

Pu300 能量窗钚年龄算法

储诚胜¹⁾ 郝樊华 龚建 黄瑞良 伍怀龙 向永春 刘素萍
刘晓亚 胡永波 胡广春 章剑华

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所 绵阳 621900)

摘要 美国 LLNL 提出了采用钚材料 γ 谱的 330—350keV (Pu300) 能量窗计算钚年龄, 用此能量窗建立了相关钚年龄算法, 并对几个不同样品的谱数据进行了计算, 并将其结果与 PC/FRAM 的结果进行比较, 结果表明两者吻合得比较好.

关键词 Pu300 能量窗 钚年龄 PC/FRAM

1 引言

钚年龄是指钚材料经过钚镅分离后的储存时间, 分析钚年龄属性是确认钚材料是否是禁产条约后生产, 从而核查核材料拥有国是否有违约事件, 是核裁军核查和核材料禁产核查的重要组成部分.

在无损分析方面, 主要根据钚材料的 γ 谱分析钚的年龄, 国内外有开展相关研究的报道^[1, 2], 美国 LANL 开发了专门用于分析铀、钚同位素丰度和年龄的专用软件 PC/FRAM, 通过钚材料的 γ 全谱进行年龄分析.

但是钚材料的 γ 谱里还包含了大量的敏感信息和扩散信息, 如果使用钚材料的 γ 全谱进行年龄分析, 核查方可能会从中获取核材料的其他敏感信息, 这样会损害被核查方的利益. 为此, 美国 LLNL 提出了使用 Pu300 能量窗 (330—350keV) 计算钚年龄, 并开发了相关分析软件, 该软件并被用于美国研制的 FMTTD 系统^[3], 但是没有公开其具体算法的报道.

用 Pu300 能量窗计算钚年龄属性涉及的敏感信息少, 有利于敏感信息保护, 在核材料认证过程中, 被核查方可以接受; 该能量窗范围内相对效率相近, 可以避免相对效率修正带来的不确定度. 使用窄能量窗进行钚年龄分析是信息屏障技术的重要组成部分, 为此我们有必要建立自己的 Pu300 能量窗钚年龄算法, 为今后的核材料属性认证提供技术支持.

2 基本原理

一般情况下, 大多数钚样品都包含 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu 和 ^{242}Pu , 其中 ^{241}Pu 的子体 ^{241}Am 和 ^{237}U 也总是存在其中, 其衰变过程如图 1 所示. ^{241}Am 相对于 ^{241}Pu 是长寿命子体, 在 75a 的衰变时间内, ^{241}Am 的浓度持续增加. ^{237}U 相对于 ^{241}Pu 是短寿命子体, ^{237}U 与 ^{241}Pu 迅速达到长期平衡^[4]. 大约在 ^{237}U 的 7 个半衰期后 (约 48d, 以下假设所有样品都满足该条件), ^{237}U 的衰变率与 ^{241}Pu 的 α 衰变率相同. 此后, 就可以根据样品中的 ^{237}U 衰变伴随 γ 射线来测量样品中 ^{241}Pu 的量.

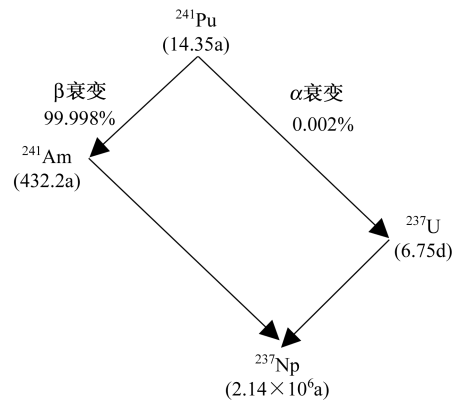


图 1 ^{241}Pu 衰变图

经钚镅分离出来的钚材料中没有 ^{241}Am 和 ^{237}U ,

2006 - 01 - 19 收稿

1) E-mail: chuchsh@tom.com

那么经过时间 t (钚年龄)后, 样品中 ^{241}Pu 产生的第一代子体 ^{241}Am 和 ^{237}U 的原子数为^[5]:

