

铀气溶胶环境中惰性气体氙迁移过程研究

伍怀龙[†] 田东风 郝樊华 龚建

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

(2010年3月24日收到; 2010年5月10日收到修改稿)

放射性气体的安全性问题是涉及反应堆运行中必需研究的重要问题. 因此在铀气溶胶环境中, 对铀材料裂变产生的放射性气体裂变产物, 需要研究其在铀气溶胶环境中的迁移过程. 对放射性惰性气体 Kr87, Kr88 的实验测量数据进行了具体分析. 依据它们具有铀材料直接裂变和作为固体裂变产物子体两种来源这一物理特性, 在不同的制样时间对 Kr87/Kr88 比值变化规律进行分析. 确立了这两种来源的在铀气溶胶环境中的物理图像和迁移过程的物理模型, 并与实验数据进行比较以验证模型的正确性.

关键词: 铀气溶胶, 气体裂变产物, 放射性 Kr87/Kr88, 迁移过程

PACS: 28.41. Te

1. 引言

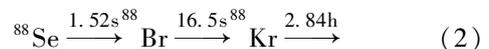
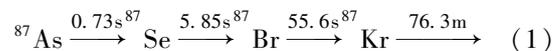
开展用反应堆辐照铀粉末样品的实验时, 铀材料发生裂变生成裂变产物^[1], 测量其中的放射性惰性气体核素 Kr87, Kr88 的产生量是一个重要问题. 要回答在某个时间取出的样品测量 Kr87, Kr88 的活度是否代表实际的这些核素的生成量, 就需要对惰性气体氙在铀气溶胶环境^[2,3]中的迁移过程有一个准确的了解. 需要研究这一迁移过程对测量氙生成量的影响.

铀材料裂变生成放射性惰性气体核素 Kr87, Kr88 本身有两个来源: 一个是铀原子核裂变以一定概率直接生成氙原子; 另一个是铀核裂变以一定概率生成氙核素的固态母体核素(砷、硒、溴)等, 然后母体核素经过核衰变转变成氙原子. 这时有一个裂变产额的概念, 前一个铀核裂变直接生成氙原子的概率定义为独立产额, 而后一个铀核裂变先生成固态母体再转换成氙原子的概率定义为链产额. 铀核裂变生成 Kr87, Kr88 的独立产额和链产额是不同, 同时它们的母体衰变成 Kr87, Kr88 原子的半衰期也不同. 本研究的一个重要出发点就是利用这些不同点建立模型. 通过在实验中测量不同制样时间 Kr87, Kr88 的活度, 由测量数据分别推算出 Kr87 和 Kr88 实际生成量, 它们的比值 Kr87/Kr88 的随制样时间发生变化的情况, 可以使用建立的模型进行适

配解释, 正确的迁移过程模型推算出来的结果应与 Kr87/Kr88 的随制样时间发生变化曲线符合. 同时根据迁移过程模型的计算结果可以对各个制样时间下制样测得的氙数量与实际的裂变生成氙量的代表性偏差进行修正, 以得到准确的氙生成量. 需要强调的是, 本文的研究是建立在这样的假设基础上: Kr87, Kr88 的独立产额、累积产额比例等核物理特性不同引起最终的分析结果不同, 但认为 Kr87, Kr88 本身在迁移过程中的化学行为是完全相同; 即对一个 Kr87 或 Kr88 原子从铀气溶胶微粒迁移出来并被制样收集这一过程是一样的.

