

基于剂量监测的船用反应堆 破损燃料元件燃耗分析

杨磊¹, 徐少华², 张帆¹, 陈文振¹

(1. 海军工程大学 核能科学与工程系, 湖北 武汉 430033; 2. 海军核安全局, 北京 100841)

摘要: 分析了船用堆燃料元件破损后冷却剂中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度与破损燃料元件中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度之间的关系, 同时也分析了燃料元件中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度与燃料元件燃耗之间的关系。由分析得到破损燃料元件燃耗的计算公式, 为进一步定位破损元件提供理论依据。

关键词: 船用反应堆; 燃料元件; 活度; 燃耗

中图分类号: TL326

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2010)08-0974-05

Burn-Up Analysis of Ruptured Fuel Element in Ship Reactor Based on Dosage Detection

YANG Lei¹, XU Shao-hua², ZHANG Fan¹, CHEN Wen-zhen¹

(1. Department of Nuclear Energy Science and Engineering, Naval University of Engineering, Wuhan 430033, China; 2. Naval Nuclear Safety Bureau, Beijing 100841, China)

Abstract: The relationship between the activity of ^{134}Cs and ^{137}Cs in the main loop and the activity of ^{134}Cs and ^{137}Cs in ruptured fuel was analyzed when the cladding of fuel elements of a ship reactor was broken. The relationship between the activity of ^{134}Cs and ^{137}Cs and the burn-up of a fuel was also analyzed. With this analysis, the calculation formula of ruptured fuel's burn-up can be found and it provides the theoretical basis to locate the fuel elements with broken cladding further.

Key words: ship reactor; fuel element; activity; burn-up

在破损燃料元件的诊断分析中, 主要依靠监测冷却剂中关键核素的放射性活度来进行分析研究, 其中, 破损燃料元件燃耗计算是定位破损燃料元件的重要环节^[1]。针对船用反应堆的特点, 必须研究这些关键核素与船用反应堆燃耗之间的关系, 找到确定破损燃料元件燃耗的方法。目前, 在所有针对破损燃料元件的燃耗

计算方法中, ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 由于其高裂变产额、中等半衰期、大的放射性剂量、吸附能力弱、不会大量沉积、极易透过包壳进入主回路的特点^[2], 被作为监测和分析的主要核素。本工作主要研究一回路冷却剂中 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的放射性活度与破损燃料元件燃耗之间的关系。

收稿日期: 2009-08-14; 修回日期: 2010-03-11

作者简介: 杨磊(1987—), 男, 山西运城人, 硕士研究生, 从事反应堆安全分析研究

1 燃料元件中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度理论模型

燃料元件中的 ^{134}Cs 主要来源于 ^{133}Cs 的 (n, γ) 俘获反应, ^{137}Cs 则直接由 ^{235}U 、 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 裂变产生,同时又不断衰变。本工作采用ORIGEN-2.0程序计算破损前燃料元件中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度 $A_{i,134}$ 、 $A_{i,137}$ 。

对 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 产额的计算模型^[3]如下:

$$\frac{dN^{134}\text{Cs}}{dt} = \sigma_{\gamma,133}\text{Cs}N^{133}\text{Cs}\varphi - \sigma_{\gamma,134}\text{Cs}N^{134}\text{Cs}\varphi - \lambda^{134}\text{Cs}N^{134}\text{Cs} \quad (1)$$

$$\frac{dN^{137}\text{Cs}}{dt} = \gamma^{137}\text{Cs}\sum_i^{137}\text{Cs}\varphi - \sigma_{\gamma,137}\text{Cs}N^{137}\text{Cs}\varphi - \lambda^{137}\text{Cs}N^{137}\text{Cs} \quad (2)$$

其中:

$$\gamma^{137}\text{Cs}\sum_i^{137}\text{Cs} = \gamma^{137}\text{Cs},^{235}\text{U}\sum_i^{235}\text{U} + \gamma^{137}\text{Cs},^{239}\text{Pu}\sum_i^{239}\text{Pu} + \gamma^{137}\text{Cs},^{241}\text{Pu}\sum_i^{241}\text{Pu}$$

