



中华人民共和国国家标准

GB 15146.2-94

反应堆外易裂变材料的核临界安全 易裂变材料操作、加工、处理的 基本技术准则与次临界限值

Nuclear criticality safety for fissile materials outside reactor
—Basic technical criteria and subcritical limits
for handling, processing and operations of fissile materials

1994-07-07 发布

1995-01-01 实施

国家技术监督局 发布

中华人民共和国国家标准

反应堆外易裂变材料的核临界安全 易裂变材料操作、加工、处理的 基本技术准则与次临界限值

GB 15146.2—94

Nuclear criticality safety for fissile materials outside reactor
—Basic technical criteria and subcritical limits
for handling, processing and operations of fissile materials

1 主题内容与适用范围

本标准规定了反应堆外易裂变材料操作、加工、处理的核临界安全基本技术准则和一些几何形状简单的易裂变材料单体的次临界限值。关于核临界安全行政管理的基本要求,见 GB 15146.1。

本标准适用于反应堆外易裂变材料的操作、加工和处理。

本标准不适用于受控条件下易裂变材料的组装(如临界实验)。

2 引用标准

GB 15146.1 反应堆外易裂变材料的核临界安全 核临界安全行政管理规定

GB 15146.5 反应堆外易裂变材料的核临界安全 钚-天然全由混合物的核临界控制准则和次临界限值

3 术语

3.1 有效增殖系数 k_{eff}

含易裂变材料的有限大系统内,某一时间间隔内产生的中子总数(不包括由中子源产生的中子)与同一时间间隔内因吸收和泄漏而损失的中子总数之比。

3.2 临界事故

意外发生的自持或发散的中子链式反应所造成的能量释放事件。

3.3 核临界安全(临界安全)

预防临界事故和减轻临界事故后果的措施,其中最基本的是防止意外发生中子链式反应的措施。

3.4 受控参数

要求其数值保持在规定的限值范围内的参数。

3.5 次临界限值(限值)

给受控参数规定的能使系统在规定条件下肯定处于次临界状态的限制性数值;确定此种限值时应给导出它时所用的计算和实验数据的不确定度;留有适当的裕量,但不考虑意外事件(如投双批料、样品分析结果不正确等)。

3.6 面密度

垂直投影在某平面单位面积上的易裂变材料的总质量。对于无限大的均一平板,等于平板内易裂变材料的浓度与平板厚度之乘积。

国家技术监督局 1994-07-07 批准

1995-01-01 实施

3.7 计算方法

为获得计算结果而使用的各种数学方程、假设、近似、有关的数值参数(如截面)和计算程序等的总称。

3.8 偏倚

计算方法的计算结果与试验数据之间的系统不一致性的一种量度。偏倚本身的不确定度则是计算结果的精密度和实验数据的准确度这两者的量度。

3.9 (计算方法的)适用范围

已确定计算方法偏倚的那部分材料组分和几何布置参数的范围。

3.10 经验证的计算方法

经过与实验结果比较,按 3.9 条定义确定了适用范围的计算方法。

4 基本技术准则

4.1 可控制因素及可采用的控制手段

4.1.1 含易裂变材料系统的有效增殖系数(k_{eff})依赖于系统内全部易裂变材料的质量与分布和所有有关材料的质量、分布及核特性。能影响 k_{eff} 的因素都是可控制因素;也就是说为了 $k_{\text{eff}} < 1$ 必须将系统的一个或多个参数控制在次临界限值之内,保证该系统处于次临界状态。

4.1.2 应采用下列控制手段中的一种或多种来保证易裂变材料系统的次临界状态:

- a. 实体限制,例如,将溶液限制在直径不超过次临界限值的圆柱形容器内;
- b. 测控设备的利用,例如,利用测量浓度的仪表或能防止易裂变材料因回流而在某一化学系统中聚积的设备,将易裂变材料的浓度保持在规定的限值以下;
- c. 化学控制方法,例如,不让能引起沉淀的条件出现,使系统保持在规定的水溶液状态;
- d. 依靠过程固有的或可信的特性,例如,依靠工艺过程的某种特性使铀氧化物的密度恒小于理论密度的某一规定份额;
- e. 操作规程的制约,例如,通过操作规程中的规定,要求所操作易裂变材料的质量不超过规定的限值;
- f. 其他控制手段。

