

文章编号: 0258-0926(2016)05-0046-05; doi: 10.13832/j.jnpe.2016.05.0046

通过监测 Cs 快速定位破损燃料组件的方法

孙寿华, 李 健*, 朱 磊, 李子彦

中国核动力研究设计院, 成都, 610213

摘要:从燃料元件内生成 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 的核反应过程出发, 建立精确的数学物理模型, 得到反应堆一回路冷却剂中 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 放射性活度与燃料组件内 ^{235}U 燃耗关系的精确解和简化解。分别给出了简化解、ORIGEN2.0 计算结果和精确解的比较。研究表明: 只要通过化学测量得到反应堆一回路中 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 的活度比 (R_{Cs}), 即可由本文建立的精确解模型计算得到破损燃料元件的燃耗值, 从而达到快速定位破损燃料元件的目的。

关键词: ^{137}Cs ; ^{134}Cs ; 放射性活度; 燃料组件; ^{235}U 燃耗

中图分类号: TL326 **文献标志码:** A

Research on Rapid Location of Ruptured Fuel Element by Cs Detection

Sun Shouhua, Li Jian*, Zhu Lei, Li Ziyan

Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China

Abstract: Based on the nuclear reaction of ^{137}Cs and ^{134}Cs in the fuel assembly, the accurate mathematical and physical calculation models were established. The exact and simplified solutions of relationships between radioactivity of the two nuclides in the primary coolant and burn-up of ^{235}U in the fuel assembly were obtained. The comparisons of simplified solution, ORIGEN2.0 calculation result and exact solution were carried out as well. The result showed that, if only the R_{Cs} , ratio of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in the primary coolant, is obtained by hydrochemistry measurement, burn-up of the ruptured fuel assembly can be calculated with the analytical solution model, so as to locate the ruptured fuel assembly rapidly.

Key words: ^{137}Cs , ^{134}Cs , Radioactivity, Fuel assembly, Burn-up of ^{235}U

0 引言

在反应堆运行中, 当燃料组件包壳发生破损时, 裂变产物会直接从缺陷处释放到一回路冷却剂中, 引起冷却剂中的放射性水平升高; 当放射性水平升高到一定限值时必须停堆。因此, 一旦燃料组件发生破损, 快速定位破损燃料组件具有非常重要的意义。燃料组件是否破损主要依靠探测关键核素的 γ 放射性来实现。建立一回路冷却剂中关键核素的放射性活度与燃料组件燃耗的关

系是定位破损燃料组件的重要方法。

由于 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 具有高裂变产额、半衰期适中、不会大量沉积、极易透过包壳进入主回路的特点, 常被作为监测燃料元件破损、分析破损燃料元件燃耗的主要核素。文献[1]中应用 ORIGEN2.0 程序计算结果, 得到了船用反应堆一回路冷却剂水中 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 放射性活度与破损燃料组件燃耗的关系曲线; 文献[2-3]中通过简化建立粗略的模型进行分析, 认为 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 的放射

收稿日期: 2015-11-17; 修回日期: 2016-04-09

作者简介: 孙寿华(1964—), 男, 研究员, 现从事反应堆工程与安全研究工作

*通讯作者: 李 健, Email:lijian9001@163.com

性活度与燃耗的一次方、二次方分别成正比，¹³⁷Cs 的放射性活度与燃耗近似成正比。文献[1-2]中的方法和结果都具有很强的近似性，无法推广应用。本文从 ¹³⁷Cs 和 ¹³⁴Cs 生成的核反应过程出发，通过建立精确的物理数学模型，得到冷却剂中 ¹³⁷Cs 和 ¹³⁴Cs 的放射性活度与破损燃料组件燃耗之间的通用关系式和简化关系式，为快速定位破损燃料组件找到了一种方法。

1 计算模型的建立

由于燃料组件中 95% 以上的裂变都是 ²³⁵U 产生的，而 ²³⁵U、²³⁹Pu 和 ²⁴¹Pu 等 3 种核素每次裂变生成 ¹³⁷Cs、¹³⁴Cs 的产额基本相同，因此假设 ¹³⁷Cs、¹³⁴Cs 全部来自于 ²³⁵U 的裂变。

