

# 影响缓发中子计数法测铀结果准确度的因素和解决方法

宋全坝

(中国原子能科学研究院, 北京)

文章介绍了用缓发中子计数法测铀时遇到的一些影响测量结果准确度的因素和采用的解决办法。

关键词 缓发中子, 铀, 准确度。

## 一、前言

用缓发中子计数法测微量铀具有很多优点, 例如: 灵敏度高, 单次辐照和测量的探测极限可达到 0.01 ppm; 测量结果准确, 在样品含天然铀 0.5 ppm 以上时, 测量结果总的相对误差小于  $\pm 5\%$ ; 需要的样品量少, 约为 1 至 2 g; 样品制备简单而且非破坏; 样品无需任何化学预处理或后处理, 无空白误差; 分析迅速, 每小时可测约 80 个样品, 并且给出分析结果快; 可大规模自动分析; 分析费用便宜等等。四年来我们已经分析了四万多个样品, 在铀资源的化探中, 特别是区域普查的土壤样品和水系沉积物样品的分析中已经取得了很好的效果。另外在测量岩石、地质钻探的岩芯、模型井材料、环境样品、粮食和植物的灰样、高纯材料以及标准参考物质等方面也都获得了很好的效果。这一方法还常用作化学比色法、天然  $\gamma$  能谱法以及堆中子活化  $\gamma$  能谱法测微量铀的比对方法。以前曾着重介绍了缓发中子计数法测铀的方法原理、测量装置以及为提高测量装置的灵敏度、分析速度、自动化程度和稳定性等方面所作的工作<sup>[1-5]</sup>。几年来我们在确保测量结果的准确性方面也作了大量的工作。下面介绍一些影响缓发中子计数法测铀结果准确度的因素和采用的解决办法。

## 二、影响准确度的因素和解决办法

用缓发中子计数法测铀采用相对比较法, 用下面公式计算样品的铀含量:

$$x = \frac{(C_{\#} - C_{\#}) \times Q_{\#}}{(C_{\#} - C_{\#}) \times W_{\#}} \quad (1)$$

式中  $C_{\#}$  是样品活化后测得的缓发中子计数(个),  $C_{\#}$  是在和测样品完全相同的条件下测得的比较标准的缓发中子计数(个),  $C_{\#}$  是空兔子盒和空聚乙烯样品瓶的本底计数(个),  $Q_{\#}$  是比较标准(化学或标准参考物质)的天然铀含量( $\mu\text{g}$ ),  $W_{\#}$  是样品的重量(g)。从式(1)可以看出五个因素对测量结果的误差有贡献。

### 1. 化学标准引起的误差

在测量少量和要求准确度高的样品时,例如测标准参考物质时,可直接用 1633 a 等准确度高的标准参考物质作为比较标准,它们的误差不大于 $\pm 1\%$ 。在大规模分析样品时,由于没有那么多标准参考物质,而且它们的活性比较强不利于再次使用,因此改用化学标准。

化学标准样品是用微量移液管把含天然铀量已知的溶液滴在 $\phi 8\text{ mm}$ 的一叠滤纸上,后用红外灯烘烤而成的。在少量和仔细滴制时,溶液的重量差(相对于平均值)可控制在 $1\%$ 左右。然而在大批量(3—5百个)制备化学标准时,少数化学标准所含铀重量的差,有可能偏离均值 $3\text{—}4\%$ 或者更大,甚至还有没滴上溶液的空白标准。化学标准在正式使用前,应先用标准参考物质 1633 a(1—2 g)作检验,然后把偏离较大和空白的化学标准剔除掉,这样化学标准的误差可控制在 $2\%$ 左右。化学标准使用一段时间(例如1—2年)后,也应应用上述方法进行一次检查,以确保其准确性。

### 2. 兔子没有完全达到辐照和测量终端引起的误差

主要原因是辐照管和测量终端的内壁与兔子盒之间的间隙过小,个别兔子盒的外径过大或者兔子盒变形,传送时兔子卡在半途而没有完全到达终点。在测量时主放大器的指示灯比较暗,这意味着样品的 $\gamma$ 放射性也很小。我们采用两种方法来解决:一是加大辐照管和测量终端的内径,对接头和焊缝仔细加工使之不留任何台阶或不光滑之处;二是经常检查兔子盒的外径和失圆的程度,及时剔除那些不合格的兔子盒。

### 3. 堆中子注量率变化引起的误差

我院实验重水反应堆的中子注量率在运行功率一定的情况下是比较稳定的,波动在 $1\text{—}2\%$ 左右。但是在吊装同位素或单晶硅等情况下也可能出现较大的变化。为消除堆中子注量率变化的影响,我们每隔20个样品测量一个化学标准,其间隔约为15 min。一般情况下我们以前后两个标准的计数平均值作为该样品组的标准计数。若差别较大时,则用直线内插法来确定。由于临时停堆而受到影响的样品,则要复测。最好的解决办法是在辐照终端附近安装铍自给能中子注量率监测器,以便及时发现中子注量率变化和临时停堆。

### 4. 兔子盒污染引起的误差

缓发中子测铀装置的辐照管插在石墨反射层的垂直孔道里,由于没有风冷和水冷,在辐照终端处的温度相当高,估计在二百度以上,因此不能用聚乙烯或聚丙烯等材料作兔子盒。我们用绝热性能好且有一定机械强度的酚醛树脂夹布胶木车制成兔子盒。因成本较贵,所以要回收且反复使用。装过含铀量高的样品的兔子盒,如果其中的聚乙烯样品瓶破损或泄漏,其内部就被污染了,如再用它测含量低的样品,就会产生较大的误差。所以,如发现上述情况,应立即清洗,然后再使用。对所有的兔子盒,我们定期每年清洗一次,以防未发觉的污染而引起的误差。

