

10 MW 高温气冷堆一回路 放射性裂变产物活度测量实验及分析

曹 玥, 曹建主

(清华大学 核能与新能源技术研究院, 北京 100084)

摘要:对 10 MW 高温气冷堆(HTR-10)一回路氦气中放射性裂变产物的组成及活度水平的准确测量,可用以分析研究 HTR-10 燃料元件释放裂变产物的特征,并可用以推知堆芯所有燃料元件中铀污染水平和燃料颗粒的整体破损率水平,从而可得到 HTR-10 辐射安全性的直接验证。本工作通过对取样罐氦气中惰性气体核素活度的分析,推测 HTR-10 一回路活度,并与程序计算值进行了比较。实验测到了^{85m}Kr、⁸⁷Kr、⁸⁸Kr、¹³³Xe、¹³⁵Xe、^{135m}Xe、¹³⁸Xe、⁸⁸Rb、¹³⁸Cs 等核素。通过实验测量可推知,燃料元件石墨孔隙中的铀污染份额低于 5.7×10^{-7} 。

关键词:10 MW 高温气冷堆;燃料元件;燃料颗粒;破损率;一回路活度

中图分类号:TL816

文献标识码:A

文章编号:1000-6931(2007)05-0555-05

Experiment and Analysis of Fission Product Activity in Primary-Loop of 10 MW High-Temperature Gas-Cooled Reactor

CAO Yue, CAO Jian-zhu

(Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Based on the precise measurements of the activity and component of fission products in the primary helium of 10 MW High-Temperature Gas-Cooled Reactor (HTR-10), the feature of the fission product released from the fuel element was analyzed, meanwhile, the failure fraction of the fuel particle or the U-contamination was directly deduced, and the radiation safety of HTR-10 was proved. The activity of inert gas nuclides in sample was experimentally measured, and the primary radioactivity was deduced. In the experiment ^{85m}Kr, ⁸⁷Kr, ⁸⁸Kr, ¹³³Xe, ¹³⁵Xe, ^{135m}Xe, ¹³⁸Xe, ⁸⁸Rb, ¹³⁸Cs were detected and measured. Through the comparison between the experimental results and the calculated ones, the U-contamination of graphite ball was obtained to be less than 5.7×10^{-7} .

Key words: 10 MW High-Temperature Gas-Cooled Reactor; fuel element; fuel particle; failure fraction; primary radioactivity

在 10 MW 高温气冷堆(HTR-10)运行过程中,一回路氦气中的放射性主要来自破损的燃料颗粒释放的放射性裂变产物和铀污染,而完好燃料颗粒的包覆层对气体裂变产物有完全的阻挡作用,对固态裂变产物也有很好的滞留能力。这样,一回路放射性活度的大小直接依赖于燃料包覆颗粒破损率和铀污染。因此,可根据实测的一回路放射性活度推算燃料颗粒的破损情况和铀污染水平。此外,由于固体裂变产物和碘的同位素易沉积吸附在一回路内表面,尤其是蒸汽发生器较冷的金属表面,且沉积吸附情况复杂,它们不适合作为研究对象。所以,选择惰性气体裂变产物作为研究的对象来监测燃料球的破损情况具有很好的代表性。准确测量一回路氦气中惰性气体裂变产物的活度水平,可直接研究燃料元件工艺特性,了解整个堆芯的燃料元件释放裂变产物的特征,从而验证 HTR-10 正常运行时的辐射安全性。

本工作对一回路的活度计算主要采用从德国引进的比较成熟的计算程序 FRESKO2。

1 实验方案

在 HTR-10 满功率运行时,从 HTR-10 氦气净化系统进、出口端分别引出氦气,由取样罐收集,并用高纯锗 γ 探测器和谱仪测量分析气体取样罐中裂变产物核素成分,得到各核素放射性活度水平^[1]。

惰性气体的沉积作用几乎可忽略不计。一回路冷却剂系统泄漏率低于 0.005/d。因此,从氦气净化系统的进口处采集到的气体样品的活度水平基本上能够代表一回路氦气中的活度水平。

