

# 游泳池反应堆回路水中 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 放射性活度确定

丁声耀, 徐 鹏, 于保生, 凌玉德

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

**摘要:**对中国原子能科学研究院游泳池反应堆回路水中 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的放射性活度进行测定。在实验测量的同时,还进行了理论计算。结果表明,理论计算结果与实验测量值在不确定度范围内一致。本工作首次给出了 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应截面的评价推荐数据。

**关键词:**游泳池反应堆;放射性活度; $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应截面

中图分类号:O571.432

文献标识码:A

文章编号:1000-6931(2006)01-0005-05

## Determination of $^{16}\text{N}$ and $^{19}\text{O}$ Activities in Loop Water of Swimming Pool Reactor

DING Sheng-yao, XU Kun, YU Bao-sheng, LING Yu-de

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

**Abstract:** Measurements of activities for  $^{16}\text{N}$  and  $^{19}\text{O}$  nuclei in the loop water of swimming pool reactor at China Institute of Atomic Energy were carried out. In order to verify the experiment results, a calculation for same purpose was also performed. The results show their coincidence is well in uncertainty range. The evaluated recommendation data for  $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$  reaction cross sections are also given in the paper.

**Key words:** swimming pool reactor; activity;  $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$  reaction cross section

作者研制建立的 $^{16}\text{N}$ 监测仪校准装置<sup>[1]</sup>用以校准压水反应堆上所安装的 $^{16}\text{N}$ 监测仪,这类设备只能监测压水堆蒸汽发生器内U形管是否泄漏,无法确定其泄漏的位置。2000年,提出了应用 $^{16}\text{N}$ 发射的6.129和7.115 MeV  $\gamma$ 射线以及 $^{19}\text{O}$ 发射的1.357、1.444和1.554 MeV  $\gamma$ 射线活度比的变化来确定U形管泄漏位置。这一方案国内外未见报道,于2002年申请并获得了专利授权<sup>[2]</sup>。

本方案的关键之一是根据特定的反应堆型,计算堆芯中子引起 $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ 和 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应所产生的 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的活度比,并通过实验测定以互相校验结果的可信度。从已有的文献看,仅文献<sup>[3]</sup>在游泳池反应堆的水池中测量了 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的活度分布及其比值。

中国原子能科学研究院游泳池反应堆满功率为3.5 MW,最大热中子通量密度为 $3.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ,快中子通量密度为 $2.5 \times$

$10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ [4]。游泳池反应堆为轻水堆,与目前国内的一些压水堆堆型有许多共同之处。因此,在游泳池反应堆上所进行的实验测定和理论计算具有参考价值。

## 1 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 活度及其比值计算

反应堆堆芯中子与轻水中的 $^{16}\text{O}$ 和 $^{18}\text{O}$ 经 $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ 和 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应产生的 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的饱和比活度可由下式计算:

$$a_{16} = N_0(^{16}\text{O}) \int_{E_{\text{th}}}^{\infty} \varphi_n(E) \sigma_{\text{np}}(E) dE \quad (1)$$

$$a_{19} = N_0(^{18}\text{O}) \int_0^{\infty} \varphi_n(E) \sigma_{\text{n}\gamma}(E) dE \quad (2)$$

式中: $a_{16}$ 、 $a_{19}$ 分别为 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的饱和比活度; $\sigma_{\text{np}}(E)$ 、 $\sigma_{\text{n}\gamma}(E)$ 分别为 $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ 、 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应的截面; $N_0$ 为反应堆堆芯单位体积水中的氧同位素原子数; $\varphi_n(E)$ 为反应堆堆芯的中子通量密度。

表1列出轻水中 $^{16}\text{O}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的衰变性质。

表1 轻水中 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的产生和衰变性质  
Table 1 Production and decay properties of  $^{16}\text{N}$  and  $^{19}\text{O}$  in water

