

动力堆乏燃料组件燃耗的非破坏性分析

金惠民 刘大鸣

(中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京, 102413)

概要综述了用无源和有源非破坏性分析技术测量动力堆乏燃料组件燃耗的基本原理、方法和实验装置。由电离室和裂变室组成的标准叉型探测器具有性能稳定可靠、分析速度快、操作简单、携带方便等优点。当前,它对LWR组件的燃耗测量值和申报值的偏差在 $\pm 1\%$ 以内。用高分辨 γ 谱方法(HRGS)测量组件的燃耗,也能达到同样的精度。根据测量得到的中子计数或 γ 放射性,可以确定组件中可裂变物质的含量。

关键词 乏燃料 非破坏性分析 燃耗 有源中子测量 可裂变物质

目前,全球每年从反应堆中卸出大量乏燃料组件,对这些组件的安全贮存和检查是IAEA监督核查活动的主要内容之一。对乏燃料组件的燃耗进行测定,并确定其中可裂变物质的含量,是防止核材料非法转移的1项重要的核保障技术措施,也是后处理厂安全运行的重要依据。

经典的核燃料燃耗破坏性分析方法,分析周期长,不能满足现场核查的需要。70年代初,一些国家开始研究贮存于水池中的乏燃料组件的非破坏性分析(NDA)技术,并取得了很大进展^[1]。目前,这些技术已广泛用于乏燃料组件贮存设施和后处理厂首端的非破坏性分析,测量组件燃耗及燃耗分布,提供组件冷却时间、可裂变物质(²³⁵U、²³⁹Pu)含量等数据。这项技术具有分析速度快、操作简单、性能稳定、适合现场监测核查等优点。

1 分析方法概述

乏燃料组件中裂变产物发射的 γ 射线在探测器上的响应与乏燃料的燃耗及冷却时间有关。通过测量组件的 γ 放射性可以确定其冷却时间^[2-4]。乏燃料组件中的裂变产物的含量与中子引起可裂变物质的裂变事件成正比,通过测量某种裂变产物的 γ 放射性即可计算出组件的燃耗BU^[5]。在现场测定中,通常测定2个裂变产物放射性之比,常用¹³⁴Cs与¹³⁷Cs和¹⁵⁴Eu与¹³⁷Cs。单个核素放射性和2个核素放射性之比与BU均有良好的线性关系^[1,6],即

$$BU = AR_1 + B \quad (1)$$

式中: R_1 为单个核素的 γ 放射性或2个核素放射性之比,A和B为拟合系数。

乏燃料组件中的中子发射率 n 与组件的燃耗、冷却时间、辐照史以及燃料初始浓缩度等多种因素有关。当组件燃耗(以金属 U 计)大于 10 GWd/t 时, n 与 BU 在较宽的冷却时间范围内满足关系式^[4,6]

$$n = \alpha(\text{BU})^\beta \quad (2)$$

式中: n 为中子计数率或中子发射率, 可用无源中子和有源中子相结合的方法测定^[7,8]; α 、 β 为刻度系数, 其值范围为 3.0—4.5。

用有源中子质询技术测量组件中可裂变物质诱发裂变时产生的瞬发中子或缓发中子, 可直接测定组件的燃耗^[1,9], 并用两者之比鉴别组件中²³⁵U 和²³⁹Pu 的含量^[1]。

大多数现场无源 NDA 乏燃料组件测量只限于核查组件的相对燃耗水平, 不能直接得到组件中可裂变物质的含量, 其含量可从测得的 γ 放射性和中子计数计算求出^[1,10]。

2 γ 测量技术

2.1 电流电离室

通常采用电流电离室测量乏燃料组件的总 γ 放射性。IAEA 视察员用的标准叉型探测器, 在其 2 个臂中各装有 1 个电离室和 2 个²³⁵U 裂变室, 可同时测量总 γ 放射性和中子计数, 并对硼化水介质中中子测量结果进行校正。