1.1 ¹³⁷Cs 活度与燃耗的关系

¹³⁷Cs 直接来自于 ²³⁵U 的裂变，同时又不断发生衰变。¹³⁷Cs 产额的计算模型为：

$$\frac{dN_{235U}}{dt} = -\sigma_{a,235U} \phi N_{235U} \quad (1)$$

$$\frac{dN_{137Cs}}{dt} = \gamma_{137Cs} \Sigma_{f,235U} \phi - (\sigma_{\gamma,137Cs} \phi + \lambda_{137Cs}) N_{137Cs} \quad (2)$$

式中， N_{235U} 、 N_{137Cs} 分别为燃料组件中 ²³⁵U 和 ¹³⁷Cs 的核子密度； $\sigma_{a,235U}$ 、 $\sigma_{f,235U}$ 分别为 ²³⁵U 微观吸收、裂变截面； $\Sigma_{f,235U} = \sigma_{f,235U} N_{235U}$ ，为 ²³⁵U 的宏观裂变截面； γ_{137Cs} 、 λ_{137Cs} 、 $\sigma_{\gamma,137Cs}$ 分别为 ¹³⁷Cs 裂变产额、衰变常数、微观俘获截面， ϕ 为中子注量率。

式 (1)、式 (2) 的初始条件为：

$$N_{235U}(0) = N_0, N_{137Cs}(0) = 0 \quad (3)$$

式中， N_0 代表 ²³⁵U 初始时刻的核子密度。

由式 (1) ~ 式 (3) 解得，燃料组件内 ¹³⁷Cs 的放射性活度 A_{137Cs} 为：

$$A_{137Cs} = \frac{\lambda_{137Cs} \gamma_{137Cs} \sigma_{f,235U} \phi N_0}{\sigma_{a,235U} \phi - \lambda_{137Cs} - \sigma_{\gamma,137Cs} \phi} \times \left\{ \exp[-(\lambda_{137Cs} + \sigma_{\gamma,137Cs} \phi)t] - \exp(-\sigma_{a,235U} \phi t) \right\} \quad (4)$$

定义燃料组件中 ²³⁵U 的燃耗为 B ，由式 (1) 可得：

$$B = \frac{N_{235U}(0) - N_{235U}(t)}{N_{235U}(0)} = 1 - \exp(-\sigma_{a,235U} \phi t) \quad (5)$$

由式 (5) 得到燃料组件中 ²³⁵U 的燃耗和燃料组件运行时间的关系式为：

$$t = -\frac{\ln(1-B)}{\sigma_{a,235U} \phi} \quad (6)$$

将式 (6) 代入式 (4) 得 A_{137Cs} 与燃耗 B 之间的关系式为：

$$A_{137Cs} = \frac{\lambda_{137Cs} \gamma_{137Cs} \sigma_{f,235U} \phi N_0}{\sigma_{a,235U} \phi - \lambda_{137Cs} - \sigma_{\gamma,137Cs} \phi} \times \left\{ \exp\left[\frac{(\lambda_{137Cs} + \sigma_{\gamma,137Cs} \phi) \ln(1-B)}{\sigma_{a,235U} \phi} \right] - \exp[\ln(1-B)] \right\} \quad (7)$$

式 (7) 是燃料组件中 ¹³⁷Cs 活度和燃耗关系的精确计算模型。由式 (7) 可见，¹³⁷Cs 的活度与燃耗、中子注量率存在函数关系。

当 $\phi > 1 \times 10^{13} \text{ (cm}^2 \cdot \text{s)}^{-1}$ 时，由于 $\sigma_{a,235U} \phi \gg \lambda_{137Cs} + \sigma_{\gamma,137Cs}$ ，对式 (7) 进行适当的简化，得到 A_{137Cs} 与燃耗 B 之间的简化模型为：

$$A_{137Cs} = \frac{\lambda_{137Cs} \gamma_{137Cs} N_0}{1 + \alpha} B \propto B \quad (8)$$

$$\alpha = \sigma_{a,235U} / \sigma_{f,235U}$$

由式 (8) 可见，当 $\phi > 1 \times 10^{13} \text{ (cm}^2 \cdot \text{s)}^{-1}$ 时，¹³⁷Cs 的放射性活度与燃料组件的燃耗近似成正比比例关系。

