

基于中子活化分析的 ^{129}I 嬗变率 测量方法实验研究

潘孝兵¹, 欧阳晓平^{1,2}, 屠荆¹, 凤仪³, 张学斌³, 张文首¹, 刘月恒¹, 李雪松¹

(1. 西北核技术研究所, 陕西 西安 710024; 2. 西安交通大学, 陕西 西安 710049;

3. 合肥工业大学 材料科学与工程学院, 安徽 合肥 230009)

摘要: 基于中子活化分析(NAA), 建立一种简便可靠的 ^{129}I 嬗变率测量方法。采用 ^{127}I 制作模拟靶件, 利用1个参比靶件与两个嬗变模拟靶件同时照射, 测量 ^{128}I 特征 γ 射线强度之比, 并根据比值计算嬗变率。实验结果验证了方法的可行性, 为 ^{129}I 的高注量率反应堆嬗变率测定提供了技术支持。

关键词: 中子活化分析; 嬗变率; 长寿命裂变产物; ^{129}I

中图分类号: O657.4

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2011)05-0611-04

Experimental Research of Measurement Method of ^{129}I Transmutation Ratio Based on Neutron Activation Analysis

PAN Xiao-bing¹, OUYANG Xiao-ping^{1,2}, TU Jing¹, FENG Yi³, ZHANG Xue-bin³,
ZHANG Wen-shou¹, LIU Yue-heng¹, LI Xue-song¹

(1. Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China;

2. Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

3. School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

Abstract: Based on neutron activation analysis (NAA) technology, a reliable and convenient method was developed for ^{129}I transmutation ratio measurement. Simulative targets of natural ^{127}I were designed to examine the feasibility of the method. One reference target and two transmutation targets of ^{127}I (simulating targets before and after transmutation, respectively) were irradiated together on a NAA device. According to the intensity ratio of gamma ray emitted by ^{128}I in the transmutation targets and the reference, transmutation ratio was measured correctly. The results show that the NAA method developed in this work is feasible and convenient, and could be used for determining the transmutation ratio of ^{129}I .

Key words: neutron activation analysis; transmutation ratio; long-lived fission product; ^{129}I

分离-嬗变是闭式燃料循环路线的关键环节。由于长寿命裂变产物 ^{129}I 具有半衰期长(1.57×10^7 a)、迁移能力强、放射性毒性高等特点^[1],被列为重要的嬗变研究对象^[2-5]。目前公认的有效嬗变方法是利用中子俘获方法,将 ^{129}I 嬗变为短半衰期的 ^{130}I ($T_{1/2}$ 约为 12.4 h),最终衰变为稳定的 ^{130}Xe 。在高通量热堆中嬗变 ^{129}I 核素的一重要工作是准确测定 ^{129}I 的嬗变率。准确的嬗变率实验数据可为理论研究提供支持,并校核数值计算程序。

中子活化分析(NAA)是一种准确度与灵敏度很高的微量分析技术^[6],也是无损的分析方法。通过分析高纯锗(HPGe) γ 谱仪测量的能谱可排除嬗变靶件内 ^{127}I 的干扰,因此,NAA法相比其他方法具有明显的优势。同时, ^{129}I 的活化产物 ^{130}I 半衰期长短适中, γ 射线能量高,测量时无需去除靶件包壳,这给测量工作带来较大方便。本工作基于反应堆中子活化分析法,建立一种简单可靠的 ^{129}I 嬗变率测量方法。

1 NAA法测定嬗变率理论基础

1.1 ^{129}I 热中子嬗变及嬗变率

利用热中子、超热中子嬗变 ^{129}I 主要基于(n, γ)反应: ^{129}I (半衰期 1.57×10^7 a) + n \longrightarrow ^{130}I (半衰期 12.4 h) + $\gamma \xrightarrow{\beta^-}$ ^{130}Xe (稳定)。Ichimura等^[4]利用金属碘化物靶件,在高通量热堆辐照 271.23 满功率天,获得约 4.18%的嬗变率。

设嬗变靶件内某核素(如 ^{129}I)的初始数目为 N_1 ,在高通量热堆内经长时间(数十天乃至数百天)嬗变辐照后,核素数目减少 ΔN ,变为 N_2 ,则嬗变率 η 根据式(1)计算:

$$\eta = \Delta N/N_1 = (1 - N_2/N_1) \times 100\% \quad (1)$$

1.2 NAA法原理

NAA法测定 ^{129}I 嬗变率同样基于中子俘获过程,只是NAA法一般利用设有专用中子活化辐照装置的低通量研究堆^[6],样品辐照时间通常也很短(数秒至数小时)。

