

# 压水动力反应堆燃料元件 安全性的监测与分析

王月兴 马晓林 云昌全 曲善奎\*

(海军医学研究所, 上海, 200433)

为了对1座压水型动力反应堆作燃料元件破损的现场监测, 计算了一些裂变产物的主要 $\gamma$ 光子用 $\phi 76.2 \text{ mm} \times 76.2 \text{ mm}$  NaI探测器测量时产生的光电峰相对计数率随反应堆启动不同时间的变化, 并作了监测中的干扰因素分析。计算和分析结果表明: 在元件安全性监测中, 最适合选择的 $\gamma$ 光子能量是220.9 keV ( $^{86}\text{Kr}$ )、402.7 keV ( $^{87}\text{Kr}$ )、196.3 keV ( $^{88}\text{Kr}$ )、529.8 keV ( $^{133}\text{I}$ )和81 keV ( $^{133}\text{Xe}$ )。在监测中存在的主要干扰因素是高能 $\gamma$ 射线产生的湮没辐射、NaI探测器周围Pb屏蔽上产生的75 keV X射线及由 $^{19}\text{O}$ 和 $^{16}\text{N}$ 产生的 $\gamma$ 射线。在1座反应堆2次事故排除的元件安全性监测中, 分析方法成功地得到了应用。

**关键词** 反应堆 燃料元件破损探测 安全分析 NaI探测器 干扰因素

核动力堆正式投入运行或活性区换料后, 特别是在对燃料元件安全性有影响的意外故障排除过程中, 均需对堆芯元件的安全性作实时监测与分析。监测与分析的正确性和及时性对发现问题、采取措施以防止发生重大事故, 或对异常现象作出正确判断、避免误判造成的损失, 确保堆的安全运行至关重要。

元件安全性监测通常是监测反应堆冷却水回路中的裂变产物。基本方法有3种: 监测进入水中裂变产物的总 $\gamma$ 放射性, 即“总 $\gamma$ 法”; 监测某些裂变产物(如 $^{137}\text{I}$ 、 $^{87}\text{Br}$ 等)衰变时放出的缓发中子; 收集裂变气体作 $\beta$ 放射性分析。此外, 还可对回路水作取样分析。“总 $\gamma$ 法”用作对比监测方便直观, 但欠灵敏; 缓发中子法较为灵敏、简便。这2种方法在复杂条件下可能会引起误断。回路水取样分析方法可比较灵敏地确定元件是否有破损, 但它不能作在线实时分析。为此, 本文将研究对1座压水型动力堆元件安全性的现场监测方法, 并与上述3种方法的监测结果作一对比。

## 1 方法与原理

采用 $\phi 76.2 \text{ mm} \times 76.2 \text{ mm}$  NaI探测器/2048道 $\gamma$ 谱仪(美国CANBERRA公司产)对反应堆主回路水中的裂变产物进行现场监测。探测器的分辨率对 $^{137}\text{Cs}$ ( $E_{\gamma} = 661.6 \text{ keV}$ )及 $^{60}\text{Co}$

\* 海军某部修理部

收稿日期: 1995-05-08 收到修改稿日期: 1995-06-23

( $E_\gamma = 1332 \text{ keV}$ )分别为7%及5.4%。

元件破损的现场监测受许多因素的影响与制约。燃料包壳破损后释放并进入回路水的裂变产物的数量与反应堆的运行历史、破损后的观察时刻以及裂变产物的种类等多项因素有关。裂变产物 $\gamma$ 能谱的复杂性、回路水中的中子活化产物干扰等亦需要在监测中予以考虑。

### 1.1 放射性监测核素的选择

为监测目的而选择的裂变产物其发射的目标光子被探测系统记录的全能峰计数率应该最大。这与它的裂变产额、 $\gamma$ 分支比、半衰期、全能峰探测效率、从元件包壳破损处进入反应堆一回路水中的份额等诸多因素有关。此外,对所选裂变产物的先驱核的影响亦需予以考虑。通常情况下,只需考虑比监测核原子序数小1的母核的累计产额的影响。