1.2 ¹³⁴Cs 活度与燃耗的关系

生成 ¹³⁴Cs 的途径主要有 2 条：由 ²³⁵U 裂变直接生成；²³⁵U 裂变直接生成 ¹³³I，¹³³I 衰变成 ¹³³Xe，¹³³Xe 进一步衰变成 ¹³³Cs，¹³³Cs 发生辐射俘获反应生成 ¹³⁴Cs^[3]。¹³⁴Cs 的生成链可简化为如图 1 所示。

1.2.1 ²³⁵U 裂变直接生成 ¹³⁴Cs ²³⁵U 裂变直接生成 ¹³⁴Cs 的计算模型为：

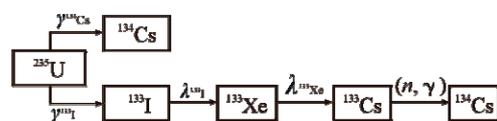


图 1 ¹³⁴Cs 生成链示意图
Fig. 1 Generation Chain of ¹³⁴Cs

$$\frac{dN_{235\text{U}}}{dt} = -\sigma_{a,235\text{U}}\phi N_{235\text{U}} \quad (9)$$

$$\frac{dN_{134\text{Cs}}}{dt} = \gamma_{134\text{Cs}}\Sigma_{f,235\text{U}}\phi - (\lambda_{134\text{Cs}} + \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi)N_{134\text{Cs}} \quad (10)$$

式中, $N_{134\text{Cs}}$ 、 $\lambda_{134\text{Cs}}$ 、 $\sigma_{\gamma,134\text{Cs}}$ 、 $\gamma_{134\text{Cs}}$ 分别为燃料组件中 ^{134}Cs 的核子密度、衰变常数、微观俘获截面、裂变产额。

初始条件:

$$N_{235\text{U}}(0) = N_0, N_{134\text{Cs}}(0) = 0 \quad (11)$$

由式(6)、式(9)、式(10)可解得燃料组件中 ^{134}Cs 放射性活度 $A_{I,134\text{Cs}}$ 与燃耗 B 之间的关系式为:

$$A_{I,134\text{Cs}} = \frac{\lambda_{134\text{Cs}}\gamma_{134\text{Cs}}\sigma_{f,235\text{U}}\phi N_0}{\sigma_{a,235\text{U}}\phi - \lambda_{134\text{Cs}} - \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi} \times \left\{ \exp\left[\frac{\lambda_{134\text{Cs}} + \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi}{\sigma_{a,235\text{U}}\phi} \ln(1-B)\right] - \exp[\ln(1-B)] \right\} \quad (12)$$

式(12)即为 $A_{I,134\text{Cs}}$ 与燃耗关系的精确解计算模型。由式(12)可见, $A_{I,134\text{Cs}}$ 与燃耗、中子注量率存在函数关系。

令 $w = (\lambda_{134\text{Cs}} + \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi) / \sigma_{a,235\text{U}}\phi$, 代入式(12)进行化简, 得到简化计算公式:

$$A_{I,134\text{Cs}} = \lambda_{134\text{Cs}}\gamma_{134\text{Cs}}N_0 \frac{B}{1+\alpha} \left(1 - \frac{wB}{2(1+\alpha)}\right) \quad (13)$$