总 γ 测量主要用来测定组件燃耗的轴向分布和角分布。对冷却时间大于 1a 的组件, 测得的 γ 响应与燃耗之间有近似的线性关系。图 1 为 PWR 和 BWR 组件典型轴向分布的电离室实验结果。图中同时给出了用 Be(γ, n) 探测器和由高分辨率 γ 谱 HRGS 测得的结果。由图可以看出, 用不同方法测得的燃耗轴向分布符合得很好。

由于组件中的可燃毒物、控制棒的位置以及组件在堆芯的位置等各种因素的影响, 组件同一横截面的不同方向上 γ 响应会有较大差别, 这种差别对 BWR 组件尤为明显, 需对组件燃耗的角分布进行测量以确定组件燃耗最具代表性的轴向分布。

2.2 高分辨率 γ 谱(HRGS)

高分辨率 γ 谱法采用具有射线准直器的 HPGe 谱仪系统对水下乏燃料组件进行测量。图 2 为水下乏燃料组件 HRGS 测量装置示意图。探测器和谱仪系统位于贮存水池边, 通过 1 个圆形准直器对准水池下面组件的测量位置。

在 HRGS 测量中, 通常选择¹³⁷Cs 作为燃耗监测体。对²³⁵U 和²³⁹Pu 热中子裂变而言, ¹³⁷Cs 的裂变产额几乎相等(分别为 6.222% 和 6.689%), 其半衰期相对于燃料辐照时间要长得多。因此, ¹³⁷Cs 的 γ 放射性与组件燃耗在 50 GWd/t 范围内有良好的线性关系。目前, 该方法对典型的 LWR 组件, 燃耗测量值和申报值之间的偏差约为 $\pm 1\%$ ^[11,12]。由于测量几何位置的差异, 尤其是 γ 射线的自吸收和立体角效应影响分析结果, 因此, 经常用¹³⁴Cs 与¹³⁷Cs 和¹⁵⁴Eu 与¹³⁷Cs γ 放射性比来确定组件的燃耗。在燃耗大于 30 GWd/t 时, 它们的 γ 放射性比与组件燃耗间呈现非线性关系。

HRGS 测量还用来核查组件的冷却时间和冷却时间的一致性, 常用¹⁴⁴Pr 与¹³⁷Cs 和¹⁰⁶Ru 与¹³⁷Cs γ 放射性比值法。如果已知组件的辐照史, 则可计算 2 种核素在辐照终止时的放射性之比, 并与在冷却时间 T_c 时刻测得的比值进行比较以确定组件的冷却时间。

HRGS 法通常不能直接测出组件中可裂变物质的含量, 但可通过测量 2 个核素的放射性

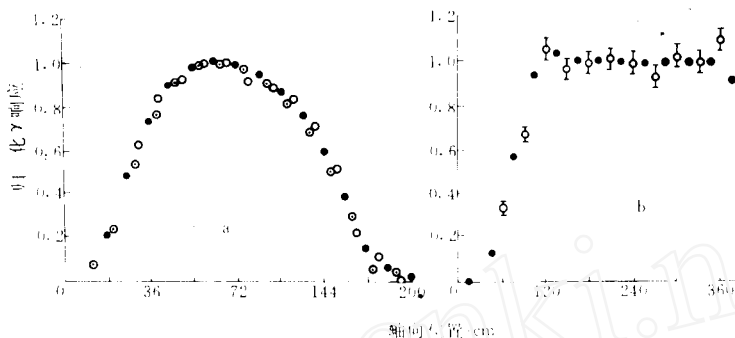


图 1 PWR 和 BWR 组件燃耗轴向分布

Fig. 1 Axial profiles of burn-up for PWR and BWR assemblies

a—BWR, ○: ¹³⁷Cs 高分辨 γ 谱, ●: 电离室, ⊙: Be(γ, n) 探测器;
 b—PWR, ○: ¹³⁷Cs 高分辨 γ 谱, ●: 电离室

之比计算出组件中总裂变物质和 ²³⁹Pu 的含量。图 3a 示出了不同辐照史及反应堆功率水平下 ¹⁵⁴Eu 与 ¹³⁷Cs 放射性活度比与组件中可裂变物质总含量间的关系;图 3b 示出了组件中不同初始 U 浓缩度下 ¹⁵⁴Eu 与 ¹³⁷Cs 活度比与 ²³⁹Pu 含量间的关系。