假设元件破损时裂变产物*i*进入回路水中后*t*时刻的浓度为 $N_i(t)$ ,比裂变产物*i*原子序数小1的同量异位素*m*的浓度为 $N_m(t)$ ,*m*的同核异能素浓度为 $N_x(t)$ ,则可得到如下关系式:

$$\left. \begin{aligned} \frac{dN_i(t)}{dt} &= \frac{1}{V}\varphi\sigma_{\text{f}}N_5V_eMF\epsilon_i + \lambda_m p_m N_m(t) - (\lambda_i + \sigma_i\varphi + E_i)N_i(t) \\ \frac{dN_m(t)}{dt} &= \frac{1}{V}\varphi\sigma_{\text{f}}N_5V_eMF\epsilon_m + \lambda_x p_x N_x(t) - (\lambda_m + \sigma_m\varphi + E_m)N_m(t) \\ \frac{dN_x(t)}{dt} &= \frac{1}{V}\varphi\sigma_{\text{f}}N_5V_eMF\epsilon_x - (\lambda_x + \sigma_x\varphi + E_x)N_x \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中: $V$ 为一回路水的总体积( $\text{cm}^3$ ); $\varphi$ 为平均中子密度( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ); $\sigma_{\text{f}}$ 和 $N_5$ 分别为 $^{235}\text{U}$ 的裂变截面( $\text{b}$ ,  $1\text{b} = 10^{-24}\text{cm}^2$ )及单位体积燃料内 $^{235}\text{U}$ 的原子数( $\text{cm}^{-3}$ ); $V_e$ 为1根元件的燃料体积( $\text{cm}^3$ ); $M$ 为破损的元件数;下注标*i*、*m*、*x*分别代表核素*i*、母体核素*m*及其同核异能素*x*;  $F$ 为裂变产额; $\epsilon$ 为元件破损时裂变产物能进入水中的份额; $\sigma$ 为中子吸收截面( $\text{b}$ ); $\lambda$ 为衰变常数( $\text{s}^{-1}$ ); $E$ 是净化或除气系统对回路水内杂质的清除率( $\text{s}^{-1}$ ); $p_m$ 是元件内母体核素以2种方式对水中 $N_i(t)$ 贡献的修正系数。元件内裂变生成的母体核素*m*直接进入水中的份额为 $\epsilon_m$ ,其余在衰变成核素*i*后仍以 $(\epsilon_i - \epsilon_m)$ 比例进入水中,同时,进入水中的核素*m*在衰变成核素*i*前受到净化系统影响。为此, $p_m$ 可表示成 $p_m = 1 + \frac{\epsilon_i - \epsilon_m}{\epsilon_m} \cdot \frac{\lambda_m + \sigma_m\varphi + E_m}{\lambda_m + \sigma_m\varphi}$ ;类似有, $p_x = 1 + \frac{\epsilon_m - \epsilon_x}{\epsilon_x} \cdot \frac{\lambda_x + \sigma_x\varphi + E_x}{\lambda_x + \sigma_x\varphi}$ 。

由方程组(1)可得到在监测点探测系统对核素*i*发出的目标 $\gamma$ 光子全能峰计数率 $A_i(t)$ 的表达式为:

$$A_i(t) = B\lambda_i R_i p_i e^{-\lambda_i t} \quad (2)$$

这里: $B$ 为比例系数; $R_i$ 及 $p_i$ 分别是目标 $\gamma$ 光子的分支比及全能峰探测效率; $t_c$ 是核素*i*从元件包壳破损处随循环水到达监测点的时间间隔(见1.2.1节)。

若令 $K = \lambda_m p_m$ ,  $b_i = \lambda_i + \sigma_i\varphi + E_i$ ,  $b_m = \lambda_m + \sigma_m\varphi + E_m$ ,  $b_x = \lambda_x + \sigma_x\varphi + E_x$ ,则由方程组(1)及式(2)得到下列关系式:

$$A_i(t) = B\lambda_i R_i p_i e^{-\lambda_i t} [a_1 - a_2 e^{-b_i t} - a_3 e^{-b_m t} - (a_1 - a_2 - a_3) e^{-b_x t}] \quad (3)$$

式中: $a_1 = a(F\epsilon_i b_m b_x + KF_m \epsilon_m b_x + K\lambda_x p_x F_x \epsilon_x)/(b b_m b_x)$ ,  $a_2 = aK\lambda_x p_x F_x \epsilon_x/[b_x(b_i - b_x)(b_m - b_x)]$ ,  $a_3 = aK[F_m \epsilon_m b_m - F_m \epsilon_m b_x - \lambda_x p_x F_x \epsilon_x]/[b_m(b_i - b_m)(b_m - b_x)]$ ,  $a = \frac{1}{V}\varphi\sigma_{\text{f}}N_5V_eM$ 。