由(13)式可见, $A_{I,134\text{Cs}}$ 仅与燃耗有关。

1.2.2 ^{235}U 裂变间接生成 ^{134}Cs ^{235}U 裂变间接生成 ^{134}Cs 的计算模型为:

$$\frac{dN_{235\text{U}}}{dt} = -\sigma_{a,235\text{U}}\phi N_{235\text{U}} \quad (14)$$

$$\frac{dN_{133\text{I}}}{dt} = \gamma_{133\text{I}}\Sigma_{f,235\text{U}}\phi - \lambda_{133\text{I}}N_{133\text{I}} \quad (15)$$

$$\frac{dN_{133\text{Xe}}}{dt} = \lambda_{133\text{I}}N_{133\text{I}} - \lambda_{133\text{Xe}}N_{133\text{Xe}} \quad (16)$$

$$\frac{dN_{133\text{Cs}}}{dt} = \lambda_{133\text{Xe}}N_{133\text{Xe}} - \sigma_{\gamma,133\text{Cs}}\phi N_{133\text{Cs}} \quad (17)$$

$$\frac{dN_{134\text{Cs}}}{dt} = \sigma_{\gamma,133\text{Cs}}\phi N_{133\text{Cs}} - (\lambda_{134\text{Cs}} + \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi)N_{134\text{Cs}} \quad (18)$$

式中, $\gamma_{133\text{I}}$ 为 ^{133}I 裂变产额; $\lambda_{133\text{Xe}}$ 为 ^{133}Xe 的衰变常数; $\sigma_{\gamma,133\text{Cs}}$ 为 ^{133}Cs 微观俘获截面。

该方程的初始条件为:

$$N_{235\text{U}}(0) = N_0 \quad (19-1)$$

$$N_{133\text{I}}(0) = N_{133\text{Xe}}(0) = N_{133\text{Cs}}(0) = N_{134\text{Cs}}(0) = 0 \quad (19-2)$$

求解方程(14)~方程(18)可得燃料组件中通过间接途径生成的 ^{134}Cs 活度 $A_{II,134\text{Cs}}$, 进而可得 $A_{II,134\text{Cs}}$ 与燃耗 B 关系的精确解计算模型:

$$A_{II,134\text{Cs}} = \frac{\lambda_{134\text{Cs}}\lambda_{133\text{Xe}}\lambda_{133\text{I}}\gamma_{133\text{I}}\sigma_{\gamma,133\text{Cs}}\sigma_{f,235\text{U}}\phi^2 N_0 f(B, \phi)}{(\lambda_{133\text{I}} - \delta)(\lambda_{133\text{Xe}} - \delta)(\sigma_{\gamma,133\text{Cs}}\phi - \delta)} \quad (20)$$

式中, $\delta = \sigma_{a,235\text{U}}\phi$; $f(B, \phi)$ 是一个关于燃耗和中子注量率的函数。

由于存在下列关系:

$$\lambda_{133\text{I}} \square \lambda_{133\text{Xe}} \square \lambda_{134\text{Cs}} + \sigma_{\gamma,134\text{Cs}}\phi \quad (21-1)$$

$$\sigma_{a,235\text{U}} \square \sigma_{\gamma,133\text{Cs}}, \lambda_{133\text{I}} \square \sigma_{f,235\text{U}}\phi \quad (21-2)$$

对式(20)进行适当的简化, 得到燃料组件中 ^{134}Cs 活度 $A_{II,134\text{Cs}}$ 的简化计算模型为:

$$A_{II,134\text{Cs}} = \frac{\lambda_{134\text{Cs}}\gamma_{133\text{I}}\lambda_{133\text{Xe}}\sigma_{\gamma,133\text{Cs}}N_0}{2\lambda_{133\text{I}}\sigma_{a,235\text{U}}} B^2 \quad (22)$$

在近似条件下, 由式(22)可知, $A_{II,134\text{Cs}}$ 与燃耗的平方成正比。

1.2.3 ^{134}Cs 的总活度 两条链生成的 ^{134}Cs 放射性活度之和 $A_{134\text{Cs}}$ 为:

$$A_{134\text{Cs}} = A_{I,134\text{Cs}} + A_{II,134\text{Cs}} \quad (23)$$

两条链生成的 ^{134}Cs 放射性活度之比为:

$$\frac{A_{II,134\text{Cs}}}{A_{I,134\text{Cs}}} = \frac{\gamma_{133\text{I}}\sigma_{\gamma,133\text{Cs}}(1+\alpha)^2 B}{\gamma_{134\text{Cs}}[2(1+\alpha) - wB]\sigma_{a,235\text{U}}} \quad (24)$$

