料中 ^{235}U 含量的测定。它主要由 ^3He 中子管、前置放大器、移位寄存符合电路及计算机组成。位于样品井上、下的两个AmLi中子源对铀粉末、芯块及铀金属等样品进行有源中子质询的分析。它也能用于材料实验堆(MTR)燃料板及组件的分析。这种装置是通过测定 ^{235}U 诱发裂变时所发射的中子来确定样品中 ^{235}U 的含量。某些应用中,这种方法优于 γ 射线技术,如对非均匀高密度的样品,高穿透能力的中子使得分析结果取决于样品的整个 ^{235}U 的含量,而不象 γ 射线仅依赖于样品表层 ^{235}U 的含量。AWCC能测定数克到数千克的 ^{235}U ,测量精度为1%—3%(100g ^{235}U)。

2.1.2 铀丰度计(PMCA)。铀丰度计主要由NaI(Tl)探测器及多道分析器组成。为了保持稳定性,一个 ^{241}Am α 源放入NaI(Tl)晶体。由一个调整电路监测 α 粒子脉冲幅度的变化,并由光电倍增管电压的变化予以补偿。这种装置主要是通过测定 ^{235}U 发射的186keV γ 射线的强度来确定其样品中 ^{235}U 的含量。铀丰度计可提供数据获取、计算、储存、记录、显示等多种功能;并已发展成为一种手提式仪器。该设备除用于铀丰度测定外,还可用于确定低浓铀和铀、钚混合氧化物燃料元件及组件的装料长度。

2.1.3 分段 γ 吸收扫描装置(SGS)。SGS包括样品传动设备、透射源屏蔽体、准直器、计数率校正源、HPGe探测器、多道分析器及计算机等。这种装置主要用于低密度或中等密度核

燃料及核废物中 ^{235}U 或 ^{239}Pu 含量的测定。通常是将样品轴向分段扫描,根据所测样品的 γ 射线能量分别选择 ^{75}Se 、 ^{169}Yb 、 ^{137}Cs 及 ^{60}Co 等作为透射源。在实际应用中可通过测定外加透射源 ^{169}Yb 的177keV和198keV γ 射线的透射率来内插样品中 ^{235}U 186keV的自吸收校正因子。

由于样品的种类、性质、尺寸、密度和非均匀程度的不同,SGS达到的测量精度也不同。对 $\phi 38 \times 15\text{cm}$ 含有15—300g ^{235}U 的刻度样品获得的测量精度为 $\pm 0.37\% - \pm 0.87\%$ 。

2.2 非破坏性分析技术在反应堆中的应用

核反应堆的新核燃料元件和组件以及储存在水池中的乏燃料元件和组件采用下列仪器核实它们的含量和属性。

2.2.1 铀符合中子环探测器(UNCL)。UNCL用于核实新燃料组件中 ^{235}U 和 ^{238}U 的含量。它可在有源和无源两种情况下工作。有源时,一个AmLi中子源质询燃料组件,并采用中子符合记录 ^{235}U 的诱发裂变中子。无源时,由自发裂变的中子符合计数率获得 ^{238}U 的含量。该装置能测量克至千克级的 ^{235}U ,测量精度1%—3%(^{235}U 或 $^{238}\text{U}/\text{cm}$ 组件)。

2.2.2 切伦科夫观察镜(CVD)和乏燃料组件检验器(SFAT)。切伦科夫观察镜用于获得储存在核电站或后处理厂水池中的乏燃料组件所产生的切伦科夫光的图像。扫描水池格架上的组件能定性地核实一个水池中储存的燃料,并能观察燃料组件中的棒和水洞形成的特征结构。如果乏燃料组件的燃耗很低、冷却时间又长、水池中水的透明度差、或乏燃料组件被封存在一个容器中,切伦科夫观察镜无法实现核查,可采用一台手提式多道分析器和一个密封的带有铅屏蔽的NaI(Tl)探测器组成的乏燃料属性检验器,能核实储存在水池中的乏燃料组件。

2.3 非破坏性分析技术在乏燃料后处理厂中的应用

2.3.1 水下乏燃料组件燃耗的测定。乏燃料组件储存在后处理工厂的水池中,需要测定其燃料在反应堆中的燃耗,辐照燃料的燃耗值对于反应堆的经济运行和燃料的合理循环很重要。叉型探测器是一种无源中子探测装置,它采用裂变室和电离室作为中子和 γ 探测器测量乏燃料中 ^{244}Cm 的自发裂变中子及裂变碎片同位素的 γ 放射性。该方法中子计数率的测定精度为 $\pm 3\%$ 。

2.3.2 1AF料液铀、钚含量的快速测定。近年来,科学工作者已将K-边界密度计和X射线荧光分析两种技术结合在一起,研制出一种混合式K-边界密度计/XRF,用于解决后处理厂乏燃料溶解液中U、Pu浓度的同时分析,以代替常规的同位素稀释质谱技术。目前西德KfK已将这种装置安装在欧洲超铀元素实验室,测定燃耗为30—35GWd/TU的压水堆燃料溶解液[U/Pu=100—150,冷却时间为3年,总 β 、 γ 放射性活度为 $4 \times 10^{12} - 7 \times 10^{12}\text{Bq/l}$]。测量1h, U浓度的精度为 $\pm 0.25\%$, U/Pu比率测定精度为 $\pm 0.7\%$ 。法国已将这种装置用于UP3的乏燃料后处理工艺流程,运行结果表明分析装置稳定可靠。

