

文章编号: 0258-0926(2018)03-0051-05; doi:10.13832/j.jnpe.2018.03.0051

基于二次辐照的 CMRR 乏燃料组件 燃耗测量技术研究

窦海峰, 李润东*, 朱世雷, 王俊伟, 司开拓, 袁 姝, 杨 鑫, 冷 军

中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川绵阳, 621900

摘要: 由于研究堆堆芯装载灵活多变、运行模式复杂, 传统的燃耗无损检测技术精度不高。基于乏燃料二次辐照的燃耗测量技术具有不依赖于乏燃料组件的运行历史数据、测量精度较高的优点。本文研究了该方法中裂变产物来源甄别技术, 建立了燃耗测量原理装置, 分析了装置相对测量效率, 完成了中国绵阳研究堆 (CMRR) 典型乏燃料组件的燃耗测量实验。测量结果表明, 对于燃耗为 15% 左右的乏燃料组件, ^{235}U 质量的测量不确定度好于 5%。

关键词: 燃耗无损检测; 乏燃料二次辐照; 中国绵阳研究堆 (CMRR)

中图分类号: TL329.2 文献标志码: A

Determination of Fissile Nuclide ^{235}U Content in Re-Irradiated Spent Fuel Assemble with Nondestructive Assay

Dou Haifeng, Li Rundong*, Zhu Shilei, Wang Junwei,
Si Kaituo, Yuan Shu, Yang Xin, Leng Jun

Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan, 621900, China

Abstract: Adequate knowledge of burnup levels of fuel elements within a research reactor is of great importance for its safe operation. The traditional nondestructive assay of burnup is to measure the radiation emitted either as neutrons or gamma rays. But the results are not satisfactory in accuracy because of variability of core loading and operation history. This paper presents a method for the experimental determination of fissile nuclide ^{235}U content in Spent Fuel Assemblies (SFAs). The method is based on re-irradiation of SFAs and measurement of the delayed gamma-rays emitted by the generated fission products. The most important advantage of this method is its independence of SFA irradiation history. This paper emphasizes how to discriminate the resource of characteristic gamma ray and introduces the experimental device. A SFA with about 15% burnup unloading from CMRR is measured by the above method and the uncertainty is less than 5%.

Key words: Nondestructive assay of burnup, Re-irradiation of SFAs, CMRR

0 引言

准确测量燃料组件燃耗对保障反应堆的安全运行、合理设计堆芯换料方案、经济有效的利用燃料组件都具有重要的意义。传统的燃耗无损测量技术^[1-4]主要适用于核电站这类运行模式固定的反应堆, 由于研究堆堆芯装载灵活多变、运行模式复杂, 传统技术测量精度不高。

本文在中国绵阳研究堆 (CMRR) 上开展了

基于乏燃料二次辐照的乏燃料组件燃耗无损检测技术研究^[5-6], 设计、搭建了 CMRR 燃耗测量装置, 对堆芯卸载出的燃耗理论分析值约 15% 的燃料组件开展了测量实验, ^{235}U 核素的质量测量结果与理论结果的偏差约 2.4%。

1 基本原理

基于乏燃料二次辐照的研究堆乏燃料组件燃

收稿日期: 2017-04-11; 修回日期: 2017-10-12

作者简介: 窦海峰 (1979—), 男, 硕士, 核能科学与工程专业

*通信作者: 李润东 (1969—), 男, E-mail: amdom@sohu.com

中子注量率, $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

根据多种测量放射性射线, 利用最小二乘法得到:

$$R^2 = \sum_{i=1}^n (A_i - \varepsilon_i \lambda_i \varphi \sigma_{f5} N_5 Y_{5i} - \varepsilon_i \lambda_i \varphi \sigma_{f9} N_9 Y_{9i})^2 \quad (3)$$

$$\text{令 } a = \varphi \sigma_{f5} N_5, b = \varphi \sigma_{f9} N_9$$

可获得下述方程组, 即可求得 a, b 的值, 进而获得 N_5/N_9 , 即得到了组件中 ^{235}U 和 ^{239}Pu 的质量比值。

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^n A_i \varepsilon_i \lambda_i Y_{5i} = \sum_{i=1}^n \varepsilon_i^2 \lambda_i^2 Y_{5i}^2 a + \sum_{i=1}^n \varepsilon_i^2 \lambda_i^2 Y_{9i} Y_{5i} b \\ \sum_{i=1}^n A_i \varepsilon_i \lambda_i Y_{9i} = \sum_{i=1}^n \varepsilon_i^2 \lambda_i^2 Y_{5i} Y_{9i} a + \sum_{i=1}^n \varepsilon_i^2 \lambda_i^2 Y_{9i}^2 b \end{cases} \quad (4)$$

