

核材料衡算系统滞留量测量技术研究

刘辉 胡志强 房洁莹 胡彦令

中广核铀业发展有限公司

DOI:10.32629/etd.v6i5.16910

[摘要] 采用无源探测效率刻度方法进行核燃料研制生产线滞留量测量与分析研究。首先在实验室采用蒙特卡罗模拟方法对探测器晶体各项参数进行准确描述,再根据现场测量的几何条件、滞留量沉积设备结构材料以及滞留量分布状况建立数学物理模型,借助MCNP程序进行蒙特卡罗模拟计算,计算出现场条件下探测器对射线的探测效率,根据现场测量得到的结果,计算出测量对象中核材料的含量。

[关键词] 核材料; 无源探测; 滞留量

中图分类号: O329 **文献标识码:** A

Research on Measurement Technology for Retention in Nuclear Material Accountancy System

Hui Liu Zhiqiang Hu Jieying Fang Yanling Hu

CGNPC Uranium Resources Co., Ltd.

[Abstract] This study conducts measurement and analysis research on the retention amount in the nuclear fuel development and production line using the passive detection efficiency calibration method. Firstly, the Monte Carlo simulation method is adopted in the laboratory to accurately describe various parameters of the detector crystal. Then, a mathematical and physical model is established based on the geometric conditions of on-site measurement, the structural materials of the equipment where the retention amount is deposited, and the distribution of the retention amount. With the help of the MCNP program, Monte Carlo simulation calculations are performed to obtain the detection efficiency of the detector for rays under on-site conditions. Finally, the content of nuclear materials in the measured object is calculated based on the results obtained from on-site measurement.

[Key words] Nuclear materials; Passive detection; Retention amount

引言

采用无源探测效率刻度方法进行滞留量探测效率计算是近年来滞留量测量领域的技术发展趋势。通过对设备及管道系统、滞留量分布,以及实际测量条件的准确描述,建立相应数学物理模型,采用蒙特卡罗模拟计算方法进行探测效率计算。虽然需要对滞留量分布进行一定程度的简化,但可通过不断地模拟与修正,最大限度与实际状况接近,尽可能得到探测效率的真实数据。这种数学模拟与实际物理相结合的方法,是进行核材料滞留量测量首选技术手段^[1]。

1 研究方法

根据放射性衰变的一般原理,放射性材料的活度A与放射性材料的质量有关,如公式(1)所示。

$$A = \lambda N = \lambda \cdot \frac{M}{M_0} \cdot Na \quad (1)$$

其中 λ 为放射性核素的衰变常数, M为放射性材料的质量, M_0

为放射性核素的摩尔质量, Na为阿伏伽德罗常数。

根据 γ 能谱测量的一般原理,每条 γ 射线全能峰净计数率 n_0 与放射源的活度、探测器效率、几何条件、 γ 射线分支比以及屏蔽材料的吸收等因素有关,具体公式如下式(2)所示。

$$n_0 = \varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_3 \cdot Br \cdot A \quad (2)$$

其中 ε_1 为探测器的本征探测效率, ε_2 为几何因子, ε_3 为屏蔽材料吸收因子, Br为放射性材料发射 γ 射线的分支比。

根据测量得到某核素发射的 γ 射线全能峰净计数率 n_0 ,进行探测器本征效率校正、测量几何条件校正和屏蔽材料吸收性质校正,可以计算出测量样品中该核素的质量。在进行管道滞留量测量与分析时,根据获取到的²³⁵U发射的185.712keV γ 射线或²³⁹Pu发射的129.296keV γ 射线的全能峰净计数率 n_0 ,进行探测器本征效率校正、测量几何条件校正和屏蔽材料吸收性质校正后,可以计算出管道系统内²³⁵U或²³⁹Pu的滞留量,具体公式如下式(3)所示。

$$M = \frac{n_0}{\epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \cdot \epsilon_3 \cdot Br} \cdot \frac{M_0}{\lambda \cdot Na} \quad (3)$$

传统 γ 能谱方法进行放射性核素定量测量时,采用与测量对象相同或高度相似的标准样品对测量系统进行探测效率刻度,在探测效率刻度实验相同条件下对测量对象进行 γ 能谱获取,在该条件下,探测器的本征探测效率(ϵ_1)、几何因子(ϵ_2)、屏蔽材料吸收因子(ϵ_3)相同,只需根据相关核素特征射线的强度,与标准样品测量结果比较,即可得到测量对象中相关核素的活度或质量。

本工作采用无源探测效率刻度方法进行生产线滞留量测量与分析。无源探测效率刻度方法的一般原理是先在实验室采用蒙特卡罗模拟方法对探测器晶体各项参数进行准确描述,再根据现场测量的几何条件、滞留量沉积设备结构材料以及滞留量分布状况建立数学物理模型,借助MCNP程序进行蒙特卡罗模拟计算,计算出现场条件下探测器对 γ 射线的探测效率,根据现场测量得到的结果,计算出测量对象中核材料的含量。