根据中子活化分析基本公式,活化产物的特征 γ 射线强度 A 与样品中待测核素的原子数 N 的关系为:

$$A = N\sigma\varphi\gamma\epsilon SDC \quad (2)$$

其中: N 为样品中稳定核(^{129}I 的半衰期极长,可认为是稳定核)数目; φ 为有效中子注量率; σ 为稳定核(n, γ)反应有效截面; γ 为特征 γ 射线的分支比; ϵ 为分析峰探测效率; S 为饱和因子, $S = 1 - \exp(-\lambda t_i)$, t_i 为照射时间, λ 为活化产物的衰变常量; D 为衰变因子, $D = \exp(-\lambda t_d)$, t_d 为活化结束后冷却时间; C 为测量因子, $C = [1 - \exp(-\lambda t_c)]/\lambda t_c$, t_c 为测量时间。

1.3 NAA法测定嬗变率

设嬗变靶件中 ^{129}I 核的初始数目为 N_1 ,嬗变后变为 N_2 ,在参照靶件中 ^{129}I 的数目为 N_r 。参照靶件不参与高通量堆嬗变,因此认为 N_r 保持不变。参照靶件的成分及结构与嬗变靶件接近,这保证了活化分析时的辐照条件、测量条件的一致性。在高通量堆嬗变辐照之前,将嬗变靶件与参照靶件放入同一跑兔盒内在低通量研究堆内一同活化,测定嬗变靶件与参照靶件中 ^{129}I 含量比值 r_1 :

$$r_1 = N_1/N_r \quad (3)$$

将嬗变靶件用高通量堆进行嬗变辐照,经足够时间冷却后,再次将嬗变靶件与参照靶件在低通量研究堆中一同活化,测定 ^{129}I 在嬗变靶与参照靶中含量比值 r_2 :

$$r_2 = N_2/N_r \quad (4)$$

则嬗变率 η 为:

$$\eta = (1 - r_2/r_1) \times 100\% \quad (5)$$

根据式(2)可知:

$$A_1 = N_1\varphi\sigma\epsilon\gamma[1 - \exp(-\lambda t_i)]\exp(-\lambda t_{d,1}) \cdot [1 - \exp(-\lambda t_{c,1})]\lambda t_{c,1} \quad (6)$$

$$A_r = N_r\varphi\sigma\epsilon\gamma[1 - \exp(-\lambda t_i)]\exp(-\lambda t_{d,r}) \cdot [1 - \exp(-\lambda t_{c,r})]\lambda t_{c,r} \quad (7)$$

其中:下标 1、r 分别表示嬗变靶件和参照靶件。

将样品停止辐照的时刻定义为零时,并将嬗变靶件与参照靶件中活化产物的零时 γ 射线强度分别记为 $A_{0,1}$ 、 $A_{0,r}$,则有:

$$A_{0,1} = A_1(\lambda t_{c,1}) / \{\exp(-\lambda t_{d,1})[1 - \exp(-\lambda t_{c,1})]\} \quad (8)$$

$$A_{0,r} = A_r(\lambda t_{c,r}) / \{\exp(-\lambda t_{d,r})[1 - \exp(-\lambda t_{c,r})]\} \quad (9)$$

由于嬗变靶件与参照靶件在活化装置上的辐照条件完全相同,不同的只是衰变时间与测量时间,则可得到 r_1 为:

$$r_1 = N_1/N_r = A_{0,1}/A_{0,r} \quad (10)$$

即嬗变靶件与参照靶件中¹²⁹I含量之比等于二者的零时γ强度之比。

同理,在嬗变靶件经高通量堆嬗变辐照结束并充分冷却后,再次测得嬗变靶件与参照靶件中¹²⁹I含量之比 r_2 ,为:

$$r_2 = N_2/N_r = A_{0,2}/A'_{0,r} \quad (11)$$

根据式(5)可计算得到嬗变率 η 。

2 模拟靶验证实验

2.1 模拟靶件

天然碘元素是¹²⁷I(丰度100%)。¹²⁷I的中子活化过程(¹²⁷I(稳定)+n→¹²⁸I(半衰期24.983 min)+γ^{β-}→¹²⁸Xe(稳定))与¹²⁹I类似。活化产物均适合用高纯锗γ谱仪测量,因此利用天然碘的化学物制作模拟靶件,对上述测量方法进行验证。