求解上述表达式需要标定不同能量 γ 射线的探测效率, 而由于系统几何的复杂性, 很难实现实验标定, 因此考虑采用相对效率的模拟分析。

影响探测系统对燃料组件特定能量的 γ 射线的测量效率的因素可以分为三类。第一类是由各种材料对 γ 射线的吸收引起的, 可以通过理论分析获得; 第二类为几何效应, 与 γ 射线能量无关, 可以认为相对效率相同; 第三类是探测器自身的探测效率, 可以通过理论建模或者标准源刻度获得。

2.2.1 衰减效应 辐照后燃料内的裂变产物释放的 γ 射线在穿过燃料板时会持续衰减。所以在计算乏燃料 γ 射线活度测量效率时必须考虑其衰减效应。

首先修正的是 γ 射线穿过产地燃料的衰减 (自衰减)。在测量过程中, 探测器到燃料板的距离很长, 且固定不变, 假定燃料板测量点厚度方向裂变产物核素分布均匀, 自衰减效应修正可以表述为:

$$k_1 = \frac{\int_0^s e^{-\mu s} ds}{s} = \frac{1 - e^{-\mu s}}{\mu s} \quad (5)$$

式中, s 为燃料板芯体厚度, cm ; μ 为特定能量的 γ 射线、燃料芯体材料的线性衰减系数, cm^{-1} 。

其次修正针对 γ 射线由产生地到达探测器所经燃料板及板间水隙, 因为燃料组件的燃料板尺寸一样、辐照环境一致, 第 j 个燃料板释放的 γ 射线穿透所有燃料板, 衰减系数为:

$$k^{N-j} = (e^{-2\mu_{Al}a} \cdot e^{-\mu_a b} \cdot e^{-\mu s})^{N-j} \cdot e^{-\mu_{Al}a} \quad (6)$$

式中, μ_{Al} 铝的线性衰减系数, cm^{-1} ; μ_a 为水的线性衰减系数, cm^{-1} ; N 为组件燃料板总数; a 为铝包壳厚度, cm ; b 为 2 个连续燃料板之间水隙间距, cm 。

另外的修正针对最上方的燃料板与准直管底面之间的水隙、铝窗及准直管内空气。该修正系数为:

$$k_2 = e^{-\mu_a C} \cdot e^{-2\mu_{Al}c} \cdot e^{-\mu_{at}l} \quad (7)$$

式中, c 为铝窗厚度; C 为最上方燃料板与准直管底面的距离; μ_{at} 为空气的线性衰减系数; l 为准直管空腔长度。

理论分析获得不同能量的 γ 射线相对穿透效率结果见表 1。

表 1 相对效率计算结果
Table 1 Calculation Results of Relative Detection Efficiency

能量 /keV	探测效率理论结果	衰减效率	相对效率	相对效率拟合结果	拟合值偏差/%
200	0.002423	4.57×10^{-7}	1.77×10^{-6}	—	—
300	0.001441	8.55×10^{-4}	1.97×10^{-3}	0.001931	1.73
400	0.000991	9.13×10^{-3}	1.44×10^{-2}	0.014537	-0.71
500	0.00075	2.63×10^{-2}	3.15×10^{-2}	0.031608	-0.38
600	0.000605	4.73×10^{-2}	4.56×10^{-2}	0.045343	0.63
700	0.000507	6.87×10^{-2}	5.56×10^{-2}	0.055345	0.48
800	0.000437	8.93×10^{-2}	6.23×10^{-2}	0.06233	-0.11
900	0.000384	1.09×10^{-1}	6.65×10^{-2}	0.067031	-0.74
1000	0.000346	1.27×10^{-1}	6.99×10^{-2}	0.070027	-0.13
1100	0.000313	1.44×10^{-1}	7.18×10^{-2}	0.071749	0.13
1200	0.000286	1.59×10^{-1}	7.26×10^{-2}	0.072512	0.13
1300	0.000263	1.73×10^{-1}	7.27×10^{-2}	0.072548	0.18
1400	0.000244	1.86×10^{-1}	7.22×10^{-2}	0.072029	0.18
1500	0.000226	1.97×10^{-1}	7.09×10^{-2}	0.071084	-0.19
1800	0.000186	2.24×10^{-1}	6.65×10^{-2}	0.06656	-0.04

2.2.2 探测器的探测效率 HPGe 探测器对不同能量 γ 射线的探测效率可以通过 Monte Carlo 程序模拟获得^[7-8]。本文采用 MCNP-4C^[9]程序模拟光子和电子耦合输运, 利用程序的脉冲幅度分布卡记录 γ 射线在 HPGe 晶体中的脉冲能量分布, 从而求得模拟效率值。MCNP-4C 程序对脉冲能量分布进行高斯展宽, 能峰半高宽为:

$$E_{\text{FWHM}} = a + b\sqrt{E_\gamma} + cE_\gamma^2 \quad (8)$$

式中, E_γ 为入射 γ 射线能量, MeV; 通过拟合实验测量值 E_{FWHM} , 可得系数值 $a=0.000398407$ MeV, $b=0.000603895$ MeV^{0.5}, $c=1.51655$ 。