此外,对实验方案采取了一些简化措施,以减少实验回路建造的复杂性。

1) 因在氦净化系统前端已设置了粉尘过滤器,故在实验回路中去掉了粉尘过滤器。此外,在氦净化系统粉尘过滤器后、氧化铜床后或分子筛床后取氦气,基本不影响对氦气中惰性气体核素的活度浓度测量。为此,在实验方案中,选取从氧化铜床后引出氦气取样管路,使之与原有的气体采样分析系统的取样点一致。

2) 取样罐直接固定在实验回路中,高纯锗 γ 谱仪放置在取样罐的下方。因取样罐位于气体取样分析室,再施加适当的铅屏蔽,可使本底水平降到较低的程度。

3) 实验回路不采用连续取样方式,而是每次实验取 1 罐氦气,且为经过减压后的氦气。氦净化系统氦气压力为 3 MPa,为减小取样罐中的活度浓度,降低取样罐及实验回路承压设计要求,取样支路氦气先经减压阀减至 0.4 或 0.5 MPa,然后流过取样罐,将取样罐中原有气体冲刷干净后(约需 5 min),关闭取样罐进出口阀门,即可开始活度测量。

实验测量的主要目标核素按半衰期大小分为 4 组,并列于表 1。实验回路示于图 1。

表 1 测量目标核素
Table 1 Target nuclides

分组	核素	半衰期
第 1 组	^{89}Kr	3.18 min
	^{137}Xe	3.83 min
第 2 组	^{138}Xe	14.17 min
	$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15.65 min
	$^{88}\text{Rb}^{1)}$	17.78 min
第 3 组	$^{138}\text{Cs}^{1)}$	33.41 min
	^{87}Kr	1.27 h
	^{88}Kr	2.8 h
	$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4.48 h
	^{135}Xe	9.083 h
第 4 组	^{133}Xe	5.29 h

注:1) ^{88}Rb 为 ^{88}Kr 的衰变子体, ^{138}Cs 为 ^{138}Xe 的衰变子体

取样罐为内径 70 mm、高 127 mm 的钢圆筒,面对高纯锗探测器的罐底厚 5 mm,取样罐底离探头表面约 1 cm,取样罐中心轴线与探测器中心轴线重合。

为较准确识别和测量不同半衰期的核素,首先测量活时间为 5 min 的 γ 谱,共测 5 组;然后测量活时间为 10 min 的 γ 谱,共 5 组;最后测量活时间为 1 h 的 γ 谱,共 5 组。各组之间时间间隔为 1 min。

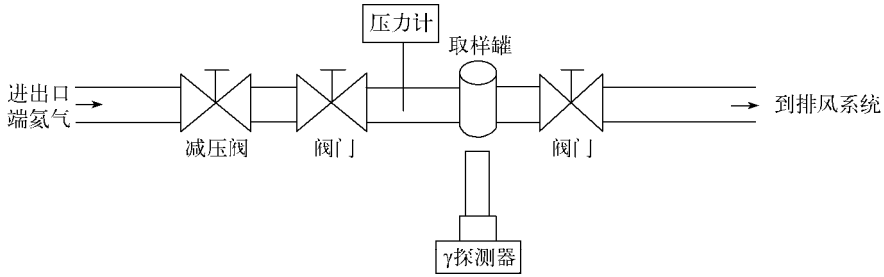


图1 实验回路示意图

Fig.1 Scheme of experiment circuit

2 实验结果及其分析

2.1 核素的识别

对半衰期为 $T_{1/2}$ (衰变常量为 $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$)、初始活度为 A_0 的核素,它将按 $A = A_0 e^{-\lambda t}$ 的形式衰减。即 0 到 t 时间内核素的衰变次数为 $A_0(1 - e^{-\lambda t})/\lambda$,峰计数应与衰变次数成正比。按与半衰期 $T_{1/2}$ 相近的时间间隔 Δt ,对同一样品连续测量几组数据,各组测量活时间 t 相同,则相邻两次测量的计数比(后一次:前一次)为:

$$[A_0 e^{-\lambda \Delta t} (1 - e^{-\lambda t})/\lambda] / [A_0 (1 - e^{-\lambda t})/\lambda] = e^{-\lambda \Delta t}$$

