

# 用平面 Ge(Li) $\gamma$ 谱仪测量核燃料的燃耗\*

原子能研究所核谱组

(中国科学院)

## 提 要

结合我们的经验,叙述用半导体 $\gamma$ 谱仪测量燃耗的方法。准备了测量仪器,考验了它们的性能。

用平面 Ge(Li) $\gamma$ 能谱仪,测量了在热中子反应堆中照射八个月出现烧熔现象的铀棒的燃耗纵向分布。燃耗值是按 Cs<sup>137</sup> 662 keV  $\gamma$ 射线、Ce<sup>144</sup> 134 keV  $\gamma$ 射线和 Zr<sup>95</sup> 724 keV  $\gamma$ 射线的强度测定的。在燃料元件出现空腔处,裂变产物存在着明显的迁移。

## 一、引 言

自从出现具有高的能量分辨本领的半导体 $\gamma$ 探测器以来,人们就想到用它来进行核燃料的燃耗测量<sup>[1]</sup>。以后,相继发表了一些关于高分辨率的 $\gamma$ 能谱法测定燃耗的研究工作和实际应用的报导<sup>[2-7]</sup>。这个方法同质谱法、放射化学法比较,其优点在于它可以进行非破坏性测量。例如资料[5]报导了用 Ge(Li) $\gamma$ 谱仪对原子电站的铀棒进行非破坏性燃耗测量的结果。

起初人们认为,选择裂变产物 Cs<sup>137</sup> 的 662 keV 的 $\gamma$ 射线测定燃耗是比较合适的,这主要是因为 Cs<sup>137</sup> 有比较长的半衰期,一般不需要了解反应堆的工作历史,便可测定燃耗。在使用 NaI(Tl) $\gamma$ 谱仪的情况下,分辨本领不高,由于短寿命裂变产物的干扰,需要把核燃料冷却一、两年后才能进行燃耗的测量<sup>[6]</sup>。采用高分辨本领的 Ge(Li) $\gamma$ 谱仪,在元件冷却2—3个月后即可进行燃耗的测量<sup>[6]</sup>。

在提出高分辨 $\gamma$ 能谱法测量燃耗的同时,人们就发现了 Cs<sup>137</sup> 在高温下,特别是在燃耗深度较高的情况下有严重的迁移现象。因此, Cs<sup>137</sup> 作为好的测量对象就成为有条件的了。工作[3]观测了 Cs<sup>137</sup> 和 Zr<sup>95</sup> 沿铀棒纵向的迁移现象。他们对 Ce<sup>144</sup> 没有发现可观察到的迁移,因此认为 Ce<sup>144</sup>—Pr<sup>144</sup> 是测量燃耗的较好的裂变产物。

事物总是相反相成的。利用 Cs<sup>137</sup> 在核燃料元件中的迁移现象,在不破坏元件的情况下,通过对多种裂变产物的 $\gamma$ 射线强度的测量和比较,可以在一定程度上揭示核燃料在燃烧过程中的温度变化和元件内部缺陷的产生。

## 二、基本原理

在 $\gamma$ 能谱法测量燃耗中,常以燃料的已裂变核数与燃料中现存的或原有的(可裂变的

\* 1972年8月3日收到。

或包括不可裂变的)核数之比标志燃耗深度。这是因为,这种方法直接测量的是燃料中某种裂变产物的核数,从而得出燃料核的裂变数。

用  $f(t)$  表示核燃料中可裂变核的裂变速率;某一裂变产物的产额为  $\alpha$ , 其衰变常数为  $\lambda$ 。则在燃烧过程中,该裂变产物的生成速率为:

$$\frac{dN}{dt} = \alpha f(t) - \lambda N. \quad (1)$$

解这个方程式,考虑到核燃料在入堆前裂变产物为零,得到燃烧时间(或称照射时间)为  $T$  的核燃料中生成的某种裂变产物的核数为

$$N_T = \alpha \int_0^T f(t) e^{-\lambda(T-t)} dt. \quad (2)$$

引用时间因子或称衰变因子<sup>[1]</sup>:

$$F_D = \frac{\int_0^T f(t) e^{-\lambda(T-t)} dt}{\int_0^T f(t) dt}, \quad (3)$$

公式(2)可以写成为

$$N_T = \alpha F_D F. \quad (4)$$

式中

$$F = \int_0^T f(t) dt$$

是被中子照射时间为  $T$  的燃料中可裂变核的裂变核数。

公式(4)是被测燃料的裂变核数与衰变常数为  $\lambda$ 、产额为  $\alpha$  的裂变产物核数的关系。通过测量放射性裂变产物的  $\gamma$  射线强度,得到  $N_T$ , 从而得到  $F$ , 这就是  $\gamma$  能谱法测量核燃料燃耗的根据。

