

可燃废物中铀含量无损测定研究

苏培源 李 洋 张春生

(核工业宜宾核燃料元件厂)

摘 要

介绍了应用 γ 扫描装置对可燃废物中的铀含量无损测定的研究成果。通过对仪器的刻度、本底实验、 γ 点源实验、加入标准样品实验等, 确定了该方法的探测下限为每包废物中 ^{235}U 含量 0.053 g。当每包废物中 ^{235}U 的含量达到 1 g 时, 方法误差为 $\pm 36\%$ (2σ); 当每包废物中 ^{235}U 的含量达到 5 g 时, 方法误差为 $\pm 20\%$ (2σ); 经过三个月的考验, 方法的长期稳定性良好, 最大相对误差为 4.9%。利用该法对生产秦山、大亚湾核电站燃料组件, 所产生的各种 ^{235}U 富集度的可燃含铀废物进行了测量。

A Non-Destructive Determination of Uranium in Combustible Waste

(In Chinese)

SU Peiyuan LI Yang ZHANG Chunsheng
(Yibin Nuclear Fuel Element Plant, CNNC)

ABSTRACT

The result of non-destructive determination of uranium content in combustible waste by using Gamma Scanner is presented. The lower detection limit is settled on 0.053 g ^{235}U for each package of waste through a series of tests on scale, background, γ -point source and reference samples. The error of this method is $\pm 36\%$ (with a 95% confidence level) where ^{235}U in waste of each package is up to 1 g and $\pm 20\%$ (with a 95% confidence level) up to 5 g. This method is proven to be very stable for a long term experience for 3 months with a relative error of 4.9%. The varies-enriched combustible wastes of ^{235}U derived from the production of Qinshan, Daya Bay fuel have been detected by this method.

引言

我厂核燃料元件生产线操作人员使用过的工作服、手套、口罩、清洗设备及厂房用过的抹布、拖布等废物中,携带有放射性物质铀的各类化合物,而铀在其中的分布极不均匀,不可能采集到有代表性的样品进行定量分析。历年来,在进行闭环物料衡算时,对废物中的铀含量都是进行粗略的估计。国际核保障和国内核材料管制部门要求对这类废物中的铀含量给出一个确切的测量值和误差范围,以便进行可靠的闭环物料衡算。1991年5月,我厂与中国原子能科学研究院合作,共同研制一台适合于无损测定可燃废物中铀含量的装置。从1992年12月中旬开始,我们使用该装置进行了应用研究。

可燃废物中铀含量无损测定,在国内还是首次,这对于核燃料元件厂进行闭环物料衡算提供了可靠的科学依据。

1 方法原理

可燃废物中铀含量无损测定的原理如图1所示^[1]。

将废物包装装置放于由铅屏蔽的匀速旋转平台上,由NaI(Tl)探测器探测到的废物中放射性核素 ^{235}U 发射的 γ 射线信号,经前置放大器、混合器、线性放大器成型放大后,输送到多道缓冲存储器进行幅度分析,分析结果由计算机进行数据处理,计算机处理结果显示在终端屏幕上,并可由打印机打出。

铅屏蔽体的应用是为了减少自然环境本底和周围废物中 γ 射线对测量结果的影响。废物桶平台以10 r/min旋转是为了实现均匀径向扫描,消除 ^{235}U 在废物中分布不均匀造成的测量误差。探测器由四组 $\phi 50\text{ mm} \times 60\text{ mm}$ NaI(Tl)晶体沿轴向均匀分布,以起到保证轴向测量的效果。