式中: $\gamma_{i,j}$ 为 j 裂变生成 i 的产额; $\sigma_{\gamma,j}$ 为 j 的微观裂变截面; λ_j 为核素 j 的衰变常量; N_j 为核素 j 的密度; φ 为中子注量率; $\sum_{i,j}$ 为 j 的宏观裂变截面。

2 破损燃料元件燃耗计算理论模型

2.1 模型假设

燃料元件破损后, ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 经扩散迁移部分或全部进入一回路冷却剂中^[4],为便于分析冷却剂中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度与破损燃料元件燃耗间的关系,作如下假设:1)在燃料元件发生破损前,净化系统正常工作,一回路中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度与破损后 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度相比可忽略,若在此之前也发生过燃料元件破损,在换料后,一回路水中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度残留为0;2) ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 在离子交换剂中的吸附、在设备表面的沉积及管道的泄漏等与净化系统的净化效果相比是次要的,可忽略;3)当剂量监测系统发现燃料元件发生破损时,立即降功率运行;4)只有1根燃料元件发生破损或多根燃耗相同的燃料元件发生破损;5)探测装置的测量值准确;6)燃料元件破损后,主回路中核素分布均匀。

2.2 模型推导

在燃料元件破损监测中,考虑到 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的 γ 频谱特性,用总 γ 测量装置进行监

测。由于船用反应堆燃料组件相对较少,运行功率较低,欲获得比较明显的监测结果,必须在反应堆快速降功率过程中监测和计算 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 的放射性活度^[1]。在以上假设的基础上,主要考虑以下因素对 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 监测的影响^[5]。

1) 净化系统的净化作用

在净化系统参与的情况下,若 t_0 时刻发生破损,测量 t 时刻冷却剂中核素 j 的放射性活度^[5]为:

$$A_j(t) = A_j(t_0)\exp\left(-\frac{\eta_j Q(t)}{m(t)}(t-t_0)\right) \quad (3)$$

其中: $A_j(t)$ 为一回路 t 时刻核素 j 的放射性活度; η_j 为净化系统对核素 j 的净化效率; $Q(t)$ 为净化系统 t 时刻的净化流量; $m(t)$ 为主冷却剂的总质量。

2) ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 自身衰变

探测器对核素 j 的特征峰的总净计数^[5]为:

$$C_j(t) = Y_{j,\kappa_j} S \Delta T \int_l \frac{A_j(t)}{V} \epsilon_j(l) dl \quad (4)$$

其中: Y_{j,κ_j} 为被观测核素 j 每次衰变发射能量为 κ_j 的 γ 射线的概率; S 为取样螺旋管内孔径的横截面积; $\epsilon_j(l)$ 为探测器对监测点处核素 j 的特征 γ 射线的全能峰探测效率; ΔT 为数据获取有效时间; l 为监测点距取样螺旋管入口的距离; V 为反应堆一回路水总体积; $A_j(t) = A_j(t_0)\exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{j,1/2}}\left(\frac{l}{v} + \Delta t - t_0\right)\right)$, $T_{j,1/2}$ 为核素 j 的半衰期, v 为样品在螺旋管中的流速。

由式(4)可得:

$$\frac{A_j(t_0)}{C_j(t)V} = \frac{Y_{j,\kappa_j} S \Delta T \int_l \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{j,1/2}}\left(\frac{l}{v} + \Delta t - t_0\right)\right) \epsilon_j(l) dl}{C_j(t)V} \quad (5)$$

3) 特征峰能量相近的裂变产物影响

在反应堆运行早期,由于冷却剂中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度较低,在监测中与特征峰能量相近的裂变产物的影响比较明显,如果在反应堆运行早期燃料元件发生破损,必须考虑因此带来的测量误差。

4) 冷却剂中活化产物的影响

^{134}Cs 、 ^{137}Cs 特征峰能量分别为604.7、

661.7 keV, 两个峰附近 γ 能谱比较纯净, 其它特征峰造成的干扰较小^[3]。当燃料元件发生破损时, 一回路中¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 比活度很快升高, 其特征峰易在一回路水能谱上显现出来。

