

HFETR卸料元件 γ 辐射源的开发和利用

李克明 李植清 章子才 佟志培 林继森

(西南反应堆工程研究设计院, 成都)

本文给出对我国高通量工程试验堆卸料元件辐射场研究的主要结果。介绍了卸料辐照装置及其测量结果。研究表明, 卸料元件辐射源有重要开发利用价值。还介绍了利用卸料辐照装置进行聚乙烯热缩管辐射交联和聚四氟乙烯辐射裂解工艺研究的主要结果。

关键词 卸料元件, γ 场, 辐照装置, 辐射加工。

一、前言

近年来随着辐射工艺学的飞速发展, 对辐射源的需求也随之增长。在辐射加工方面已经利用的辐射源主要是电子加速器和钴-60 γ 辐射源。反应堆卸料元件周围有很强的 γ 辐射场, 但应用方面没有引起足够的重视。

从1983年开始, 我们对高通量反应堆卸料元件辐射场进行了广泛的研究。在此基础上设计建造了卸料辐照装置。利用该装置进行了聚乙烯辐射交联热缩管生产工艺研究和辐射裂解低分子量聚四氟乙烯生产工艺研究。这些结果都已成功地用于生产中。

二、卸料元件辐射源研究

1. 卸料元件 γ 源活度估算

假定高通量堆每炉以稳定功率50 MW运行30天, 则根据文献[1]可以估算出高通量堆停堆后燃料元件总 γ 活度与冷却时间的关系(表1)。

表1 HFETR停堆后总 γ 活度随时间的变化
(运行功率: 50 MW, 运行时间: 30天)

冷却时间	0	1天	10天	20天	30天	60天	90天	150天	1年	5年
总 γ 活度/Bq	7.76×10^{18}	1.22×10^{18}	4.48×10^{17}	2.89×10^{17}	2.15×10^{17}	1.18×10^{17}	7.77×10^{16}	4.07×10^{16}	8.88×10^{15}	9.99×10^{14}

由表1可以看出, 高通量堆停堆后其 γ 辐射源是很强的。在停堆后150天内, 其总 γ 活度保持在 4×10^{16} Bq (1 MCi)以上。同时可以看出卸料 γ 辐射场的基本特点: 冷却时间愈短, 放射性强度愈高, 利用价值愈大, 但此时辐射强度随时间的变化也愈快。

2. 实验研究

(1) **测量方法及系统** γ 场的测量已经建立了多种测量技术。考虑到本工作测量量大, 上限量程高的特点, 选用微型 γ 电离室作为探测元件。表 2 给出了所用微型 γ 电离室的有关数据。采用微型 γ 电离室的主要优点是: ① 灵敏体积小, 空间分辨率高; ② 响应速度快, 适于扫描测量和监测; ③ 量程宽。

表 2 国产微型 γ 电离室的主要参数

外型尺寸	$\phi 5 \times 75$ mm
灵敏长度	20 mm
极间距离	0.5 或 1.1 mm
工作电压	200 V
充 气	氩
绝 缘	$>10^{12}\Omega$ (常温); $>10^9\Omega$ (400°C)
电 缆	镍皮单镍芯氧化镁绝缘; 直径: 2 mm; 长度 ≈ 15 m

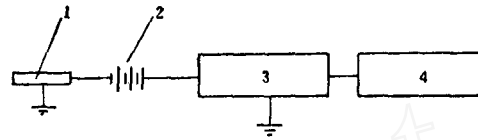


图 1 微型 γ 电离室测量系统框图
1——微型 γ 电离室; 2——高压电源; 3——微电流放大器; 4——数字电压表。

高通量工程试验堆堆芯测量表明, 这种微型 γ 电离室工作上限为 $115 \text{ A/kg}^{[2]}$ 。

卸料元件 γ 谱是连续谱。实验前采用硫酸铯剂量计对微型 γ 电离室进行标定, 以保证测量结果的可靠性^[3]。

微型 γ 电离室测量系统方框图如图 1 所示。系统中高压悬空, 用干电池供电。弱电流测量采用场效应管作输入级的负反馈静电计。为了克服指针式仪表的非线性误差, 采用数字电压表读数。

(2) **卸料元件辐射场测量结果** 单根卸料元件周围的辐射场与燃耗分布、运行历史、冷却时间以及周围介质分布等因素有关。理论上难予计算准确, 测量得到的主要结果如下。

