

氙同位素关联技术在核保障中的应用研究进展

黄声慧

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要 核保障监督的目的是及时探知并遏制重要量的核材料从民用活动转用于制造核武器或其他核爆炸装置以及其他未知目的。后处理活动是核材料生产的重要过程, 对其进行监测是国际保障监督的重要一环。本文简要介绍了裂变产物氙同位素关联燃耗技术, 重点叙述了该技术在后处理保障监测中的研究进展, 提出了其能否实际应用于后处理保障监督需解决的部分关键问题。

关键词 氙; 燃耗; 核保障

中图分类号: TL2; X93

文献标识码: A

文章编号: 1007-0745(2023)04-0010-03

对于国际原子能机构来说, 对大型后处理厂进行保障监督是一个特别的挑战。后处理厂烟囱中的惰性气体浓度的监测是一项可能可行的环境监测技术。由热中子和 14MeV 中子诱发 ^{235}U 裂变的质量-产额曲线可知^[1], 氙、氙的同位素裂变链产额高, 且以单原子气体形式存在, 又不与其他物质发生化学反应, 所以能够一直累积在燃料元件包壳内, 在乏燃料后处理的剪切和溶解过程中释放出来。因为处理惰性气体极为困难且不经济, 所以一般都会通过烟囱随尾气排放到大气中。

氙、氙同位素中蕴含着燃料类型、燃耗和运行史等信息, 尤其是稳定氙同位素。随着核燃料在反应堆内“燃烧”消耗, ^{238}U 吸收 1 个中子后发生 2 次 β 衰变后生成 ^{239}Pu (核武器的主要原料之一), 当允许燃料达到较高燃耗时, 更多 ^{239}Pu 转变为 ^{240}Pu 、 ^{242}Pu 等非可裂变的钚同位素。如图 1^[2] 所示, 一般来说动力堆的燃耗通常在几十 GWd/tU 量级, 核武器原料生产堆只有千 MWd/tU 级, 可通过燃耗的高低判断是否存在武器级材料生产。自 20 世纪 60 年代以来, 不断有研究报道, 可通过监测稳定氙同位素比反推乏燃料燃耗, 用于判断是否有武器级钚材料生产活动, 达到对后处理活动保障监督目的。

1 国内外研究进展

1965 年 Maeck^[3] 开展了基于同一元素两个稳定裂变产物同位素之间的比值来确定乏燃料燃耗的研究, 提出 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 、 $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$ 、 $^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$ 等三对同位素可用于获得准确燃耗, 知晓其反应堆型及初始同位素组成是前提。

1973 年到 1983 年间, 欧洲核保障研究发展保障协会 (The European Safeguards Research and Development

Association, 简称“ESARDA”) 组织 4 家实验室对同一堆型不同批次乏燃料元件进行同位素关联技术实验^[4-5], 除重点聚焦于重金属裂变产物铯和钡的同位素上之外, 还分析了稳定氙和氙, 认为稳定氙氙同位素关联燃耗是很有前途的。

1988 年国际原子能机构 Ohkubo^[6] 阐述了气体裂变产物氙氙同位素关联燃耗技术的理论背景, 首次采用堆物理计算程序 ISOTEZ-1, 研究了氙氙稳定同位素比与乏燃料燃耗之间的关系, 研究的稳定同位素比有 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 、 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 、 $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$ 、 $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 、 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$, 提出了氙氙同位素关联技术应用于后处理厂保障监督现场测量核查的可行性, 认为气态裂变产物同位素关联技术相比于传统重同位素关联技术具有入侵性低 (烟囱取样)、取样剪性强、不受批次混合影响、样品易于运输处理、可现场测量分析提升核查时效性等六大优势。

1993 年美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室 GB Hudson^[7] 对过往的乏燃料中氙氙同位素数据进行了进一步研究, 使用简单模型得到的关联性得到乏燃料燃耗和钚同位素组成。认为惰性气体监测用于后处理厂保障监督是可行的, 但需要更好的反应堆模型和更准确的测量。