核素的产生和衰变	能量/MeV	$\gamma$ 衰变分支比
$^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$	1.755	0.001 47
$^{16}\text{O}$ 丰度为 99.762%	1.955	0.000 46
$\sigma_{\text{np}}(E)$ 反应域大于 10 MeV	2.742	0.001 06
$T_{1/2}(^{16}\text{N})=7.13 \text{ s}$	6.048	0.001 2
	6.129	0.662
	7.115	0.048
	8.869	0.000 98
$^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$	0.109	0.004 3
$^{18}\text{O}$ 丰度为 0.200%	0.197	0.454
$E_n=0.025 3 \text{ eV}$	1.357	0.544
$\sigma_{\text{n}\gamma}=(0.16 \pm 0.01) \times 10^{-27} \text{ cm}^2$	1.444	0.028 51
$T_{1/2}(^{19}\text{O})=26.91 \text{ s}$	1.554	0.014 96
	1.598	0.000 3
	2.583	0.000 3
	4.180	0.000 9

由于堆芯中子能与反应堆的结构有关,本计算仅限于中国原子能科学研究所的3.5 MW游泳池轻水反应堆。在有关文献中,

$\sigma_{\text{np}}(E)$ 数据比较齐全,且分歧不大,为方便比较,把 ENDF/B-6 和 JENDL-3.3 库数据在图1中示出。本工作采用 ENDF/B-6 的数据。

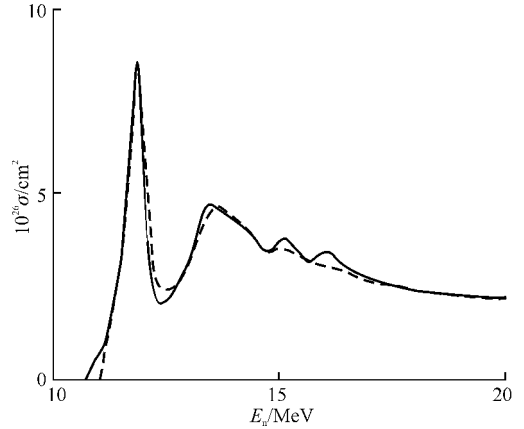


图1  $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ 反应的测量和评价数据

Fig. 1 Measured and evaluated data for  $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$  reaction

实线——ENDF/B-6;虚线——JENDL-3.3

对于 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应,目前尚未见到国际上任何核数据库发布系统的推荐数据,仅收集到在热能点及 0.2~1.0 MeV 能区间的一些实验数据。文献[6]给出了使用 Ge(Li)探测器在 0.2~1.0 MeV 能区测量的 45 个能量点的数据,中子能量分辨为 50 keV,数据不确定度为 5%~10%。文献[7]使用 Ge(Li)探测器在热能点所测得实验数据不确定度为 6%。这里采用文献[6,7]的数据。

基于以上对热能点和 0.2~1.0 MeV 能区的实验数据评价,再根据(n,  $\gamma$ )反应系统学的变化规律,在热能点至 0.2 MeV 能点引用 $^{16}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 的反应曲线形状,得到的 $^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$ 反应截面示于图2。

根据游泳池反应堆结构布置、堆芯燃料组件的组分和元件的几何排列等参数,用蒙特卡罗方法计算出堆芯中子能谱群 $\varphi_n(E)$ ,然后按式(1)和(2)分别计算出单个具有分群能谱的中子在堆芯与水中 $^{16}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}$ 发生核反应产生的 $^{16}\text{N}$ 、 $^{19}\text{O}$ 数目分别为 $n_{16}=1.747 07 \times 10^{-8}$ 和 $n_{19}=9.735 57 \times 10^{-8}$ ,其比值为:

$$S_0 = \frac{N_0(^{16}\text{O})n_{16}}{N_0(^{18}\text{O})n_{19}} = 89.5 \quad (3)$$

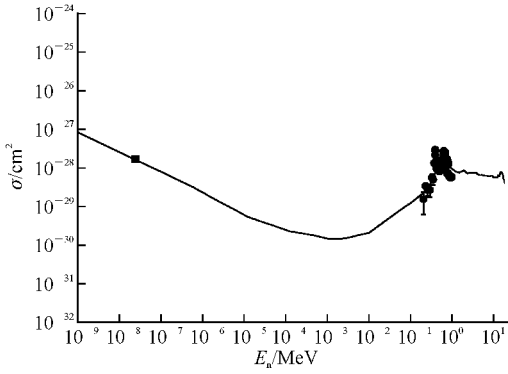


图2 <sup>18</sup>O(n, γ)<sup>19</sup>O 反应测量和评价数据

Fig. 2 Measured and evaluated data curve for <sup>18</sup>O(n, γ)<sup>19</sup>O reaction