4.1.3 不管采用上述的哪一种或哪几种控制手段,均必须明确规定哪些是受控参数和它们的次临界限值。

4.2 双偶然事件原则

工艺设计应含有足够大的安全系数,使得在有关的各工艺条件中至少必须同时或相继发生两起不太可能发生且独立的变化,才有可能酿成临界事故。

4.3 几何控制

只要可能,就应依靠限制设备几何尺寸而不是行政管理措施来实施临界控制。在设计设备几何尺寸时,应充分利用工艺材料和设备的核特性。开始运行之前,必须核实所有赖以实施临界控制的几何尺寸和核特性,并且必须采取适当措施使它们保持不变。

4.4 中子吸收剂的应用

可以采用将中子吸收材料(如镉和硼)加入工艺材料或设备、或两者之中的办法来实施临界控制。必须采取适当措施,使加入的中子吸收剂持续保持其预期的分布和浓度。使用中子吸收剂的溶液时尤其要注意采取有效的控制措施。

4.5 次临界限值的确定

只要有合适的实验数据,就必须使次临界限值建立在由实验导出的数据之上,并应考虑所用数据的不确定度,留有适当的裕量。在无可直接利用的实验测量数据的情况下,可以根据计算结果导出次临界限值,但所用计算方法必须是经过验证的(见第 5 章)。

5 计算方法的验证

5.1 偏倚的确定

5.1.1 必须确定计算方法的偏倚。偏倚的确定应通过分析计算结果与相应临界实验结果之间的相关关系来确定,见附录 B(参考件)。

5.1.2 可用系统的 k_{eff} 计算值来表示计算结果与实验结果之间的相关关系;在这种情况下,偏倚即为 k_{eff} 的计算值与 1 之差。偏倚也可以用其他参数来表示。

5.1.3 应确定偏倚的不确定度。必须注意偏倚及其不确定度通常均不是常数,而是系统的材料组分及其他参数的函数。

5.2 适用范围的扩展

只有在能够根据已经建立的偏倚曲线,确定出计算方法在实验条件范围之外一定区域内的偏倚时,才可以将该计算方法的适用范围扩展到该区域。当扩展的范围较大时,应辅以其他计算方法,以使扩展区内的偏倚估算值更可靠。

5.3 次临界度的裕量

5.3.1 必须规定所用相关参数应具有次临界度裕量。该裕量要足以保证系统是次临界的;这种次临界度裕量可能会是组分及其他参数的函数。

5.3.2 所规定的次临界度裕量必须包括因偏倚有不确定度所需要的裕量;如果对适用范围进行了扩展,则还必须包括因这种扩展所导致的不确定度所需要的裕量。

5.4 计算机程序的校验

5.4.1 如果计算方法中包括有计算机程序,则必须对程序进行校验,以证明数学运算是按预定要求进行的。

5.4.2 如果对计算机程序作了修改,则必须重新进行校验。

5.5 核参数

计算中所用的核特性参数(如截面)必须是经过评价的。

5.6 计算方法验证的书面报告

必须将计算方法的验证工作写成书面报告。该报告必须:

- a. 对计算方法进行足够详细、清楚和确切的描述,以便他人能独立地复现其结果;
- b. 说明所用的计算机程序、其操作使用方法、网格的选择技巧、截面数据及所需要的其他输入参数值;
- c. 写出供计算方法验证用的实验数据,并列出由实验数据导出的各种参数;
- d. 说明该计算方法的适用范围;
- e. 说明在这个适用范围内计算方法的偏倚和所用相关参数的裕量;并说明选定这些次临界度裕量的依据。

