

核动力堆辐照燃料燃耗的辐照史校正方法

杨留成 朱荣保

(中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京, 102413)

燃耗值的计算可由裂变产物监测体¹³⁷Cs、¹⁴⁸Nd 浓度实测值推算得出。在计算中需要裂变产物的平均裂变产额 ($\bar{\nu}$, β) 反应的修正量、放射性裂变产物堆内衰变修正量和可裂变核素的平均裂变能量等。以上参数均与燃料的辐照历史紧密关联。本工作概述了这些参数的 1 种计算方法、计算机程序, 并给出了计算结果。

关键词 核动力堆 辐照燃料 燃料燃耗 燃耗监测体 辐照史校正

中图法分类号 TL 277

通过实验测量裂变监测体的浓度计算燃耗是 1 种比较精确的方法^[1]。通常, 辐照燃料的燃耗可采用重核裂变的原子百分率或单位质量燃料所释放的能量来表示。

实验测得裂变产物原子浓度仅仅是停堆一段时间后所残留下来的部分, 它由各种可裂变核素的裂变事件所贡献。这样, 平均裂变产额和每次裂变平均释放能量就应为所有可裂变核素的加权平均值。

同时也应注意到, 如果所选择的裂变产物监测体 ($N - 1$) 衰变链同位素或它自身 (n , β) 反应截面比较大, 那么由此所引起的裂变产物浓度的增量或减损就需具体计算而不可忽略。另外, 当裂变产物本身又是放射性的, 并且燃料辐照周期与其半衰期相比不能忽略时就应计算裂变产物在辐照期间的衰变部分。

本方法计算所得燃料结果的精确度既和裂变产物、重核测量值及各种参数的精确度有关, 又和各种可裂变核素的裂变份额 ($\bar{\nu}$, β) 反应修正量、放射性裂变产物堆内衰变修正量的精确度有关。

反应堆在运行过程中, 由于各种原因不可能保持相同功率, 也不可能一直运行而不间断, 它的实际运行历史十分复杂, 由大量功率各异的间断辐照过程组成。而各可裂变核素的浓度是燃耗的函数, 其裂变份额也是燃耗的函数。裂变产物浓度及其 (n , β) 反应的修正量, 堆内衰变修正量都是燃耗的函数。上述各量均与燃料的辐照历史密切相关。为计算各个参数, 必须精确记录反应堆的运行功率及相应时间, 利用计算机来模拟反应堆的辐照过程, 方能有效地改进燃耗测定结果的精确度。其计算过程通常称为反应堆燃料燃耗辐照史的校正。

杨留成: 男, 60 岁, 核物理专业, 副研究员

收稿日期: 1997-01-21 收到修改稿日期: 1997-02-27

本工作利用下式来计算元件芯片 UO_2 中某一点的燃耗 $B(x, y, z)^{[2]}$

$$B(x, y, z) = \sum_{m=1}^k E_{mg} \cdot N_m \cdot \sigma_{mg} \cdot g_{mg} \cdot \varphi_g(x, y, z) t \quad (1)$$

这里: E 为 1 次裂变释放的能量, 10^{-10}W ; m 代表可裂变同位素; g 为能群; N_m 为 m 同位素的核密度(每 cm^3 中原子数); σ_{mg} 为 m 同位素 g 群的裂变截面(cm^2); g_{mg} 为 m 同位素 g 群的中子通量密度不利因子; φ_g 为 g 群的中子通量密度; t 为时间(s)。

1 基本原理^[3-5]

1.1 裂变率

在燃料辐照周期内, 燃料单位体积中某种可裂变核素的裂变率为:

$$\frac{dF_j}{dt} = \varphi \cdot N_j \cdot \sigma_j \quad (2)$$

式中: φ 为中子通量密度, N_j 为 j 种可裂变核素的核密度, σ_j 为给定中子能谱的 j 种可裂变核素的裂变截面。

总裂变率为:

$$\frac{dF}{dt} = [N_5 \sigma_{5f} + N_6 \sigma_{6f} + N_8 \sigma_{8f} + N_9 \sigma_{9f} + N_{10} \sigma_{10f} + N_{11} \sigma_{11f}] \quad (3)$$

这里: $N_5, N_6, N_8, N_9, N_{10}, N_{11}$ 分别为 ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu 的核密度; σ_{5f} , σ_{6f} , σ_{8f} , σ_{9f} , σ_{10f} , σ_{11f} 分别为上述核素给定中子能谱的裂变截面。

