

CN8800702

CNIC-00122

SINRE-0007

# 中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

高通量工程试验堆卸料元件辐射资源的开发和利用



中国核情报中心

China Nuclear Information Centre

CNIC-00122

SINRE-0007

# 高通量工程试验堆卸料元件辐射 资源的开发和利用

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, 四川)

中国核情报中心

北京·1987

## 摘 要

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。介绍了卸料元件辐照装置及其测量结果。研究表明,高通量工程试验堆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  $\gamma$ 场 辐照装置 辐射加工

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

Li Keming   Li Zhiqing   Zhang Zicai

Tong Zhipei   Lin Jisen

(Southwestern Institute of Nuclear  
Reactor Engineering, Sichuan)

## 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  $\gamma$  radiation source for radiation processing is well demonstrated.

# 前 言

近年来随着辐射工艺学的飞速发展,对辐射资源的需求也随之增长。在民用工业等方面已经利用的辐射源,主要是电子加速器和同位素 $\gamma$ 辐射源。在辐射加工领域利用的同位素辐射源又主要是 $^{60}\text{Co}$ 辐射源。反应堆卸料元件周围有很强的 $\gamma$ 辐射场,但没有引起足够重视。

从1983年开始,我们对高通量工程试验堆的卸料元件辐射场进行了广泛的研究,确定了这一资源的重要工业价值。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照交联生产热缩材料的研究工作和辐照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。本文给出卸料元件辐射场的主要研究结果以及这一资源的开发利用情况。

## 卸料元件辐射资源研究

### 1. 资源估算

假定高通量工程试验堆每炉稳定功率50MW运行30天,则根据文献[1]可以估算出高通量工程试验堆停堆后燃料元件总 $\gamma$ 放射性活度与冷却时间的关系(表1):

表1 HFETR停堆后总 $\gamma$ 活度随时间的变化(计算条件:运行功率50MW,运行时间:30d)

冷却时间(d)	0	1	10	20	30
总 $\gamma$ 活度(Bq)	$7.76 \times 10^{18}$	$1.22 \times 10^{18}$	$4.48 \times 10^{17}$	$2.89 \times 10^{17}$	$2.15 \times 10^{17}$
冷却时间(d)	60	90	150	1a	5a
总 $\gamma$ 活度(Bq)	$1.18 \times 10^{17}$	$7.77 \times 10^{16}$	$4.07 \times 10^{16}$	$8.88 \times 10^{15}$	$9.99 \times 10^{14}$

由表1可看出, HFETR在每炉停堆后其 $\gamma$ 辐射资源是十分可观的。停堆150天内,其总 $\gamma$ 强度可保持在37PBq以上。同时可以看出卸料辐射场的基本特点:冷却时间愈短,利用价值愈大,但辐射强度随时间的变化愈快。

### 2. 实验研究

#### 1) 测量方法及系统

目前已经建立了许多 $\gamma$ 场的测量技术。考虑到本工作测量量大,上限量程高的特点,选用微型 $\gamma$ 电离室作为测试元件。表3给出了所用微型 $\gamma$ 电离室的有关数据。采用微型 $\gamma$ 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。

高通量工程试验堆堆芯测量表明,这种微型 $\gamma$ 电离室工作上限为 $4.125 \times 10^5 \text{C}/(\text{kg} \cdot \text{h})^{[1]}$ 。

卸料元件Y谱是连续谱。实验前采用硫酸铯对微型Y电离室进行标定,以保证测量结果的可靠性<sup>[3]</sup>。

表2 国产微型Y电离室的主要数据

外型尺寸:  $\phi 5 \times 75 \text{mm}$   
 灵敏长度: 20mm  
 极间距离: 0.5或1.1mm  
 工作电压: 200V  
 充 气: 氙气  
 绝 缘:  $\geq 10^2 \Omega$  (常温)  
 $\geq 10^3 \Omega$  (400°C)  
 电 缆: 铜皮单芯芯氧化铜绝缘  
 直径: 2mm; 长度  $\approx 15 \text{m}$

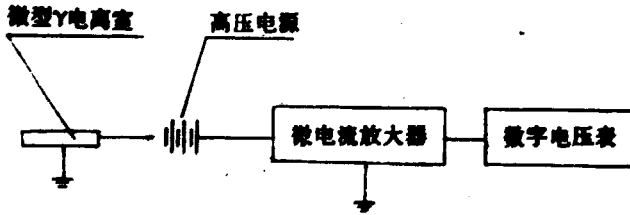


图1 微型Y电离室测量系统方框图

微型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,理论上难于计算确定。主要测量结果如下:

