高温气冷堆在线燃耗测量系统的设计 考虑——燃料球的冷却时间对燃耗测量 的影响

Design Consideration of On-line Burnup Measurement System for High Temperature Gas-cooling Reactor: Influence of Cooling Time for Fuel Sphere on Burnup Measurement

李桃生/LI Tao-sheng,方 栋/FANG Dong,曹建主/CAO Jian-zhu

清华大学核能与新能源技术研究院,北京 100084

Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China

[摘要] 利用堆芯总量程序包 KORIGEN 和蒙特卡罗程序 MCNP4A 软件分别模拟计算燃料球的燃耗和高纯锗(HPGe)探测器的响应,研究球床式高温气冷堆的燃料球在不同燃耗和不同冷却时间等测量条件下的燃耗测量不确定性问题。通过 HPGey 谱仪对燃烧过的燃料元件进行模拟 γ 谱结果分析,如果用裂变核素 ¹³⁷Cs 作为燃耗测量的标示核素,要使燃耗测量系统的计数统计不确定度达到 5% 水平,燃料球的冷却时间不能低于 6 d,且燃耗测量时间至少需要 15 s。

[关键词] 球床式反应堆;燃耗;蒙特卡罗模拟;燃料球;高纯锗探测器 [文献标识码] A [中图分类号] TL277 [文章编号] 1000-7857(2006)06-0028-04

Abstract: Fuel spheres of the pebble bed high temperature gas—cooled reactor were non-destructively monitored on-line to ensure whether they reach their end-of-life burnup limit (80GWD/MTU). The core inventory Code (KORIGEN) and Monte-Carlo Code (MCNP4A) was used to simulate the burnup of fuel sphere and the response of HPGe detector, respectively. Uncertainty of burnup measurement was studied under different burnup values and cooling times. If indicator fissile nuclide of burnup measurement is ¹³⁷Cs and counting statistical certainty of 5% for the burnup measurement system is met, the cooling time of the fuel shpere will be more than 6 d and the time of burnup measurement will be more than 15 s after the simulation results of the HPGe gamma-ray spectrometer for the irradiated fuel spheres are analyzed.

Key Words: pebble bed reactor; burnup; Monte Carlo simulation; fuel sphere; high-purity germanium detector

CLC Number: TL277

Document Code: A

Article ID: 1000-7857(2006)06-0028-04

1引言

球床式高温气冷堆所用的燃料元件采用的是包覆颗粒球形全陶瓷设计^[1-3],燃料球在堆运行期间连续更换,多次通过堆芯。因此需要燃耗测量设备对燃料球进行非破坏性逐个监测,以决定燃料球是加入堆芯再循环,还是排出堆芯^[4,5],这也是实现反应堆最

佳装料和经济性的必要条件。

燃料球的直径为 60~mm, 其中燃料核芯为 0.5~mm 的 UO_2 小球, 外面包有 3 层热解碳和 1 层 SiC, 包覆后的颗粒直径为 0.9~mm, 把许多包覆的颗粒均匀地弥散在直径为 50~mm 石墨基体的燃料区内, 外区为 5~mm 厚的不含燃料的石墨球壳。这样的

收稿日期: 2006-04-16

作者简介:李桃生,男,北京清华园清华大学核能与新能源技术研究院,副研究员,主要研究方向为辐射测量;

E-mail: taosheng@inet.tsinghua.edu.cn

- [8]DOTE Y, SAWAYAMA S, INOUE S.Recovery of liquid fuel from hydrocarbon rich microalgae by thermochemical liquefaction [J]. Fuel, 1994,73(12):1855–1857.
- [9] GINZBURG B Z, Liquid fuel (oil) from halophilic algae: a renewable source of non-polluting energy[J]. Renewable Energy, 1993,3(2): 249–252.
- [10]吴庆余,章冰,宋一涛,等. 水解和细菌降解
- 作用对小球藻热模拟烷烃及生物标志物的影响[J]. 科学通报, 1998,43(1):76-80.
- [11]王睿勇,周文,戴俊彪,等. 盐藻热模拟产物 中长链类异戊二烯烃的检出 [J]. 科学通报, 1999,44(11):1190-1194.
- [12] YAMABERI K, TAKAGI M,YOSHIDA T. Nitrogen depletion for intracellular triglyceride accumulation to enhance liquefaction yield of marine microalgal cells into a fuel
- oil[J]. J Mar Biotechnol, 1998(6): 44-48.
- [13] MIAO XIAO-LING, WU QING-YU. Inorganic carbon utilization in some marine phytoplankton species [J]. Acta Botanica Sinica, 2002,44(4): 395–399.
- [14] 缪晓玲, 吴庆余. 藻类异养转化制备生物油 燃料技术 [J]. 可再生能源, 2004,4(116): 41-44.