1.2 裂变产物的生成率

$$\begin{aligned} \frac{dP_i}{dt} = & -\lambda P_i + \lambda_n P_m + \sum_{i-1} \varphi P_{i-1} \sigma_{a(i-1)} - P_i \sigma_{a_i} + N_5 \sigma_{5f} Y_{5i} + N_6 \sigma_{6f} Y_{6i} + \\ & N_8 \sigma_{8f} Y_{8i} + N_9 \sigma_{9f} Y_{9i} + N_{10} \sigma_{10f} Y_{10i} + N_{11} \sigma_{11f} Y_{11i} \end{aligned} \quad (4)$$

这里: P_i , λ , σ_{a_i} 分别为第 i 种裂变产物的核密度、衰变常量和中子俘获截面; P_m 和 λ_n 分别为 i 种裂变产物母体的核密度和衰变常量; P_{i-1} , $\sigma_{a(i-1)}$ 分别为 $(i-1)$ 衰变链同位素的核密度和中子俘获截面; Y_{5i} , Y_{6i} , Y_{8i} , Y_{9i} , Y_{10i} , Y_{11i} 分别为 ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu 的第 i 种裂变产物的裂变产额。由式(4)删去 $(-\lambda P_i + \lambda_n P_m)$ 一项后积分值与原式积分值之比即为放射性裂变产物堆内衰变修正量 BD 。同理可求得裂变产物 (n, γ) 俘获反应的修正量 NR 。

2 算例及其参数

本算例是核动力堆中的 3 盒具有代表性的组件。表 1 给出这 3 盒组件在满功率运行工况下燃料元件的中心温度及表面温度。

表 1 额定工况下燃料元件的中心温度和表面温度

Table 1 Central and face temperatures of the fuel element worked at normal operating mode

组 件	流 程	组件中央	中心温度/	表面温度/	平均温度/
G-21	I	铪控制棒	623.95	421.85	516.59
H-24	II	水	623.95	421.85	516.59
E-29	III	硼钢管	655.77	450.86	553.22

按照这 3 盒组件所在堆内的具体位置、比功率、温度等参数利用燃耗物理计算程序^[6]得到满功率条件下各自的中心通量及各可裂变核素的核密度随燃耗的变化。

2.1 可裂变核素的核密度

本程序采用图 1 所示的重核核密度随燃耗的变化曲线作为输入数据。

2.2 可裂变核素的裂变截面

可裂变核素的裂变截面列于表 2。

表 2 可裂变核素的裂变截面

Table 2 Fission cross section of fissionable nuclides

核素	$10^{28}\sigma_f/m^2$	核素	$10^{28}\sigma_f/m^2$
^{235}U	337.04	^{239}Pu	763.33
^{236}U	0.9199	^{240}Pu	0.0000
^{238}U	0.38865	^{241}Pu	285.36

2.3 反应堆运行历史

反应堆运行功率分布示于图 2。

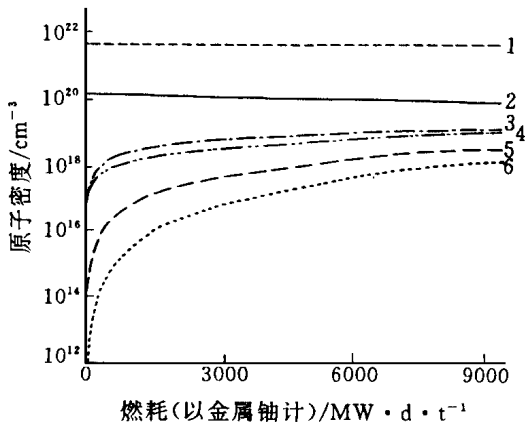


图 1 若干重核核密度随燃耗的变化

Fig. 1 Density of heavy nuclides vs burnup

1— ^{238}U ; 2— ^{236}U ; 3— ^{239}Pu ;
4— ^{235}U ; 5— ^{240}Pu ; 6— ^{241}Pu

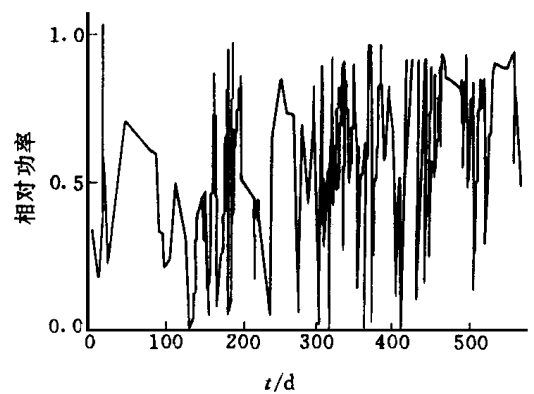


图 2 燃料元件的辐照历史

Fig. 2 Irradiation history of fuel element

2.4 裂变产物的衰变常量和热中子俘获截面

计算中所用的裂变产物衰变常量和热中子俘获截面列于表 3。

2.5 可裂变核素的裂变能量

各种可裂变核素的裂变能量列于表 4。

表3 几种裂变产物及(n, γ)俘获反应产物的衰变常量和热中子俘获截面

Table 3 Decay constant and thermal neutron capture cross section of fission and capture reaction (n, γ) products