元件破损可能有 2 种情况:一是反应堆启动前即已破损,裂变产物已从元件破损处部分进入一回路水中,它们在水中的浓度受净化系统的影响。计算出的  $A_i(t)$  随观察时间  $t$  的变化示于图 1a;二是在提升功率后某个时刻  $t$  破损,裂变产物先在元件内积聚,未受净化系统的影响(相当于方程组(1)中的  $E_j=0, j=i, m, x$ ),元件破损时突然进入水中,此时的  $A_i(t)$  的变化示于图 1b。图 1a 和 1b 中各裂变产物相对变化规律的差异主要是净化(或除气)系统影响不同所致,裂变产物半衰期越长,影响越大。核素  $i$  及其母体核素的裂变产额与累计产额、分支产额、分支比及光峰效率是影响  $A_i(t)$  相对大小的主要因素。

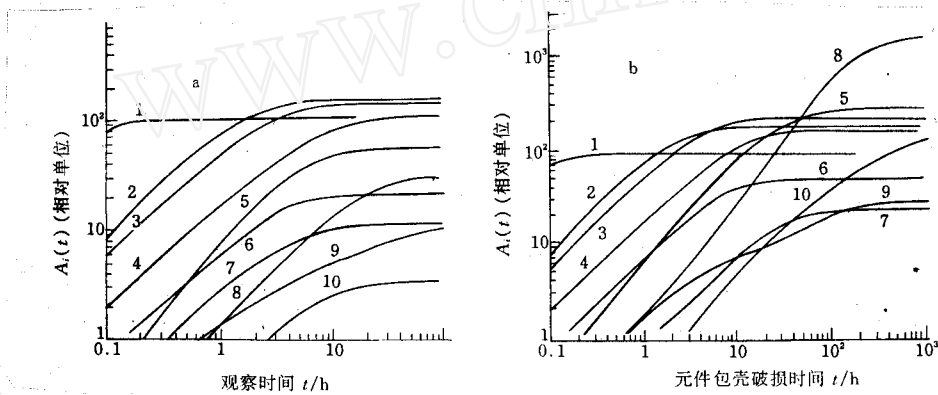


图 1  $A_i(t)$  随时间  $t$  的变化

Fig. 1 The variations of  $A_i(t)$  with time  $t$

a——反应堆启动前元件已破损;b——提升功率后元件破损

$E_\gamma(\text{keV})$ : 1——220.9( $^{89}\text{Kr}$ ); 2——420.7( $^{87}\text{Kr}$ ); 3——196.3( $^{88}\text{Kr}$ ); 4——249.6( $^{135}\text{Xe}$ ); 5——529.8( $^{133}\text{I}$ );  
6——151.3( $^{85}\text{Kr}^m$ ); 7——526.5( $^{135}\text{I}$ ); 8——81( $^{133}\text{Xe}$ ); 9——522.6( $^{132}\text{I}$ ); 10——364.5( $^{131}\text{I}$ )

如上所述,在实时监测中,被选裂变产物的目标光子应使探测系统最易迅速地被观察到,即  $A_i(t)$  最大。由图 1a 和 1b 可见,不同裂变产物的  $A_i(t)$  相差较大,重点观察的主要  $\gamma$  光子能量(keV)应是:220.9( $^{89}\text{Kr}$ )、196.3( $^{88}\text{Kr}$ )、402.7( $^{87}\text{Kr}$ )、529.8( $^{133}\text{I}$ )及 81( $^{133}\text{Xe}$ )。此外,在监测和分析中应注意这些核素的  $A_i(t)$  的相对大小与时间的关系。

### 1.2 监测中的干扰因素

1.2.1 回路水中的感生放射性 中子与水中的氧通过  $^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$  反应产生  $^{19}\text{O}$  ( $T_{1/2} = 26.9 \text{ s}$ , 主要  $\gamma$  能量 197.4 keV), 由  $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$  反应产生  $^{16}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 7.13 \text{ s}$ , 主  $\gamma$  能量 6134 keV), 它们对监测将产生严重干扰。 $^{19}\text{O}$  的主要  $\gamma$  光子能量与  $^{88}\text{Kr}$  的 196.3 keV  $\gamma$  光子能量十分接近,  $^{16}\text{N}$  的 6134 keV 光子不仅会增加监测的散射本底, 在探测器包壳或监测点附近结构材料中还会因电子对效应产生 511 keV 的湮灭辐射光子<sup>[1]</sup>, 其能量与  $^{132}\text{I}$  的 526.5 keV 及  $^{133}\text{I}$  的 529.8 keV 光子能量接近, 将对监测造成很大干扰。为降低干扰, 本工作中利用  $^{19}\text{O}$  与  $^{16}\text{N}$  半衰期较短的特点, 将循环水从反应堆出口到监测点的时间  $t_c$  延迟至约 120 s。