(i) 辐射场与运行及停堆历史的关系

反应堆运行中, 裂变过程形成的各种同位素和由于元件结构材料的活化形成的各种同位素, 各以自己的半衰期随时间衰变, 造成了卸料元件 γ 场随时间变化的复杂性。

为了避免几何条件和介质分布的干扰, 在辐射场强度与运行及停堆历史的研究中, 测点选在燃料元件中心孔内活性段半高度位置。

测量选择了不同运行历史的六根典型元件。有关数据和测量结果在表 3 中给出。

比较表 3 各次测量结果可以看出, 冷却时间是影响卸料 γ 场的主要因素, 近期运行历史对卸料 γ 场贡献最大。为了在稳定条件下, 明确得出卸料元件 γ 场随时间的变化, 对第九炉卸料元件 γ 场进行了连续监测, 结果如图 2 所示。可以看出, 卸料 γ 辐射场的衰变规律比钴-60 γ 源要复杂得多, 没有确定的半衰期。在开始冷却的头 1 个月内, 卸料 γ 场衰变很快, 随着短寿命同位素的减少, 以后辐射场变化渐趋平缓。数据分析表明, 停堆后 30 天到 120 天范围内, 卸料元件周围的 γ 照射量率的变化规律可以用以下拟合公式表示:

$$\dot{X}(\vec{r}, t) = A(\vec{r})t^{-1.125} \quad (1)$$

其中: $\dot{X}(\vec{r}, t)$ 为 \vec{r} 位置 t 时刻的照射量率; t 为冷却时间, 天; A 为随空间位置而变化的

表 3 不同运行历史的卸料元件中心 γ 测量结果

元件号	初 装			冷却时 间*/d	复 用			冷却时 间**/d	照射量率/ mA·kg ⁻¹
	炉 号	位 置	燃耗/%		炉 号	位 置	燃耗/%		
1—2	1	J 10	23.9	190	2	K 8	13.6	865	4.33
2—4	2	J 10	31.31	347	4	H 7	17.47	492	8.53
3—4	3	J 10	23.69	41	4	L 8	14.72	492	10.8
4—5	4	L 12	29.1	41	5	N 16	10.62	448	17.6
5—6	5	J 10	32.87	116	6	N 16	9.56	326	27.0
8—9	8	L 12	33.53	119	9	K 15	8.77	39	499

* 初装停堆到复用的冷却时间; ** 复用停堆到测量的冷却时间。

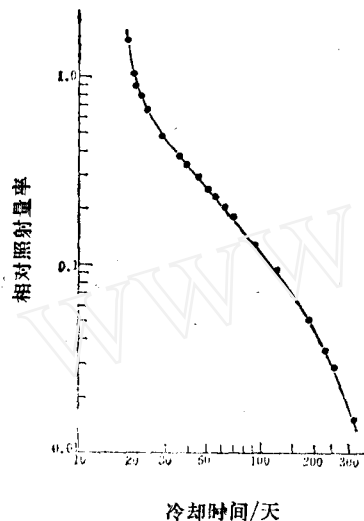


图 2 卸料元件周围照射量率与冷却时间的关系

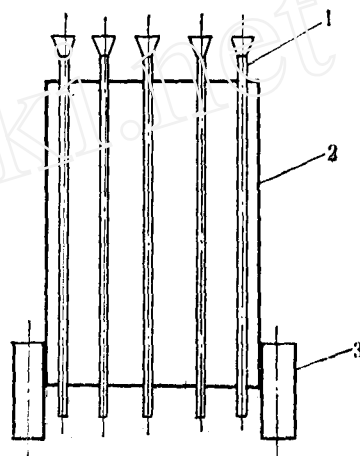


图 3 卸料元件周围 γ 场分布测量装置

1—探测器定位管; 2—箱体; 3—卸料元件插孔。

常数。

拟合公式的误差 $\leq 5\%$ 。

(ii) 卸料元件辐射场的空间分布

为了便于进行卸料 γ 辐射场空间分布测量, 设计了专用测量装置 (图 3)。测量箱体内部既可以充入水或其它介质, 进行介质内 γ 分布测量, 也可以密封起来进行空气中 γ 分布研究。箱体尺寸为 $600 \times 345 \times 150 \text{ mm}^3$ 。两侧各有一个可以插入燃料元件的插座。箱内竖直插入五根不锈钢管 ($\phi 10 \times 1$), 以便探测器伸入进行 γ 扫描。