(責任編輯 王 芷)

燃料球设计特点是耐高温、耐磨和破损率低等,即使在 1 600℃温度以下,致密的 SiC 包覆层仍保持其完整性,能使气态和金属放射性裂变产物几乎完全被阻留包覆颗粒内¹⁶⁻⁷。

目前国际上常用的燃耗测量方法是利用高纯锗(HPGe)γ谱 仪对燃烧过的燃料球进行非破坏性燃料谱分析,根据γ能谱确定 与燃耗有关的裂变核素量,如 ¹³⁷Cs 的活度来实现在线监测^{16-7]}。燃 料中裂变核素及超铀核素的半衰期长短不一,γ射线种类繁多, 因此对于给定的燃耗,由于燃料球的冷却时间的差异,对燃耗测量产生较大的影响。

基于我国 10 MW 高温气冷堆(HTR-10)燃耗测量系统的运行经验和运行过程中存在的问题,根据球床式高温气冷堆核电示范工程(HTR-PM)的具体设计,二者在燃耗测量条件上有些差异,具体表现在前者的燃料球出堆后的冷却时间约为 30 d,而后者的冷却时间约为 8 d。也就是说,如果燃料球的燃耗深度相同,后者的总放射性活度远大于前者,因此,在设计 HTR-PM 的燃耗测量时,必须要充分考虑总放射性活度更强可能会对测量系统产生影响;另一方面,需要考虑短寿命裂变核素对燃耗测量的标示核素干扰。为此,本文应用 KORIGEN 堆芯总量计算软件和 MC-NP4B 模拟软件[10-11],研究不同燃耗和不同冷却时间等测量条件下的燃耗测量不确定性问题,为 HTR-PM 燃耗测量系统的设计提供理论依据。

2 方法

2.1 堆芯总量计算软件简介

堆芯总量计算软件是计算球芯中燃料成分放射性核素含量的一种计算工具,常用的是由美国橡树岭国家实验室(ORNL)开发的 ORIGEN 软件^[12]。德国国家研究中心为了能够计算各种堆芯和各种燃料元件类型的放射性核素含量,在 ORIGEN 的基础上开发出了 KORIGEN 软件。这些软件原则上是在考虑放射性衰变和中子核反应的基础上解多个微分方程来确定各个核素的含量,同时需要确定放射性核素的衰变模型、核素的平均中子核反应截面和中子通量等。软件涉及的中子截面库有 1 000 多种核素,包括 130种锕系核素、850 种裂变核素和 720 种活化核素。该截面库可满足各种类型的商用反应堆燃料元件堆芯总量计算。

软件输入参数有反应堆和燃料类型、燃料的成分、最终燃耗、受照时间和功率水平(中子通量率)等。堆芯总量计算的不确定性主要来自于平均中子核反应截面的取值大小,这是因为该值与中子的能谱密切相关,不同的反应堆、反应堆中的不同区域以及不同的时间等均会引起中子的能谱变化。本文采用软件是 KORI-GEN,由于高温气冷堆的燃料球、石墨慢化球和反射层等除了核燃料外几乎全是石墨材料,因此在计算过程中未考虑活化核素。

2.2 燃耗的确定

对球床式高温气冷堆而言,燃料在堆芯内停留时与其他堆型相比有较大的不同,添加的燃料球在堆内运动的轨迹具有随意性。从燃料球在堆芯内流动的模拟情况看[I-I-II],在靠近堆芯处,功率和中子注量率较高,燃料球通过率较快;越远离堆芯,功率和中子注量率越小,燃料球通过率越慢,这样利用两种或两种以上的"关键性"裂变核素放射性活度比值来确定燃料球的燃耗有一定的困难。一方面是因为高温气冷堆用石墨作慢化体,它的中子能谱比较"硬",有别于用水或重水作慢化体的其他堆型;另一方面是因为某些关键性裂变核素的中子反应截面与中子能谱有关,如I³⁴Cs、¹⁰⁶Ru和I⁵⁴Eu等。唯一可利用的关键性裂变核素就是I³⁷Cs,该核素具有中子反应截面很小、半衰期长和较高能量的γ射线等特点,且该核素的放射性活度与燃料球的燃耗值有较好的——对应关系。对于I³⁷Cs 燃耗微分方程的解与燃耗(BU,单位:MWd/tU)的近似关系为:

$$BU = \frac{10^6 E_{\rm f}}{G\lambda_7 Y_7} A_7 \exp(\lambda_7 t)$$
 (1)