●——文献[6]; ■——文献[7]; 实线——本工作计算值

## 2 <sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O活度的实验测定

反应堆运行时,无论是游泳池还是堆回路周围,γ射线的强度很大,NaI(Tl)探测器的计数死时间在50%以上。为此,选择反应堆一回路水取样室为测量室。从堆回路引出细小的管道到测量室,室的周围有厚的混凝土块屏蔽。在堆满功率运行时,<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O所发射的γ射线用HPGe或NaI(Tl)探测器记录,多道的死时间一般在8%以下。本工作选择两种γ射线探测器:N型NIGC2520高纯锗探测器,对0~9 MeV能区γ射线的探测(本征)效率已刻度过<sup>[8]</sup>;自行研制的<sup>16</sup>N监测仪,其γ射线探测器尺寸为φ50 mm×76 mm的NaI(Tl)加匹配的光电倍增管。

HPGe探测器在测量室测得<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O的γ射线谱以及邻近能量的干扰峰列于表2、示于图3和4。

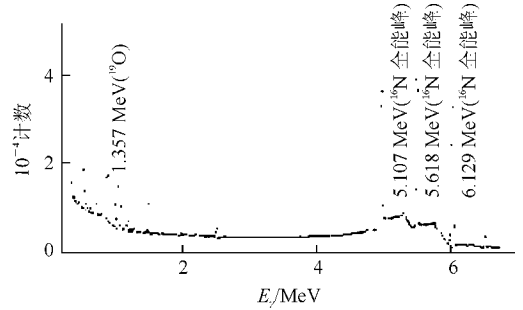


图3 HPGe探测器测得的<sup>19</sup>O和<sup>16</sup>N γ射线谱

Fig. 3 γ-ray spectra of <sup>19</sup>O and <sup>16</sup>N measured by HPGe detector

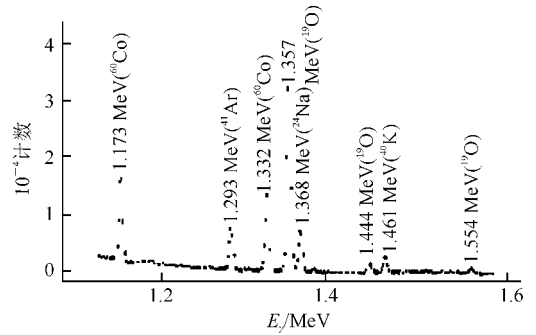


图4 HPGe探测器测得的<sup>19</sup>O和邻近的γ射线谱

Fig. 4 <sup>19</sup>O and neighboring γ-ray spectra measured by HPGe detector

表2 HPGe探测器测得的<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O的γ射线谱数据

Table 2 Gamma ray data from <sup>16</sup>N and <sup>19</sup>O measured by HPGe

序号	$E_{\gamma}/\text{keV}$	峰面积	FWHM	核素	校正因子
1	1 173	41 149	4.70	<sup>60</sup> Co	
2	1 294	20 940	4.98	<sup>41</sup> Ar	0.205
3	1 332	38 318	5.11	<sup>60</sup> Co	0.375
4	1 357	102 123	5.30	<sup>19</sup> O	1.000
5	1 369	20 627	4.62	<sup>24</sup> Na	0.202
6	1 444	4 233	5.12	<sup>19</sup> O	0.041
7	1 460	7 768	4.81	<sup>40</sup> K	0.076
8	1 554	2 404	5.00	<sup>19</sup> O	0.024
9	5 108	337 475	14.4	<sup>16</sup> N 双逃逸峰	
10	5 619	399 770	15.5	<sup>16</sup> N 单逃逸峰	
11	6 129	347 376	14.9	<sup>16</sup> N 全能峰	
12	6 604	60 849	17.6	<sup>16</sup> N 7 115 keV 单逃逸峰	