5.7 计算方法的验证过程

参见附录 B(参考件)。

6 易裂变核素的单参数限值

6.1、6.2、6.3 和 6.4 条列出了一些易裂变核素孤立单体的单参数限值。它们是用满足第 5 章要求的计算方法算出的。如果这些限值的使用条件得到满足,则只须遵守其中的任何一个限值就可保证易裂变材料操作、加工和处理的临界安全¹⁾。

注: 1) 仅当能够证明单体周围的材料(包括附近其他可裂变材料)使有效增殖系数的增加不大于紧包着该单体的无限厚水层的贡献时,上述限值才可以应用。

如果要将上述限值应用于易裂变核素的混合物,则必须把混合物中每一种易裂变核素均当作其中

具有最小限值的那种核素来处理。

应该强调的是：制定工艺规范时还必须留有一定的裕量，以应付受控工艺参数的不确定度和该限值被意外地超过。

6.1 均一水溶液

在保持均一水溶液的前提下，即保持水溶液的浓度值不超过饱和溶液值时，表1中的任一限值都可以使用。如果铀-240的浓度大于铀-241的浓度，并在计算质量或浓度时把铀-241当作铀-239，则铀-239的限值也可适用于各种铀同位素的混合物。（当铀同位素混合物中的铀-240含量相当可观时，其限值可按7.3条的规定放宽。）

原子比限值与溶液浓度限值是等效的。但前者还可适用于非水溶液，且不必考虑易裂变核素的化学形式。

表1 易裂变核素均一水溶液系统的单参数限值

参 数	次 临 界 限 值		
	$^{235}\text{UO}_2\text{F}_2$	$^{235}\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	$^{239}\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$
易裂变核素质量, kg	0.76	0.78	0.48
溶液圆柱直径, cm	13.7	14.4	15.4
溶液平板厚度, cm	4.4	4.9	5.5
溶液体积, L	5.5	6.2	7.3
易裂变核素浓度, g/L	11.6	11.6	7.3
氢与易裂变核素原子数比	2 250	2 250	3 630
易裂变核素面密度, g/cm ²	0.40	0.40	0.25

6.2 含水混合物

表1的面密度限值可用于具有任何化学组成的易裂变材料。在面密度是均一的前提下，它们对可能具有密度梯度的混合物也是有效的。对于面密度可能并不均一的混合物，铀-235和铀-239的次临界质量限值分别是0.70和0.45kg，这两个限值也可用于具有任何化学组成的易裂变材料。

6.3 含水混合物的富集度限值

表2列出了与水均匀混合的铀金属及几种铀化合物的铀-235富集度限值。此时混合物中的铀金属和铀化合物的质量和浓度不受限制。

注：计算这些限值时，将“均匀”混合物中的干 UO_3 的平均粒径归一化为 $60\mu\text{m}$ 。 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 的二水水合物的平均粒径约为 $100\mu\text{m}$ 。这里的硝酸盐混合物的各种H/U比都是在0.32cm厚的聚乙烯球壳反射条件下得到的。

表2 与水均匀混合的铀金属和几种铀化合物的铀-235富集度限值

化 合 物	次临界限值, wt% ²³⁵ U
铀金属	0.93
$\text{UO}_2, \text{U}_3\text{O}_8$ 或 UO_3	0.96
$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	1.96

6.4 金属单体

表3列出的质量限值和铀富集度限值适用于无凹面的单个部件，并可推广适用于一堆小部件，条件是小部件之间无散置的慢化材料。

如果计算质量时把铀-234当作铀-235,则铀-235的限值适用于铀-235与铀-234、铀-236或铀-238的混合物。如果钷-240的浓度大于钷-241的浓度,并在计算质量时把所有钷同位素都当作钷-239,则钷-239的限值也适用于钷同位素的混合物。可以按同位素组成对密度限值进行调整。

