

一种用于退役核燃料元件包壳的破裂检测技术

屈国普 凌 球 郭兰英 赵立宏
(南华大学核科学技术学院 衡阳 421001)

摘要 本文阐述了基于活性炭对 ^{85}Kr 吸附特性来检测退役核燃料元件包壳破裂的技术,给出了测量原理及测量系统。方法是通过测量活性炭所吸收的 ^{85}Kr 所放出 β 射线的计数率的大小,来判断退役核燃料元件包壳是否破裂,该测量系统对 β 射线的探测效率大于40%,对 β 射线的本底计数率为 $0.84\text{ Counts}\cdot\text{min}^{-1}$ 。使用该方法的实际测量结论与取水样用化学分析方法所得结论一致。

关键词 活性炭, ^{85}Kr , 核燃料元件包壳, 破裂检测
中图分类号 TL38⁺⁵

核燃料燃烧时会产生大量的裂变产物,因此裂变核电安全设计的主导思想是用三重屏障对裂变产物进行严格的约束。其中第一道屏障是燃料元件包壳,它把裂变产物限制在堆芯的燃料元件包壳内部;第二道屏障是一回路压力边界,把裂变产物限制在一回路系统内部;第三道屏障是安全壳,在事故情况下避免放射性对反应堆厂房外的环境造成污染。而元件包壳的破损检测是用来测量和评价燃料包壳(即第一道屏障)的完整性的,它是保持工作人员的剂量限值 and 电站安全的重要环节。燃料元件包壳完整性的监测是一门多学科综合技术,且贯穿在核电建设、运行、退役的各个环节。例如在生产线上对燃料元件包壳的密封性监测;在堆芯或一回路压力边界对燃料棒、燃料组件或堆芯总体的密封性进行巡回、定期或连续监测;停堆换料期间对换下来的燃料元件包壳破损的吸评检测;退役堆芯燃料元件包壳的破损检测等等。不同时期采用不同的监测方法,本文主要是研究对退役十几年的堆芯元件包壳破损情况的检测,以便于决策对燃料组件如何进行后处理。

核电站、核潜艇等以 ^{235}U 为核燃料的动力堆,因 ^{235}U 裂变将产生一些放射性惰性气体如 ^{85}Kr 、 ^{88}Kr 、 ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 等^[1],其中以 ^{133}Xe 和 ^{85}Kr 的产额最高。 ^{133}Xe 的活度约占水中裂变产物总活度的70%,因此,当包壳出现小的破损时,这些裂变气体是包壳破损最灵敏的指示剂,是检测包壳破损的重要标志。由于 ^{133}Xe 的半衰期 $T_{1/2}=8.06\text{ d}$,远远小于 ^{85}Kr 的半衰期 $T_{1/2}=10.76\text{ a}$,因此对运行中的核动力堆主要采用在线监测一回路水中的 ^{133}Xe 的 γ 放射

性。但是,对于停止运行近10年以上的核动力反应堆元件包壳的检测,只能选择 ^{85}Kr 的比放射性作为测量对象,因为对停止运行10年以上的核动力堆, ^{133}Xe 已基本衰变完全。另外,由于活性炭对 ^{85}Kr 具有很强的吸附性,本文介绍了一种基于活性炭对 ^{85}Kr 吸附特性来检测退役核燃料元件包壳破裂的技术。

1 ^{85}Kr 的性质和来源及活性炭吸附法测量原理

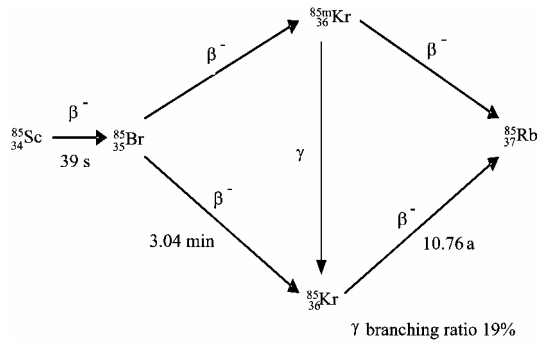
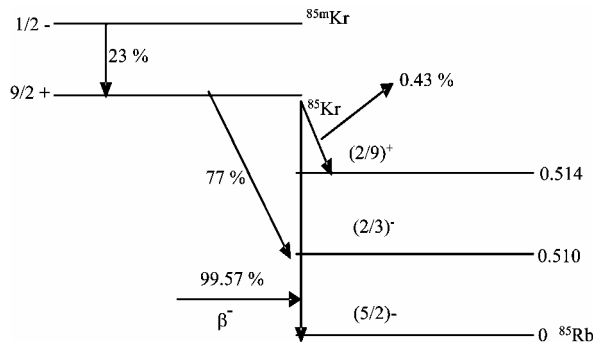
1.1 ^{85}Kr 的性质