### (1) 辐射强度与运行及停堆历史的关系

反应堆运行中,裂变过程中形成的各种同位素,各以自己的半衰期随时间衰变。由于各种同位素的形成时间不同,产额和半衰期不同,造成了卸料元件Y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,在辐射强度与运行历史关系的研究中,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及测量结果在表3中给出。

比较表3各次实验结果可以看出,冷却时间是影响卸料Y场的重要因素,近期运行历史对卸料元件Y场贡献最大。为了在稳定条件下,明确得出卸料元件Y场随时间的变化,对第九炉卸料元件Y场进行了连续监测,结果如图2所示。可以看出,卸料Y辐射场的衰变规律比<sup>60</sup>Co Y源要复杂得多,没有确定的半衰期。在开始冷却的一个月内,卸料Y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120天范围内,卸料元件周围的照射量率的变化规律可以用以下拟合公式表示:

$$X(r, t) = A(r)t^{-1.128} \quad (1)$$

其中,  $X(r, t)$  ——空筒 $r$ 位置 $t$ 时刻的照射量率;

$t$ ——冷却时间, d;

$A$ ——随空间位置变化的常数。

拟合公式的误差 $\leq 5\%$ 。

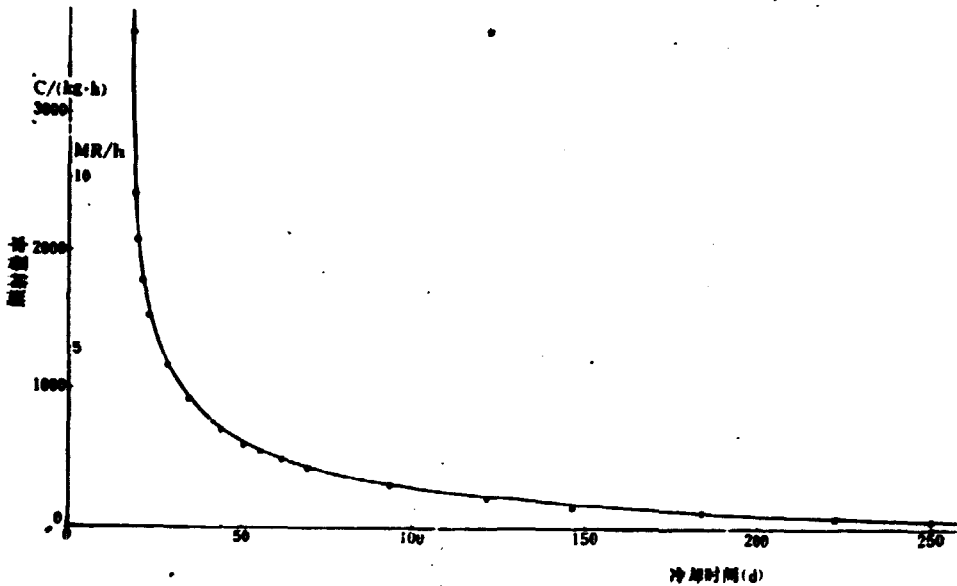


图2 卸料元件照射量率与冷却时间的关系

表3 不同运行历史的卸料元件中心Y测量结果

元件号	初 装			初装停堆到复用的时间 (d)	复 用			复用后的冷却时间 (d)	元件中心孔内半高度处照射量率 $[C/(kg \cdot h)]$ , (R/h)
	炉号	位置	燃耗 (%)		炉号	位置	燃耗 (%)		
J-2	1	J10	23.9	190	2	K8	13.6	865	15.58 ( $6.04 \times 10^4$ )
2-4	2	J10	31.31	347	4	H7	17.47	492	30.70 ( $1.19 \times 10^5$ )
3-4	3	J10	23.69	41	4	L8	14.72	492	38.70 ( $1.50 \times 10^5$ )
4-5	4	L12	29.1	41	5	N16	10.62	448	63.21 ( $2.45 \times 10^5$ )
5-6	5	J10	32.87	116	6	N16	9.56	326	97.27 ( $3.77 \times 10^5$ )
8-9	8	L12	33.53	119	9	K15	8.77	39	1795.68 ( $6.96 \times 10^6$ )