1.2.2 中子活化产物 压水堆回路水中的中子活化放射性产物主要为  $^{60}\text{Co}$ <sup>[2]</sup>, 其次为  $^{56}\text{Mn}$ 、 $^{24}\text{Na}$ 、 $^{41}\text{Ar}$  等。放射性活化产物的  $\gamma$  光子能谱很复杂, 主要分布在 800 - 2000 keV 能区。为避免误判和干扰, 监测目标  $\gamma$  光子不应选择在该区间。此外, 对能量大于 1.022 MeV 的众多  $\gamma$

光子产生的 511 keV 的湮灭光子的干扰,亦应予以注意。

1.2.3 铅屏蔽 X 射线的影响 为降低监测点环境  $\gamma$  本底的影响,通常用 Pb 层对 NaI 探测器作屏蔽。这时,高能  $\gamma$  射线作用于 Pb 产生的 75 keV 特征 X 射线与元件包壳破损时进入水中放射性最强的裂变产物  $^{133}\text{Xe}$  81 keV 的光子能量相近。为避免错误观察,最好不用 Pb 屏蔽探测器,或采用其它技术消除 Pb 的 X 射线影响。

## 2 结果与讨论

在 1 座压水型动力反应堆的事故排除工作中,采用上述分析方法进行了 2 次为期 10 d 的元件安全性监测。结果如下。

1) 监测中获取的典型 NaI  $\gamma$  谱图示于图 2。图 2 中曲线 1 为环境本底,曲线 2 为启动运行后数分钟即能观察到并在数小时后逐渐趋向稳定的  $\gamma$  谱。监测谱分析结果表明:除  $^{60}\text{Co}$  外,还有  $^{24}\text{Na}$ 、 $^{56}\text{Mn}$  及  $^{41}\text{Ar}$  等中子活化产物。现场分析结果与回路水取样分析结果一致。这时,总  $\gamma$  监测值处于正常范围,用置于石蜡柱内的  $^3\text{He}$  计数管作探测器的缓发中子监测系统的计数很少。以上结果表明,元件无破损,反应堆运行正常。

2) 对异常情况的分析。在 1 次功率稳定运行时出现了图 2 中曲线 3 所示的异常  $\gamma$  谱。在 80、197、510-530 keV 能区突然出现异常峰,放射性计数急剧上升。这些能点和能区是几种主要裂变产物的目标  $\gamma$  监测区,即  $^{133}\text{Xe}$  的 81 keV,  $^{88}\text{Kr}$  的 196.3 keV,  $^{132}\text{I}$  的 522.6 keV,  $^{135}\text{I}$  的 526.5 keV 以及  $^{133}\text{I}$  的 529.8 keV,因而疑有发生元件包壳破损的可能。同时,独立监测的总  $\gamma$  强度增加了约 3 倍,而原基本无计数的缓发中子测量系统的计数突然显著增加。

运用上述计算结果与分析方法,对这一异常现象迅速作出了元件无破损的准确判断。其依据是,此时,反应堆功率平稳运行已 3 d 以上,由图 1b 可知,若发生了元件破损,81 keV 峰应高于 196.3 keV 峰,在其它目标监测区——402.7 keV ( $^{87}\text{Kr}$ )、220.9 keV ( $^{89}\text{Kr}$ ) 及 249.6 keV ( $^{135}\text{Xe}$ ) 也应同时出现光电峰,但  $\gamma$  谱并非如此。若由主回路循环水流量突变所致,则由于回路水从堆活性区到达监测点的时间延迟缩短,致使监测点有较多未衰变的  $^{19}\text{O}$  及  $^{16}\text{N}$ ,这不仅将在  $\gamma$  谱上出现 197.4 keV 峰,而且  $^{16}\text{N}$  的高能  $\gamma$  射线在 Pb 屏蔽上将产生大量 75 keV X 射线及在周围结构材料上生成 511 keV 的湮灭光子,从而必将导致在 3 个目标监测能区同时出现上述现象。这也是总  $\gamma$  监测值突增的原因。显然,上述现象并非因元件破损而是由水流量突变所致。这一判断为即时核查的回路水主泵流量率因故突增 80% 所证实。此后,随着流量率的复原, $\gamma$  谱及总  $\gamma$  与缓发中子计数均逐渐正常。