从物化性质上看,氪是单原子分子的惰性气体,无色无味,密度是空气的2.93倍。 ^{85}Kr 是天然氪的一种放射性同位素。 ^{85}Kr 容易被橡胶、粘土、活性炭等多孔材料所吸附^[2]。

从衰变特性上分析,因为自然界Kr的含量很少,空气中的浓度也很低,而且天然Kr中不含 ^{85}Kr 。目前大气中积存的 ^{85}Kr 主要是由于核燃料生产及后处理的排放。随着核电站、核潜艇等以 ^{235}U 为核燃料的动力堆的不断增长,大气中 ^{85}Kr 浓度亦会有所增长。 ^{85}Kr 的半衰期为10.76 a,在衰变中放出2个 β 粒子和一个 γ 光子,以及若干个低能量的转换电子和X射线。其中, $E_{\beta 1}=0.6792\text{ MeV}$,分支比为99.57%; $E_{\beta 2}=0.518\text{ MeV}$,分支比为0.43%。

1.2 ^{85}Kr 的来源

^{85}Kr 来源于图1所示的裂变产物衰变链。 ^{85}Kr 衰变纲图如图2所示。

图 1 ^{85}Kr 衰变链Fig. 1 The decay chain of ^{85}Kr 图 2 ^{85}Kr 衰变纲图Fig. 2 ^{85}Kr decay scheme

1.3 活性炭吸附法测量原理

活性炭有较强的吸附 ^{85}Kr 的特性。含 ^{85}Kr 气体的气流经过一定质量的活性炭时经历了 3 个过程：首先是沉积过程，即由于活性炭对 ^{85}Kr 气体的吸附作用，气流中的 ^{85}Kr 气体的一部分被吸附在活性炭上，使得活性炭中 ^{85}Kr 的原子数逐渐增加；其次是衰变过程，即已沉积在活性炭中的 ^{85}Kr 原子自身衰变，使得被吸附在活性炭中的 ^{85}Kr 原子减少，而其子体数不断增加；最后是解吸过程，在气体的扰动下，已沉积在活性炭中的 ^{85}Kr 原子的一部分会离开活性炭，重新被气流带走，其后果使得活性炭中的 ^{85}Kr 原子数减少。三者的代数和，就是活性炭中 ^{85}Kr 原子数的净增率。

从以上 ^{85}Kr 的来源，我们可以得知核燃料元件内的裂变产物中含有 ^{85}Kr 。而从实验上得知当核燃料元件包壳有破损时，只要把它加热到一定温度，内部的 ^{85}Kr 气体就会被赶出来，通过专门设计的取样方法，就可以用活性炭吸附到 ^{85}Kr ，然后再用与该样品配套的一套低本底 β 测量系统测量活性炭样品的 β 计数率，由此便可以判断核燃料元件包壳是否破裂。

2 测量系统和测量方法

2.1 测量系统

该测量系统主要由加热系统、容器罐、气路取样系统和核电子学测量系统组成。其测量系统框图如图 3 所示。

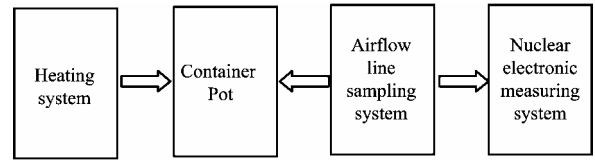


图 3 测量系统组成示意图

Fig. 3 Schematic diagram of the measuring system

为了能够取得 ^{85}Kr 气体，需要专门加工一个容器罐。核燃料元件包壳通过容器罐的上端放入容器罐中，并能密封。容器罐的下端有一个进水接口，容器罐的上端有一个出水接口、一个进气口和一个出气口，其中进气口用一根细金属管插入到容器罐的底部。如果核燃料元件包壳有破裂，循环气体可把从核燃料元件中被热水赶出来并混合在水中的 ^{85}Kr 气体给带出来。

核燃料元件包壳的加热方法采用循环热水加热。该方法安全、温度便于控制，因此还需要专门加工一套水路加热系统。水路加热系统由水箱、加热器、抽水泵、连接管道、连接阀门和控制器组成，控制器可以控制单独进水、单独放水和循环加热等。给核燃料元件包壳加热的流程是：用加热器把水箱里的水加热到需要的温度，开启抽水泵，通过控制器给装有核燃料元件的容器罐循环注入热水。