2. 物理图像和算法

Kr87 和 Kr88 的衰变过程为^[4]



可以分析, 在裂变发生时, 每一次裂变放能的平均值为 200 MeV, 其中分给轻碎片的能量为 102 MeV, 分给重碎片的能量为 73 MeV, 分给裂变中子为 5.8 MeV 等等. 氙是轻碎片, 能量为 102 MeV^[5]. 根据质速关系

$$\frac{m_0}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}} - m_0 = \frac{\Delta E}{c^2} = \frac{102}{c^2} \text{ MeV}. \quad (3)$$

[†] E-mail: wuhuilong2050@yahoo.com.cn

可以得到裂变发生时氪原子的速率为 $v = 1.5 \times 10^7$ m/s. 这是一个比常态下气体原子速率(几百 m/s)大得多的量. 所以这时裂变产物原子是被弹射出去而处于自由状态. 而在整个容器中, 固体性质的产物应在铀的大环境中凝结成气溶胶微粒状态, 它的气体衰变产物应处于不自由的状态. 这就是作为独立产额的部分和作为链产额的部分这两个来源是经过了不同的途径.

所以物理图像的假设为: 在裂变发生后, 直接裂变产生的氪原子可以无障碍的从容器进入制样和测量系统; 而作为固体裂变产物子体的那部分氪原子不能无障碍的进入制样环节, 它首先要经过从以铀为载体的气溶胶微粒中迁移出来的过程, 再出壳而在容器中处于自由状态才能被制样. 计算和分析应针对这两个物理过程进行.

实际测量时间 T_R , 测量的活时间 T_L , 峰面积计数为 S_0 , 测量开始时 Kr87 (或 Kr88) 的活度为 A_x , Kr87 (或 Kr88) 的衰变常数为 λ_x 、分支比为 Y_x 、探测效率为 ϵ_x , 则有^[6]

$$\int_0^{T_R} A_x e^{-\lambda_x t} Y_x \epsilon_x \frac{T_L}{T_R} dt = \frac{A_x Y_x \epsilon_x T_L}{\lambda_x T_R} (1 - e^{-\lambda_x T_R}) = S_0. \quad (4)$$

所以测量过程修正, 即测量所得的活度修正到测量开始时间的活度, 所需乘的因子为

$$\frac{A_x Y_x \epsilon_x}{S_0 / T_L} = \frac{\lambda_x T_R}{(1 - e^{-\lambda_x T_R})}. \quad (5)$$

从裂变发生时刻到制样时刻的时间间隔为 T_1 , 从制样时刻到测量开始时刻的时间间隔为 T_2 , 那么从测得活度推算裂变发生时 Kr87 (或 Kr88) 的活度, 修正因子为

$$C_x = \frac{\lambda_x T_R e^{\lambda_x (T_1 + T_2)}}{(1 - e^{-\lambda_x T_R})}. \quad (6)$$

独立产额为 I , 累计产额为 A . 链来源部分出壳比例为 C , 那么分别由 Kr87 或 Kr88 的测量值推算裂变发生数的比值为

$$\frac{\text{Kr87}}{\text{Kr88}} = \frac{\frac{I_{87} + C(A_{87} - I_{87})}{A_{87}}}{\frac{I_{88} + C(A_{88} - I_{88})}{A_{88}}}, \quad (7)$$

其中数字 87, 88 分别代表 Kr87 和 Kr88 相应参数.

从(7)式可以看到, 当链来源从铀气溶胶微粒迁移出来的比例 C 为 1 时, 即全部已迁移出来时, 由 Kr87/Kr88 的比值为 1, 即它们得到的裂变发生

数是一致. 当链来源从铀气溶胶微粒迁移出来的比例 C 小于 1 时, 即存在未迁移出来的份额时, Kr87/Kr88 的比值将不为 1. 所以如果在某个制样时间测量得到的由 Kr87, Kr88 测量值推算裂变发生数的比值 Kr87/Kr88 不为 1 时, 则说明出壳比例 C 不为 1, 存在未出壳的氪原子. 同时在不同的制样时间, Kr87/Kr88 比值如果发生变化, 说明比例 C 在发生变化, 即反映了氪原子从铀气溶胶微粒迁移出来的过程. 将实验得到的 Kr87/Kr88 比值变化曲线与建立的迁移模型得到的曲线进行比较, 便可以得到在某个制样时间下, 有多少份额的氪原子未从铀气溶胶微粒中迁移出来, 从而对惰性气体放射性氪的产生量进行修正.