这里 λ_7 , Y_7 和 A_7 分别是 137 Cs 的衰变常数、裂变产额和燃料球中活度, G(单位:克) 为燃料球中重金属质量, E_i 为 250 U 平均一次裂变释放 197 MeV 的能量 (E_i =3.65×10⁻²⁰ MWd), t 为燃料球的冷却时间。

依 HTR-PM 的设计,每个燃料球的重金属含量(U)为 7 g,新燃料 ²³U 富集度为 9.08%,平均热功率每 t 铀大约为 120 MW,每个燃料球从堆芯排出后大约冷却 8 d,然后进行燃耗测量,以决定是送入堆芯进行再循环还是排走,预计每个球循环 6 次可达到燃耗排出水平(80 GWD/t)。

为了得到不同燃耗和不同冷却时间的燃料球,利用程序包 KORIGEN,按照 HTR-PM 的设计要求对堆芯的燃料球进行模拟 计算,程序的输出结果包括球的燃耗值、不同冷却时刻的锕系核 素和裂变核素的放射性活度等。模拟的燃耗取值分别为 13 GWD/MTU、41 GWD/MTU、81 GWD/MTU 和 110 GWD/MTU,冷却时间分别为 3 d、6 d 和 15 d。根据 KORIGEN 的计算结果,可以得到每个燃料球中放射性核素的多少及活度,每个球中大约有几百种放射性核素,这些核素发出的 γ 射线大约有 10 000 多种 l¹⁵。

2.3 探测器响应模拟

模拟选用 P型 HPGe 探测器,是美国 CANBERRA 公司的产品,型号为 GC2018,相对效率 20%,入射窗 1 mm 铝,能量分辨率(FWHM)1.85 keV(1.33 MeV)。PCA3 型多道分析器,脉冲最大通过率约为 100 k/s。考虑到在测量时,燃料球有定位装置,假设定位装置的材料是不锈钢(Cr18Ni11Ti),为了降低测量本底,探测器的周围设有铅室。燃耗测量截面示意如图 1 所示。

假设受照后的燃料球是一个直径为 50 mm 的石墨基体内均匀分布体源,使用蒙特卡罗模拟计算程序为 MCNP4 A,在模拟的计算过程中,抽样的粒子是在 50 mm 的石墨基体内均匀抽取,粒子的方向是在较小的立体角内均匀抽取并指向探测器。为了使模拟的能谱更能反映真实的测量结果,采用了脉冲幅度的高斯展宽技术,单能 γ射线被展宽后的 FWHM 表示为:

$$FWHM = a + b \sqrt{E + cE^2}$$
 (2)

这里 E 为 γ 射线的能量(MeV),a,b 和 c 为拟合参数,其取值分别为 5.5×10^4 、 1.0×10^4 和 5.123×10^{-106} 。

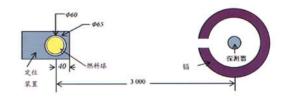


图 1 燃耗测量截面示意图(mm)

Fig. 1 Cross-section view of burnup measurement

由于经燃烧过的燃料球放射性核素众多,考虑到许多核素的放射性很低,或 γ 射线的发射率很弱,因此,对每个燃料球的放射性活度选取时考虑不低于 5μ Ci。由于燃料球的自吸收、定位装置的屏蔽和和空气的衰减,使得 γ 射线或 X 射线有低的探测效率¹⁷; 另一方面,选择的燃耗标示核素 ¹³⁷Cs 的能量比较高,从探测器的测量角度来说,低能区的计数不会影响高能区,因此考虑 γ 射线的能量选取不能低于 500 keV。根据放射性活度和 γ 射线能量的选择条件以及 KORIGEN 软件的计算结果,选取的核素有 50 多个,再根据同位素表¹⁸³查得这些核素的 γ 射线有 140 多种,同时也可得 γ 射线的绝对强度。