铀效率曲线和介质密度校正曲线的刻度、铀含量的计算,由FUWGS用户专用软件完成。

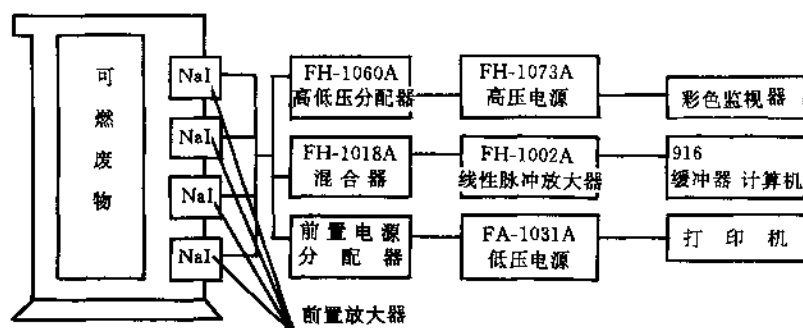


图1 可燃废物 γ 扫描装置工作原理图

2 刻度

2.1 参考样品的制备

γ 源项物质是 ^{235}U 的富集度为3.0%的核纯级 UO_2 粉末,用万分之一电子天平称重,装入 $\phi 10\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ 薄壁塑料瓶中,作为 γ 源项参考标准样品。

参考样品的介质材料是未沾污的棉纱和塑料薄膜,与生产中的实际废物组成基本一致。

参考样品的容器是厚度为0.5 mm, $\phi 400\text{ mm} \times 800\text{ mm}$ (0.1 m^3)圆柱形白铁皮桶。

刻度和应用研究试验用的模拟废物包装样品的制作方法是:把介质材料按预期的量装入铁皮桶内,同时将 γ 源项参考标样按预定的目的分布于介质中。

2.2 铀效率曲线的刻度

铀效率曲线是以 ^{235}U 含量(g)为横坐标,分别以 ^{235}U 发射的110 keV和185 keV的 γ 射线计数率(s^{-1})为纵坐标的两条曲线,它们是测量计算废物中的铀含量的依据。

我们用八种相同介质密度、不同铀含量的参考标准样品刻度铀效率曲线,所刻度的铀效率曲线见图2。

2.3 介质密度校正曲线的刻度

废物介质密度的变化,将引起 γ 射线吸收系数的变化。 ^{235}U 低能 γ 射线穿过介质,打入探测器的份额会因介质密度的大小发生较大的变化。在实际测量计算时必须对介质密度进行校正,否则,将会影响测量结果的准确性。介质密度校正曲线是以废物包装的介质密度为横坐标,以探测到 ^{235}U 发射的110 keV和185 keV γ 射线的计数率为纵坐标的两条曲线。它们是测量、计算废物中铀含量时,对废物密度校正的依据。

我们用了七种相同铀含量、不同介质密度的参考标准样品刻度介质密度校正曲线,所刻度的介质密度校正曲线,如图3所示。

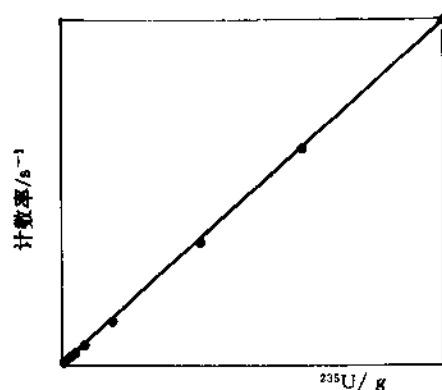


图2 铀效率曲线

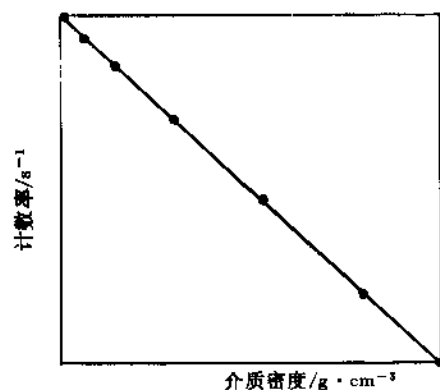


图3 介质密度校正曲线

3 应用试验

3.1 探测下限

探测下限是评价测量方法的重要指标之一。放射性测量装置的探测下限是根据测量仪器的本底计数率来确定的。即用仪器的本底计数率求出样品的最小净计数率, 根据最小净计数率换算出测量值。