3. 实验和数据处理

Kr87 和 Kr88 的核物理参数如表 1^[7].

表 1 Kr87, Kr88 参数表

核素	累积产额/%	独立产额/%	半衰期
Kr87	0.96	0.218	76.3m
Kr88	1.294	0.731	2.84h

由表中, Kr87 的独立产额在累积产额中占的比重比 Kr88 要小, 那么联系(7)式, 当存在未从铀气溶胶微粒出来的份额时, Kr87/Kr88 比值将比 1 小. 而随着迁移出来份额的增加, 这一比值将增加, 并向 1 靠近, 通过实验应该观测到这一现象.

实验使用高纯锗 γ 探测器进行测量, 分析测量能谱^[8,9] 以得到 Kr87, Kr88 放射性活度, 测得的它们推算裂变发生数比值随制样时间的变化如图 1 所示.

由图中可以看到, Kr87/Kr88 比值确实随制样

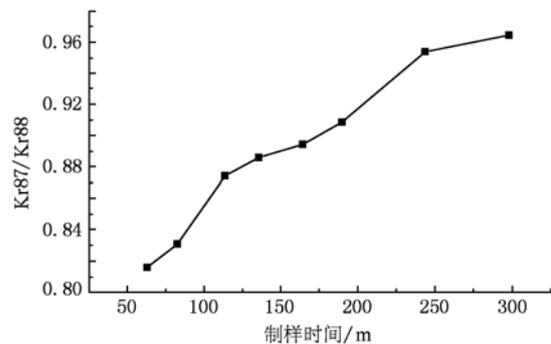


图 1 实验测得曲线 Kr87, Kr88 推算裂变数随制样时间变化曲线

时间的增加在逐渐增加,这说明本研究的理论假设是正确的.

设计一个模拟计算过程确定铀气溶胶微粒中氙气体的迁移扩散出来的过程. 计算方法为,半径为 r_0 的球形铀气溶胶微粒,按距球心的远近分为若干层,每层(距球心 r)的扩散分界面为向临近外层 $ds = 4\pi r^2 dr$ 来自临近内层 $ds = 4\pi r(r - dr) dr$. 按时间顺序设置时间微元 dt ,计算在每个 dt 每层扩散出和扩散来的原子数,得到每层在每个时间微元 dt 后的原子总数,该数即作为下一个时间微元 dt 计算的初始输入. 同时得到各 dt 后出壳原子数. 初始条件为气体在铀气溶胶微粒中均匀分布,微粒外为真空(浓度为零). 时间微元 dt 和层数 dr 的设置按照每一 dt 内各层的扩散出和扩散来原子数远远小于当时各层总原子数. 按照上述思想进行计算,得到如图 2 所示的计算曲线.

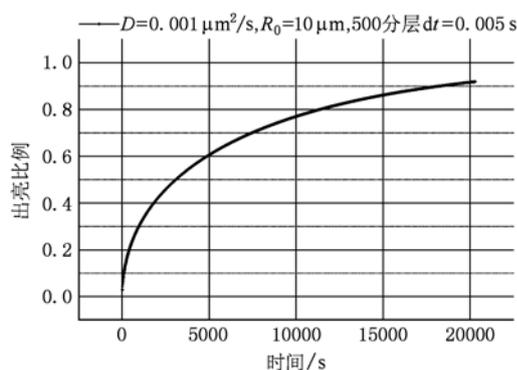


图 2 氙原子迁移出铀气溶胶微粒模拟计算曲线

4. 讨 论

将图 1 的实验数据与图 2 的模拟计算曲线进行比较,得到表 2 的结果.

表 2 的数据, Kr87/Kr88 比值都是指分别由 Kr87,

Kr88 分析得到的裂变事件数的比值. 从表中可以看到,根据理论模型计算的 Kr87/Kr88 比值与实验测得符合很好,差异在 1%—2% 之间,不超过 2%;考虑到高纯锗 γ 测量的不确定度在 1%—2%,所以分析结果完全在测量误差范围之内. 同时根据不同制样时间的链来源出壳比例可作为对制样代表性偏差的修正依据.