在表 2 中,序号 1~8 为 $^{19}\text{O}$ 所发射的 $\gamma$ 射线及其邻近的干扰 $\gamma$ 射线,每条 $\gamma$ 射线的峰面积经探测效率<sup>[8]</sup>校正后,将有关峰面积分别相加得到 $N_{16} = 40\ 187\ 534$ , $N_{19} = 553\ 927.65$ ,于是, $S'_{1,m} = \frac{N_{16}}{N_{19}} = 72.6$ 。这里所得的仅为 $^{16}\text{N}$ 所发射 6~7 MeV 与 $^{19}\text{O}$ 所发射的 1.357、1.444、1.554 MeV  $\gamma$ 射线的强度比值,需转换成 $^{16}\text{N}$ 与 $^{19}\text{O}$ 的放射性活度,感兴趣的各 $\gamma$ 射线分支比已在表 1 列出。

将上述的 $S'_{1,m}$ 值经分支比校正后,得:

$$S_{1,m} = 60.0 \quad (4)$$

由式(1)算得 $^{16}\text{N}$ 与 $^{19}\text{O}$ 的活度比 $S_0 = 89.5$ 。当 $^{16}\text{N}$ 与 $^{19}\text{O}$ 随着堆芯循环水流到测量点时,需经 5.5 s 的时间(资料由游泳池堆技管组提供)。根据 $N = N_0 e^{-\lambda t}$ ,将表 1 中有关的 $^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 的 $T_{1/2}$ 转换成 $\lambda_{16}$ 和 $\lambda_{19}$ 代入上式,则得到 $N_{19} = N_{0,19} e^{-0.025\ 79 \times 5.5} = 0.867\ 8 N_{0,19}$ 和 $N_{16} = N_{0,16} e^{-0.097\ 19 \times 5.5} = 0.585\ 9 N_{0,16}$ 。

于是,有:

$$S_1 = \frac{N_{16}}{N_{19}} = 0.675\ 2 S_0 = 60.4 \quad (5)$$

比较式(4)与(5)可知,计算值与实验测量值相差 0.7%。

需要说明的是,图 3 所示为 $^{19}\text{O}$ 和 $^{16}\text{N}$ 所发射 $\gamma$ 射线的全谱。为能清楚分辨 $^{19}\text{O}$ 所发射的 $\gamma$ 射线及有关干扰 $\gamma$ 射线,故将这些 $\gamma$ 射线示于图 4。

NaI(Tl)探测器所测到的 $\gamma$ 射线谱示于图 5。从图 5 可见,左边的小峰是以 $^{19}\text{O}$ 的 1.357 MeV 为中心的峰包,中间高而尖的峰是 $^{241}\text{Am}$ 内标源提供的标识峰。右边宽大的峰由 $^{16}\text{N}$ 所发射的 6.129 MeV 射线的全能峰、单逃峰和双逃峰组成。若仔细观察该 $\gamma$ 峰,其右侧还包含有 $^{16}\text{N}$ 的 7.115 MeV  $\gamma$ 射线的单逃峰,双逃峰则与 6.129 MeV 的全能峰重合。

NaI(Tl)探测器的能量分辨差,无法将 $^{19}\text{O}$ 主要 $\gamma$ 射线(1.357 MeV)与 $^{24}\text{Na}$ 1.369 MeV、 $^{60}\text{Co}$  1.332 MeV、 $^{41}\text{Ar}$  1.294 MeV 等干扰 $\gamma$ 射线分开,实验中必须设法扣除这些干扰 $\gamma$ 射线。还应注意,上述 $\gamma$ 射线是伴随反应堆的运行而产生的。由于干扰核素的半衰期各不相同,如 $^{41}\text{Ar}$ 的 $T_{1/2} = 1.83\ \text{h}$ , $^{24}\text{Na}$ 的 $T_{1/2} = 15.02\ \text{h}$ ,

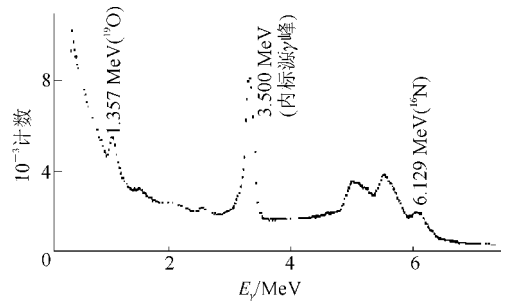


图 5 NaI(Tl)探测器测得的 $^{19}\text{O}$ 和 $^{16}\text{N}$  $\gamma$ 射线谱  
Fig. 5  $^{19}\text{O}$  and  $^{16}\text{N}$   $\gamma$ -ray spectra measured by NaI(Tl) detector