公式(4)中  $N_T$  与  $F$  的正比关系,只有在裂变产物是母核,并且它的中子活化截面为零时才是严格正确的。在实际测量中,选择合适的裂变产物,这个条件是可以近似地满足的。

时间因子  $F_D$  与堆的中子通量的变化关系往往了解得不很清楚。但是,我们可以对燃烧历史的不清楚所引起的测量误差的范围给予一个估计。考虑极端的情况,按公式(3)有

$$e^{-\lambda T} \leq F_D \leq 1.$$

若  $T \leq 0.1 T_{1/2}$ ,  $T_{1/2}$  是被测裂变产物的半衰期,则有

$$0.9 \leq F_D \leq 1.$$

因此,测量的裂变产物若选  $\text{Cs}^{137}$ , 它的半衰期是 30 年,如果燃烧时间  $T = 3$  年,在不存在迁移的情况下,不考虑燃烧历史,认为  $F_D = 1$ , 所得结果误差不大于 10%。

在一定的条件下,例如在时间  $T$  内堆的中子通量分布没有明显的变化,认为  $f(t)$  是与反应堆的功率成正比的,可以按开堆的功率记录计算半衰期同  $T$  有相同数量级的裂变产物的时间因子  $F_D$ 。

## 三、仪 器

为研究测量燃耗的  $\gamma$  能谱法, 建造了一套 Ge(Li)  $\gamma$  谱仪。

平面 Ge(Li) 探测器是由探测器组提供的, 灵敏体积极约  $2 \text{ cm}^3$ 。电荷灵敏前置放大器是与资料[9]同一类型的; 使用国产结型场效应管 CX 402 B, 得到零电容噪声  $1.7 \text{ kev}$ , 斜率  $20-30 \text{ ev/pf}$ 。调制了一台单微积分成形放大器; 实验证明, 选择时间长数  $\approx 10 \mu \text{ sec}$  得到最佳的信号噪声比。为了使用 256 道脉冲幅度分析器, 调制了切割放大器。整个谱仪, 在使用较好的平面 Ge(Li) 条件下, 得到  $\text{Cs}^{137}$   $662 \text{ kev}$   $\gamma$  射线的谱线半高度宽度,  $\text{FWHM} = 4 \text{ kev}$ 。

在工作[1]中, 测量燃耗使用康普顿  $\gamma$  符合谱仪。在它发表前后, 人们对低效率的半导体探测器同 NaI(Tl) 组合成康普顿符合谱仪进行了研究。(比如资料[10—12])他们使用的

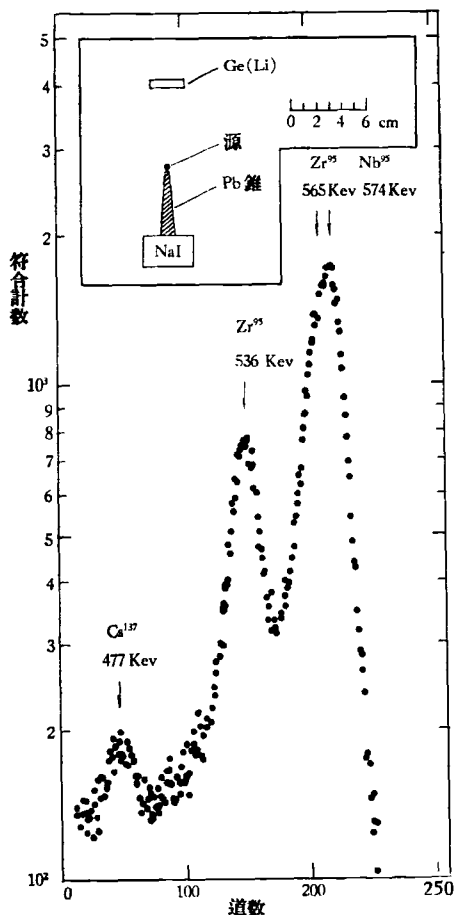


图 1  $\text{Cs}^{137}$  和  $\text{Zr}^{95}-\text{Nb}^{95}$  的康普顿符合能谱, 裂变产物的比例相当  $\text{U}^{235}$  经热中子照射一年冷却四个月的情况。图的上部给出探测器的几何位置。所标谱线能量对应  $180^\circ$  康普顿散射的电子能量。