无源探测效率刻度滞留量计算方法如公式(4)所示。

$$M = \frac{n_0}{\epsilon \cdot Br} \cdot \frac{M_0}{\lambda \cdot Na} \quad (4)$$

在实际测量时, M_0 (^{235}U 摩尔质量)、 λ (^{235}U 衰变常数)、 Na (阿伏伽德罗常数)和 Br (射线分支比)为已知量, n_0 为测量得到的 γ 射线全能峰净计数率,结合蒙特卡罗模拟计算得到的探测器对 γ 射线的探测效率 ϵ ,计算出管道系统内的滞留量^[2-3]。

2 研究过程

2.1 测量系统搭建

根据滞留量现场测量实施方案,以1套LaBr₃探测器为主,便携式核素识别仪、个人剂量率仪为辅,建立了滞留量测量系统。

2.2 测量支架设计与加工

根据现场调查结果与现场滞留量沉积区域实际环境条件,设计制作了针对不同环境状况的现场测量支架与配套的准直器,包括手持式准直器、旋转支架、吊篮支架等测量平台和辅助测量支架。

2.3 实验室验证实验

为验证测量技术方案的可行性以及测量系统性能,在实验室以 ^{235}U 标称质量为1.45g、大小为44cm×16cm的铀面源工作样品,以及 ^{235}U 标称质量为0.891g的U₃O₈小圆柱工作样品为测量对象,分别平放、置于管道内、置于球阀内等情形,分别模拟现场情形下平面滞留量、管道滞留量以及球阀滞留量分布状况,采用LaBr₃探测器进行能谱获取和分析,得到 ^{235}U 发射的185.715keV特征射线的强度,采用蒙特卡罗模拟计算得到探测效率,进而计算出各种分布情形下滞留量的质量,并与标称的比较,进而对测量方法进行优化。

2.3.1 平面分布滞留量测量验证实验

将LaBr₃探测器垂直固定于测量支架上,面源工作样品放置于LaBr₃探测器正下方,探测器晶体轴线正对面源中心点,通过升降测量支架导轨变更LaBr₃探测器与面源工作样品距离,分别在距离20cm、30cm、40cm处进行测量,模拟无屏蔽情形下平面分布滞留量测量与分析。根据测量条件进行蒙特卡罗模拟计算,得到LaBr₃探测器对 ^{235}U 发射的185.715keV特征射线的探测效率,结合获取到的185.715keV特征 γ 射线强度,计算出测量对象中 ^{235}U 的质量。

在面源工作样品上方放置大小为60cm×60cm,厚度为3mm的不锈钢板,分别在距离20cm、30cm、40cm处进行测量,模拟有屏蔽情形下平面分布滞留量测量与分析。根据平面分布滞留量测量验证实验结果得知, ^{235}U 质量测量值与标称值最大偏差为-4.58%。

2.3.2 管道滞留量测量验证实验

将面源工作样品卷成一团,分别放入DN32、DN40管道内,模拟管道滞留量分布,在距离40cm处进行测量。根据管道滞留量测量验证实验测量结果得知, ^{235}U 质量测量值与标称值最大偏差为-2.67%^[4]。

3 滞留量现场测量与分析

3.1 现场摸排

根据对现场工艺线摸排,共发现7处物料滞留区域,初步设定关键排查点,列图例。其中,未测得明显伽玛特征能峰的部位未列入。

3.2 现场滞留量测量

采用LaBr₃滞留量测量系统,通过初测核实方法确定滞留量沉积区域,根据表面剂量变化确定滞留量沉积区域范围,最后根据滞留量沉积位置、大小以及设备外形尺寸等因素设置滞留量测量点。通过现场测量与分析,对轴线中的倒运装置、混料装置、负压吸尘装置、制粒装置、暂存手套箱装置、成型装置、墙壁吸尘器管道、氧化工艺装置、烘干装置、单工位压机等10个工艺系统中管道及平面型设备进行测量,共47个测量点。

针对每个测量点设备与环境现状,分别设定了相应测量条件,使用不同的探测器支架与屏蔽准直条件,采用LaBr₃探测器对47个测量点实行了能谱测量。测量完成后,根据每个测量点实际测量条件,建立了相应滞留量计算数学物理模型,得到了探测器对滞留量的探测效率,结合能谱获取到的185.712keV γ 射线净计数率,计算出每个关键测量点 ^{235}U 滞留量,最终计算出每个滞留量沉积热点区域以及整个生产线的铀滞留量。

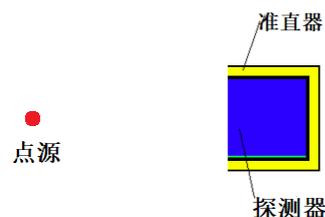


图1 MCNPX软件仿真点源模型

模拟计算探测器探测效率时,根据测量对象及测量条件,将测量对象假设为点、线、面三种。测量管道中转接部件、阀门、小部件(结合测量条件)可将测量对象视为点源,示意图如图1所示,根据记录的测量条件建立相应模型进行仿真计算获取探测效率。