¹²⁷I还具有与¹²⁹I相近的热中子截面(表1),活化产物¹²⁸I可用高纯锗谱仪进行测量。

表1 ¹²⁹I和¹²⁷I的(n, γ)反应截面数据

Table 1 (n, γ) cross sections of ¹²⁹I and ¹²⁷I

核素	反应	热中子截面/m ²	共振积分/m ²
¹²⁹ I	俘获	30.403×10 ⁻²⁸	28.8×10 ⁻²⁸
¹²⁷ I	俘获	6.144 5×10 ⁻²⁸	160×10 ⁻²⁸

注:数据来自 ENDF/B-VII

根据高通量热堆¹²⁹I嬗变靶件的形式,结合中子活化分析时γ测量的要求,利用天然碘化镁(MgI₂)制成模拟靶件芯块,直径10 mm,厚度约2 mm。对MgI₂形式的靶件已有研究^[4],碘化镁有一缺点是易潮解,因此靶件外部采用铝箔包裹,保存时避免吸潮。选择碘化镁是因镁的中子吸收截面小,活化产物短(9.5 min),对于活化后的γ测量影响小(表2)。模拟靶件的成分列于表3。

将1#靶件称为参照靶件,其碘元素含量(约0.1 g)与2#、3#接近。将2#、3#靶件称为模拟靶件、模拟¹²⁹I嬗变靶件。模拟靶件2#、3#基于称量数据给出靶件中碘的初始含量,并预设了一差值,利用此差值模拟高通量堆嬗变时靶件内碘含量的减少。3#样品中碘含量高,为0.109 6 g,代表嬗变靶件在送入高通量堆嬗变前的碘含量;2#样品中碘含量低,为0.096 34 g,代表嬗变靶件经高通量堆嬗变

表2 天然镁的中子吸收截面及活化产物

Table 2 Neutron capture cross section data of natural magnesium and products nuclides

镁同位素	丰度/%	10 ²⁷ 热中	10 ²⁷ 共振	活化产物	半衰期
		子截面/cm ²	积分/cm ²		
²⁴ Mg	78.990	53	32	²⁵ Mg	稳定
²⁵ Mg	10.000	180	100	²⁶ Mg	稳定
²⁶ Mg	11.010	36	25	²⁷ Mg	9.5 min

表3 ¹²⁷I模拟靶件成分

Table 3 Components of ¹²⁷I simulative targets

编号	Al粉/g	MgI ₂ 粉/g	片重/g	含碘量/g
1#(参照靶)	0.343 8	—	—	~0.1
2#(模拟靶)	0.338 9	0.109 5	0.432 3	0.096 34
3#(模拟靶)	0.343 9	0.121 9	0.458 9	0.109 6

后的碘含量。相对于3#模拟靶件,2#靶中碘含量低了12.10%(预设的模拟嬗变率)。

2.2 模拟靶件的中子活化

本文中子活化分析实验使用了西安脉冲反应堆的气动输送样品辐照装置(跑兔装置)。实验时,将1#、2#、3#靶件按顺序放在同一聚乙烯跑兔盒内。实际上,本文利用表3中模拟靶件与参照靶件的一次活化辐照,模拟1个嬗变靶件与1个参照靶件前后两次活化过程。

2.3 γ测量

利用HPGe γ谱仪及多道分析器,测定¹²⁸I衰变放出的443 keV γ射线(图1),并计算零时计数率。参照靶件与嬗变靶件的测量使用同一

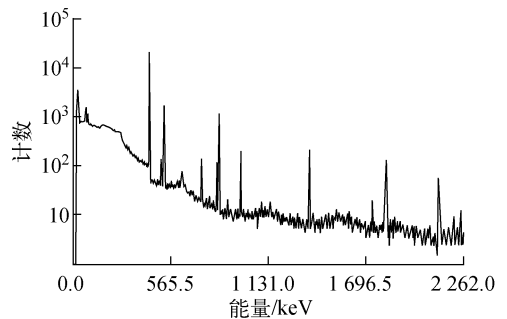


图1 铝基体模拟靶中子活化谱

Fig. 1 Spectrum of neutron activated simulative target with aluminum base material