把有关常数代入式(24)可知, $A_{II,134\text{Cs}} \square A_{I,134\text{Cs}}$ 。因此, 实际应用中, 可将途径 I 忽略, 即认为冷却剂中的 ^{134}Cs 全部来自于 ^{133}Cs 的(n, γ)反应。

1.3 冷却剂中 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 活度

由于 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 为同位素, 可以认为燃料组件中的 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 释放到一回路冷却剂中的份额相同, 则满足如下关系:

$$\left(\frac{A_{134}\text{Cs}}{A_{137}\text{Cs}}\right)_{\text{coolant}} = \left(\frac{A_{134}\text{Cs}}{A_{137}\text{Cs}}\right)_{\text{fuel}} \quad (25)$$

因而，可利用一回路冷却剂中测得的 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 的放射性活度比 $R_{\text{Cs}} = A_{134}\text{Cs} / A_{137}\text{Cs}$ 和精确解公式 (7) 和式 (20) 得到破损燃料组件的燃耗，从而达到对破损组件定位的目的。

R_{Cs} 的近似解计算公式为：

$$R_{\text{Cs}} = \frac{\lambda_{134}\text{Cs} \gamma_{133}\text{I} \sigma_{\gamma,133}\text{Cs} (1 + \alpha)}{2 \lambda_{137}\text{Cs} \gamma_{137}\text{Cs} \sigma_{a,235}\text{U}} B \quad (26)$$

2 在高通量工程试验堆 (HFETR) 中的应用

HFETR 采用多层套管型低浓铀燃料组件。利用组件参数计算程序计算得到的 HFETR 燃料组件相关截面参数见表 1。

表 1 HFETR 燃料组件相关核参数

核素	物理量	数值
^{235}U	$\sigma_{a,235}\text{U} / \text{cm}^2$	441.19×10^{-24}
	$\sigma_{f,235}\text{U} / \text{cm}^2$	372.31×10^{-24}
^{137}Cs	$\gamma_{137}\text{Cs}$	6.092×10^{-2}
	$\lambda_{137}\text{Cs} / \text{s}^{-1}$	7.284×10^{-10}
	$\sigma_{\gamma,137}\text{Cs} / \text{cm}^2$	0.069×10^{-24}
^{133}I	$\gamma_{133}\text{I}$	6.624×10^{-2}
	$\lambda_{133}\text{I} / \text{s}^{-1}$	9.257×10^{-6}
^{133}Xe	$\lambda_{133}\text{Xe} / \text{s}^{-1}$	1.528×10^{-6}
^{133}Cs	$\sigma_{\gamma,133}\text{Cs} / \text{cm}^2$	44.10×10^{-24}
^{134}Cs	$\gamma_{134}\text{Cs}$	1.126×10^{-6}
	$\lambda_{134}\text{Cs} / \text{s}^{-1}$	1.066×10^{-8}
	$\sigma_{\gamma,134}\text{Cs} / \text{cm}^2$	93.77×10^{-24}

表 1 中，除微观截面与反应堆有关外，其余参数均为常数。

2.1 燃料组件中 ^{137}Cs 活度

当中子注量率分别为 $1 \times 10^{13} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $1 \times 10^{14} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 时，HFETR 燃料组件中 ^{137}Cs 活度的解析解和简化解随燃耗变化关系如图 2 所示。

由图 2 可知，在 2 种中子注量率下， ^{137}Cs 放射性活度的简化计算结果和解析计算结果符合很

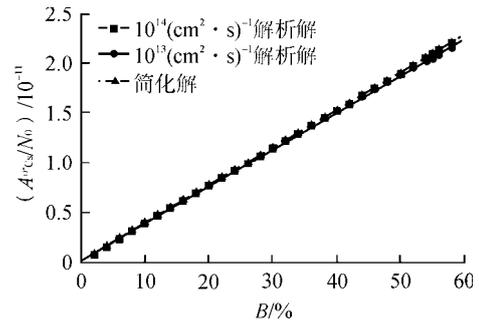


图 2 ^{137}Cs 放射性活度随燃耗变化关系比较
Fig. 2 Comparison between $A_{137}\text{Cs}$ and Burn-up