如果测得某一放射性核素 γ 射线的能区内总计数为 C,则该 核素的统计不确定度(%)为:

$$v = \sqrt{C + \sum_{i} N_{i} + B} / (C - \sum_{i} N_{i} - B) \times 100\%$$
 (3)

其中,B 为该能区内的本底计数,N, 为第 i 个干扰 γ 峰的净计 数。

3 结果与讨论

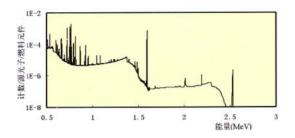


图 2 MCNP 模拟燃料球燃耗为 81 GWD/MTU 和冷却时间为6 d 的γ能谱

Fig. 2 MCNP-simulated Gamma-ray spectrum of fuel sphere at a burnup 81 GWD/MTU and a cooling time 6 d

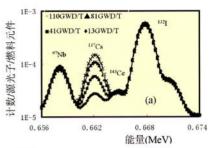
图 2 显示了 MCNP 模拟燃料球的 y 射线脉冲幅度谱,该燃料 球的燃耗为81 GWD/MTU,冷却时间为6d。从图2中可以看出, 大部分的 y 射线集中在 500~1 000 keV 能区内, 并且在该能区内 的康普顿散射平台比较高。MCNP模拟燃料球 ¹³⁷Cs 核素附近的 γ 能谱如图 3 所示,由图 3 来看,97Nb、143Ce 和 132I 3 个短寿命裂变核 素几乎与燃耗值的大小无关,并且对 137Cs 的测量有明显影响,几 个核素及其主要母核的参数列于表 1。

表 1 对 "Cs 的测量有影响的几个核素参数 Parameters of a few nuclides for influence on ¹³⁷Cs measured

裂变核素	半衰期	能量差/keV	绝对强度/%	205[] 裂变产额	核素的母核(半衰期)
97Nb	1.2 h	-3.80	98.23	0.06	⁹⁷ Zr(17.00 h)
132 <u>T</u>	2.30 h	6.00	98.70	0.05	¹³² Te(77.70 h)
		8.10	4.68		
137Cs	30.02 y	0.00	4.99	0.06	¹³⁷ Xe(3.90 m)
¹⁴³ Ce	33.04 h	2.90	5.69	0.05	¹⁴³ La(14.00 m)

从表 1 中的半衰期可见,除了 137Cs 的半衰期较长外,其余的半 衰期比较短,在反应堆运行后不久便接近饱和值,当燃料球排离堆芯 的活性区后,中子通量密度突然近似地降为零,这些裂变核素的直接 产生率也近似等于零。因此,这些短半衰期的核素活度只与冷却时间 相关,与燃耗值的大小无关。对于 97Nb 和 132I 两种核素来说,它们的半 衰期要小于其母核,因此它们处于暂时平衡状态,即核素活度的变化 是由随母核活度的变化而变化的。由于 ⁹⁷Zr 的半衰期远小于 ¹³²Te,因 此从图 3 可以看出,随着冷却时间的增加,⁹⁷Nb 的衰变远快于 1321,也 就是说, 97Nb 对 137Cs 的影响要比 132I 的影响小; 对 143Ce 核素来说, 它 的半衰期要远大于其母核,因此它的活度变化是由自身的半衰期 决定的。由于 137Cs 的半衰期很长,同时中子的反应截面又很小,在 反应堆运行期间处于非饱和态,这就是图 3 中显示的随着燃耗增 加而 y 能谱中的 661.7 keV 峰高也在增加的原因。因此冷却时间 越长,燃耗越大、其他核素对 137Cs 的影响就越小。

从表 1 中的第 3 列来看, 较接近 ¹³⁷Cs 的 γ 射线是 ⁹⁷Nb 和



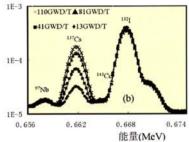


图 3 MCNP模拟燃料球 137Cs 核素附近的 y 能谱 (a) 3 d 冷却时间; (b) 6 d 冷却时间, 图中的燃耗标分别为: ×110 GWD/T、▲81 GWD/T、■41G WD/T 和◆13 GWD/T