专门设计的气路取样系统包括抽气泵、连接管道、连接阀门、冷凝器、手套箱、取样盒和控制器。冷凝器主要用来降温、降低湿度，否则活性炭很容易吸附水蒸气，降低甚至失去对 ^{85}Kr 气体的吸附能力。把取样盒安放在手套箱内，手套箱内需要抽气系统是因为适量的抽气可以带走换样时泄漏在手套箱内的气体。在气路的设计上，我们在气体流过取样盒的两端设计一路并行的旁路气路，用于没有采样时或者不够采样条件时的气体通路，气体通过或不通过取样盒可以由控制器控制。取样盒用来放置活性炭盒，只有当湿度计显示经过冷凝器冷凝的气体湿度低于 40% 时，方可让气路通过取样盒进行取样。取样的流程是：当装有核燃料元件的容器罐被循环热水加热后，气体在抽气泵的作用下，经过容器罐的进气口的细金属管从容器罐的底部穿过热水区域，带出核燃料元件中被热水赶出来并混合在水

中的 ^{85}Kr 气体,再经过容器罐的出气口、管道到达冷凝器进行冷凝,然后送入装有活性炭的取样盒由活性炭吸附 ^{85}Kr 气体进行取样,气路再回到容器罐的进气口进行循环,让循环气体连续地通过活性炭取样。

核电子学测量系统为北京核仪器厂生产的型号为 BH1217 的装有低本底半导体探测器的弱 β 测量仪。该仪器主要包括屏蔽室、主半导体探测器、辅半导体探测器、低压电源、高压电源、电荷灵敏放大器、预放大器、主放大器、甄别器、反符合器、抗干扰器、微机接口板、微机等。屏蔽室及探测器都安放在手套箱内。该套测量系统的主要性能指标为:对 β 射线的探测效率大于 40%,对 β 射线本底计数率每分钟小于 1 个。

2.2 测量方法及结果分析

测量前先用水路加热系统中被加热的水去加热核燃料元件,热核燃料元件放入上面所述的容器罐内,容器罐的顶部留出大约 10 cm 高度的气体层,以便于让循环气路能够从容器罐的顶部通过。当气体通过活性炭、活性炭吸附 ^{85}Kr 气体后,再在手套箱内操作,把活性炭样品放入核电子学测量系统的探测器测量位置进行测量,通过 β 计数率的测量值去判断核燃料元件包壳是否破裂。测量前先用 ^{90}Sr - ^{90}Y 标准源进行检测、刻度及调整。测量所用的活性炭为椰子炭。由于活性炭具有很强的吸附性,活性炭久置后与空气接触会吸附空气中的水蒸气以及惰性气体,因此活性炭在使用前必须要进行解吸:首先用无水乙醇反复清洗活性炭,然后将清洗后的

活性炭放入烤箱,在 120 $^{\circ}\text{C}$ 条件下烘烤 8—9 h,去掉水分并使活性炭原先吸附的惰性气体全部释放,最后把烘干后的活性炭放入盛有干燥剂的磨口瓶中,以免活性炭受潮。

在实际测量前,可以在气路的容器罐的进气口处注入已知浓度的 ^{85}Kr 气体,以检验系统的灵敏性。当系统的抽气回路被注入 400 Bq/L 浓度的 ^{85}Kr 气体时,仪器测量的计数率为 5.23 Counts $\cdot\text{min}^{-1}$,而此前测量的仪器本底计数率为 0.84 Counts $\cdot\text{min}^{-1}$,由此可知测量得到的净计数率为 4.39 Counts $\cdot\text{min}^{-1}$ 。仪器每次测量时间为 10 min,且重复 3 次。从现场测量情况来看,该批退役核燃料元件的测量结果为净计数率都小于 0.87 Counts $\cdot\text{min}^{-1}$,说明该批退役核燃料元件包壳都没有破裂。而与此同时,通过取水样用化学分析的方法得到的结论也是同样的。

3 结束语

本文介绍了利用活性炭对 ^{85}Kr 的吸附特性而设计的一套检测退役核燃料元件包壳破裂的系统。该系统已经用于实际测量,从现场的使用情况来看,该系统可以完成检测任务,达到了检测目的。

参考文献

- 1 Klapdor-Kleingrothaus H V, Tomei C. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2003, A508: 337—342
- 2 Marechal F, Poirier E. Nuclear Physics, 2003, A722 :429—433

A safety check-up method for decommissioned reactor fuel element cladding

QU Guopu LING Qiu GUO Lanying ZHAO Lihong

(College of Nuclear Science and Technology, Nanhua University, Hengyang 421001, China)

Abstract The paper introduced a technique, which is based on the adsorption of ^{85}Kr function on activated carbon, to check-up the decommissioned reactor fuel element cladding. The measuring principle and the constitution of the measuring system are described. The opinion method of safety check-up the decommissioned reactor fuel element cladding is the detection quantity of beta count-rate of adsorption ^{85}Kr by activated carbon. The beta detection efficiency is higher than 40% and background beta count-rate is 0.84 Counts $\cdot\text{min}^{-1}$ of the measuring system. A comparison between the method and chemical analysis to water sample showed that the two conclusions were agreement.

Key words Activated carbon, ^{85}Kr , Reactor fuel element cladding, Safety check-up

CLC TL38 $^{+5}$