3 中子测量技术

3.1 无源中子测量

无源中子测量通常采用 ²³⁵U 裂变室。燃耗大于 10 GWd/t 的组件, ²⁴²Cm 和 ²⁴⁴Cm 为主要中子发射体。冷却 3a 后, ²⁴²Cm 的贡献可以忽略,测得的中子计数基本上来自 ²⁴⁴Cm。无源中子测量主要用来测定组件的燃耗和燃耗分布。图 4 为经不同冷却时间后组件的中子发射率与燃耗的关系。对于燃耗大于 10 GWd/t 的组件,用无源中子法测得中子计数率后可由式(2)求出组件的燃耗。Wuerz^[7]用破坏性分析方法对无源中子测量结果进行了验证,2 种方法得到的 β 值非常接近。图 5 为一实际叉型探测器测得的中子计数率与燃耗间的关系曲线^[13]。无源中子法测定的 LWR 组件燃耗值与申报值的偏差在 ±1% 之内^[3]。

根据测量的中子计数率或组件燃耗值,可以计算出组件中各种裂变物质的含量。德国 KFK 已成功地应用这种方法来确定组件中 U、Pu 的含量。

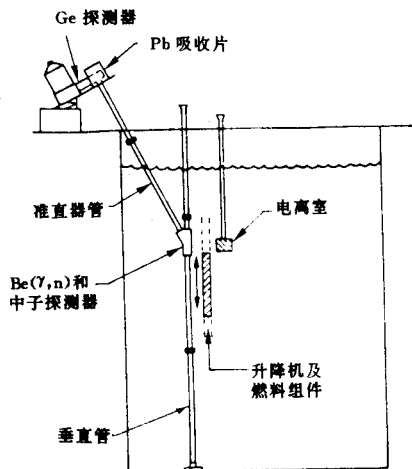


图 2 水下乏燃料组件 HRGS 测量装置示意图

Fig.2 Schematic diagram of HRGS for spent fuel assembly under water

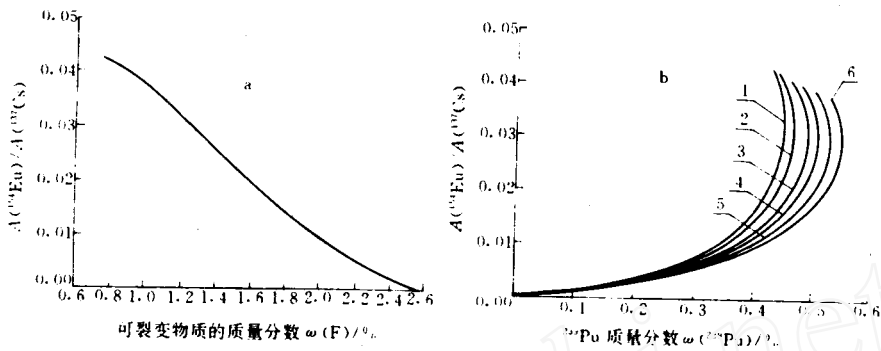


图3 ^{154}Eu 与 ^{137}Cs γ 放射活度比与可裂变物质总含量及 ^{239}Pu 含量之间的关系

Fig.3 Relationship between γ -activity ratio $A(^{154}\text{Eu})/A(^{137}\text{Cs})$ and the total contents of fissile material as well as ^{239}Pu

a— $A(^{154}\text{Eu})/A(^{137}\text{Cs})$ —可裂变物质总含量;b— $A(^{154}\text{Eu})/A(^{137}\text{Cs})$ — ^{239}Pu 含量
U 的初始浓度:1—2.2%;2—2.6%;3—3.0%;4—3.5%;5—4.0%;6—4.5%