基于以上 4 种影响因素的考虑, 设在 t_0 时刻燃料元件发生破损, 由 $A_{f,j}(t_0) = A_j(t_0) \cdot$

$\frac{\omega_j \sigma_{j,\kappa_j}}{\beta_j}$, 可得:

$$f_j(B) = A_{f,j}(t_0) =$$

$$C_j(t) V \omega_j \sigma_{j,\kappa_j} / (\beta_j Y_{j,\kappa_j} S \Delta T \exp(-\frac{\eta_j Q(t)}{m(t)} t) \cdot$$

$$\int_i \exp(-\frac{\ln 2}{T_{j,1/2}} (\frac{l}{v} + \Delta t)) \epsilon_j(l) dl \quad (6)$$

$$h(B) = \frac{f_{134}(B)}{f_{137}(B)} = \xi P N G K \frac{C_{134}(t)}{C_{137}(t)} \quad (7)$$

$$\xi = \frac{\omega_{134} \sigma_{134,604.7 \text{ keV}}}{\omega_{137} \sigma_{137,661.7 \text{ keV}}}$$

$$P = \frac{Y_{137,661.7 \text{ keV}}}{Y_{134,604.7 \text{ keV}}}$$

$$N = \frac{\int_i \exp(-\frac{\ln 2}{T_{137,1/2}} (\frac{l}{v} + \Delta t)) \epsilon_{137}(l) dl}{\int_i \exp(-\frac{\ln 2}{T_{134,1/2}} (\frac{l}{v} + \Delta t)) \epsilon_{134}(l) dl}$$

$$G = \frac{\exp(-\frac{\eta_{137} Q(t)}{m(t)} t)}{\exp(-\frac{\eta_{134} Q(t)}{m(t)} t)}$$

$$K = \beta_{137} / \beta_{134}$$

其中: $f_j(B)$ 为破损前燃料元件中核素 j 的放射性活度 $A_{f,j}$ 与燃耗 B 的函数关系; $h(B)$ 为破损前燃料元件中¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 放射性活度之比与破损燃料元件燃耗 B 的函数关系; ξ 为修正因子项; P 为监测概率项, 为常数; N 为衰变项; G 为净化项; K 为释放份额项; β_j 为到取样时刻为止核素 j 的释放份额; ω_j 为对活化产物影响核素 j 监测精度的修正因子; σ_{j,κ_j} 为能量峰在 κ_j 附近其他裂变产物对核素 j 监测精度的修正因子。

式(7)表明, 通过对冷却剂中¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 放射性活度进行监测计算, 可精确计算出破损燃料元件的燃耗。为了便于快速计算, 在监测时间距破损时间差较短的条件下, 式(7)可做如下简化: 1) 由于¹³⁴Cs 与¹³⁷Cs 为同位素, 物理性质相同, 认为 $\beta_{134} = \beta_{137}$; 2) 净化系统对¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 的净化效率较低^[5], 近似认为 $\eta_{134} = \eta_{137} = 0$; 3) ¹³⁴Cs 与¹³⁷Cs 半衰期较长 ($T_{1/2,134} = 2 \text{ a}$,

$T_{1/2,137} = 30 \text{ a}$), 忽略破损与监测间的时间差所导致的¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 衰变, 认为 $(l/v + \Delta t) / T_{1/2} = 0$; 4) ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 在 604.7、661.7 keV 附近有脉冲峰, 监测效果较明显, 在监测仪器精度较高或反应堆燃耗较高的情况下, 可忽略相近能量峰的裂变产物和活化产物的影响, 即 $\omega_j = \sigma_{j,\kappa_j} = 1$ 。

根据以上简化, 此时 $\xi = G = K = 1$, $N = \int_i \epsilon_{137}(l) dl / \int_i \epsilon_{134}(l) dl$ 是与监测仪器的标准刻度及监测地点有关的数, 在监测结束后可计算得到, 则式(7)可简化为:

$$h(B) = P N \frac{C_{134} C_s(t)}{C_{137} C_s(t)} \quad (8)$$

由式(8)可知, 在反应堆燃料元件发生破损时, 只需对冷却剂中¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 在 604.7、661.7 keV 的特征峰进行探测, 两者计数比值就可大致确定破损燃料元件的燃耗情况。

3 计算与分析

3.1 ORIGIN-2.0 程序计算精度分析

由于¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 主要由²³⁵U、²³⁹Pu 和²⁴¹Pu 裂变或由它们的裂变碎片衰变产生, 因此, 只需验证 ORIGIN-2.0 程序对²³⁵U、²³⁹Pu 和²⁴¹Pu 的计算精度, 即可反映出 ORIGIN-2.0 程序对燃料元件内 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 和燃料元件燃耗计算的准确性。