1997 年欧洲标准物质与测量研究所 Y.Aregbe 等人^[8] 开展了模拟裂变产生的稀有气体与环境大气中的稀有气体混合过程的研究, 并讨论了稳定氙 (或氙) 同位素比用于探测后处理活动的潜在应用的可能性。文章指出释放出来的氙、氙裂变气体的同位素组成取决于燃料的特点、反应堆类型、辐照期间的运行参数和乏燃料的冷却时间等。他们用 Finnigan MAT 271 气体质谱仪准确测量了大气中的氙同位素比, 采用 KORIGEN 程序分别计算了压水堆的典型的用于发电的高燃耗 (3

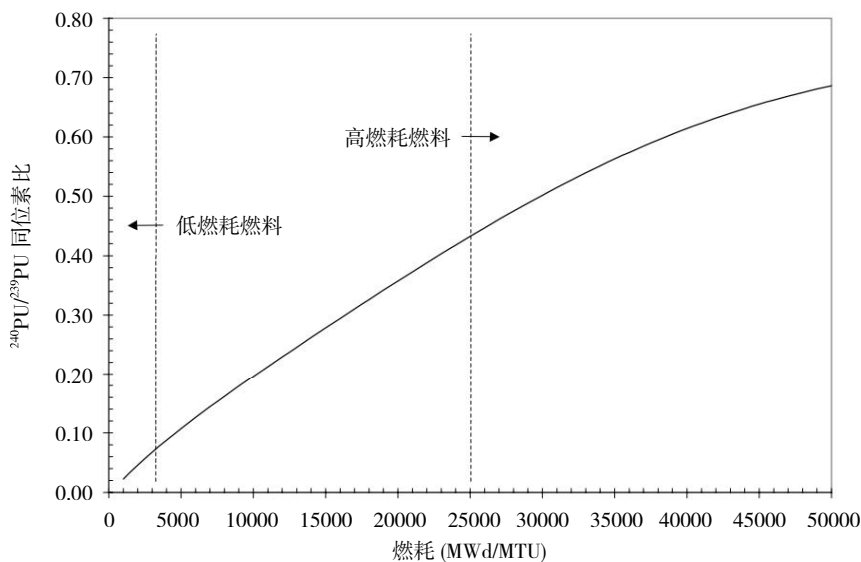


图 1 HELIOS 程序计算的美国压水堆燃料中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比随燃耗变化关系

年辐照 3 年冷却)和典型用于武器级钚生产的低燃耗(1 个月辐照 1 个月冷却)两种乏燃料中氙同位素比,用同位素混合程序 SPIRIT 和 ISOMIX 模拟了裂变释放出的稀有气体与大气环境中的稀有气体混合、稀释的过程。模拟结果表明, $^{136}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 、 $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 的变化最明显,通过混合计算公式推算裂变释放出的氙同位素比,获得正在处理的乏燃料的历史信息,以探测是否存在未申报的后处理活动。

1999 年美国洛斯阿拉莫斯国家实验室研发一新的、针对后处理厂探测未申报核活动检测体系^[9],该体系整合了包括稀有气体取样技术、高精度质谱测量技术、反应堆物理计算、乏燃料数据库、数据分析技术等多项技术。从正在运行的后处理厂烟囱取样分离纯化获得氙、氙样品,再用质谱测量裂变产生的氙、氙同位素比,然后将测得的数据与采用精准而复杂的数据分析技术计算的数据库进行对比分析,推断得到乏燃料参数如燃耗、反应堆类型、燃料类型及运行历史等。为了验证该技术,他们将该技术用于一后处理厂取样分析,该厂正在处理一美国生产堆乏燃料,该乏燃料的燃耗参考值为 178MWd/MTU,应用该技术得到的燃耗为 171 ± 13 MWd/MTU,偏差为 3.9%;对多个商用乏燃料组件燃耗测量值与申报值偏差在 20% 左右。研究验证了该技术的准确性,虽然不能完全区分压水堆和沸水堆燃料,但是当前的技术足以满足保障核查的目的(区别低燃耗和高燃耗燃料)。