将测得的 γ 谱中的峰能量与数据库中核素的 γ 射线能量进行对比,可大致识别出样品中的核素,并可根据连续时间段的计数比按上式进一步确认核素和推算半衰期。

实验测得各组惰性气体计数及推算得到的核素半衰期列于表 2。

由表 2 中数据可看出,实验推算得到的半衰期与核素的实际半衰期符合较好;对于表 1

中短寿期的第 1 组核素,只在第 1 个 5 min 测量时段找到了它们的“痕迹”,但计数太少,无法准确识别; ^{133}Xe 的半衰期较长,在几小时的测量中活度基本维持不变,在探测器计数上体现为小幅度统计涨落。

2.2 取样罐及一回路中核素活度定量估计

一回路氦气从蒸汽发生器到达氦净化系统,再经取样支路采集到取样罐、充满取样罐、稳定压力并开始测量所经历的这段时间,由于放射性核素的衰变,核素活度水平将会降低,这对寿命较短的核素影响较大。为较准确估算 HTR-10 一回路中核素的真实活度水平,需考虑这段延迟时间。经估算,这段延迟时间约为 40~50 min,所以,在由测量结果直接推算一回路中核素活度时,取从蒸汽发生器到取样罐的衰变时间为 45 min。

探测器的能量响应特性示于图 2。该曲线是仪器出厂验收时用标准点源在探头中心上方 25 cm 处测得的,未针对取样罐体源作标定。

表 2 活度测量结果(计数)及核素识别

Table 2 Activity measurement and nuclides identification

核素	数据集	理论计数比($e^{-\lambda \Delta t}$)	计数序列	平均计数比	推算出的半衰期
^{138}Xe	C ¹⁾	0.746	343, 282, 187, 119, 114	0.770	15.9 min
^{135m}Xe	C ¹⁾	0.767	319, 233, 214, 132, 115	0.784	17.1 min
^{87}Kr	C ²⁾	0.569	2 895, 1 609, 905, 518, 265	0.551	1.20 h
^{88}Kr	C ²⁾	0.774	5 905, 4 545, 3 499, 2 705, 2 228	0.784	2.94 h
^{85m}Kr	C ²⁾	0.852	8 425, 7 087, 5 967, 5 209, 4 359	0.848	4.34 h
^{135}Xe	C ²⁾	0.924	50 215, 46 464, 42 415, 39 222, 36 655	0.924	9.11 h
^{133}Xe	C ²⁾	1.000	2 254, 2 224, 2 165, 2 233, 2 315	1.007	—