## (2) 卸料元件辐射的空间分布

为了便于进行卸料Y辐射场空间分布测量,设计了专用测量装置(图3)。测量箱体内既可以充入水或其它介质,进行介质内Y分布测量,也可以密封起来进行空中Y的分布研究。箱体尺寸设计为 $600 \times 345 \times 150$ mm。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Y扫描。

图4给出了典型卸料元件中心孔内轴向Y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。

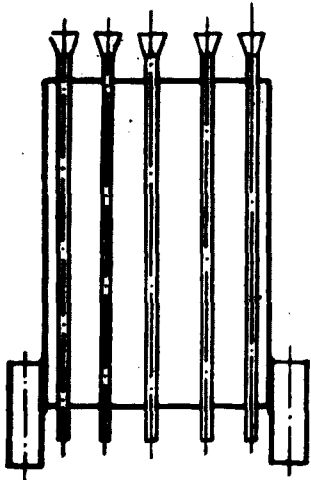


图3 卸料元件Y辐射场空间分布测量装置

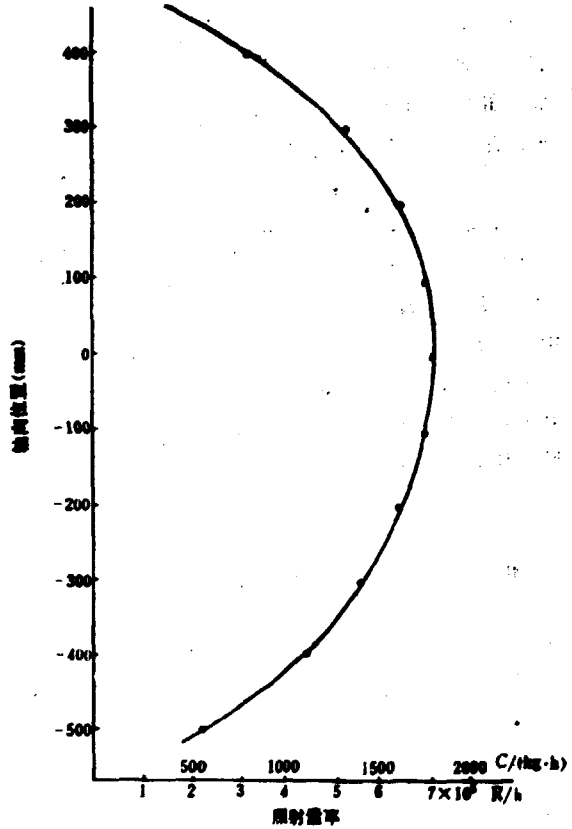


图4 典型卸料元件中心孔内Y场沿轴向分布曲线

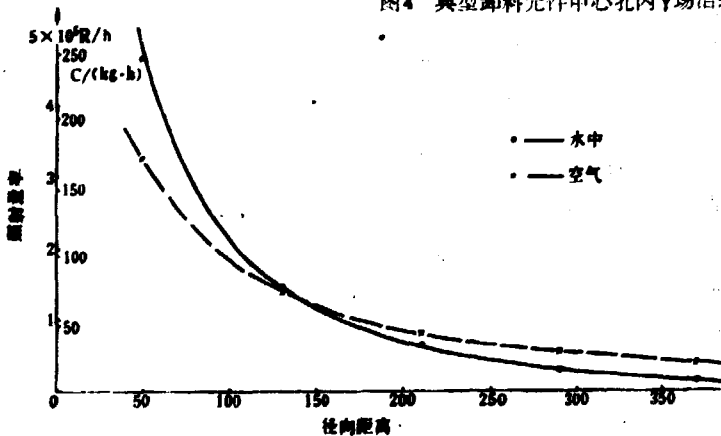


图5 典型卸料元件周围Y场分布曲线

横坐标单位为mm

图5给出典型卸料元件周围Y场分布曲线。箱内充水和空气，两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，在辐射加工设计中，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测量装置进行了叠方原理的实验验证。结果证明, 不论箱内介质是水还是空气, 在箱内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得非常好, 误差小于2%, 在实验误差范围内。这些结果为推广应用测量数据和进行装置设计提供了实验依据。