2005 年 IAEA 组织了一次技术会议,回顾并讨论了用于 IAEA 核保障监督的惰性气体取样、分析技术的

适用性,该保障核查的两个目标:在申报设施周围探测未申报活动近距离探测和远距离探测未申报活动。对于近距离探测,释放出来的裂变惰性气体的同位素特征,尤其是稳定同位素特征是公认的主要兴趣点。会议后,欧洲标准物质与测量研究所和超铀元素研究所(ITU)联合开展了一项关于氙同位素测量用于探测后处理活动的可行性研究^[10]。相比于 1997 年的研究,此次研究对象除压水堆的高低燃耗乏燃料外,增加了 CANDU 堆型的高燃耗和低燃耗两种乏燃料。研究表明,不需要高精度(0.001%)的惰性气体同位素分析,只需要通过常规精度(0.1%~0.5%)的氙同位素比的测量,结合堆物理计算即可完全探测区分压水堆与 CANDU 堆型及燃耗深浅。

2006 年日本原子能机构与美国洛斯阿拉莫斯国家实验室就后处理设施溶解尾气中氙同位素关联乏燃料燃耗和钚的生成量进行了一项名叫“Action Sheet-55”的联合研究^[11]。该研究以日本东海后处理厂的沸水堆乏燃料组件为对象,对 6 批次溶解尾气进行取样,气相色谱/质谱对样品中氙同位素进行分析,通过美国洛斯阿拉莫斯国家实验室开发的程序 NOVA 计算乏燃料燃耗和钚的生成量,推算的燃耗与申报值偏差 -3.8% 至 7.1%。整个体系(气相色谱/质谱、反应堆建模和数据分析)得到了一次很好的实践检验,但该体系只在沸水堆一种堆型上进行了演示,未来需要更多堆型数据演示验证。

中国原子能科学研究院的张小枝^[12]研究了后处理厂惰性气体环境采样点的选取、适用于监测乏燃料燃

耗的惰性气体同位素对的选取、氙氙铀钚的同位素相关性及其随燃耗的变化,通过 Origen2.1 程序计算了压水堆中的氙氙铀钚相关同位素比随燃耗间的关系,氙氙相关同位素比与燃耗几乎呈线性关系,虽说明了其用于后处理保障监督的可行性,但需进一步实际实验验证。

中国工程物理研究院徐雪峰^[13]基于对卸载乏燃料冷却过程中武器级钚含量的计算,提出日本可以积累武器级钚乏燃料的问题。基于对 Takahama-3 的燃耗计算,给出了对 Takahama-3 卸载的武器级钚乏燃料进行后处理时 6 组稳定 Xe 同位素比值的范围。通过分析给出适合监测并可以通过同位素比值反推乏燃料卸载燃耗的四种稳定 Xe 同位素 ^{131}Xe 、 ^{132}Xe 、 ^{134}Xe 、 ^{136}Xe 。为了能够监督日本是否集中对武器级钚乏燃料进行后处理,通过模拟计算给出 $^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 、 $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 比值可以作为判断的依据。结合对卸载不久的武器级钚乏燃料进行后处理的特殊情况,最终给出理论上 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 比值是判断日本是否对武器级钚乏燃料进行后处理的有效判据,为防止日本使用商业轻水堆获得武器级钚提供一种技术思路和方法。

中国原子能科学研究院徐常昆^[14]以低温活性炭吸附、分子筛分离氙的方法,对乏燃料后处理的剪切和溶解过程中的尾气氙进行了取样、高精度气体质谱仪分析稳定氙同位素比,使用 ORIGEN2 程序进行了氙同位素关联燃耗计算研究,利用燃耗与氙同位素的关系对乏燃料燃耗进行了推算,认为采用 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 比值进行推算的燃耗更接近参考值,其结果与参考值的偏差在 20% 左右。