的半导体探测器是 Si 材料的。由于探测器的光电效率很低, 对于几百 kev 的  $\gamma$  射线, 所得到的能谱是在很高的康普顿连续谱的前面有一个不明显的光电峰。他们用康普顿符合  $\gamma$  谱仪的办法解决了这个矛盾, 因为它测量的是对应  $\gamma$  射线在大角度, 近  $180^\circ$  散射的康普顿电子能谱, 所以可以得到清楚的谱线。

我们用 Ge(Li) 探测器同 NaI(Tl) 组成康普顿符合谱仪, 并且测量了  $\text{Cs}^{137}$  和  $\text{Zr}^{95}-\text{Nb}^{95}$  的比例相当  $\text{U}^{235}$  经热中子照射一年冷却四个月的康普顿符合能谱(图 1)。按康普顿符合能谱定量测量  $\text{Cs}^{137}$  的强度, 并不比用 Ge(Li) 谱仪测量的结果好。因为用简单的 Ge(Li)  $\gamma$  谱仪测得的能谱,  $\text{Cs}^{137}$  的光电峰并不落在  $\text{Zr}^{95}-\text{Nb}^{95}$   $\gamma$  射线康普顿连续谱上, 而是在连续谱边缘计数刚起始上升的“斜坡”上[参考图 2(a)]。改善探测器的几何条件(如文章[1]那样), 能够降低康普顿符合谱的  $\text{Zr}^{95}-\text{Nb}^{95}$  谱线左边低能部分的“尾巴”, 提高测量的精确度, 但与简单能谱比较没有根本上的差别。这是因为 Ge(Li) 的光电效率较高, 单谱的光电峰高度, 在  $\sim 2 \text{ cm}^3$  灵敏体积时, 已近似等于康普顿连续谱高度的 3 倍, 谱线已经足够明显, 因此问题的性质已经改变了。

对测量燃耗来说, 如果选择测量  $\text{Cs}^{137}$  的  $\gamma$  射线强度, 在存在能量大于  $(662+200) \text{ kev}$ , 并

且强度很大的  $\gamma$  射线的情况下, 使用康普顿符合谱仪是会有好处的。但是这种情况只有在元件冷却时间很短的时候, 比如对  $U^{235}$  来说, 照射一年冷却时间小于两个月时, 才有可能出现(参见表1)。在冷却时间过短的情况下, 即使是使用康普顿符合谱仪, 由于过强的  $Zr^{95}-Nb^{95}$  的干扰, 对  $Cs^{137}$  的强度做定量测量也是困难的。

因此, 在使用 Ge(Li) 探测器的情况下, 为了定量的测量燃耗, 采用康普顿符合谱仪并不是必须的。

表1 按资料[13],  $U^{235}$  经热中子照射一年冷却二个月, 其中裂变产物, 它的半衰期大于2天,  $\gamma$  射线能量大于 662 keV, 而强度大于  $Cs^{137}$  强度 1% 以上的, 只剩以下几种:

裂 变 产 物	半 衰 期	$\gamma$ 射 线 能 量 (keV)	$\gamma$ 射 线 相 对 强 度
$Cs^{137}$	30 年	661.6	1
$Y^{91}$	57.5 天	1200	0.11
$Zr^{95}$ ↓ $Nb^{95}$	65 天 35 天	724 756 765	12 15 42
$Ru^{106}$ ↓ $Rh^{106}$	1 年 30 秒	— 1040 1550	— 0.04 0.03
$Te^{129m}$	41 天	720 1120	0.015 0.05
$Ba^{140}$ ↓ $La^{140}$	13 天 40.3 小时	— 820 920 1600 2570	— — 0.97 2.3 0.14
$Ce^{144}$ ↓ $Pr^{144}$	285 天 17.5 分	— 695 1500 2200	— 0.1 0.06 0.2