### (3) 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, 中子是严格控制的。

考虑到卸料元件周围是强 $\gamma$ 辐射的特点, 剩余中子的测量采用径迹探测器。测量结果见表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的剂量率。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一照射, 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, 被加工物是不会引起可测活化的。辐照后经严格的放射性检查表明, 剩余中子没有对被加工物引起感生放射性的危害。

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 [ $n / (\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ ]	相当剂量当量率(Sv/s)	平均快中子通量 [ $n / (\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ ]	相当剂量当量率(Sv/s)
20~28	334	$3.47 \times 10^{-9}$	250	$9.72 \times 10^{-9}$
154~169	3.67	$3.81 \times 10^{-11}$	0	0
185~205	3.50	$3.61 \times 10^{-11}$	0	0

### 3) 卸料 $\gamma$ 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 $\gamma$ 辐射资源进行辐射加工工艺研究和生产, 在HFETR保存水池先后设计了2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 $\phi 182 \text{mm}$ 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用的。为了保证操作人员安全, 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。辐照孔道外侧有微型 $\gamma$ 电室, 以便连续监测 $\gamma$ 场的变化。

装置为柱对称结构, 装置柱坐标( $r$ ,  $\varphi$ ,  $z$ )的原点在孔道中央元件活性段半高度处。

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 $\varphi$ 变化。即辐射场是周向均匀的。

辐照孔道内 $\gamma$ 场随高度的变化典型结果如图7所示。 $\gamma$ 场随径向位置变化不大, 证实了柱形布置设计的优点。 $\gamma$ 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。

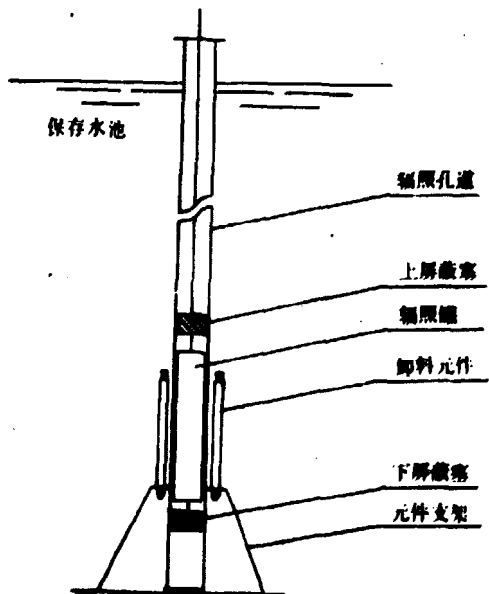


图6 卸料 $\gamma$ 辐照装置示意图

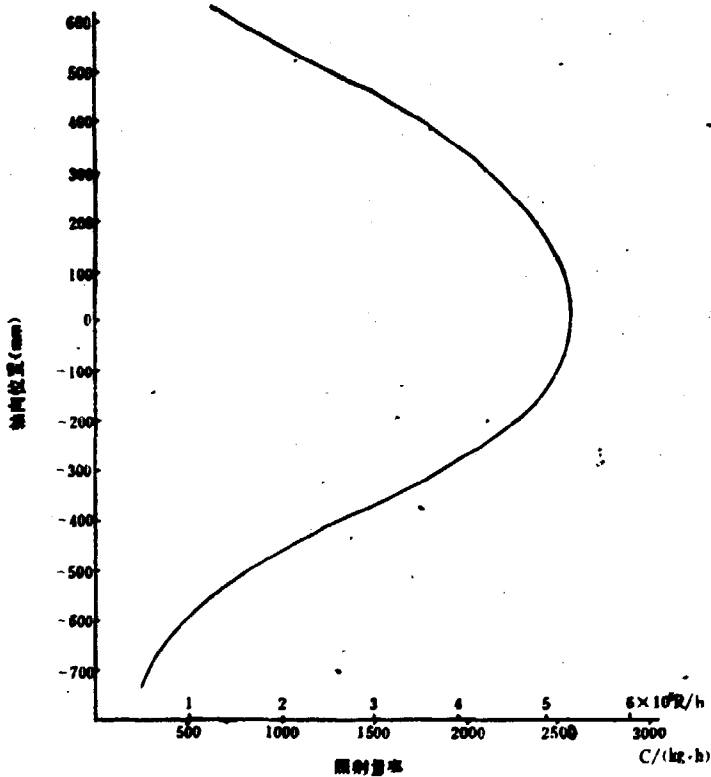


图7 卸料 $\gamma$ 辐照孔道内 $\gamma$ 场的分布

在已建成的卸料 $\gamma$ 辐照装置中，测到的最大 $\gamma$ 照射量率为 $6.66 \times 10^4 \text{C}/(\text{kg} \cdot \text{h})$ 。