核素	衰变常数/h ⁻¹	10 ²⁸ 俘获截面/m ²
¹⁰⁶ Ru	0.78481 × 10 ⁻⁴	0.10
¹³³ Cs	0.00000	0.29 × 10 ²
¹³⁴ Cs	0.38384 × 10 ⁻⁴	0.14 × 10 ³
¹³⁶ Cs	0.21946 × 10 ⁻²	0.14 × 10 ¹
¹³⁷ Cs	0.26227 × 10 ⁻⁵	0.11
¹⁴⁴ Ce	0.10155 × 10 ⁻³	0.10 × 10 ¹
¹⁴⁷ Na	0.26256 × 10 ⁻²	0.10 × 10 ³
¹⁴⁸ Na	0.00000	0.25 × 10 ¹

表4 可裂变核素的裂变能量

Table 4 Fission energies of fissionable nuclides

可裂变核素	裂变能/GeV
²³⁵ U	0.1998
²³⁶ U	0.1998
²³⁸ U	0.1973
²³⁹ Pu	0.2072
²⁴⁰ Pu	0.2072
²⁴¹ Pu	0.2093

3 计算机程序概述

计算程序全部采用 FORTRAN 语言编写,在 PDP-11 计算机上运行。程序框图示于图 3。

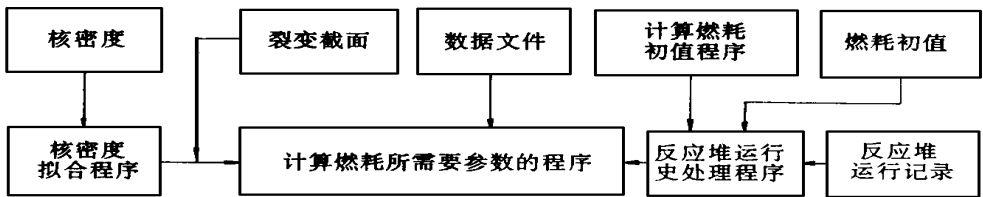


图3 燃耗辐照史校正程序框图

Fig 3 Block diagram of irradiation history correction of fuel burnup

3.1 可裂变核素核密度处理方法

堆燃耗物理计算程序提供了一系列对应于满功率运行时间的核密度数据。计算程序要求以燃耗值为自变量,所以核密度数据不能直接利用。本工作按照数据点的分布,利用多项式对数据进行最小二乘法拟合处理。

3.2 反应堆运行史处理方法

针对动力堆辐照史,即 1 组运行功率相对于运行时间的大量数据,设计了一专门程序以整理运行史。按照计算要求给出了每一单位时间的功率分布:

$$ERW_k = ERW_{(j-1)}(ERT_{(j-1)} - K + 1) + ERW_j(ERT_j - ERT_{(j-1)}) + ERW_{(j+1)}(ERT_{(j+1)} - ERT_j) + ERW_{(j+2)}(K - ERT_{(j+1)}) \quad (5)$$

这里: $ERW_{(j-1)}$, ERW_j , $ERW_{(j+1)}$, $ERW_{(j+2)}$ 分别为第 $(j-1)$ 至第 $(j+2)$ 运行周期的功率水平; $ERT_{(j-1)}$, ERT_j , $ERT_{(j+1)}$ 分别为第 $(j-1)$ 至第 $(j+1)$ 运行周期的终止时间。

3.3 中子通量密度

用燃耗物理计算程序所提供的通量密度分布计算误差较大。本工作采用燃耗初始实验值,按照功率水平,将单位质量燃料发出的总能量分配到每个单位运行时间,以获得该单位运行时间较精确的中子通量密度值,即

$$Q_R = \frac{R \cdot (BU)_0 \cdot ERW_K}{\sum_j N_{j(K)} \cdot \sigma_{fj} \cdot E_j \cdot \sum_K ERW_K} \quad (6)$$