#### 四、燃耗测量

被测铀棒在热中子试验堆中照射八个月, 冷却六个月后, 沿纵向, 包括两端, 均匀取6点切开管套。由于在燃烧过程中燃料烧熔下沉, 在上端出现空腔; 在下面5个点上取下燃料样品, 溶于酸中, 取1毫升进行裂变产物的  $\gamma$  能谱测量。同时制备了同被测样品有同样几何形状的标准源, 它们是  $Cs^{137}$ ,  $Ce^{144}-Pr^{144}$  和  $Zr^{95}-Nb^{95}$ 。每点平行取样三个。每个样品的  $\gamma$  能谱和标准源的  $\gamma$  能谱, 用  $FWMH = 5.5$  keV 的平面 Ge(Li)  $\gamma$  谱仪在3—4小时间隔内相继测量, 因此可以认为样品和标准源的测量是同时的。图2(a)、(b) 给出样品的  $\gamma$  能谱。按  $Cs^{137}$  662 keV 的  $\gamma$  射线、 $Ce^{144}$  134 keV 的  $\gamma$  射线和  $Zr^{95}$  724 keV 的  $\gamma$  射线的全能峰

面积,计算样品中的  $U^{235}$  的裂变核数。其公式为

$$F = \frac{I_0}{\lambda \alpha F_D} \frac{S}{S'} \quad (5)$$

式中,  $S/S'$  是样品中某一裂变产物的某一条  $\gamma$  射线的全能峰面积与相应的标准源的该条  $\gamma$  射线全能峰面积之比;  $I_0$  为标准源在停堆时刻的绝对强度(衰变/秒);  $\lambda$  和  $\alpha$  分别是该裂变产物的衰变常数(秒<sup>-1</sup>)和裂变产额。

在计算中,使用的  $\lambda$  和  $\alpha$  值列于表 2。

在铀棒的每点上平行取的三个样品的  $S$  值,在测量误差范围内是一致的。在计算每点上的  $F$  时,取三个平行样品的  $S/S'$  的平均值。

对  $Cs^{137}$  我们取时间因子  $F_D = 1$ , 误差不大于 1%。为了求得  $Ce^{144}$  和  $Zr^{95}$  的时间因子,假设  $f(t)$  同反应堆的功率成正比。按堆功率的记录,算得  $Ce^{144}$  的  $F_D = 0.78$ ,  $Zr^{95}$  的  $F_D = 0.37$ 。

标准源的强度,是同用  $4\pi\beta$  计数管刻度的薄膜源,在距离 NaI(Tl) 不同高度上,经过中间强度的源过度比较测量的。从单独制备  $4\pi\beta$  源开始,多次过渡的结果互相偏高不超