Fig. 3 A MCNP-simulated close-up of Gamma-ray spectrum of fuel sphere showing the region around the 137Cs nuclide

(a) 3 d cooling time; (b) 6 d cooling time. (x) 110 GWD/T, (▲) 81 GWD/ T, (■) 41G WD/T and (◆) 13 GWD/T

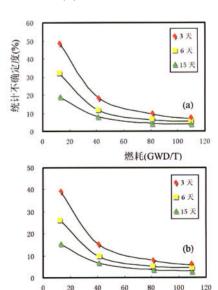


图 4 不同冷却时间、不同测量时间和不同燃耗 与计数统计不确定度的关系 (a) 测量时间为 10 s;(b) 测量时间为 15 s

燃耗(GWD/T)

Fig. 4 Relations of counting statistical uncertainty with different cooling and measurement time. and various levels of burnup.

(a)10 s measurement time; (b)15 s measurement time



¹⁴³Ce,能量差比 γ 谱仪的分辨率(1.85 keV)稍大一些,因此 γ 谱的 重叠不可避免。由于 ⁹⁷Nb 和 ¹⁴³Ce 的裂变产额相当,但前者的 γ 射线绝对强度比后者要高 1 个多量级,而后者的半衰期要比前者长 1 倍,则估算 γ 谱的 ¹⁵⁷Cs 净计数主要影响因素要根据冷却时间的长短而定。燃料球冷却时间大约为 6 d 时,二者的 γ 射线发射率相当,也就是说当冷却时间小于 6 d 进行燃耗测量时,主要考虑 ⁹⁷Nb 的解谱问题,否则要考虑 ¹⁴³Ce 的解谱问题。

假定多道分析器的脉冲通过率为50 k/s,根据公式(3)的计算方法,不同冷却时间、不同测量时间和不同燃耗与计数统计不确定度的关系如图4所示。从图4中可明显看出,冷却时间越长,燃耗越大、燃耗测量的统计不确定度就越小,这样的计算结果与上述分析的结论是一致的,即冷却时间越长,燃耗越大,其他核素对¹³⁷Cs的影响就越小。从测量时间来看,相同的冷却时间和相同的燃耗条件下测量,15 s的不确定度(图4中(b))明显比10 s(图4中(a))的要小。因此,根据燃耗排出的水平要求(80 GWD/t),要使燃耗测量系统的计数统计不确定度达到5%,燃料球的冷却时间不能低于6d,且燃耗测量时间至少需要15 s。

根据 HTG-10 高温气冷堆的燃耗测量结果¹⁷⁷和运行经验以及上述分析,虽然其他核素对 ¹³⁷Cs 的分析有一定的影响,但在允许的不确定度范围内,这种测量方法是可以用于 HTR-PM 燃耗测量的。

参考文献(References)

- [1] WU Z X., LIN D C, ZHONG D X. The design features of the HTR–10[J]. Nuclear Engineering and Design , 2002(218):25–32.
- [2] TANG C H, TANG Y P, et al. Design and manufacture of the fuel element for the 10 MW high temperature gas—cooled reactor[J]. Nuclear Engineering and Design, 2002 (218):91–102.
- [3] 徐世江. 高温气冷堆燃料元件发展现状和趋势 [J]. 核动力工程, 1994, 15(6):506-511.
- [4] YANG Y W, LUO Z P, at el. Fuel management of the HTR-10 including the equilibrium state and the running in phase [J]. Nuclear Engineering and Design, 2002(218):33-41.