其样品最小净计数率用下列方法计算^[2]:

$$N_s = 50 (1 + \sqrt{1 + 0.08 N_b}) \quad (1)$$

$$n_s = N_s / t \quad (2)$$

式中: N_s ——样品净计数, 个;

N_b ——本底计数, 个;

t ——本底测量时间, s;

n_s ——样品净计数率, s^{-1} 。

经过对本底计数率的测量统计, 计算出本方法的测量下限为: 每包桶废物中²³⁵U的含量为 0.0529 g, 即 1.76 g 钚金属 (²³⁵U 的富集度为 3.0%)。

3.2 γ 源项样品不均匀分布试验

γ 源项样品不均匀分布的试验, 主要做了三种典型分布 60 种极端集中情况的试验。三种典型分布是: γ 源项物质沿径向集中、沿轴向集中、成点源状分布。

3.2.1 γ 源项样品沿径向集中分布

将一定量的 γ 源项物质重叠制成一根长棒状 γ 源项试验样品。分别于废物桶中心、距中心 4 cm, 8 cm, 12 cm, 16 cm 及最边缘的径向位置, 将样品棒垂直于废物包装桶底面, 插入废物桶中, 当废物桶旋转时, 形成半径不同的环形 γ 源。测量后, 取 185 keV γ 射线计数率的平均值。从测量结果看出, γ 源项物质越向中心集中, 其 γ 射线计数率越低。

3.2.2 γ 源项样品沿轴向集中分布

将一定量的 γ 源项物质均布于垂直于轴线的截面上, 距底面每隔 10 cm 为一布样截面, 测量后, 取 185 keV 的 γ 射线计数率的平均值。从测量结果看出, γ 源项物质在废物桶中截面时, 其 γ 射线计数率最高, 由中截面向上下两底面集中, 其 γ 射线计数率都在降低。

3.2.3 γ 源项点源试验

将一定量的 γ 源项参考标样做成一“ γ 点源”。置于废物包装桶内, 轴向从下底面起每隔 10 cm, 径向从中心起每隔 5 cm 为一个样品放置点, 一共作了 45 种点源样品, 获得 45 组测量结果。

求得这 45 个测量值的算术平均值为: $a = 1.0950$ g, 标准偏差 $\sigma = 0.1978$ g。

取置信水平为 95%, 样本容量 $N = 45$, 自由度 $\nu = N - 1 = 44$, 对应的置信系数 $t_k = 2.0$ 。取显著水平 $\alpha = 0.05$, 经 t 检验, 服从 t 分布。

在此置信水平, 测量随机误差为 $\pm t_k \cdot \sigma = \pm 2.0 \times 0.1978 = 0.3956$ g, 相对测量误差为: $\pm 36.1\%$ 。

从三种 γ 源项物质典型集中分布的试验看出, γ 源项物质在废物包内任何地方集中, 都会影响测量结果的准确性。然而, 这种情况在实际废物中是难以预料、不可避免的。所以,

它是造成测量误差的主要因素。

通过试验,用统计方法可以求出这些集中分布情况在测量中造成误差的大小。

3.3 γ 源项均匀分布试验

所谓均匀分布,是指在废物桶内,每一瓶 γ 源项样品所占的空间容积基本相等。

γ 源项均匀分布,试验了19种不同的 γ 源项物质含量的废物样品,介质密度从0.170 g/cm³到0.255 g/cm³, γ 源项物质的量从0.2 g到22 g,测量后,经计算求得各次测量平均值。从测量结果看出,当 γ 源项样品均匀分布时,其实测值很接近加入标样量值。其相对测量误差小于5%。

3.4 加入法试验

分别用5.0, 10, 20, 25 g的 UO_2 粉末配制成硝酸铀酰($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$)溶液,依次累加于已知含铀量为2.0 g UO_2 ,密度为0.240 g/cm³的废物中进行测量,每增加一次 γ 源项物质测量三次,求出测量结果的平均值。从测量结果看出,每次加入标样量后的测量值都与加入的标样量很接近,加入法的测量误差最大为5.8%。加入已知源项样品的方法是检验测量方法准确性的有效方法。