图 4 给出了典型卸料元件中心孔内轴向 γ 分布测量结果。曲线峰值在活性段的中央, 轴向不均匀系数为 1.32。

图 5 给出典型卸料元件周围 γ 场分布曲线。箱内充水和空气的二条曲线的不同主要是散射积累和屏蔽效应引起的。由于水的密度及质量能量吸收系数均接近碳氢化合物, 在有关辐射加工的设计中, 这些数据可以作参考依据。

为了推广应用测量结果, 还利用图 3 测量装置进行了叠加原理的实验验证。结果证明,

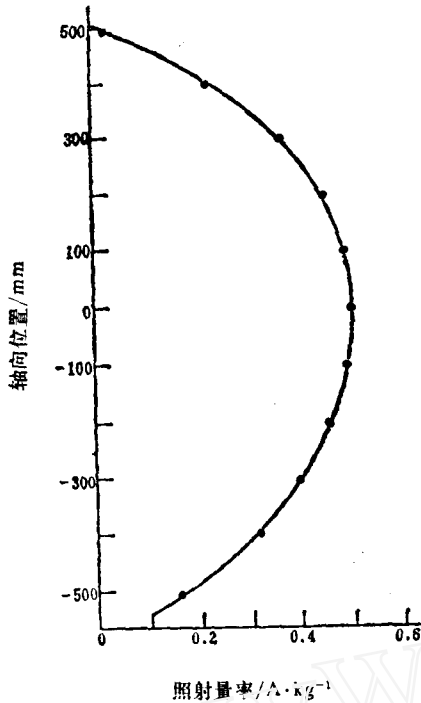


图 4 典型卸料元件中心孔内 γ 场沿轴向分布的曲线

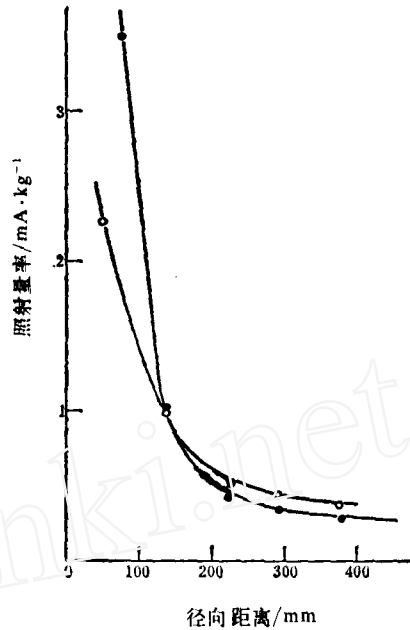


图 5 典型卸料元件周围 γ 场分布曲线 ($Z=0$)
●——水； ○——空气。

不论箱内介质是水还是空气，在箱两侧分别插入卸料元件，所得测量结果之和与同时在两侧插入卸料元件的测量结果符合的非常好，误差小于 2%，在实验误差范围内。这一结果为推广应用测量结果和进行装置设计提供了实验依据。

(iii) 卸料元件剩余中子测量

在辐射加工中，为了保证不使被加工物产生感生放射性，中子是应该严格控制的。

考虑到卸料元件周围强 γ 特点，剩余中子的测量采用径迹探测器。测量结果列于表 4。为了便于比较，表中还列入了根据中华人民共和国放射防护规定 GBJ 8-74 计算的剩余中子相当剂量率。人的手足长期工作允许剂量率是 $1 \times 10^{-7} \text{Sv/s}$ 。可以看出测量结果都低于这一限值。实际上只有被加工物才受到这种照射，操作人员及用户是不会接触这种照射的。又由于剩余中子水平非常低，被加工物不会引起可测到的活化。辐射加工产品的严格放射性检查表明，剩余中子没有对被加工物引起感生放射性的危害。

(3) 卸料 γ 辐照装置及其测量结果 在上述工作的基础上，为了利用卸料 γ 辐射源进行辐射加工工艺研究和生产，在 HFETR 保存水池先后设计建造了二个井式辐照装置。装置示意图如图 6 所示。辐照孔道的直径分别为 $\phi 182$ 和 $\phi 245 \text{ mm}$ 。孔道周围分别装有 12 和 15 根卸料元件。元件座落在支撑架上。辐照罐是装辐照样品的。为了保证操作人员的安全，在辐照罐的上部和下部都装有铅屏蔽塞。辐照罐的运动由传动机构和控制线路保证。辐照孔道外侧装有微型 γ 电离室，以便连续监测 γ 场的变化。