这里 R 为常数, 其值同所用运行时间以及燃料密度单位有关。

4 结果

以计算所得到的修正量, 对实验所得结果予以修正。最后结果示于图 4, 若干裂变产物浓度随燃耗变化示于图 5, 误差分析列于表 5。

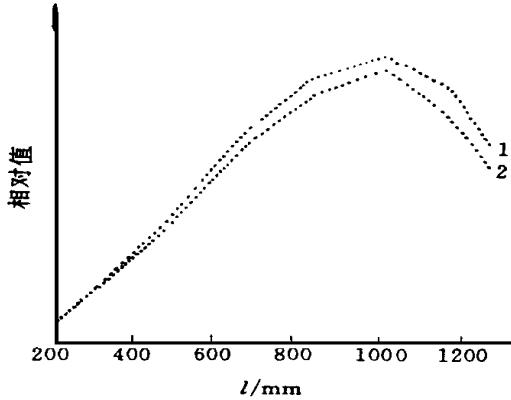


图 4 燃耗相对值随切割位置的关系

Fig 4 Relative burnup value vs cut position

- 1——以¹⁴⁸Nd 为监测体计算的燃耗相对值;
- 2——以¹³⁷Cs 为监测体计算的燃耗相对值

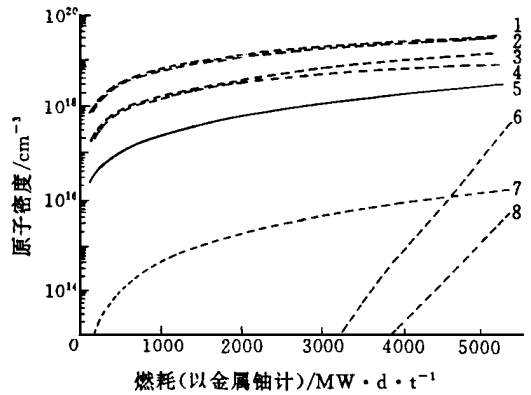


图 5 对 H-24(4) 若干裂变产物和中子俘获产物浓度随燃耗的变化

Fig 5 Concentrations of fission and capture products vs burnup

- 1——¹³³Cs; 2——¹³⁷Cs; 3——¹⁴⁴Ce; 4——¹⁴⁸Nd;
- 5——¹⁰⁶Ru; 6——¹⁴⁷Nd; 7——¹³⁴Cs; 8——¹³⁶Cs

表 5 误差分析

Table 5 Analysis of errors

误差源项	γ 能谱法(¹³⁷ Cs) 误差/%	同位素稀释质谱法(¹⁴⁸ Nd) 误差/%
元件切割	0.4	0.4
元件溶解	0.2	0.2
取样稀释	0.2	0.2
裂变产物浓度(标准样品)	2.0	1.0
半衰期	0.1	
铀浓度(标准样品)	1.0	0.6
辐照史校正	0.5	0.5
产额	1.5	1.5
总误差	2.8	2.0

王承基、曾道桂同志提供燃耗分析的参考数据, 梁其昌同志为本工作提供若干核数据,

朱焕南同志对本工作给予指导,在此一并表示感谢。

参 考 文 献

- 1 朱荣保,王时举,杨留成,等.用直接 γ 能谱法破坏性测定核反应堆辐照燃料燃耗.核科学与工程,1983,4:330
- 2 王承基.核动力堆卸料元件燃耗分析参考数据.中国原子能科学研究院资料.1986
- 3 朱荣保,杨留成.在裂变产物 ^{137}Cs , ^{144}Ce 和 ^{148}Nd 作监测体的燃耗测定中辐照史的校正方法:CN IC-00163,IAE-0038.北京:中国核情报中心,1988
- 4 Fudge A.J. A Review of Experimental Methods for the Determination of Nuclear Fuel Burn-up, Reactor Burn-up Physics. IAEA, Vienna: IAEA, 1973. 239—248
- 5 op de Beeck J. Gamma-ray Spectrometry Data Collection and Reduction by Simple Computing Systems. Atomic Energy Review, 1975, 13: 743
- 6 王承基.核动力堆辐照燃料的燃耗测定和成份分析任务的分析报告.中国原子能科学研究院资料.1981

IRRADIATION HISTORY CORRECTION METHOD OF BURNUP OF THE NUCLEAR POWER REACTOR

Yang Liucheng Zhu Rongbao

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-48, Beijing, 102413)

ABSTRACT

Burnup of the fuel element can be obtained by calculating from actual measured concentration of fission products ^{137}Cs , ^{148}Nd . During calculation, average fission yields of fission products, corrections for reaction (n, γ) , decay of radioactive fission products in reactor, average fission energies of fissionable nuclides and so on are required. Parameters above are related with irradiation history of the fuel element. The paper describes briefly the calculation method of the parameters mentioned above and program, and then the result is given.

Key words Nuclear power reactor Irradiated fuel Fuel burnup Burnup monitor Irradiation history correction