## 5. 辐照时间不同引起的误差

由于样品的辐照时间比较短,仅20~30 s,因此辐照时间的少量差别有可能引起百分之几的误差。辐照时间的差别主要是由于兔子在辐照管中的下落时间和兔子出堆的滞后时间不同而造成的。以前在辐照终端处采用气垫缓冲的方法来防止兔子盒与辐照终端间的猛烈撞击。虽然防撞和缓冲的效果很好,但是由于样品的重量、兔子盒大小以及它们表面光滑程度的不同,使兔子在4~5 m长的辐照管中下落的时间可能有较大的差别。目前采用气体旁路的方法,既可减轻撞击又可使兔子迅速到达终端。兔子出堆时间滞后是由于反向送气的管道很长,在辐照终端形成一定气压需要一段时间,因此轻的样品可能比重的样品早一点出来,特别是化学标准比样品要轻1.5~2 g。为缩短滞后时间,我们把控制反向送气的电磁阀从实验室移到堆小室边上,这样不仅缩短滞后时间,并使兔子出堆速度加快,进而缩短测量前的冷却时间。

## 6. 样品重量引起的误差

样品一般由送样单位装样和称重,其中有二个问题:一是样品的干燥程度不同,有些地质队在国外采样缺少烘干设备而采取晒干的办法;有的则急于得到分析结果,样品没干透就装瓶,这样样品的重量差可达到百分之几或更大。二是样品重量的有效数字太少,仅有1~2位,这可能产生百分之几或更大的误差。无论是用千分之一,还是万分之一的天平,只要称准至mg量级,那么样品重量的相对误差就可控制在千分之2~3以下,它远小于测量的统计误差。

## 7. 本底影响

在重水堆大厅中,由于进行其它物理实验等多种原因,中子本底高且不稳定,为此我们把测量用的BF<sub>3</sub>管组放在实验室里;刻度和校验用的标准Am-Be中子源则贮存在远离探头的地方。当堆功率为9000到10000瓦时,兔子盒加样品瓶的本底约为40—50个记数(一周)。这个值对含天然铀1 ppm以上的样品影响不大。在铀含量较低时,则要多测几个本底值,然后取平均。另外也可用较贵的聚酰亚胺兔子盒,它的本底大约是前者的1/2到1/3。

## 8. 假脉冲干扰的影响

假脉冲主要是由机械振动、电磁阀和控制继电器的电火花、高频电磁波以及高压漏电等多种原因而造成的。假脉冲干扰完全是无规律的,无法从计数中把它扣除。采取的措施是:把电磁阀、气动缸和空气压缩机等振动源放在远离探头的地方,以减少探头和前置放大器的振动;在电荷灵敏前置放大器下垫以5 cm厚的海绵,防止其振动;除接好仪器和设备的公共地线外,每个电磁阀的220 V引线都跨接一个0.2—0.4 μF的油电容并串接一个2—3 Ω的电阻,用它滤去电磁阀和继电器通断时产生的电火花的高频成份;用耐过载的低压电源(-12 V和+6 V)专门给光电探测器和控制用的继电器供电,这就把容易产生电火花和高频电的控制线路和测量系统隔开,同时又保护了NIM电源;在炎热和潮湿的夏季里,用紫色硅胶给前置放大器吸潮,用无水酒精擦洗BF<sub>3</sub>管和前置放大器的高压接

头,并用热风机吹干。最有效的方法则是采用空调降温并降低湿度。本装置已基本消除了假脉冲的干扰。在每次测量前后,可不加样品让装置空运行2~4次,即可判断有无假脉冲干扰。

从上所述,在大规模分析样品时,由于各种原因,不是所有的样品一次就能测量确定的,还有少量的样品需要重测或者进行核对。如果用手工检出,在几百个甚至一、二千个比较强放射性的样品中要找到这少量的样品,决不是一件容易的事情,不但要花大量时间而且工作人员还会受到很大的 $\gamma$ 辐射剂量。以前采用让所有的样品冷却1—2个月后,再进行补测,这就不能及时地给出全部样品的结果。现在采用手控的方法让气动缸带动滑阀,使要补测的样品进入另外一个贮存室里,冷却半天至一天后即可进行补测。

### 9. $\text{BF}_3$ 计数管组性能恶化的影响

由于 $\text{BF}_3$ 管制作工艺等原因,每支管子的性能会不尽相同,有的慢漏气一时也检查不出,随着时间的推移,管子的性能会逐渐变坏,这将影响测量的结果,因此新计数管使用几年后要重新检验,必要时对管组内的每支管子要分别进行检验,淘汰性能恶化的管子。用多道分析器测谱能较正确地检验管子的性能。在大规模分析样品时,最好在每天开始测量前,用多道测一次谱曲线,以确保分析结果准确,避免返工。

对陈玉华同志提出的很多宝贵意见,表示衷心感谢。

### 参 考 文 献

- [1] 宋全坝,核技术,(1),21(1985)。
- [2] 宋全坝,原子能科学技术,20(1),33(1986)。
- [3] 宋全坝等,核技术,(9),42(1987)。
- [4] 宋全坝,核技术,(10),35(1987)。
- [5] 宋全坝等,原子能科学技术,20(4),845(1986)。

(编辑部收到日期:1987年11月11日)

## SOME FACTORS AFFECTING THE ACCURACY OF URANIUM CONTENT DETERMINED BY DNC AND METHODS TO SOLVE THE PROBLEMS

SONG QUANXUN

(China Institute of Atomic Energy, P.O.Box 275, Beijing)

### ABSTRACT

Some factors affecting the accuracy of uranium content determined by delayed neutron counting and methods to solve the problems are reported.

**Key words** Delayed neutron counting, Uranium, Accuracy.