考虑到装置的柱对称结构，在对卸料 γ 辐照装置的测量中，设置柱坐标 (r, φ, z) ，坐标原点在孔道中央元件活性段半高度处。

表 4 卸料元件剩余中子测量结果

冷却时间/d	平均热中子通量/ $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$	相当剂量当量率/ $Sv \cdot s^{-1}$	平均快中子通量/ $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$	相当剂量当量率/ $Sv \cdot s^{-1}$
20—28	334	3.47×10^{-9}	250	9.72×10^{-3}
154—169	3.67	3.81×10^{-11}	0	0
185—205	3.50	3.61×10^{-11}	0	0

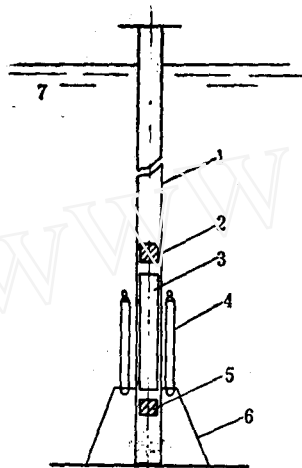


图 6 卸料 γ 辐照装置示意图

1—辐照孔道； 2—上屏蔽塞； 3—辐照罐；
4—卸料元件； 5—下屏蔽塞； 6—元件支
架； 7—保存水池。

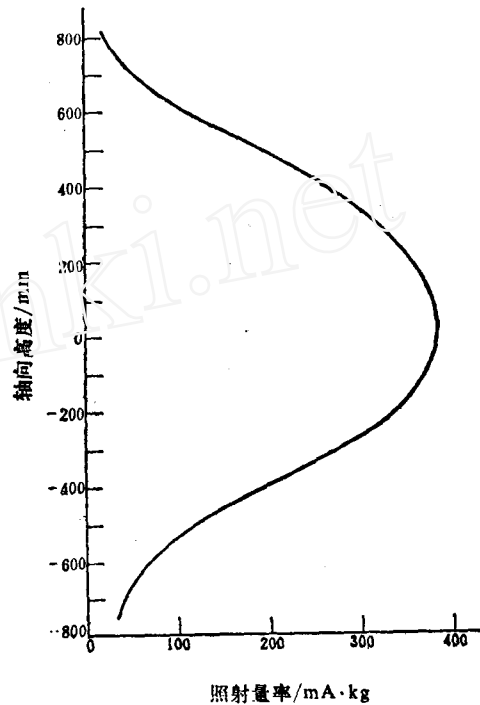


图 7 卸料 γ 辐照孔道内 γ 场的分布

测量表明，对辐照孔道内任意高度 z ，当 r 一定时，照射量率不随圆周角 φ 变化。即辐照场是周向均匀的。

辐照孔道内 γ 场随高度的变化典型结果如图 7 所示。 γ 场随径向位置变化不大，证实了柱形布置设计的优点。 γ 场随高度 z 变化的峰值仍在活性段半高度位置，轴向不均匀系数为 1.27。

在已建成的卸料 γ 辐照装置中，测到的最大 γ 照射量率为 1.85 A/kg。

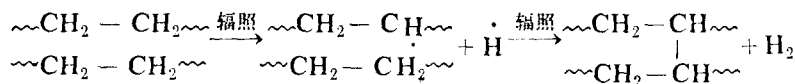
三、卸料 γ 辐射源的利用

1. 聚乙烯热缩管辐射交联工艺研究

辐射交联聚乙烯热缩管主要用于通讯、动力以及海底电缆的接续，输油输气输水管道接头，各种管道的防腐保护和电气工具的绝缘等方面。是我国急待发展的重要项目。以前

主要采用电子加速器辐照。采用卸料 γ 场辐射加工聚乙烯热缩管的成功, 为交联聚乙烯热缩管生产开辟了大规模生产的新途径, 并且交联度分布均匀, 可以辐照各种异形热缩管。

在辐照过程中, 聚乙烯吸收射线能量, 经历如下反应而形成交联聚乙烯:



交联聚乙烯具有网状分子结构。其耐热性能和强度以及耐气候性等均提高, 而且还具有“记忆效应”使得热缩管的应用成为可能。

把交联聚乙烯管加热到结晶温度以上进行扩管, 然后在外力存在的条件下冷却到结晶温度以下, 由于交联聚乙烯的结晶性, 外力消失后, 它仍保持扩管后的形状。此后, 如果再加热到结晶温度以上, 使结晶完全消除, 这时由于交联聚乙烯极高的粘弹性和网状结构, 它可以自行恢复到接近原来扩管前的形状和尺寸, 这就是交联聚乙烯的“记忆效应”。