## 卸料 $\gamma$ 辐射资源评价

常用工业同位素辐射源，半衰期确定，能谱不变；而卸料元件是多种同位素组成的复杂的混合辐射源，能谱连续，且随冷却时间而变化，总 $\gamma$ 辐射没有确定的半衰期，这些特点使得在卸料元件辐射资源利用中，技术难度增加。

在停堆初期，卸料元件的辐射强度是一般同位素辐射资源无法相比的。由于卸料元件周围有少量剩余中子，它虽然不会引起可测的感生活化，但它仍不适宜于食品辐射加工应用。其主要应用集中在工业有机材料辐照改性方面。

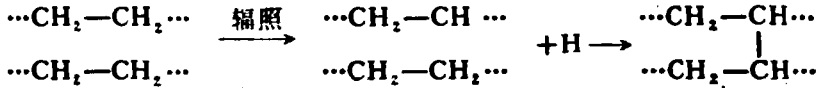
## 卸料 $\gamma$ 辐射资源的利用

### 1. 聚乙烯热缩管辐照交联工艺研究

辐射交联聚乙烯热缩管主要用于通信，动力以及海底电缆的连接，输油，输气管道接头以及各种管道的防腐保护，电气工具的绝缘等方面。这是我国亟待发展的重要项目，以前主要采用电子加速器辐照。采用卸料 $\gamma$ 场辐照加工聚乙烯热缩管成功，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、强度和耐气候性等都有所提高，而且还具有“记忆效应”使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，外力消失但它仍保持扩管后的形状。此后若再加热到结晶温度以上，使结晶完全消除，由于交联聚乙烯极高的粘弹性和网状结构，又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。交联度与吸收剂量的关系如图8所示。在曲线的起始段交联度与吸收剂量近似呈线性关系，随着吸收

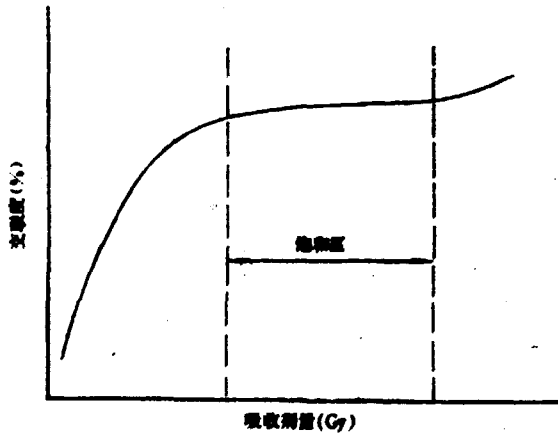


图8 聚乙烯交联度与吸收剂量的关系

剂量的增加，逐渐出现饱和现象，进入饱和区。这一段可用如下函数拟合：

$$q = q_{\infty}(1 - e^{-D/D_0})$$

其中， $q_{\infty}$ 为饱和交联度， $D_0$ 为交联度达到饱和交联度63%所需要的吸收剂量，它们是与材料配方和辐射场特性有关的常数。

饱和区之后，剂量继续增加，交联度又出现上升的趋势。

## 2. 辐射降解低分子量聚四氟乙烯生产工艺研究

采用辐射降解方法生产低分子量聚四氟乙烯，所有的原材料为聚四氟乙烯加工废料。这些废料本来难以处理，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，可以使聚四氟乙烯降解变成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粉末，具有优良的润滑性能、良好的抗静电性能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 $1.29\sim 2.58\times 10^3\text{C/kg}$ 。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

本工作还利用卸料 $\gamma$ 场进行了水晶、珍珠、玻璃及玛赛克的辐照着色研究,并均获得成功。

此外,卸料元件的 $\gamma$ 谱是连续谱,辐射强度近似堆芯 $\gamma$ 场。利用卸料 $\gamma$ 辐射场进行堆芯探测器 $\gamma$ 响应的研究工作正在进行中。

### 参 考 文 献

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



P.O.Box 2103

Beijing, China

**China Nuclear Information Centre**