本实验采用便携式 HPGe 谱仪, 探测器型号 GEM-S7025P4-RB-SMP, 计算模型参数见图 2。

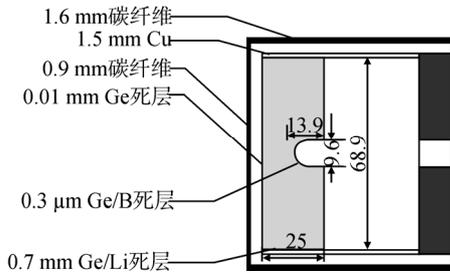


图 2 HPGe 探测器结构参数
Fig. 2 Structural Parameter of HPGe Detector

模拟分析假定理想的各向同性点源, 位于距离探头 25 cm 中心位置, 能量 1332.49 keV 理想点源的相对效率模拟值为 20.865%, 标准源实验刻度值为 21%, 吻合很好, 验证了 MC 模拟的可靠性。

探测器探测效率模拟结果及相对效率拟合公式如下:

$$\varepsilon_r = 1.1333749 - 0.1285276 \times \ln(E) - 199.51717 / E + 24003.417 / E^2$$

3 实验结果及讨论

3.1 实验结果

乏燃料组件燃耗测量对象为编号 MS0723 的乏燃料组件, 采用 MS0722 作为测量标准样。实验中, 沿组件长度方向 75 mm 一个测量点, 逐点测量。测量结果如图 3。

分析测量结果, 裂变产物活度较高的主要为 ⁹⁵Zr 和 ¹⁴⁰La, 考虑到实验测量时间修正因素, ¹⁴⁰La 衰变链相对较复杂, 因此选择 ⁹⁵Zr 作为测量组件燃耗的特征裂变产物目标核素。

辐照中子注量率监测采用经典的活化法相对测量技术, 测量结果如图 4。

根据表达式(1), 可以计算乏燃料组件 MS723 内 ²³⁵U 含量, 其中辐照修正因子 $\beta = 0.99$, 数据分析考虑了实验测量时间修正因素。结果如表 2 所示。

实验结果表明, 测量结果与理论分析值之间的相对偏差仅 2.4%, 吻合较好。

实验中, 各因素对实验结果不确定度的贡献分析如下表 3。

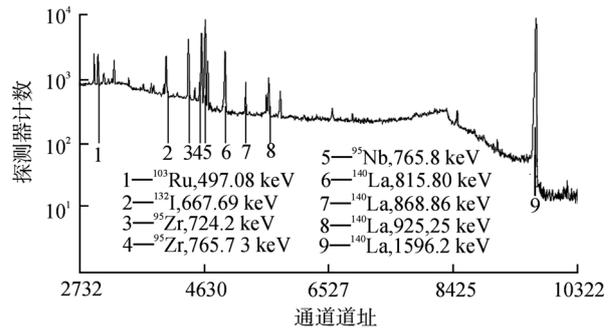
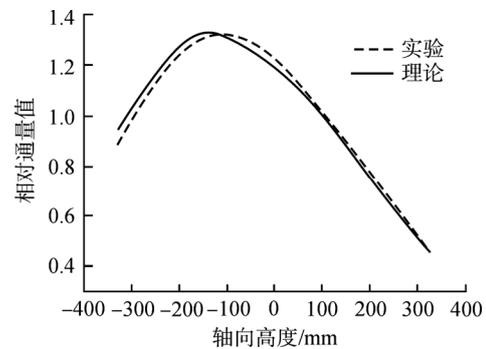
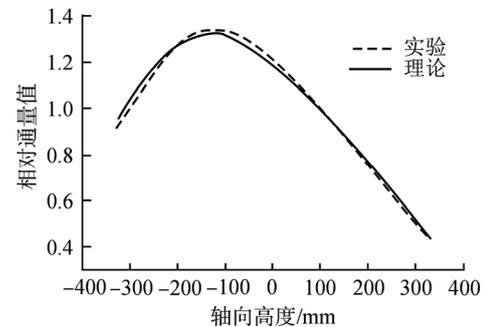


图 3 典型测量结果 (MS0722 组件顶部开始 75 mm 位置处)

Fig. 3 Representative Measurement Results (75 mm from Top of MS0722 Fuel Assembly)



a 组件 MS0723



b 组件 MS0722

图 4 组件 MS0723、MS0722 中子注量率轴向分布测量与计算值

Fig. 4 Measurement and Calculation Results of Axial Neutron Flux Distribution of Fuel Assembly MS0722 and MS0723