交联度主要取决于吸收剂量。加入适量的敏化剂和增感剂可以加速交联过程。交联度

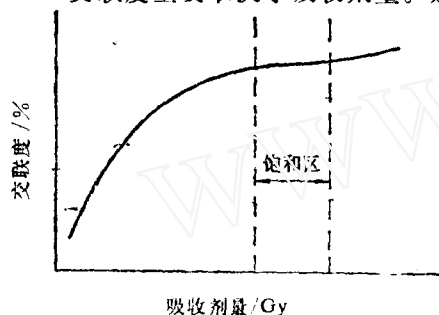


图 8 交联度与吸收剂量的关系

与吸收剂量的关系如图 8 所示。在曲线起始段, 交联度与吸收剂量近似呈线性关系。随着吸收剂量的增加, 逐渐出现饱和现象。这一过程可以用如下函数拟合。

$$q = q_M(1 - e^{-D/D_0}) \quad (2)$$

其中, q_M 为饱和交联度, D_0 为交联度达到饱和交联度的 63% 所需的吸收剂量, 它们是材料与配方和辐射场特性有关的常数。

饱和区之后, 剂量继续增加, 交联度又出现了上升趋势。

2. 辐射裂解低分子量聚四氟乙烯生产工艺研究

采用辐射裂解方法生产低分子量聚四氟乙烯, 所用的原料为聚四氟乙烯加工废料, 这些废料本来难于处理, 高温焚烧会放出大量含氟有毒气体, 造成环境污染。采用辐照工艺可以使聚四氟乙烯裂解成为易于粉碎加工的低分子量聚四氟乙烯。它可以加工成聚四氟乙烯细粉, 具有优良的润滑性、良好的抗静电性及与其它塑料的互混性, 可以制成高温润滑脂或作为抗静电剂和添加剂使用, 制成各种产品。

试验采用工业聚四氟乙烯树脂和聚四氟乙烯车屑为原料。照射量 1300—2600 C/kg。产品具有良好的分散性, 抗拉强度及伸长率明显降低, 易于粉碎加工。

3. 其它应用研究

利用卸料 γ 场还进行了水晶、珍珠、玻璃及马赛克的辐照着色研究, 均获得成功。

此外, 卸料元件 γ 谱是连续谱, 辐射强度接近堆芯 γ 场。利用卸料 γ 辐射场进行堆芯探测器 γ 响应研究的工作正在进行中。

四、卸料 γ 辐射源评价

常用工业同位素辐射源，半衰期确定，能谱不变。卸料元件是多种同位素复杂的混合辐射源，能谱连续且随冷却时间变化，总 γ 辐射强度随冷却时间下降但没有确定的半衰期，这些特点使得在卸料元件辐射源利用中，技术难度增加。

在停堆初期，卸料元件的辐射强度是通常同位素辐射源无法比拟的，这一辐射源的开发利用价值是很大的。由于卸料元件周围有少量剩余中子，它虽然不会引起可测感生活化，仍不适宜于食品辐射加工应用。卸料 γ 辐射源的主要应用应集中在工业有机材料的辐射加工方面。

感谢吕光全、吴英华等对本工作的支持。刘复生进行了剩余中子径迹法测量，齐礼善等进行了交联度测量，杨金文、陈远莲、查刚菊等同志参加了有关实验工作，在此一并致谢。

参 考 文 献

- [1] H. F. 古雪夫, 裂变产物放射性特性手册, 原子能出版社, 1980。
- [2] 李克明、李植清等, 微型裂变室和微型 γ 电离室在高通量反应堆的实验研究, 核工业部一院一所研究报告, 1983。
- [3] 李克明等, 微型 γ 电离室对不同能谱 γ 辐射场响应灵敏度研究, 核工业部一院一所研究报告, 1985。
- [4] Schrock, V. E. *Progress in Nuclear Energy*, 3, 125(1979)。

THE HFETR SPENT FUEL ELEMENTS AS γ RADIATION SOURCE AND ITS USES

LI KEMING LI ZHIQING ZHANG ZICAI
TONG ZHIPEI LIN JISEN

(Southwest Center for Reactor Engineering Research and Design, Chengdu)

ABSTRACT

This article presents the main results of the radiation research on the spent fuel elements in HFETR. The spent fuel element irradiation facilities and its measurement results are described. It also gives the experimental results on the radiation crosslinking of polyethylene and radiation degradation of polytetrafluoroethylene by the spent fuel element irradiation. The value of the spent fuel elements as γ radiation source for radiation processing is well demonstrated.

Key Words Spent fuel elements, γ -source, Irradiation facility, Radiation processing.