3) 水流量突增导致缓发中子计数显著的原因是  $^2\text{H}$  核的  $(\gamma, n)$  反应产生光中子所致。水

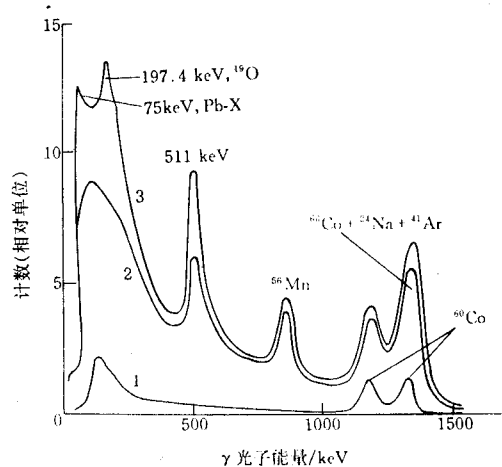


图 2 反应堆主回路水监测  $\gamma$  谱图

Fig. 2 Gamma spectra from cooling water in primary loop

1——本底谱;2——正常谱;3——异常谱(水流量突增)

流量剧增时,有相当量的 $^{16}\text{N}$ 到达监测点, $^{16}\text{N}$ 的6134 keV  $\gamma$ 射线能量远超过 $^2\text{H}$ 的光核反应阈值2230 keV,足以产生光中子而引起显著计数。这一实践为完善缓发中子监测技术提供了有益启示。

4) 各裂变产物 $A_i(t)$ 的相对大小与许多参数有关。计算中除全能峰探测效率 $p_i$ 由实验取得外,对于惰性气体、卤素及碲的 $\epsilon$ 值,假设其相对比例为1:0.33:0.2。文献[3]报道了压水堆运行后堆内裂变产物的累积值。据此对发生元件破损时图1中所述各裂变产物的 $A_i(t)$ 作了计算。结果表明,除 $^{89}\text{Kr}$ 文献[3]中未列出数据外,前6种核素 $A_i(t)$ 的相对大小次序为 $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{133}\text{I}$ 、 $^{135}\text{Xe}$ 、 $^{88}\text{Kr}$ 、 $^{131}\text{I}$ 和 $^{87}\text{Kr}$ ,而本文的计算结果,除 $^{135}\text{Xe}$ 外,其余核素的次序与此一致(图1b平衡态)。 $^{135}\text{Xe}$ 的吸收截面很大,其在堆内的累积与堆内平均中子通量水平密切相关。如果将本文计算中的 $\phi$ 假设值降低50%,则 $A_i(t)$ 的次序与上述次序完全一致。这对本文给出的计算方法的可靠性是1个间接证实。

本工作是在核工业总公司赵仁凯院士,海军某部焦增庚总工程师等专家提议及支持下进行的,在此特致衷心谢忱。

### 参 考 文 献

- 1 CE克劳塞梅尔著. 应用 $\gamma$ 射线能谱学. Γ亚当斯, R达姆斯修订, 高物等译. 北京:原子能出版社, 1977. 21.
- 2 Mangeno JJ, Steele JM, Betschart JV. Environmental Monitoring and Disposal of Radioactive Wastes From US Naval Nuclear-Powered Ships and Their Support Facilities: Report NT-91-1. 1991.
- 3 El-Hinawi EE. Nuclear Energy and the Environment. Oxford: Pergamon Press, 1980. 106.

## MONITORING AND ANALYSIS OF FUEL ELEMENT SAFETY FOR THE PRESSURIZED-WATER REACTOR

Wang Yuexing Ma Xiaolin Yum Changquan Qu Shangkui  
(The Naval Medical Research Institute, Shanghai, 200433)

### ABSTRACT

The change of the relative counting rates of the photopeak detected by using  $\phi 76.2 \text{ mm} \times 76.2 \text{ mm}$  NaI detector from certain fission product with operation time of reactor is calculated for the real-time detection of fuel element rupture. The main factors of interfering with element rupture detection are also analyzed. The calculated and analyzed results show that optimum gamma energy for element safety monitoring are 220.9 keV ( $^{89}\text{Kr}$ ), 402.7 keV ( $^{87}\text{Kr}$ ), 196.3 keV ( $^{88}\text{Kr}$ ), 529.8 keV ( $^{133}\text{I}$ ) and 81 keV ( $^{133}\text{Xe}$ ), respectively. The interference factors existing in the monitoring process are annihilation radiation by high energy gamma rays, 75 keV X-rays from Pb shield which is around the NaI detector, and gamma rays from  $^{19}\text{O}$  and  $^{16}\text{N}$ . The above analytical method has been successfully applied to the monitoring of element safety in two accident analyses of a reactor.

**Key words** Reactor Fuel element rupture detection Safety analysis NaI detector Interference factor