对于测量对象中的细长管道,结合探测器的测量视野,可将测量对象视为线源,根据记录的测量条件和测量对象的尺寸、滞留量分布情况、材料及结构,建立相应模型进行仿真计算获取探测效率。

对于测量对象中的粗短管道、不规则部件以及大型部件,调节探测器的测量视野及测量环境,可将测量对象视为面源,根据记录的测量条件和测量对象的尺寸、滞留量分布情况、材料及结构,建立相应模型进行仿真计算获取探测效率。

针对现场的铀、钍生产线中铀滞留量含量测量,制定了相应的测量方案,主要分为以下三个步骤:

步骤一:根据制定相应的待测点位环境,研制测量支架,搭建测量系统;

步骤二:针对待测点位,设定相应的测量条件进行现场测量,获取相应的伽马能谱,分析 ^{235}U 特征伽马射线185.7keV能峰的净计数率;

步骤三:结合相应的测量条件,利用MCNP仿真计算软件,建立相应的测量模型,计算出各个待测点位的相对探测效率,结合净计数率 n_0 ,计算分析出各个待测点位滞留量含量值。

在测量前,根据前期的摸排情况制定的关键测量点开展清洗工作,具备测量条件的区域进行了测量。

测量数据完成后,获取相应的能谱并进行分析,得到185.7keV能峰的净计数率,根据测量对象尺寸,利用MCNP模拟仿真软件建立关键测量点模型,计算出关键测量点探测效率,结合关键测量点测量分析的185.7keV净计数率,分析关键测量点处的滞留量含量。

3.3 现场滞留量测量误差分析

进行铀生产线滞留量测量分析,误差主要来源于以下因素:探测器表征、测量距离误差、解谱误差、统计误差、模拟计算不确定度、滞留量分布数学物理模型简化、环境本底干扰、滞留量自吸收、探测器稳定性等。

采用表征点源对探测器进行表征,最大误差为10%;测量距离误差会给探测效率计算带来误差,根据铀生产线滞留量测量的实际情况,在采用必要测量支架的情况下,测量距离10cm,轴向距离误差小于1cm,横向距离误差小于2cm,造成探测效率计算

误差最大为10%;对获取到的铀能谱进行解谱,得到的185.7keV射线全能峰净计数最大误差小于50%(测量时间为300s);在进行探测效率蒙特卡罗模拟计算时,探测效率最大计算不确定度为4.5%;根据实验室长期测试结果, LaBr_3 探测器的稳定性好于5%;蒙特卡罗模拟计算探测效率时,对滞留量分布进行了简化,使数学物理模型与滞留量实际分布有一定偏差,可能带来约10%误差;铀滞留量自吸收影响会给测量结果带来一定误差,在本次测量任务中,绝大部分滞留量为面分布,铀滞留量自吸收影响无法进行定量测量与验证,估计会给测量结果带来10%左右偏差。

$$\sigma = \sqrt{10\%^2 + 10\%^2 + 4.5\%^2 + 50\%^2 + 5\%^2 + 10\%^2 + 10\%^2} \approx 54.27\%$$

综上所述,根据误差合成公式,铀生产线滞留量测量结果最大相对偏差为54.27%。

4 结语

针对现场状况建立了相应滞留量测量设备,设计加工了相应滞留量测量辅助装置,在短时间内完成了整个铀生产线、钍生产线的滞留量测量。经过精心策划与实施,对清洗后状态进行了测量,对铀生产线化工段确定了10个铀滞留量重点沉积区域,设立了51个滞留量测量点。

根据现场 γ 能谱测量与实验室分析结果,铀线中铀滞留量总质量测得为106.4g。

测量结果表明,通过对比测量,设施对生产线清洗效果较好,除了部分无法清洗或清洗不到的设备或部位,其它设备与管道中不存在显著滞留量,设备清洗卓有成效^[5]。

【参考文献】

- [1]何丽霞,甘霖,隋洪志,等.铀生产工艺设备中滞留量的自吸收校正方法[J].原子能科学技术,2014,48(05):908-912.
- [2]蒙延泰,王效忠,贾向军.铀标样的无损测量检验[J].原子能科学技术,2007(01):121-124.
- [3]赵永刚,杨群,李力力,等.核保障技术的建立和发展[J].原子能科学技术,2020,54(S1):167-176.
- [4]张敏,阙骥,刘天舒.压水堆元件厂核材料衡算与评价的难点分析[J].核技术,2013,36(10):78-82.
- [5]孙琳,浦晨晨,闫雄伟.XX核燃料研制项目核材料衡算与评价的难点分析[J].核安全,2019,18(01):53-57.

作者简介:

刘辉(1990—),男,汉族,天津宝坻人,本科,工程师,从事核材料衡算和核安全管理工作。