3.5 仪器稳定性考验

3.5.1 短期稳定性考验

用1.32 g ^{235}U γ 源项参考标样,均布于介质密度为0.230 g/cm³的废物包装中,作为仪器短期稳定性考验样品,连续三天,从早上8:00至晚上8:00,每隔0.5 h测量一次,每次测10 min,测量结果的误差小于5%。说明仪器在连续12 h内使用,性能良好。

3.5.2 长期稳定性考验

用60 g ^{235}U 的富集度为3.0%的 UO_2 粉末,均布于密度为0.242 g/cm³的介质中,作为仪器长期稳定性考核样品,从1994年8月到11月,每周测量一至二天,每天测量三次,仪器使用环境温度为20~27℃,相对湿度为64%~80%,测量结果表明仪器长期稳定性良好。每天的测量值都接近所加入的标样量,其最大测量误差为4.9%,测量值波动范围的标准偏差为0.0391 g ^{235}U ,相对测量误差为2.5%。在本仪器使用场所内,安装有空调机和除湿机,其仪器使用的环境温度在20~30℃之间,相对湿度在80%以下,仪器在这个环境下使用,对测量结果没有显著影响。

4 误差分析

4.1 误差来源

本方法误差主要来源于三个方面:一是 γ 源项物质在废物桶内不均匀分布;二是测量计数统计涨落;三是介质密度。

γ 源项物质不均匀分布造成的误差是本方法误差的最主要来源,介质密度和放射性计数率统计涨落造成的测量误差是很微小的,可忽略不计。

在实际废物中, γ 源项物质(UO_2 及其他铀的化合物)不可能十分均匀地分布于介质中,可能比较集中于介质的某一区域内,或是测量盲区,或是测量最佳位置。这就会影响测量结果的准确性,造成测量误差。这种 γ 源项物质的不均匀分布可能性是随机的,集中于废物包装内任何一处的几率是相等的。根据3.2节分析:本方法的总误差为:

当废物桶内 ^{235}U 含量 ≥ 1 g, ^{235}U 的富集度为3%时,相对测量误差: $\pm 36\%$ (2σ)。

当废物桶内 ^{235}U 含量 $\geq 5\text{ g}$, ^{235}U 的富集度为3%时, 相对测量误差: $\pm 20\%$ (2σ)。

5 在生产中的应用

本方法建立以后, 分别测量了核燃料元件生产以来, 各个生产岗位所产生的各种 ^{235}U 富集度的可燃废物。其测量结果, 已作为闭环核物料衡算的依据之一, 也作为我厂申请“核材料持有许可证”的论证材料之一, 获得有关专家的认可和好评。

6 结论

(1) 本方法的探测下限为 $0.0529\text{ g }^{235}\text{U}$, 即 2.0000 g 富集度为3.0%的 UO_2 。

(2) 当每包废物中 ^{235}U 含量 $\geq 1\text{ g}$ 时, 方法误差为 $\pm 36\%$ (2σ); 当每包废物中 ^{235}U 含量 $\geq 5\text{ g}$ 时, 方法误差为 $\pm 20\%$ (2σ)。

(3) 通过一个生产周期的使用证明, 应用本方法能对我厂核燃料元件生产线所产生的可燃含铀废物进行实测, 获得科学的测定数据, 结束了不科学地粗略估计可燃废物中铀含量的历史。

在整个研究试验过程中, 吕振祥同志提出了许多指导性意见, 在此, 表示衷心感谢!

参 考 文 献

- 1 朱荣保等. 可燃含铀废物 γ 扫描装置及其刻度, 原子能研究院, 1992.11
- 2 李锡畴. 实验的数学处理, 北京: 科学出版社, 1980
- 3 复旦大学. 原子核物理实验方法, 北京: 原子能出版社, 1986
- 4 Martin E R, et al. Gamma-Ray Measurements with the Segmented Gamma Scanner, LANL Report LA-7059-M, 1977