表 2 测量结果与理论结果

Table 2 Calculation and Measurement Results

MS0723内 ²³⁵ U质量/g		不确定度 (1σ) /%	相对偏差/%
测量结果	理论结果		
346.855	338.625	4.25	2.4

3.2 实验结果讨论

实验测量的 ²³⁵U 含量大于理论分析值, 原因在于燃料内存在大量的可裂变核素 ²³⁸U, 虽然其

表 3 测量不确定度来源分析
Table 3 Analysis of Measurement Uncertainty Resource

不确定度来源	不确定度 (1σ) /%	子项	不确定度 (1σ) /%
基准组件 ²³⁵ U 质量	0.1	—	—
裂变产物特征 γ 活度	1	统计计数	1
		探测效率	相对测量
中子注量率监测	4.1	活化片质量	1.5
		测量定位	2
		测量扰动	0.5
		测量系统	3
统计计数	1		
修正因子 β	0.5		
测量组件 ²³⁵ U 质量	4.25		

裂变截面很小，但是由于核素含量较大，对测量 γ 谱得到的裂变产物有一定贡献。采用 MC 模拟计算，根据 CMRR 堆芯中子能谱修正 ORIGEN 截面库，模拟分析其中 ²³⁸U 裂变产物的贡献。由于乏燃料组件内 ²³⁵U 质量未知，模拟分析时选取无燃耗时 ²³⁵U 和 ²³⁸U 的质量比，该修正方法 ²³⁸U 贡献比例较实际小，修正后会减小实验值与理论值的偏差，同时不会引入额外偏差。程序模拟计算结果 ²³⁸U 裂变产物的贡献大约 0.5%。考虑修正后实验结果见表 4。

表 4 修正后测量结果与理论结果比较
Table 4 Comparison of Calculation Results and Modified Experiment Results

MS0723内 ²³⁵ U质量/g		不确定度 (1σ) /%	相对偏差/%
测量结果	理论结果		
342.84	338.625	4.25	1.24

4 结论

基于二次辐照的板型燃料组件燃耗测量技术方案，不依赖于燃料组件的运行历史数据，避免了传统方法需要研究堆运行数据进行复杂修正的难点，提高了测量精度。值得注意的是，此方法

直接给出乏燃料组件中 ²³⁵U 的含量，而非释能燃耗 [MW·d/t(U)]。依据测量要求，研制了板型燃料组件燃耗测量原型装置，获得了典型乏燃料组件的测量实验结果，燃耗在 15% 左右的燃料组件中 ²³⁵U 质量测量不确定度小于 5%，与理论分析的偏差仅 2.4%，考虑了理论修正之后仅 1.2%，从而证明了该技术能够获得可靠的乏燃料组件燃耗测量数据，为研究堆的安全运行和核材料衡算管理提供了重要的技术支持。

参考文献：

- [1] Neuber J C, Johann H G, Conde J M. Double contingency principle and prevention of misloading events[C]. Proceedings of the iaea technical meeting on advances in applications of burnup credit to enhance spent fuel transportation, storage, reprocessing and disposition, August 29–September 2, 2005, London, U.K., IAEA-TECDOC-1547, ISBN 92-0-103307-9, Date of Issue: June 21, 2007.
- [2] 李桃生, 方栋. 核燃料的燃耗测量方法综述[J]. 核电子学与探测技术, 2005, 25(6): 852-857.
- [3] 杨历军. 非破坏性燃耗测量方法综述[J]. 核电子学与探测技术, 2011, 31(2): 148-152.
- [4] U.S. NRC. Review of information for spent nuclear fuel burnup confirmation [R]. Oak Ridge National Laboratory, 2002.
- [5] Bushuev A V, Kozhin A F, Li Zhun'dun, et al. Non-destructive assay of nuclide composition in spent fuel assemblies from a research reactor by repeat irradiation and γ-spectrometric measurement. Journal of Nuclear Materials Management[J]. 2008, 35(2), 12-18
- [6] 李润东, Bushyev A V, Korin A F. 研究堆乏燃料组件中 ²³⁵U 含量和燃耗的测定[J]. 核动力工程, 2009, 30(1): 56-59.
- [7] Berndt R, Mortreau P. Monte Carlo modelling of a N-type coaxial high purity germanium detector[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 2012, 694: 341-347.
- [8] Hau I D, Russ W R, Bronson F. MCNP HPGe detector benchmark with previously validated Cyltran model[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009. 67: 711-715.
- [9] Briesmeister J F(Ed.), MCNP—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version4C, LA-13709-M[R]. Los Alamos National Laboratory, 1991.

(责任编辑：张祚豪)