用 ORIGIN-2.0 程序对一船用反应堆在整个寿命内²³⁵U、²³⁹Pu 和²⁴¹Pu 的质量变化情况进行计算, 并把它随燃耗的变化情况与实际数据进行对比, 将数据归一化处理后, 结果示于图 1, 其中, $M(t)$ 、 $B(t)$ 分别为 t 时刻的质量和燃耗, T 为寿命末时刻。

由图 1 可知, ORIGIN-2.0 程序计算结果与实际数据基本吻合, 其中, ²³⁵U 符合较好, ²⁴¹Pu 误差小于 0.5%, ²³⁹Pu 最大误差为 0.09, 误差主要来源于针对特定船用堆计算时对各组件中子均匀化群常数的取值的误差, 与软件本身无关。考虑到热堆中²³⁹Pu 产额很少, 此误差不影响计算精度, 因此, 可用来分析计算燃料元件中 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 与燃耗之间的关系。

3.2 燃耗与 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 的关系

用 ORIGIN-2.0 程序对反应堆整个寿命不同燃耗时刻 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 进行计算, 得到燃耗

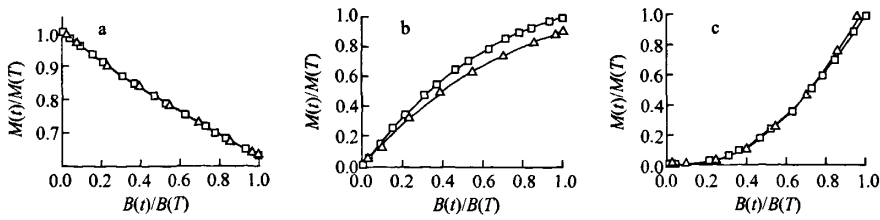


图 1 ^{235}U (a)、 ^{239}Pu (b)、 ^{241}Pu (c)质量随燃耗变化比较
Fig. 1 Mass vs. burn-up for ^{235}U (a), ^{239}Pu (b) and ^{241}Pu (c)
□——实际数据; △——ORIGEN-2.0 计算数据

与 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 间的关系(图 2,C 为常数,单位为 Bq)。由图 2 可知, $A_{f,137}$ 与反应堆燃耗近似成线性比例关系, $A_{f,134}/A_{f,137}$ 与反应堆燃耗也近似成线性比例关系,这与压水堆核电站乏燃料燃耗测试的结果一致^[3]。

由于船用反应堆在运行过程中,功率调整频繁,各燃料组件在各个时刻燃耗均不相同(燃耗最接近的组件寿期内最小燃耗差为 $60\text{ MW}\cdot\text{d/t}$,以 U 计),按照它们在堆芯的位置分布和功率运行历史,从所有燃料组件中选择不同时间燃耗差别较大的 3 组,用来研究各组件的燃耗与它们各自元件内 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 及

其 $A_{f,134}/A_{f,137}$ 的关系,经归一化处理后示于图 3(D 为常数,单位为 $\text{MW}\cdot\text{d/t}$)。

通过对图 3 分析可得到以下结论:1) 燃料元件中 $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 和 $A_{f,134}/A_{f,137}$ 只与燃料的燃耗有关,运行过程中的功率变化或调整、停堆等对它们的影响很小,可忽略;2) 对 1 座反应堆, $A_{f,134}$ 、 $A_{f,137}$ 和 $A_{f,134}/A_{f,137}$ 与燃料燃耗有一一对应线性比例关系,即存在唯一的 $f_{134}(B)$ 、 $f_{137}(B)$ 和 $h(B)$ 与燃耗 B 的函数关系。