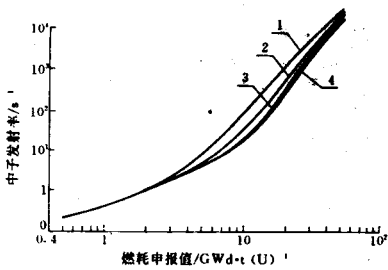


图4 燃料组件的中子发射率与燃耗的关系

Fig.4 Relationship between neutron emissivity and burn-up of fuel assembly

1—未经冷却;2—冷却 1a;
3—冷却 3a;4—冷却 10a

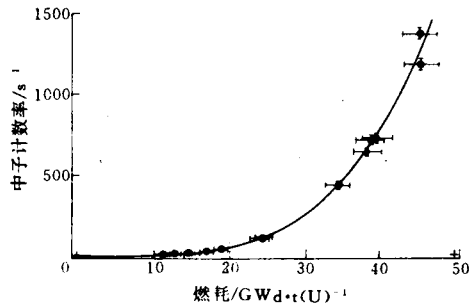


图5 叉型探测器测得的中子计数率与燃耗的关系

Fig.5 Relationship between actual neutron count rate and burn-up of fuel assembly

3.2 有源中子测量

有源中子测量采用 1 个外加的中子源(或中子发生器)照射乏燃料组件,通过测量组件中可裂变物质诱发裂变产生的瞬发或缓发中子数来确定其中 U、Pu 的含量和组件的燃耗。1 个典型的有源中子质询装置示于图 6。图中探测器 1、2 为无源中子测量用的裂变室,探测器 3 可用作无源中子测量,也可用作有源中子测量。 ^{252}Cf 源放在组件的另一侧,源的中子发射率为 10^8 — 10^9 s^{-1} (约为 0.1—1 mg ^{252}Cf)。系统经刻度后,应用无源中子和有源中子测量相结合的方法测定组件初始中子发射率。由组件的初始中子发射率测量结果可计算出其燃耗值,从而确定出组件(以重金属计)中 Pu 的含量,其不确定度对 PWR 组件约为 0.3 kg/t,对 BWR 组

件约为 $0.5 \text{ kg/t}^{[7]}$ 。

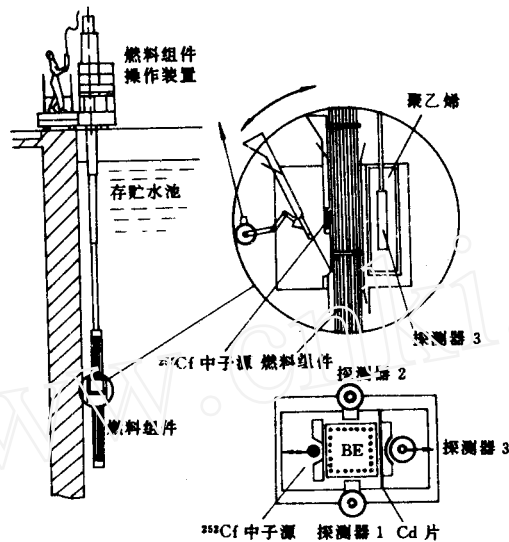


图6 有源中子测量系统

Fig.6 Active neutron measurement system

有源中子质询技术能够直接测定组件中U、Pu含量。诱发裂变产生的瞬发中子和缓发中子的产额与组件中可裂变物质 ^{235}U 、 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的含量有关。 ^{235}U 的缓发中子比 ^{239}Pu 高2.6倍,因此,可用瞬发中子和缓发中子之比来鉴别U、Pu同位素。

4 各种测量方法比较

4.1 总 γ 测量法

用电流电离室对乏燃料组件进行总 γ 测量,设备简单、操作方便、性能稳定可靠、便于制作成手提式仪器用于现场核查。低灵敏度的电离室可在强 γ 辐射场中正常工作,能在很短的时间内(约几秒钟)获得好于1%的测量精度。总 γ 测量法主要用于测量组件燃耗的轴向分布和角分布。目前,IAEA视察员采用这种技术对组件进行快速核查。总 γ 法测量组件的冷却时间和燃耗与其它方法相比精度较差(一般难于做到好于 $\pm 5\%$),它只是作为1种辅助手段用于核查反应堆运行者申报的冷却时间和燃耗值。总 γ 测量的主要缺点是不能区分不同辐照史的乏燃料组件。1个低燃耗组件在冷却时间较短时与1个高燃耗组件在冷却时间较长时可以产生相同的 γ 响应。另外,由于组件自屏蔽的影响,测得的数据只能反映组件表面的特性。因此,总 γ 法通常需与其它方法配合,才能得到比较完整可靠的乏燃料组件的特性。