- [5] LIU J G, XIAO H L,LI C P. Design and full scale test of the fuel handling system [J]. Nuclear Engineering and Design, 2002(218): 169–178
- [6] 清华大学核能技术设计研究院. 10MW 高温气冷实验堆最终安全分析报告[R].北京:清华大学核能技术设计研究院, 1998.
- [7] 徐世江,朱均国,杨冰,等.高温气冷堆包覆燃料颗粒研究[J].炭素技术,1995(5):7-11.
- [8] 归寿造,李星月.高温气冷堆燃耗测量的y谱学方法[J].高技术通讯, 1991(7):31-34.
- [9] 李桃生,方栋. 核燃料的燃耗测量方法总述[J].核电子学与探测技术, 2005,25(6):852-857.
- [10] FISCHER U,WIESE H W. Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR –Brennstoffe auf der Basis von Zell–Abbrand–Verfahren mit KORIGEN, Rep. KfK 3014[R]. Germany: Nuclear Research Centre Karlsruhe, 1983.
- [11] MONP4A. Monte Carlo N particle transport code system [R]. Los Amamos, New Xexico: Los Alamos National Laboratory, 1993.
- [12] BELL M J, ORIGEN-The ORNL isotope generation and depletion code, ORNL-4628 [R]. USA: Oak Ridge National Laboratory, 1973.
- [13] 钟文发,经荣清,罗经宇等.高温气冷堆球床模拟研究[J].核科学与工程,1993,13(2): 110-118.
- [14] 钟文发,经荣清,罗经宇等.球床堆卸料管中燃料效应的研究[J].核科学与工程,1995,15(3);207-212.
- [15] HAWARI A I, CHEN J W. Computational investigation of on-line interrogation of pebble bed fuel[J]. IEEE Thansactions on Nuclear Science, 2005, 52(5):1659–1664.
- [16] CHEN J W, HAWARI A I ZHAO Z X, et al. Gamma -ray spectrometry analysis of pebble Bed reactor fuel using Monte Carlo simulations[J].Nucl InstruMeth,2003(A505): 393–396.
- [17] 李桃生,方栋,李红,等。10 MW 高温气冷堆的燃耗测量研究[J].核电子学与探测技术,2006,26(2):129-131.
- [18] 卢玉楷主编. 简明放射性同位素应用手册[M].上海:上海科学普及出版社,2004.

(責任编辑 王 芷)

·封面文字说明·

中哈石油管道正式开始对我国输油

2006年5月25日,中国-哈萨克斯坦石油管道正式开始对我国输油。 北京时间当日凌晨3时10分左右,来自哈方阿塔苏站的原油抵达我国新疆阿拉山口计量站。这历史性地标志着我国首次实现了以管道方式从境外进口原油。据报道,通过中哈石油管道向我国输送的原油中,50%来自哈萨克斯坦的扎纳诺尔油田和阿克纠宾油田,50%来自里海地区的俄罗斯油田。

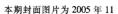
全长 962.2 km 的中哈"阿塔苏-阿拉山口"段石油管道, 西起哈萨克斯坦的阿塔苏, 东至中国的阿拉山口, 设计年输油能力为 2000 万 t, 中国石油集团和哈萨克斯坦国家油气公司各占50%股份, 双方共同为该工程建设提供了7亿美元资金。按照协议, 管道运营初期年输油1000 万 t, 2010 年升至2000 万 t, 哈萨克斯坦和俄罗斯将各提供50%的输油量。

中哈石油管道线路全长 3 000 多 km,其中从哈萨克斯坦最大的原油输出枢纽站阿特劳段至中石油-阿克纠宾油气股份公司所属的肯基亚克油田的 448 km 管线已于 2003 年 3 月完工并正式投入使用;"阿塔苏-阿拉山口"段工程于 2004 年 9 月 28 日开工,2005 年 11 月 15 日竣工投产;肯基亚克至阿塔苏段 1 344 km 管道预计将于 2010 年底建成,届时中哈石油管道将全线贯通。

中哈原油管道是中国第一条跨国输油管道,对于哈萨克斯坦来说, 是第一条不经过第三国而与市场直接连接的管道。它的建成投产,标志 着中哈两国在能源领域的合作进入新的时期,对促进两国经济发展和哈 实现石油出口多元化都有重要意义。

我国新疆的独山子正在建设总投资达 272 亿元的炼油厂和乙烯厂,

计划 2008 年将全部建成。2005年,我国共消费原油 3 亿 t,占全球国共消费原油 3 亿 t,占全球总消费量的 7.8%,仅次于美国居世界第二位;这一年我国共进口原油约 1.2 亿 t,居世界第二位,因此,申哈石油管道油进口原油,是我国谋求石户,在时间,是我国谋求石户,在时间,也是一个大进展,不知进罗斯获得了新的稳定互利合作的大力,以是中哈两国互利合作的大力,以是中哈两国互利的经济发展。



月 14 日中哈石油管道跨国对接时两国施工人员最后进行焊口处理时的 情景,4 輻小图从左至右分别为中哈石油管道线路图、管道建设施工现场、管道输送线一瞥,以及两国工人在管道哈方首站零公里处待命输油。 封面图片由新华社供稿。

(本刊记者 苏 青)