3.3 结果分析

由以上计算可知,运用 ORIGEN-2.0 程序计算得到的反应堆燃料元件燃耗与 $A_{f,134}$ 、

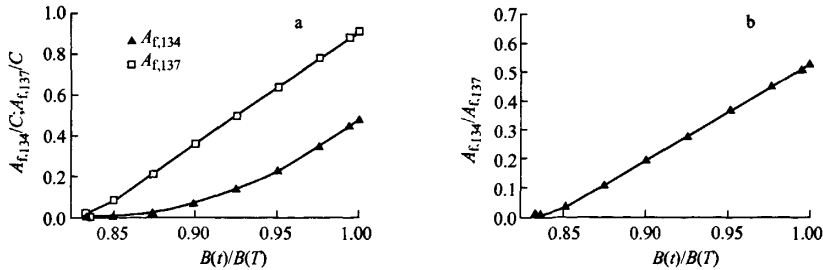


图 2 $A_{f,137}$ 、 $A_{f,134}$ (a) 与 $A_{f,134}/A_{f,137}$ (b) 随反应堆燃耗的变化
Fig. 2 $A_{f,137}$, $A_{f,134}$ (a) and $A_{f,134}/A_{f,137}$ (b) vs. nuclear reactor's burn-up

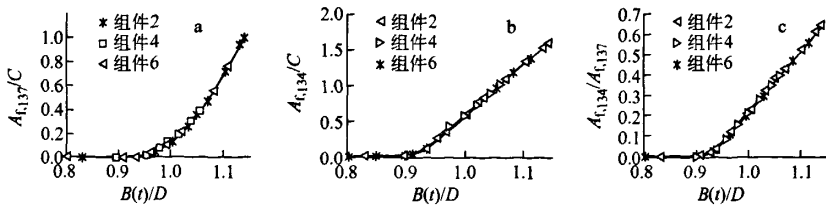


图 3 $A_{f,137}$ (a)、 $A_{f,134}$ (b) 和 $A_{f,134}/A_{f,137}$ (c) 与燃耗的关系
Fig. 3 Relation of $A_{f,137}$ (a), $A_{f,134}$ (b) and $A_{f,134}/A_{f,137}$ (c) with nuclear reactor's burn-up

$A_{f,137}$ 和 $A_{f,134}/A_{f,137}$ 间的函数关系准确,可应用于实际计算。此外,破损燃料元件燃耗计算理论模型的建立和推导过程分析全面、准确反映了扩散到冷却剂中的 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度与燃料元件中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 放射性活度间的关系。在燃料元件发生破损时,可依据式(7)对破损燃料元件的燃耗进行准确计算,也可用式(8)进行简单估算。

4 结论

反应堆具有一定燃耗、1根或若干根燃耗相同的燃料元件发生破损时,通过对冷却剂中 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 在604.7、661.7 keV的特征峰能量进行探测,即可确定破损燃料元件的燃耗。将计算结果与反应堆物理分析的方法计算得到的各燃料元件的燃耗相比较,可判断出破损燃料元件分布的大致范围。这种方法监测简便,对燃料元件诊断分析具有很强的应用价值。但当不同燃耗深度的多根燃料元件同时发生破损时,由于此时 $A_{f,134}/A_{f,137}$ 主要取决于高燃耗深度的元件,误差范围难以判断,计算的准确度有待进一步研究。

参考文献:

- [1] 李兰,杨洪润. 压水堆核电厂燃料元件破损诊断方法[J]. 核动力工程,2008,29(3):135-139.
LI Lan, YANG Hongrun. Diagnosis method for fuel failures in pressurized water reactor nuclear power plant [J]. Nuclear Power Engineering, 2008, 29(3): 135-139(in Chinese).
- [2] 朱继洲,奚树人,单建强,等. 核反应堆安全分析[M]. 西安:西安交通大学出版社,2004:235-248.
- [3] SASAHARA A, MATSUMURA T, NICOLAOU G, et al. Neutron and gamma ray source evaluation of LWR high burn-up UO_2 and MOX spent fuels[J]. Nuclear Science and Technology, 2004, 41(4): 448-456.
- [4] DEVELL L, JOHANSSON K. Specific features of cesium chemistry and physics affecting reactor accident source term predictions[M]. Sweden: [s. n.], 1994: 8-11.
- [5] 张燕,闫学昆,刘明健,等. 元件破损监测中关键核素活度测量的影响因素[J]. 原子能科学技术,2008,42(4):318-321.
ZHANG Yan, YAN Xuekun, LIU Mingjian, et al. Influencing factors on key nuclide activity measuring in fuel element rupture detecting[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2008, 42(4): 318-321(in Chinese).