$$N_{^{241}\text{Am}} = \frac{\exp(-\lambda_{^{241}\text{Am}}t) - \exp(-\lambda_{^{241}\text{Pu}}t)}{\lambda_{^{241}\text{Pu}} - \lambda_{^{241}\text{Am}}} \times \lambda_{^{241}\text{Pu}} \times f_{\text{Am}} \times N_{^{241}\text{Pu}}, \quad (1)$$

$$N_{^{237}\text{U}} = \frac{\exp(-\lambda_{^{237}\text{U}}t) - \exp(-\lambda_{^{241}\text{Pu}}t)}{\lambda_{^{241}\text{Pu}} - \lambda_{^{237}\text{U}}} \times \lambda_{^{241}\text{Pu}} \times f_{\text{U}} \times N_{^{241}\text{Pu}}, \quad (2)$$

由式 (1) 和式 (2) 可得:

$$\frac{N_{^{241}\text{Am}}}{N_{^{237}\text{U}}} = \frac{\exp(-\lambda_{^{241}\text{Am}}t) - \exp(-\lambda_{^{241}\text{Pu}}t)}{\exp(-\lambda_{^{237}\text{U}}t) - \exp(-\lambda_{^{241}\text{Pu}}t)} \times \frac{\lambda_{^{241}\text{Pu}} - \lambda_{^{237}\text{U}}}{\lambda_{^{241}\text{Pu}} - \lambda_{^{241}\text{Am}}} \times \frac{f_{\text{Am}}}{f_{\text{U}}}, \quad (3)$$

其中 $\lambda_{^{241}\text{Pu}}$, $\lambda_{^{241}\text{Am}}$ 和 $\lambda_{^{237}\text{U}}$ 分别表示 ^{241}Pu , ^{241}Am 和 ^{237}U 的衰变常量, f_{Am} 和 f_{U} 分别表示 ^{241}Pu 的 β 衰变和 α 衰变分支比, $N_{^{241}\text{Pu}}$ 为 ^{241}Pu 的原子个数. 为此只要解出 ^{241}Am 和 ^{237}U 的原子数比就可以计算出钚年龄.

3 Pu300 能量窗的主要射线

钚材料对 Pu300 能量窗有贡献的几种主要核素的衰变常量如表 1.

表 1 Pu300 能区的几种主要核素的衰变常量

核素	λ
^{239}Pu	9.12×10^{-13}
^{241}Am	5.086×10^{-11}
^{237}U	1.19×10^{-6}

某钚材料的 Pu300 能量窗, 如图 2, 其主要 γ 射线来源及其分支比如表 2 所示. Pu300 能量窗在谱图上显示为 332, 335, 341 和 345keV 4 个峰.

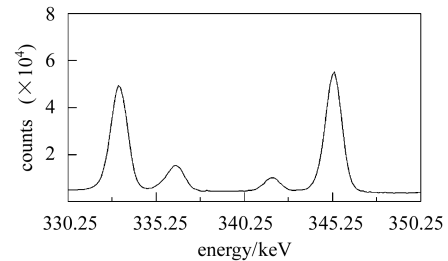


图 2 某钚材料的 Pu300 能量窗

表 2 Pu300 主要能量 γ 射线及其分支比

^{239}Pu		^{241}Am		^{237}U	
能量/keV	分支比(%)	能量/keV	分支比(%)	能量/keV	分支比(%)
332.85	4.94×10^{-4}	332.35	1.49×10^{-4}	332.36	1.2
336.11	1.12×10^{-4}	335.37	4.96×10^{-4}	335.38	9.5×10^{-2}
341.51	6.62×10^{-5}	337.7	4.29×10^{-6}	337.70	8.9×10^{-3}
345.01	5.56×10^{-4}	340.56	4.3×10^{-6}	340.4	1.6×10^{-3}
345.01	$< 5 \times 10^{-5}$	—	—	—	—

4 Pu300 能量窗年龄算法

4.1 解峰计数

Pu300 能量窗进行年龄计算, 首先要解出 Pu300 能量窗的 332, 335, 341 和 345keV 4 个能量峰的计数, 由于这 4 个峰在谱图上靠得很近, 所以解峰计数的精确度决定于谱的分辨率, 目前的高纯锗探测器测量的钚材料的 γ 谱基本可以区别开这 4 个能量峰, 为此这 4 个峰计数在技术上可以解开, 假设 4 个能量峰的计数分别为 N_1, N_2, N_3 和 N_4 .