注:1) $t=5\text{ min}$ 、 $\Delta t=6\text{ min}$ 的 5 组测量数据

2) $t=60\text{ min}$ 、 $\Delta t=62\text{ min}$ 的 5 组测量数据

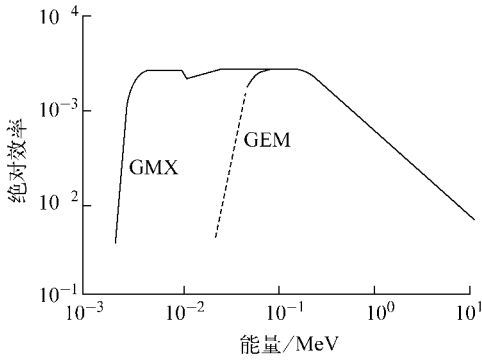


图2 能量效率曲线

Fig. 2 Energy-efficiency curves

GMX——考虑了 γ 射线和X射线;GEM——考虑了 γ 射线

据初步数值估算,将取样罐体源等效为离探头表面 10 cm 的点源,并假设该等效点源与验收标准点源的绝对探测效率之比近似等于立体角之比。

一回路氦气压力为 3.0 MPa、取样罐氦气压力 0.4 MPa。

按以上简化假设,根据测量的计数推出了几个重点关注的情性气体核素在 HTR-10 一回路中的活度水平(表 3)。

表3 一回路主要情性气体核素的活度水平

Table 3 Activity of main inert gas nuclides in primary-loop

核素	采集到取样罐中时的活度浓度/(Bq·L ⁻¹)	一回路中的活度浓度/(Bq·L ⁻¹)
^{85m} Kr	4.67×10^2	3.93×10^3
⁸⁷ Kr	1.08×10^3	1.22×10^4
⁸⁸ Kr	1.27×10^3	1.20×10^4
¹³³ Xe	1.90×10^2	1.43×10^3
¹³⁵ Xe	2.59×10^3	2.10×10^4
^{135m} Xe	3.48×10^2	1.91×10^4

2.3 一回路活度实验推算值与程序计算值的比较以及铀污染估算

用 FRESKO2 程序计算了 HTR-10 燃料元件裂变产物释放率,进而计算得到了一回路放射性活度浓度。计算中取包覆颗粒破损率为 5×10^{-5} [2];燃料元件温度 860 °C (据氦气出口温度推算出的燃料温度);铀污染 6.3×10^{-7} [3]。

一回路活度计算值与由实验数据推得的活度水平的比较列于表 4。

表4 一回路活度实验与程序计算结果比较
Table 4 Comparison between experimental and computed results of primary-loop activity

核素	半衰期	活度实验值/(Bq·L ⁻¹)	活度计算值/(Bq·L ⁻¹)
^{85m} Kr	4.48 h	3.9×10^3	2.3×10^4
⁸⁷ Kr	1.27 min	1.2×10^4	5.3×10^4
⁸⁸ Kr	2.8 h	1.2×10^4	5.4×10^4
¹³³ Xe	5.29 d	1.4×10^3	3.7×10^4
¹³⁵ Xe	9.083 h	2.1×10^4	4.2×10^4
^{135m} Xe	15.65 min	1.9×10^4	2.1×10^4

一回路中的情性气体活度浓度与燃料元件中情性气体核素单位时间的释放份额成正比关系,而每种核素单位时间的释放份额与石墨孔隙中的铀污染以及燃料元件的破损份额之间又存在着以下关系,即 $R_i = \alpha_i C + \beta_i F$ 。其中, R_i 为第 i 种核素单位时间内的释放份额, s^{-1} ; C 为石墨孔隙中的铀污染(以 10^{-7} 为单位); F 为燃料颗粒的破损率(以 10^{-5} 为单位); α_i 为铀污染增加 1×10^{-7} 造成的单位时间释放份额的增加, s^{-1} ; β_i 为 860 °C 下、颗粒破损份额增加 1×10^{-5} 造成的单位时间释放份额的增加, s^{-1} 。

计算中取 $C=0, F=0$ 代表核素从完好颗粒释放的份额。在此条件下,各核素均处在约 5×10^{-17} 水平,因此,可忽略不计。最后取 $C=0, F$ 的增量 1×10^{-5} ;取 $F=0, C$ 的增量为 1×10^{-7} 。由此可得到每种核素的 α_i 和 β_i 值(表 5)。

表 5 所列结果表明,对于目标情性气体核素(除 ¹³³Xe 外), α_i 远大于 β_i , 因此,难以得到颗

表5 目标情性气体核素的 α_i 和 β_i 值Table 5 α_i and β_i of target inert gas nuclides

参数	α_i/s^{-1}	β_i/s^{-1}
^{85m} Kr	4.30×10^{-12}	3.37×10^{-13}
⁸⁷ Kr	1.53×10^{-11}	3.40×10^{-13}
⁸⁸ Kr	6.88×10^{-12}	3.38×10^{-13}
¹³³ Xe	1.53×10^{-13}	2.42×10^{-13}
¹³⁵ Xe	2.10×10^{-12}	3.29×10^{-13}
^{135m} Xe	7.54×10^{-11}	3.38×10^{-13}