4.2 高分辨 γ 谱(HRGS)法

高分辨 γ 谱(HRGS)法采用测量组件中裂变产物 γ 放射性能谱的方法来确定组件的各种特性参数。方法的最大优点是1次测量可以提供组件多方面的信息。用测量2种核素的 γ 放

射性之比的方法能消除几何因子、探测效率等因素的影响,将测量精度提高。HRGS法已广泛用于测量组件的燃耗及冷却时间,并通过上述测量计算组件中总裂变物质和 ^{239}Pu 的含量。此外,本方法还能用来测量组件燃耗的轴向分布和角分布、核查组件冷却时间的一致性。目前,用HRGS测量组件的燃耗与申报值之间的偏差好于 $\pm 1\%$ 。对 ^{239}Pu 含量分析而言,与破坏性分析间的偏离 $< 5\%$ 。HRGS法的装置比较复杂,成本较高,对准直器的设计要求亦较高;由于组件自屏蔽作用,1次测量的时间约需20 min;在精确测量中需将组件旋转,以测量不同方向上的燃耗分布,从而增加了机械设计的复杂性。目前,世界上大多数乏燃料贮存设施和后处理厂首端都装备有固定式测量装置,以对乏燃料组件的特性进行鉴定。

4.3 无源中子测量

无源中子测量除具有总 γ 测量的优点外,由于中子测量本身的特点,它可以反映组件内部的燃耗情况。对冷却时间大于3 a的乏燃料组件,燃耗大于10 GWd/t时,测量的中子计数率与燃耗值在直到50 GWd/t的范围内均有良好的函数关系(式2),燃耗测量的精度明显成于总 γ 测量,可与HRGS法相比。无源中子法主要用于测量组件的燃耗,并可通过燃耗测量计算出组件中的可裂变物质的含量。它也可用于测量组件的燃耗分布^[14]。为了便于将测量数据相互比较,无源中子裂变室和总 γ 测量的电离室,一般都安装在同一平面上,对组件的同一轴向位置进行测量。中子探测器和组件相对位置的变化对测量结果的影响要比 γ 测量灵敏得多,因此,应保证测量位置的精度(一般小于0.5cm)。另外,含硼水介质会对中子测量产生影响,必须进行校正。

4.4 有源中子测量

有源中子测试技术是直接测量组件中可裂变物质诱发裂变产生的瞬发和缓发中子来确定U、Pu含量和组件燃耗的直接测量方法。它与无源中子法相结合,可以鉴定组件燃耗、可裂变物质含量、燃料初始浓缩度等,且具有较高的测量精度。由于有源中子技术复杂、费用昂贵,尚未得到普遍应用。

乏燃料组件燃耗的无源NDA技术,经过20多年的开发研究,其硬件设备已日趋成熟,目前,大部分设备都有定型的商品。提高组件燃耗非破坏性分析水平的关键,除了具备高性能仪器设备外,主要在于开发功能完备、性能优良、操作方便的软件,特别是燃耗测量专用软件包,以及建立一套与现场测量条件相应的刻度技术和标定方法。在对大量实际组件的测量分析中,不断积累经验,改进技术,完善方法,方可获得较高的测量精度。和其它DNA方法一样,乏燃料组件燃耗NDA分析的可靠性,在有条件的情况下,最终还须用破坏性分析方法加以验证。

5 结论

1) 各种无源 γ 和中子NDA技术已成功用于LWR乏燃料组件的核查和参数测定。用新型探测器对组件同时进行总 γ 测量和无源中子测量已成为IAEA的常规核查方法之一。燃耗测量结果与申报值的偏差在 $\pm 1\%$ 以内。