2 总结与展望

国内外研究表明,稳定氙同位素与乏燃料存在关联关系,通过对后处理设施尾气进行氙取样纯化,结合高精度的气体同位素质谱分析技术和反应堆物理计算,可较为准确地推算正在后处理乏燃料的燃耗等相关信息,实现对乏燃料后处理活动的监测,这将是一种非常有应用前景的、入侵性低的后处理设施保障监督核查技术。目前能做到推算燃耗值与参考值偏差在 10% 左右,仍有较大提升空间。溶解尾气氙取样程序较为复杂致使取样存在不稳定性、已开展研究或演示验证的反应堆堆型较少、缺乏较为完整的反应堆堆型氙同位素与燃耗关系数据库等均限制了该技术在保障监督中的实际投入应用。随着堆物理计算程序的发展,氙同位素关联燃耗的反应堆模型将越来越精准,简单、安全、快速、准确的后处理烟囱尾气氙取样分析技术

的研发,各堆型数据库的完善和演示验证将会是氙同位素关联技术能否实际应用于后处理保障监督的关键。

参考文献:

- [1] 郭景儒. 裂变产物分析技术 [M]. 北京: 原子能出版社, 2008.
- [2] Shea T, Deron S, Franssen F, et al. Safeguarding reprocessing plants: Principles, past experience, current practice and future trends [J]. *Jnm Journal of the Institute of Nuclear Materials Management*, 1993, 04(08): 95-96.
- [3] Maeck, W. J. PROPOSED DETERMINATION OF NUCLEAR FUEL BURNUP BASED ON THE RATIO OF TWO STABLE FISSION PRODUCTS OF THE SAME ELEMENT [J]. *Rev. soc. bras. med. trop.*, 1965, 45(03): 297-300.
- [4] Guardini S, Guzzi G. Benchmark reference data on post irradiation analysis of light water reactor fuel samples [J]. *Journal of Analytical Chemistry*, 1983, 20(04): 98-99.
- [5] Prell W L, Imbrie J, Martinson D G, et al. Graphic correlation of oxygen isotope stratigraphy application to the Late Quaternary [J]. *Paleoceanography*, 1986, 01(02): 137-162.
- [6] Ohkubo M. Gaseous Isotope Correlation Technique for Safeguards at Reprocessing Facilities [R]: IAEA STR 2240. Vienna: IAEA, 1988.
- [7] Hudson G B. Noble gas isotope measurements for spent nuclear fuel reprocessing. IAEA Task 90/0A211 interim report [J]. *Office of Scientific & Technical Information Technical Reports*, 2018(15): 66-69.
- [8] Y. Aregbe, K. Mayer, S. Valkiers, P. De Bièvre, Detection of reprocessing activities through stable isotope measurements of atmospheric noble gases [J]. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*, 1997, 358(04): 533-535.
- [9] Charlton, William S. Noble Gas Measurement and Analysis Technique for Monitoring Reprocessing Facilities [D]. United States, 1999.
- [10] Aregbe Y, Valkiers S, Mayer K, et al. Stable noble gas isotopes for strengthening nuclear safeguards: The measurement point of view [J]. *European Safeguards Research and Development Association*, 2007(37): 30-34.
- [11] Cai L Z, Caceres M, Dangol M K, et al. Accuracy of remote burn scar evaluation via live video-conferencing technology [J]. *Burns Journal of the International Society for Burn Injuries*, 2016: S0305417916304703.
- [12] 张小枝, 刘大鸣, 李金英, 等. 后处理厂释放气体中稳定惰性气体同位素在核保障监督中的应用研究 [J]. *核化学与放射化学*, 2004, 26(04): 198.
- [13] 徐雪峰. 压水堆生产武器级钚能力的数值模拟研究 [D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2017.
- [14] 徐常昆, 李少伟, 黄声慧, 等. 乏燃料溶解尾气中氙的取样分离及稳定同位素比的测量 [J]. *核化学与放射化学*, 2019, 41(06): 561-566.