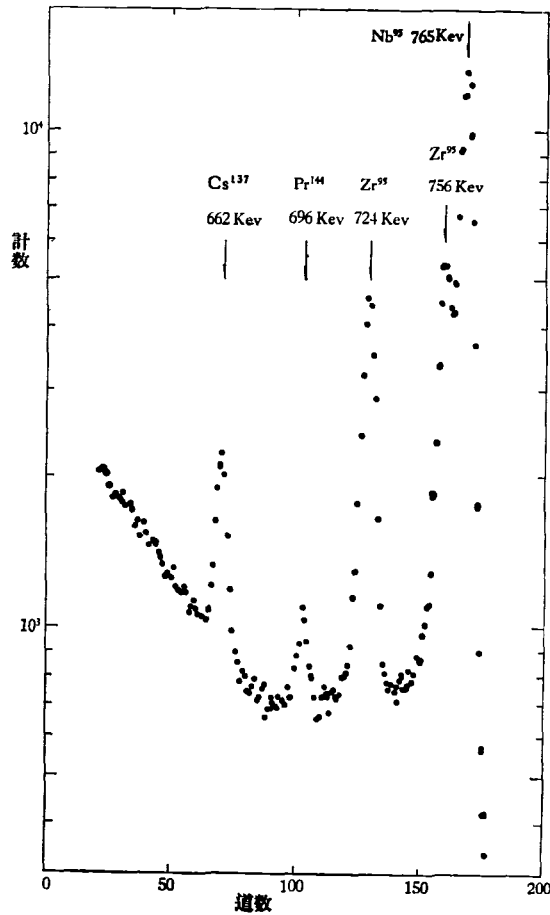


图 2(a) 由铀棒下端上数第二点上取的第 3 号样品在 700 keV 附近的  $\gamma$  能谱。照射八个月冷却 190 天。

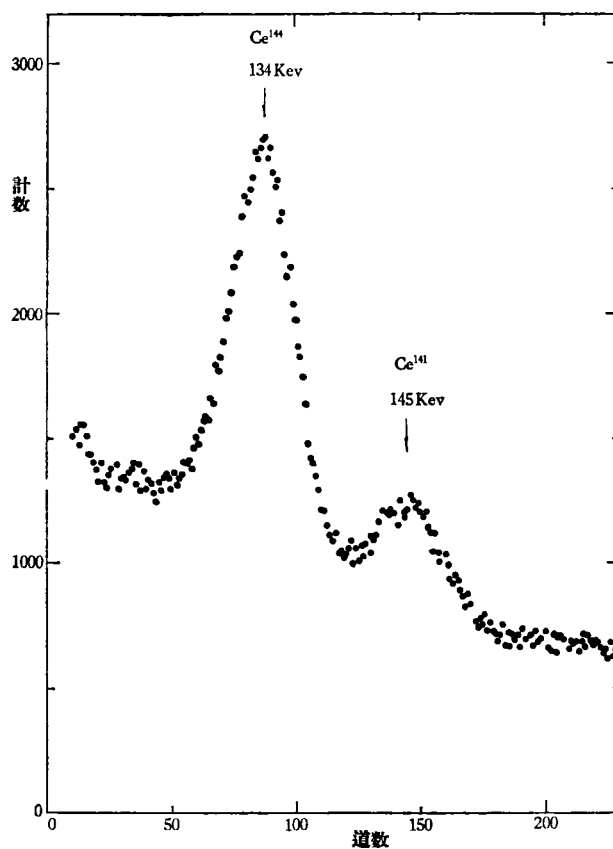


图 2(b) 第四点上取的第 2 号样品在 140 keV 附近的  $\gamma$  能谱。冷却 188 天。

表 2 计算样品中裂变核数所用的核常数

裂 变 产 物	$\lambda$ (1/秒)	$\alpha$ (%)
Cs <sup>137</sup>	$7.32 \times 10^{-10}$	6.19
Ce <sup>144</sup>	$2.82 \times 10^{-8}$	5.6
Zr <sup>95</sup>	$1.23 \times 10^{-7}$	6.2

过 10%。对 Cs<sup>137</sup> 的  $4\pi$  源进行了内转换电子的校正；对 Ce<sup>144</sup>—Pr<sup>144</sup> 和 Zr<sup>95</sup>—Nb<sup>95</sup> 的  $4\pi$  源，由于它们的低能  $\beta$  射线，进行了自吸收的校正。Zr<sup>95</sup>—Nb<sup>95</sup> 源是在反应堆中产生的，同被测铀棒同时入堆和取出的，是处在动平衡状态，为求得其中 Zr<sup>95</sup> 的强度，用 Br<sup>82</sup> 测量了 Ge(Li) 的全能峰相对效率的曲线<sup>[14]</sup>，效率随能量的变化是和资料[15]的理论计算一致的。按 724, 756 和 765 keV 三条  $\gamma$  射线的分支比、它们的相对效率和标准源的  $\gamma$  能谱，定出了标准源 Zr<sup>95</sup>—Nb<sup>95</sup> 中 Zr<sup>95</sup> 的强度。

按样品中铀的含量，求得每点上燃耗深度。所得结果表明，在铀棒下端三点上的燃耗值，用三种裂变产物测得的结果互相重合，相差不超过 10%；在上端由于空腔的形成实验数据出现明显的分歧。图 3 给出用三种裂变产物测得的燃耗分布。图中分布曲线是按 Ce<sup>144</sup> 的实验点画出的，是与堆的中子通量分布比较一致的。