γ 谱仪,并保持测量位置一致。

根据上述实验设计的思路,利用 3# 靶件(模拟嬗变辐照前)与 1# 靶件的零时计数率之比得到 I 含量之比 r_1 ,利用 2# 靶件(模拟嬗变辐照后)与 1# 靶件的零时计数率之比得到 r_2 。

3 测量结果

根据表 4 所列的 γ 测量数据,结合式(10)、(11),可计算出 r_1 、 r_2 、 η (模拟嬗变率),实验结果为: r_1 , 1.048; r_2 , 0.921;NAA 法测量的 η , 12.15%;预设 η , 12.10%。

表 4 模拟靶件中¹²⁸I 的 443 keV 峰零时计数率
Table 4 Normalized count rates of 443 keV peak
from ¹²⁸I in simulative targets

靶件	计数率平均值/s ⁻¹	相对标准偏差/%
1#	3.562 5×10 ⁴	0.299 4
2#	3.281 0×10 ⁴	0.341 2
3#	3.734 7×10 ⁴	0.295 5

利用 NAA 法测得的 2# 靶件与 3# 靶件中¹²⁷I 含量的差值相比于在制靶时预设的碘含量差值(模拟嬗变率)非常接近。基于相对的中子活化分析方法,测定模拟靶件中¹²⁸I 嬗变率的合成不确定度<0.90%。

4 结论

本工作基于中子活化分析技术建立了¹²⁹I 嬗变率的相对测量方法,并利用模拟靶件进行方案的实验验证,实验结果表明该方法原理正确。

实验结果还验证了操作流程简单可靠。相对法无需严格保证靶件内碘元素绝对量数值的准确性,从而减小了实验难度。通过精心选择包壳材料,采用合适的靶件结构设计,可在测量时连同包壳一起测量,再利用相对法扣除包壳材料的吸收效应,从而提高了测量的准确性。

本方法允许在测量 r_1 、 r_2 时分别使用两套中子源及 γ 谱仪,甚至可使用不同的技术方法(如低能 γ 能谱法)。由于嬗变靶与参照靶的成分基本相同、辐照条件与冷却时间基本相同、测量时仪器的死时间比例基本相同、测量的 γ 射

线参数相同、系统探测效率相同,这些因素引入的系统不确定度被大幅抵消。

利用本方法实际测定¹²⁹I 的嬗变率时,相对于模拟靶¹²⁸I 的测量,不确定度在几个方面会更有利。¹³⁰I 发出的主要 γ 射线能量分别为 536.09、668.54 和 739.48 keV,分支比依次为 99.50%、96.61%、82.68%,较¹²⁸I 的 1 条主要 γ 射线(442.89 keV,分支比 17.50%)的能量更高、分支比更大。因此,¹³⁰I 的 γ 能谱测量受康普顿散射的干扰更小,总计数可达更高而计数统计误差会更小。同时,¹³⁰I 的半衰期(12.36 h)较¹²⁸I 的半衰期(25.0 min)长得多,基体中的放射性在测量前可更充分冷却,杂质的 γ 干扰会更小。

基于相对中子活化分析方法测量嬗变率,结果的准确性不依赖于中子源的条件、¹²⁹I 反应截面及¹³⁰I 的 γ 分支比等参数的准确度。

参考文献:

- [1] INGELBRECHT C, LUPO J, RAPTIS K, et al. ¹²⁹I targets for studies of nuclear waste transmutation[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res A, 2002, 480: 204-208.
- [2] GONZÁLEZ E. Experimental measurements of ⁹⁹Tc and ¹²⁹I transmutation in TARC at CERN [C]// Fifth OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation. Belgium: SCK-CEN, 1998: 1-20.
- [3] SHIRASU Y, MINATO K. Selection of chemical forms of iodine for transmutation of ¹²⁹I [J]. J Nucl Mater, 2003, 320: 25-30.
- [4] ICHIMURA E, TAKAKI N, SCHRAM R P C, et al. Iodine transmutation studies using metal iodide targets [J]. J Nucl Mater, 2004, 334: 149-158.
- [5] KRIVOPUSTOV M I. First results studying the transmutation of ¹²⁹I, ²³⁷Np, ²³⁸Pu, and ²³⁹Pu in the irradiation of an extended ^{nat}U/Pb-assembly with 2.52 GeV deuterons [J]. J Radioanal Nucl Chem, 2009, 279(2): 567-584.
- [6] IAEA. Use of research reactors for neutron activation analysis[R]. Vienna: IAEA, 2001.