表 2 实验测得的 Kr87/Kr88 比值与理论计算的比较

制样时间 /s	链来源出壳比例	理论推算 Kr87/Kr88 比值	实验测得 Kr87/Kr88 比值	理论与实验差
3780	0.54361	0.807616	0.81594	1.010307
4950	0.60379	0.838267	0.83098	0.991307
6810	0.67862	0.873778	0.87435	1.000654
8130	0.72108	0.892758	0.8861	0.992543
9840	0.76674	0.912297	0.89451	0.980504
11370	0.80066	0.926261	0.90868	0.981019
14610	0.85652	0.948301	0.9538	1.005799
17880	0.89691	0.963537	0.9645	1.000999

5. 结 论

分析铀裂变产生的放射性惰性气体氙的数量对于确定各裂变核素的生成量和确定反应堆运行的安全性具有重要意义. 因为 Kr87 和 Kr88 的来源包括铀核直接裂变和固态裂变产物母体衰变而来两种方式,本文的分析表明,在铀气溶胶环境中,作为固体裂变产物衰变子体的那部分氙来源要经过从铀气溶胶微粒迁移出来的过程,而被制样收集到. 所以得到的结论是:由于迁移过程的存在,通过制样测量得到的氙生成量与裂变实际产生量的代表性偏差,在不同的制样时间点下需要通过模拟计算得到的曲线进行修正.

[1] Wu H L, Hao F H, Tang Y M 2007 *Nuclear Techniques* **30** 633 (in Chinese) [伍怀龙、郝樊华、唐元明 2007 核技术 **30** 633]
 [2] Zuo H Y, Yang J G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6132 (in Chinese) [左浩毅、杨经国 2007 物理学报 **56** 6132]
 [3] Xia Z H, Fang L, Zheng H Y 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 320 (in Chinese) [夏柱红、方黎、郑海洋 2004 物理学报 **53** 320]
 [4] Richard B Firestone 1996 *Table of Isotope* (8th Edition) (USA: Lawrence Berkeley National Laboratory) p351
 [5] Lu X T 2000 *Nuclear Physics* (Atomic Energy Press) p307 (in Chinese) [卢希庭 2000 原子核物理(原子能出版社)第 307 页]
 [6] Wu H L, Hao F H, Gong J 2006 *Nuclear Techniques* **29** 261 (in Chinese) [伍怀龙、郝樊华、龚建 2006 核技术 **29** 261]
 [7] Yu M 2001 *Chinese Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Test Measurement and Analysis* (Atomic Energy Press) p222 (in Chinese) [于敏 2001 中国军用测试核数据库—裂变产额

- [8] Liu S P, Wu H L, Gu D C 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2411 (in Chinese) [刘素萍、伍怀龙、古当长 2002 物理学报 **51** 2411]
- [9] Wu H L, Liu S P, Liu X Y 2005 *Nuclear Techniques* **28** 430 (in Chinese) [伍怀龙、刘素萍、刘晓亚 2005 核技术 **28** 430]

Investigation on inert gases transport process in plutonium aerosol

Wu Huai-Long[†] Tian Dong-Feng Hao Fan-Hua Gong Jian

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

(Received 24 March 2010; revised manuscript received 10 May 2010)

Abstract

It is a key aspect to study security of radioactivity gas in reactor circulation. It is necessary to study the transport process of radioactivity inert gases krypton in plutonium aerosol environment after fission occurrence. The experimental data of Kr87 and Kr88 were analyzed. According to the physical properties of the two different sources, Kr87/Kr88 ratio variety law was analyzed at different sampling times. The physiced picture and model of transport process in plutonium aerosol environment were established by comparing with experimental data.

Keywords: plutonium aerosol, gas fission products, radioactive Kr87/Kr88, transport process

PACS: 28.41.Te

[†] E-mail: wuhuilong2050@yahoo.com.cn