$^{60}\text{Co}$ 的 $T_{1/2} = 5.26\ \text{a}$ ,而 $^{16}\text{N}$ 的半衰期只有 7.13 s,反应堆运行时, $^{16}\text{N}$ 的 $\gamma$ 射线首先达到久期平衡, $^{60}\text{Co}$ 则在最后。

在反应堆运行的不同阶段,上述核素的 $\gamma$ 射线活度的相对比例是不同的。为了从NaI(Tl)所测的 $^{19}\text{O}$  $\gamma$ 射线峰面积中扣除其它干扰 $\gamma$ 射线,采取HPGe和NaI(Tl)同时进行测量。以HPGe探测器所测的 1.357 MeV  $\gamma$ 峰面积为 100%,其它的 $\gamma$ 射线峰面积分别除以 1.357 MeV  $\gamma$ 峰面积的活度比值作为校正因子,通过这些校正因子即可扣除干扰 $\gamma$ 射线的影响(表 2)。

因NaI(Tl)探测器对不同能量 $\gamma$ 射线的探测效率不同,考虑到 $^{60}\text{Co}$ 的 1.332 MeV  $\gamma$ 射线很接近 1.357 MeV 的 $^{19}\text{O}$  $\gamma$ 射线,而 $^{238}\text{Pu}$ - $^{13}\text{C}$ 的 6.13 MeV  $\gamma$ 射线可近似替代 $^{16}\text{N}$ 的 6~7 MeV  $\gamma$ 射线,故事先分别用标准 $^{60}\text{Co}$ 源和 $^{238}\text{Pu}$ - $^{13}\text{C}$ 源对NaI(Tl) $\gamma$ 探测器进行效率刻度。

NaI(Tl) $\gamma$ 探测器所测到的 $^{16}\text{N}$ 发射 6~7 MeV  $\gamma$ 射线活度与 $^{19}\text{O}$ 发射的 1.357~1.554 MeV  $\gamma$ 射线强度,其比值为 $S'_{2,m} = 66.9$ ,经分支比较正后, $S_{2,m} = 55.3$ ,与理论计算值在 8.4%之内符合。

### 3 分析讨论

$^{16}\text{N}$ 和 $^{19}\text{O}$ 放射性活度比值的不确定度可分别从理论计算和实验测定两方面讨论。

#### 3.1 理论计算 $S_0$ 和 $S_1$ 值的不确定度

$S_0$ 值的不确定度主要包括核反应截面的不确定度和堆芯中子能谱不确定度的贡献。对于

$^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ 核反应截面  $\sigma_{np}(E)$ , 由于实验数据很充分, 且分歧不大, 经编评后总不确定度为 2.0%。对于  $^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$  核反应截面  $\sigma_{n\gamma}(E)$ , 由于实验数据不全, 且分歧较大, 经编评后, 总不确定度为 5.0%。游泳池反应堆堆芯中子能谱(分群)的不确定度为 4.0%。 $S_0$  总合成不确定度为 7.8%。

在评定  $\gamma$  探头位置处  $S_1$  的计算不确定度时, 还需增加<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O放射核从堆芯经一回路到探头所在位置的传输时间  $t$  带来的不确定度的贡献 4.0%。这样,  $S_1$  值的计算总合成不确定度为 8.8%。

### 3.2 $S_{1,m}$ 的不确定度

HPGe 探测器对  $S_{1,m}$  测量不确定度包括<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O所发射  $\gamma$  射线探测效率的不确定度, 以及在实际测量中各  $\gamma$  射线峰面积、本底扣除的不确定度。HPGe 在游泳池反应堆测量  $S_{1,m}$  的总合成不确定度为 5.9%。

用 NaI(Tl) 探测器测定  $S_{2,m}$  时, 其不确定度的贡献包括<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O所发射  $\gamma$  射线探测效率刻度的不确定度、相应  $\gamma$  射线计算峰面积的不确定度和扣除  $\gamma$  射线本底的不确定度。

NaI(Tl)在游泳池反应堆测定  $S_{2,m}$  的总合成不确定度为 6.9%。

### 3.3 理论计算和实验测定结果的比较

在本工作中,  $S_0 = 89.5 \pm 7.0$ ,  $S_1 = 60.4 \pm 5.3$ ,  $S_{1,m} = 60.0 \pm 3.5$ ,  $S_{2,m} = 55.3 \pm 3.8$ 。可见, 理论计算值与实验测定值之间以及两种不同方法的测量值之间均在所给定的不确定度范围内一致。