2) 现有3种NDA技术可用于乏燃料组件的燃耗测量。高分辨 γ 谱法和无源中子测量技术是间接测量方法,它把测量结果与反应堆运行者的燃耗申报值进行比较方可建立起相互关系。有源中子测试技术可以直接测量可裂变物质的含量并确定组件的燃耗。

3) 1种 NDA 技术只能提供有限的乏燃料组件信息。联合采用各种测量技术可以提高核查水平。目前,采用总 γ , HRGS 和无源中子相结合的方法对水下乏燃料组件进行测量的技术成熟程度已达到商用化水平。由于有源中子测量在技术、设备以及实际应用中的复杂性,目前尚未得到广泛应用。

参 考 文 献

- 1 Cobb DD, Phillips JR, Baker MP, et al. Nondestructive Verification and Assay Systems for Spent Fuels. LA-9401, 1982.
- 2 Phillips JR, Halbig JK, Lee DM, et al. Application of Nondestructive Gamma-Ray and Neutron Techniques for the Safeguarding of Irradiated Fuel Materials. LA-8212, 1980.
- 3 Carhon R, de Boeck W, Bergmans G, et al. Fork Detector Measurements on LWR Spent Fuel. ESARDA BULLETIN, 1994, 23:11.
- 4 Rinard PA. Spent-Fuel Cooling Cure for Safeguard Applications of Gross-Gamma Measurements. LA-9757-MS, 1983.
- 5 Reilly D, Ensslin N, Smith H, et al. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials. Washington: Government publishing office, 1991. 529—557.
- 6 Phillips JR, Bosler GE, Halbig JK, et al. Nondestructive Measurement of Spent Fuel Assemblies at the Tokai Reprocessing and Storage Facility. LA-8076-MS, 1979.
- 7 Wuerz HA. Non-Destructive Measurement System for Spent Light-Water Reactor Fuel Assemblies: IAEA-SM-260/30, 198.
- 8 Wuerz H, Eyrich W. Nondestructive LWR Spent Fuel Assembly Identification——Method and Monitoring System FAMOS. Proceeding of the Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, II. Tokyo: Tokyo Press, 1991. 891—896.
- 9 Cobb DD, Phillips JR, Bosler GE, et al. Nondestructive Verification and Assay System for Spent Fuels. LA-9401, 1982.
- 10 Phillips JR, Bosler GE, Halbig JK, et al. Neutron Measurement Techniques for the Nondestructive Analysis of Irradiated Fuel Assemblies. LA-9002-MS, 1981.
- 11 清野起, 中村裕行, 谷口和史, 他. 燃料集合体の非破壊燃焼度測定技術の現状. 日本原子力学会志, 1986, 28(8):736—744.
- 12 Ane H, Anders B, Lars H, et al. Results of Spent-fuel NDA With HRGS. ESARDA, 1993, 5:371—374.
- 13 Bosler GE. Nondestructive Assay Methods for the Verification of Power Reactor Irradiated-Fuel Materials. LA-UR-87-3103, 1987.
- 14 Carhon R. The Interpretation of LWR Spent Fuel Measurements Made by the Fork Detector. ESARDA, 1993, 5:563—568.
- 15 Tarvainen M, Dragnev T, Backlin A, et al. Cross Calibration of a Spent BWR Reference Fuel Assembly. ESARDA, 1991, 381—386.

NON-DESTRUCTIVE ASSAY METHODS FOR THE BURN-UP MEASUREMENT OF POWER REACTOR SPENT FUEL ASSEMBLIES

Jin Huimin Liu Daming

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

ABSTRACT

The principles, methods and equipments of burn-up measurement for power reactor spent fuel assembly using passive and active techniques are described. The fork detector, a simple, rapid and reliable measurement system, which is composed of an ion chamber and a fission chamber, has been used to measure the burn-up of LWR assemblies. The deviation between measured results and declared values can be made within 1%. A deviation of 1% can also be reached by using high-resolution gamma-ray spectrometry(HRGS) technique. The content of fissile materials in spent fuel assemblies can be determined from measured gamma-ray or neutron information.

Key words Spent fuel assembly Non-destructive assay Burn-up Active neutron measurement Fissile material