4.2 ^{239}Pu 对 332 和 335keV 能量峰贡献扣除

^{241}Am 和 ^{237}U 的比较强射线包含在 332 和 335keV 两个峰中, 而这两个峰都是 ^{239}Pu , ^{241}Am 和 ^{237}U 三者的重叠峰. 忽略 ^{241}Am 和 ^{237}U 的 340.56 和 340.4keV 两

条 γ 射线对 341keV 的贡献, 可以通过 341 和 345keV 的强度算出 ^{239}Pu 的 332 和 335keV 两个峰的贡献.

忽略 ^{241}Am 和 ^{237}U 的 337.7keV 射线对 335keV 的 γ 射线的影响, 从 332 和 335keV 的峰计数中扣除 ^{239}Pu 的贡献, 得出 ^{241}Am 和 ^{237}U 对 332keV 能量峰的贡献 n_1 , ^{241}Am 和 ^{237}U 对 335keV 能量峰的贡献 n_2 .

$$n_1 = N_1 - \left(\frac{P_{^{239}\text{Pu}}(332.85)}{P_{^{239}\text{Pu}}(341.51)} N_3 + \frac{P_{^{239}\text{Pu}}(332.85)}{P_{^{239}\text{Pu}}(345.01)} N_4 \right) / 2, \quad (4)$$

$$n_2 = N_2 - \left(\frac{P_{^{239}\text{Pu}}(336.11)}{P_{^{239}\text{Pu}}(341.51)} N_3 + \frac{P_{^{239}\text{Pu}}(332.11)}{P_{^{239}\text{Pu}}(345.01)} N_4 \right) / 2, \quad (5)$$

其中 $P_{^{239}\text{Pu}}(332.85)$ 表示 ^{239}Pu 的 332.85keV 能量射线的分支比, 以下相似符号含义类推.

由于 ^{239}Pu 的贡献在 332 和 335keV 两个峰中占主要部分, 因此式(4)和式(5)是大数相减的运算, 计算不确定度会比较大, 可以通过增加谱的采集时间, 提高

谱强度,减少计算不确定度.

4.3 ^{241}Am 和 ^{237}U 原子个数比计算

假设 ^{241}Am 和 ^{237}U 的活度分别为 $A_{241\text{Am}}$ 和 $A_{237\text{U}}$,探测效率为 ε (因为能量范围窄,以下的计算都假设每个能量窗的相对效率相同),可以建立下面方程组:

$$\varepsilon P_{241\text{Am}(332.35)} A_{241\text{Am}} + \varepsilon P_{237\text{U}(332.36)} A_{237\text{U}} = n_1, \quad (6)$$

$$\varepsilon P_{241\text{Am}(335.37)} A_{241\text{Am}} + \varepsilon P_{237\text{U}(335.38)} A_{237\text{U}} = n_2, \quad (7)$$

可以解出:

$$\frac{A_{241\text{Am}}}{A_{237\text{U}}} = \frac{P_{237\text{U}(335.38)} n_1 - P_{237\text{U}(332.36)} n_2}{P_{241\text{Am}(335.37)} n_1 - P_{241\text{Am}(332.35)} n_2}. \quad (8)$$

设 ^{241}Am 和 ^{237}U 的半衰期分别为 $T_{241\text{Am}}$ 和 $T_{237\text{U}}$,原子数分别为 $N_{241\text{Am}}$ 和 $N_{237\text{U}}$,可以得出:

$$\frac{N_{241\text{Am}}}{N_{237\text{U}}} = \frac{A_{241\text{Am}} \ln 2 / T_{241\text{Am}}}{A_{237\text{U}} \ln 2 / T_{237\text{U}}}, \quad (9)$$

将式(9)代入式(3)就可解出铀的年龄.