粒破损份额变化(10^{-5} 量级)对于释放份额的影响。假定释放份额全部由铀污染引起,根据实验结果可推算 HTR-10 堆芯中燃料元件的铀污染: ^{85m}Kr 为 1.2×10^{-7} ; ^{87}Kr 为 1.5×10^{-7} ; ^{88}Kr 为 1.1×10^{-7} ; ^{133}Xe 为 5.4×10^{-8} ; ^{135}Xe 为 3.5×10^{-7} ; ^{135m}Xe 为 5.7×10^{-7} 。

因此,可估计石墨孔隙中的铀污染低于 5.7×10^{-7} 。

为反映破损率变化对释放份额的影响,应改变测量手段,以 β_i 远大于 α_i 值(表 6)的金属裂变产物核素作为研究对象。

表 6 金属核素的 α_i 和 β_i 值
Table 6 α_i and β_i of metal nuclides

参数	α_i/s^{-1}	β_i/s^{-1}
^{137}Cs	3.392×10^{-15}	2.047×10^{-14}
^{134}Cs	3.383×10^{-15}	1.910×10^{-14}
^{89}Sr	7.123×10^{-17}	4.488×10^{-16}
^{90}Sr	3.856×10^{-17}	2.429×10^{-16}
^{88}Rb	6.104×10^{-16}	9.690×10^{-17}
^{110m}Ag	1.116×10^{-13}	1.726×10^{-14}

3 不确定性分析

1) 仪器计数的不确定性。根据对长寿命核素 ^{133}Xe 的计数判断,计数涨落小于 5%。

2) 计数器探测效率的不确定性。取样罐钢板、几何布置的偏差以及取样罐气体等效为一定高度的点源等对探测效率有影响。但罐钢板对探测效率的影响可以通过对点源位置的调整予以抵消。调整点源高度后,与蒙特卡罗方法计算的探测效率比对表明,简化过程带来的不确定性小于 10%。

3) 延迟时间的不确定性。延迟时间对短

寿命核素($T_{1/2} < T$)活度测定有较大影响,对中长寿核素($T_{1/2} > 5T$)的影响可忽略不计。就 6 个主要目标核素 ^{85m}Kr 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{135}Xe 、 ^{135m}Xe 而言,延迟时间 10 min 带来的一回路活度浓度估算不确定性小于 12%(按半衰期最短的 ^{87}Kr 推算)。

4) 其他方面的不确定性小于 3%。

4 结论

1) 采用本工作研究的方法和仪器测到了 ^{85m}Kr 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{135}Xe 、 ^{135m}Xe 裂变产物核素,并计算得到了 HTR-10 一回路中惰性气体裂变产物核素的活度浓度值。此外,采用本工作的测量方法还可测到 ^{138}Xe 、 ^{88}Rb 、 ^{138}Cs 。

2) 由铀污染造成的核素单位时间的释放份额与燃料元件的工作温度之间的相关性很小,可忽略不计。根据实验值与计算值的比较,燃料元件石墨孔隙中的铀污染份额低于 5.7×10^{-7} 。

3) 建议再进行金属裂变产物核素的测量,以利于燃料元件破损率的准确估算。

参考文献:

- [1] 唐春和,唐亚萍,朱钧国,等. 10 MW 高温气冷堆燃料元件的设计和制造[R]. 北京:清华大学,2002.
- [2] 杨玲,曹建主,奚树人,等. HTR-10 堆芯、一回路放射性源项以及针对环境的正常运行和事故源项[R]. 北京:清华大学核能技术设计研究院,1993.
- [3] 曲静原,曹建主,李红,等. 高温气冷堆核电示范工程(山东)初步可行性研究报告:环境保护卷[R]. 北京:清华大学核能与新能源技术研究院,2005.