2.3.3 后处理工艺流程钚线钚滞留量的测定。在核燃料后处理厂铀、钚分离流程的管道及某些设备中常常会滞留一定量的铀和钚,这不仅关系到临界安全,还影响到核燃料的闭环核算。一种钚滞留量测定装置主要由一个手提式HPGe探测器、计算机及准直器组成。经刻度和对一些因素作校正后定量测定的精度为10%—50%。

2.3.4 后处理工艺流程钚线钚样品的测定。后处理厂钚线产品 PuO_2 粉末、Pu金属等均可采用高计数率中子符合计数器(HLNCC)进行测定。这种设备包括位于聚乙烯慢化体内的 ^3He 中子探测器、快前置放大器($1.3 \times 10^6\text{C/s}$)、移位寄存符合电路(JSR-11)和电子计算机。这种装置能测量克至千克级的 ^{240}Pu ,测量精度为1%—3%(1g ^{240}Pu)。无源中子符合计数装置除

HLNCC外,还有库存样品符合计数器(INVS)、快临界组件燃料符合计数器、快增殖堆燃料组件计数器、鸟笼式中子符合计数器等。

2.4 非破坏性分析技术在核废物处置设施中的应用

高密度非均匀性核废物中铀、钚的含量可采用有源中子质询法进行分析。中子源可采用同位素中子源(如(α, n)反应中子源、光激中子源、自发裂变中子源)和加速器中子源(如密封中子管中子发生器)等。装置的结构比较复杂,主要包括中子探测室、 ^{252}Cf 中子源储存室、中子源及样品的传动系统、电子学仪器系统、自动控制和数据处理硬件及软件系统等。这种装置既可用于无源中子的分析,又可用于有源中子的测定。这种装置能使待测样品辐照均匀,同时中子探测器均匀布满整个测量室周围,因此该装置对于高密度的非均匀样品的测量具有独特的优点。

在无源中子法中,通过测定 ^{238}U 或 ^{239}Pu 等偶核的自发裂变中子,再根据铀或钚的同位素丰度以及刻度和校正因子等可确定样品中铀和钚的含量。

在有源中子质询法中,通过测定 ^{238}U 或 ^{240}Pu 等奇核诱发裂变的缓发中子,再根据铀和钚的同位素丰度以及刻度和校正因子等确定核燃料中铀和钚的含量。

目前一台较好的这类测定装置用于无源中子分析,探测极限为 $20\text{mg } ^{240}\text{Pu}$,测量精度为1%($1\text{g } ^{240}\text{Pu}$ 等效质量)。用于有源中子分析,探测极限为 $500\text{mg } ^{235}\text{U}$,测量精度为1%($10\text{g } ^{235}\text{U}$)。

3 核燃料非破坏性分析技术的发展趋势

随着新燃料元件棒种类的增加、运输容器中采用的可燃中子毒物的变化、辐照后燃料芯块的更换、乏燃料罐和乏燃料储存的新情况的出现以及随着核燃料循环设施及核燃料衡算和管理的深入发展,要求在核燃料分析中应用的非破坏性分析技术具有灵敏度和准确度高、可靠性和适用性强以及小型化、自动化和用途广等特点。如美国Menlove等人已研制成一种新型的中子增殖符合计数装置,该装置依靠先进的核探测仪器、核电子学线路及软件系统,能记录多至256个中子符合事件,能适用于多种类型介质的待测样品。美国洛斯阿拉莫斯国家实验室已研制成一种小型的多道分析系统,其长度为15cm,直径为10cm,以满足核材料监督人员对核材料滞留量现场测量的要求。为了实现上述目标,除了需要进一步开展深入的科学研究外,还需要进一步加强交流和合作。除此之外,在核燃料循环中,核材料的非破坏性分析与破坏性分析相结合也十分重要。

参 考 文 献

- 1 Menlove H O, Crane T W. Nucl Instr Meth, 1978; 152:549
- 2 Rinard P M. LANL Report, LA-12105, 1991:
- 3 Crane T W. LANL Report, LA-10925-MS, 1987:
- 4 Sprinkle J K, Menlove H O, Ensslin N. LANL Report, LA-UR-89-3740, 1989
- 5 Menlove H O. LANL Report, LA-8621-MS, 1981
- 6 SAMson, ISPO-146, 1981
- 7 Parke L J. LANL Report, LA-10045, 1986
- 8 Menlove H O. LANL Report, LA-8939-MS, 1981

- 9 Nicholson N. LANL Report, Q-2-79-788, 1979
- 10 Phillips J R, Malbig K F, Lee M D et al. LANL Report, LA-8212, 1980
- 11 Ottmar H, Eberle H, Koch L. Demonstration of NDA technology for reprocessing input analytical measurements, Proc. INMM 27th annual meeting, New Orleans, Louisiana, June 22-25, 1986
- 12 Russo P A, Sprinkel K J, Elmant H T Jr. LANL Report, LA-10967-MS, 1987
- 13 Melove H O, Swansen E J. Nucl Tech, 1985; 71:497

(1992-08-12收到 1992-10-30修回)

Progress on non-destructive assay of nuclear fuel based on nuclear technology

Qiao Shengzhong Zhu Rongbao

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Abstract

Non-destructive assay of nuclear materials is widely employed throughout the nuclear fuel cycle. The applications at different kinds of nuclear facilities are summarized in this paper. Also described are the basic principles and features of the methods, which include active and passive gamma ray spectrometry, X-ray fluorescence, passive neutron counting and neutron interrogation and so on.

Keywords: Nuclear technology Nuclear fuel Non-destructive assay
Gamma-ray analysis Neutron measurement