好，最大偏差分别为 0.29% 和 2.89%。

2.2 燃料组件中 ^{134}Cs 活度

中子注量率为 $1 \times 10^{13} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $1 \times 10^{14} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 时，燃料组件中 ^{134}Cs 活度的解析解和简化解随燃耗的变化情况示如图 3 所示。

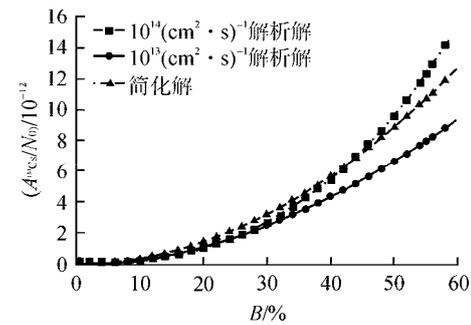


图 3 ^{134}Cs 放射性活度随燃耗变化比较
Fig. 3 Comparison between $A_{134}\text{Cs}$ and Burn-up

由图 3 可知，在 HFETR 燃料组件中，当中子注量率为 $1 \times 10^{13} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 时， ^{134}Cs 活度的简化计算与解析计算结果相差很大。在 $1 \times 10^{14} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 时， ^{134}Cs 活度的简化计算与解析计算结果符合得较好，最大偏差小于 7.93%；当 $B > 45\%$ 时， ^{134}Cs 活度的简化计算结果略大于解析计算结果， $B < 45\%$ 时，简化计算结果小于解析计算结果。

2.3 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 活度比值

在中子注量率为 $1 \times 10^{14} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 情况下，采用 ORIGEN2.0 程序、本文中的精确解及简化解计算模型，分别得到了 R_{Cs} 与燃料元件燃耗的关系曲线，见图 4。

由图 4 可知，ORIGEN2.0 计算结果和 R_{Cs} 的解析解相比偏差很大；简化解和 R_{Cs} 的解析解相比仍然具有较大的偏差。因此，对于 HFETR 燃

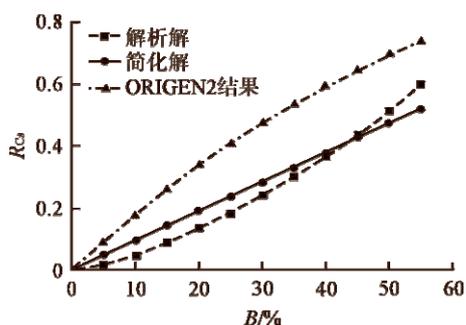


图4 R_{Cs} 随燃耗变化关系比较

Fig. 4 Comparison between R_{Cs} and Burn-up

料组件中的 R_{Cs} 来说仅能采用解析解进行计算。

3 结 论

(1) 本文建立的一回路冷却剂中 R_{Cs} 与燃耗关系的精确解数学模型, 对于铀裂变堆具有普遍的意义。

(2) 本文建立的一回路冷却剂中 R_{Cs} 与燃料组件燃耗之间关系的简化计算公式, 在 $1 \times 10^{14} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 水平时简化解和精确解符合较好。

(3) 对中子注量率达到 $1 \times 10^{13} (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 水平的反应堆, R_{Cs} 与燃料组件燃耗之间的关系必须用文中建立的精确解模型计算。

(4) 工程应用中, 只要通过水化学测量得到反应堆一回路中的 R_{Cs} , 就可由本文建立的精确解模型计算得到破损燃料组件的燃耗值, 从而达到快速定位破损燃料组件的目的。

参考文献:

- [1] 杨磊, 徐少华. 基于剂量监测的船用反应堆破损燃料元件燃耗分析[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(8): 974-978.
- [2] 李兰, 杨洪润. 压水堆核电站燃料元件破损诊断方法[J]. 核动力工程, 2008, 29(8): 135-139.
- [3] Akihiro SASAHARA. Neutron and gamma ray source evaluation of LWR high burn-up UO_2 and MOX spen[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2004, 41: 448-456.

(责任编辑: 张明军)