这个实验表明,在平均燃耗不很深的情况下,由于元件内部缺陷的存在,也可以观察到裂变产物  $\text{Cs}^{137}$  和  $\text{Zr}^{95}$  的明显迁移。裂变产物,由于燃料每点上温度的不一致和停堆开堆所引起的燃料温度的强烈变化,它们在元件内重新分布的过程是比较复杂的。它们之中有些或者由于热运动向高温处扩散,或者形成气体最后冷凝在低温处。

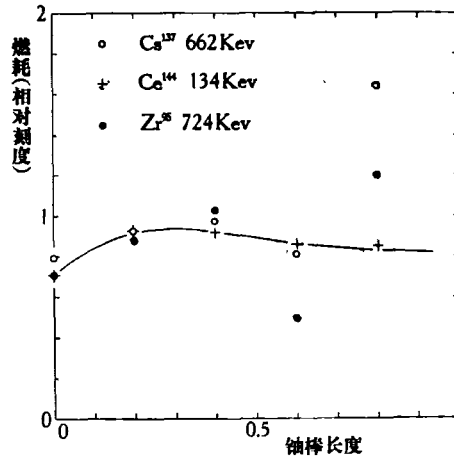


图 3 用裂变产物  $\text{Cs}^{137}$ ,  $\text{Ce}^{144}$  和  $\text{Zr}^{95}$  测定的燃耗沿铀棒纵向分布。横座标右端对应铀棒上端,因出现空腔在这里没有数据。

“○”—— $\text{Cs}^{137}$  662 keV; “+”—— $\text{Ce}^{144}$  134 keV;  
“●”—— $\text{Zr}^{95}$  724 keV.

这个实验再一次启示我们,高分辨的  $\gamma$  能谱法对不破坏的元件同时用几种裂变产物进行燃耗分布的测量,可以揭示元件内部温度的变化和较大的机械变化,如裂缝、空腔等的形成。

## 五、结 论

自从 1964 年提出用半导体  $\gamma$  谱仪测量燃耗以来,人们对这个方法进行了研究,并把它应用于堆元件的非破坏性燃耗测量。在使用低效率的 Si 材料半导体时,康普顿符合  $\gamma$  谱仪是必须的。使用 Ge(Li) 探测器时,由于它的全能峰效率是足够的,一般做成简单的  $\gamma$  谱仪就可以完成燃耗的测量。由于裂变产物在高温下存在着迁移现象,因此,人们以前认为  $\text{Cs}^{137}$  是最好的测量燃耗的裂变产物便成为有条件的了。高分辨 Ge(Li)  $\gamma$  谱仪应用于燃耗测量,同时选测几种裂变产物,不但是可能的而且是必须的。一方面,这可以排除核参数不精确知道的影响;另一方面,测量结果在一定程度上可以反映出核燃料的工作温度与大的内部机械缺陷的产生。

## 参 考 资 料

- [1] M. J. Hignatsberger et al., *Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, vol. 9 (1965), 577.
- [2] Л. В. Грочев и др., *Атомная энергия*, 21 (1966), 412.
- [3] О. А. Миллер и др., *Атомная энергия*, 23 (1967), 124.

- 
- [ 4 ] H. Bükler, *Nukleonik*, **9** (1967), 346.
  - [ 5 ] О. А. Миллер и др., *Атомная энергия*, **27** (1969), 281.
  - [ 6 ] V. F. Bolović, *Journal of Radioanalytical Chemistry*, **4** (1970), 99.
  - [ 7 ] J. Krtil et al., *Radiochem. Radioanal. letters*, **3** (3) (1970), 193.
  - [ 8 ] Н. Ф. Правдюк и др., *Атомная энергия*, **21** (1966), 92.
  - [ 9 ] K. F. Smith et al., *IEEE Trans. on Nucl. Scien.*, **NS-13**, No. 4 (1966), 468.
  - [ 10 ] H. Hick et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **24** (1963), 327.
  - [ 11 ] Von H. Aiginger, Wien, *Atomkernenergie*, **9** (1964), 355.
  - [ 12 ] В. И. Мелентьев и др., *ПТЭ*, **1** (1967), 45.
  - [ 13 ] Н. Г. Гусев и др., *Гамма-излучение радиоактивных изотопов и продуктов деления*, Москва, 1958.
  - [ 14 ] R. J. Gehrke et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, **91** (1971), 349.
  - [ 15 ] J. R. Harvey, *Nucl. Instr. and Meth.*, **86** (1970), 189.