值得一提的是, 从所发表的文献看, 迄今尚未见有关反应堆回路水中<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O放射性活度及其比值的测量工作报告, 惟一与此有关的是 1995 年 Chien Chung 等测量了游泳池反应堆水池中<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O的活度分布<sup>[3]</sup>。文献<sup>[3]</sup>指出, 实验测得的水池中<sup>16</sup>N和<sup>19</sup>O的活度的平均比值  $S = 1\ 000 \pm 400$ , 理论计算的比值  $S = 750$ 。由于实验上本工作与文献<sup>[3]</sup>的测量位置相距甚远, 不好直接比较。在仔细研究了二者的计算细节后可发现, 文献<sup>[3]</sup>引用的 $^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$  反应截面存在如下错误:  $\sigma_{n\gamma} = (0.16 \pm 0.01) \times 10^{-27} \text{ cm}^2$  应是热中子的截面, 而文献<sup>[3]</sup>却把它作为  $E_n = 0.2 \text{ MeV}$  的截面; 计算中采用的

$\sigma_{n\gamma}(E)$  引自 BNL-325, 它仅包括  $E_n = 0.2 \sim 1.0 \text{ MeV}$  能区的数据, 实际上, 按本工作的评价推荐数据,  $\sigma_{n\gamma}(E)$  应包括  $0 \sim 15 \text{ MeV}$  的广大中子能区(当然, 由于  $\varphi_n(E)$  在该能区的两端, 数值很小, 可忽略不计), 文献<sup>[3]</sup>只采用很窄中子能区的<sup>19</sup>O的产额来代替全能区的产额, 并以此作为分母, 这样, 所得到的  $S$  值特别大。此外, 文献<sup>[3]</sup>的表 1 中所列数据(例如, <sup>19</sup>O 的半衰期, <sup>16</sup>N 的 6.129 和 7.115 MeV  $\gamma$  射线分支比, <sup>19</sup>O 的 1.357、1.444、1.554 MeV  $\gamma$  射线分支比)与国际上当前公认的数据有差别(表 1), 这也可能是造成二者相差甚远的原因。

作者感谢游泳池反应堆技管组和运行组的大力支持和帮助。

### 参考文献:

- [1] 丁声耀, 徐鹏, 丁锡祥, 等. <sup>16</sup>N  $\gamma$  辐射监测仪的研制[J]. 核标准计量和质量, 2003, 33(4): 20-24.
- [2] 丁声耀, 徐鹏. 一种用辐射监测核动力堆放射性泄漏方法[P]. 中国专利: 00114745, 2002.
- [3] CHUNG Chien, CHAN Chengchang. Distribution of <sup>16</sup>N and <sup>19</sup>O in the reactor pool water of the THOR facility [J]. Nuclear Technology, 1995, 110: 106-114.
- [4] 连培生. 原子能工业[M]. 北京: 原子能出版社, 2002: 87-89.
- [5] FIRESTONE R B. Table of isotopes (Volume 1: A = 1-150) [M]. USA: John Wiley & Sons, INC, 1996: 21-275.
- [6] VAUGHN F J. <sup>18</sup>O(n,  $\gamma$ )<sup>19</sup>O cross-sections from 0.2 to 1.0 MeV [J]. Bull Am Phys Soc, 1964, 9: 20-21.
- [7] BEARER W, WJTENBACH A, BAERLSCHI P, et al. Reaction cross-section and resonance integral for <sup>18</sup>O(n,  $\gamma$ )<sup>19</sup>O [J]. J Inorg Nucl Chem, 1971, 33: 1 221-1 225.
- [8] 叶宗垣, 丁声耀, 李宇兵, 等. MeV 能区 HPGe  $\gamma$  探测器本征效率的确定[J]. 原子能科学技术, 1994, 28: 419-427.  
YE Zongyuan, DING Shengyao, LI Yubing, et al. Intrinsic efficiencies and  $\gamma$ -dose determinations for HPGe detector at MeV region [J]. Atomic Energy Science and Technology, 1994, 28: 419-427 (in Chinese).