5 Pu300算法对部分样品 γ 谱的计算结果

用该算法对某铀材料 γ 谱进行铀年龄属性分析,同时用PC/FRAM软件对该谱进行铀年龄属性分析,结果如表3所示.其中样品甲和样品乙是同一个罐装元件的两个样品,装在不同的元件罐里进行测量的,测量探测器为ORTEC公司的GEM-F8250P4高纯锗探测器和DESPEC2000多道分析仪.

由表3可以看出,样品甲在测量时间长,测量死时间相对小的情况下,Pu300算法与PC/FRAM分析结果吻合得很好,而且各自的归一性很好;但是在测量时间短,测量死时间小时,计算结果离散度比较大,是

因为谱强度比较弱,计算过程中大数相减给计算结果带来了很大不确定度.

表3 某铀材料谱的属性分析结果

谱名称	样品	测量时间/s	死时间(%)	年龄相对值	
				Pu300	PC/FRAM
bb002	甲	703	14.64	2.796	3.251
bb003	甲	1031	14.63	3.164	3.459
bb004	甲	1288	14.62	3.254	3.426
bb005	甲	1549	14.45	3.164	3.459
bb014	甲	9945	14.43	2.780	2.805
bb015	甲	10204	14.44	2.766	2.821
bb016	甲	10293	14.43	2.720	2.841
bb017	甲	10431	14.44	2.787	2.881
banq1	乙	417	30.43	2.877	2.436
banq1	乙	417	30.44	4.474	无结果
banq1	乙	417	30.46	2.137	无结果

样品乙在测量死时间大,测量时间短的情况下,Pu300法计算铀的结果离散度比较大,PC/FRAM计算的样品乙的年龄离散度也比较大,还有部分谱没有得到分析数据,而且计算结果与样品甲结果的差异比较大,这主要是因为死时间大引起谱分辨变差造成的,影响了解这4个能量峰数据的准确度.

Pu300算法和PC/FRAM结果基本一致,其分析结果主要受谱的强度和谱的分辨影响比较大.

6 结论

Pu300年龄属性分析算法,实现了美国人提出的窄能量窗铀年龄属性分析功能,但是这里只是开展了该算法的可行性研究,要将该算法用于核材料属性认证,还需要进一步优化,提高其分析精度,从而达到铀年龄属性分析的要求.

参考文献(References)

- WEI Meng-Fu, ZHANG Lian-Ping, WU Lun-Qiang et al. Atomic Energy Science and Technology, 2004, **38**(6): 561—564 (in Chinese)
(韦孟伏, 张连平, 吴伦强等. 原子能科学技术, 2004, **38**(6): 561—564)
- Archer D E, Luke S John, Parker W. Pu300: A Tool for Measurement of Internal Document Number: Age for Arms Control Transparency via Gamma-Ray Spectroscopy: UCRL-JC-136626. LLNL, 2000
- Larry R Avens, James E Doyle, Mark F Mullen. The Fissile Material Transparency Technology Demonstration: LA-UR-01-3570. LANL, 2001
- LU Xi-Ting. Atomic Nucleus Physics. Beijing: Atomic Energy Press, 1982. 27—30(in Chinese)
(卢希庭编著. 原子核物理. 北京: 原子能出版社, 1982. 27—30)
- HAO Fan-Hua, HU Guang-Chun, LIU Su-Ping et al. Acta Physica Sinica, 2005, **51**(8): 3524(in Chinese)
(郝樊华, 胡广春, 刘素萍等. 物理学报, 2005, **51**(8): 3524)

Arithmetic of the Plutonium Age with Pu300 Energy Window

CHU Cheng-Sheng¹⁾ HAO Fan-Hua GONG Jian HUANG Rui-Liang WU Huai-Long
XIANG Yong-Chun LIU Su-Ping LIU Xiao-Ya HU Yong-Bo
HU Guang-Chun ZHANG Jian-Hua

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract LLNL bring forward an arithmetic of the plutonium age with the 330—350keV(Pu300) energy window. And another arithmetic of plutonium age with the same energy window is proposed in this paper. The ages of two plutonium samples were calculated with this arithmetic, and the comparison with the results from PC/FRAM indicates that the proposed arithmetic is rather reasonable.

Key words Pu300 energy window, plutonium materials' age, PC/FRAM