表3 金属单体的单参数限值

参 数	次 临 界 限 值	
	铀-235	钷-239
易裂变核素质量,kg	20.1	5.0
圆柱直径,cm	7.3	4.4
平板厚度,cm	1.3	0.65
铀的铀-235富集度,wt%	5.0	-
质量和尺寸限值的最大密度,g/cm ³	18.81	19.82

6.5 氧化物

表4和表5的限值仅适用于含水量低于1.5wt%的氧化物。其中的质量限值适用于无凹面的单个部件,并可推广应用于一堆小部件。条件是小部件之间无附加的慢化材料。

以核素质量形式和以氧化物(包括湿气)质量形式给出的质量限值是等效的。应该强调的是,表4和表5中的限值只有在规定的整体密度限值限制得到满足的条件下才可以使用¹⁾。当湿气含量限制在1.5wt%以下时,表2中的铀氧化物富集度限值可适当增加。

注:1) 必须注意,材料(特别是UO₃)的密度可能会超过表4中的全密度。表4中的限值对于高度压实的氧化物是不适用的。不过,由于易裂变材料氧化物通常均呈松散粉末状,或者像UO₂,多以堆集在一起的芯块形式出现,从而使表4(也许还有表5)中的限值是有效的。希望得到其他密度限值的场合,将含水量保持在1.5wt%以下(H/U≤0.47)不大方便时,或者氧化物的化学配比不是理想情况时,可将这些限值用作导出更为适用的限值的出发点。

表4 含水量<1.5wt%的全密度铀与钷氧化物的单参数限值

参 数	次 临 界 限 值			
	²³⁵ UO ₂	²³⁵ U ₃ O ₈	²³⁵ UO ₃	²³⁹ PuO ₂
铀(钷)氧化物质量 ¹⁾ , kg	37.2	52.8	62.6	11.5
圆柱直径,cm	11.6	14.6	16.2	7.2
平板厚度,cm	2.9	4.0	4.6	1.4
使限值有效的最大整体密度 ²⁾ ,g/cm ³	$\frac{9.44}{1-0.086(1.5-w)}$	$\frac{7.41}{1-0.065(1.5-w)}$	$\frac{6.60}{1-0.057(1.5-w)}$	$\frac{9.92}{1-0.091(1.5-w)}$

注:1) 包括所含湿气的质量,湿气的最大含量小于其限定值(1.5wt%)。

2) w代表氧化物中以wt%计的含水量。

表 5 含水量 $<1.5\text{wt}\%$ 的小于半密度的铀氧化物的单参数限值¹⁾

参 数	次 临 界 限 值			
	$^{235}\text{UO}_2$	$^{235}\text{U}_3\text{O}_8$	$^{235}\text{UO}_3$	$^{239}\text{PuO}_2$
铀(钚)氧化物质量 ²⁾ , kg	102	146	174	30
圆柱直径,cm	20.4	26.0	28.8	12.6
平板厚度,cm	5.8	8.0	9.3	2.8

注: 1) 它们是表 4 最大整体密度的一半。

2) 包括所含湿气的质量,湿气的最大含量小于其限定值(1.5wt%)。

7 多参数控制

7.1~7.4 条给出了特别有用的几个多参数控制例子。这些限值是用满足第 5 章要求的计算方法算出的。必须注意,上述限值的使用条件是仅当能够证明系统周围所有材料(包括邻近的其它可裂变材料在内)使 k_{eff} 增加的量,不大于紧包该单体的无限厚水层的贡献时,才适用。

应该强调的是:制定工艺规程时还必须留有一定的裕量,以应付受控工艺参数的不确定度和该限值被意外地超过。

7.1 低富集度的金属铀-水混合物和铀氧化物-水混合物

多参数控制的一种用法是同时控制铀的铀-235 富集度和第 6 章中规定的一个参数。图 1 至图 5 分别给出了铀-235 质量、圆柱直径、平板厚度、体积和面密度等参数的次临界限值与富集度的关系,它们适用于各种尺寸和各种形状的铀金属或铀氧化物(UO_2)小块与水组成的系统。

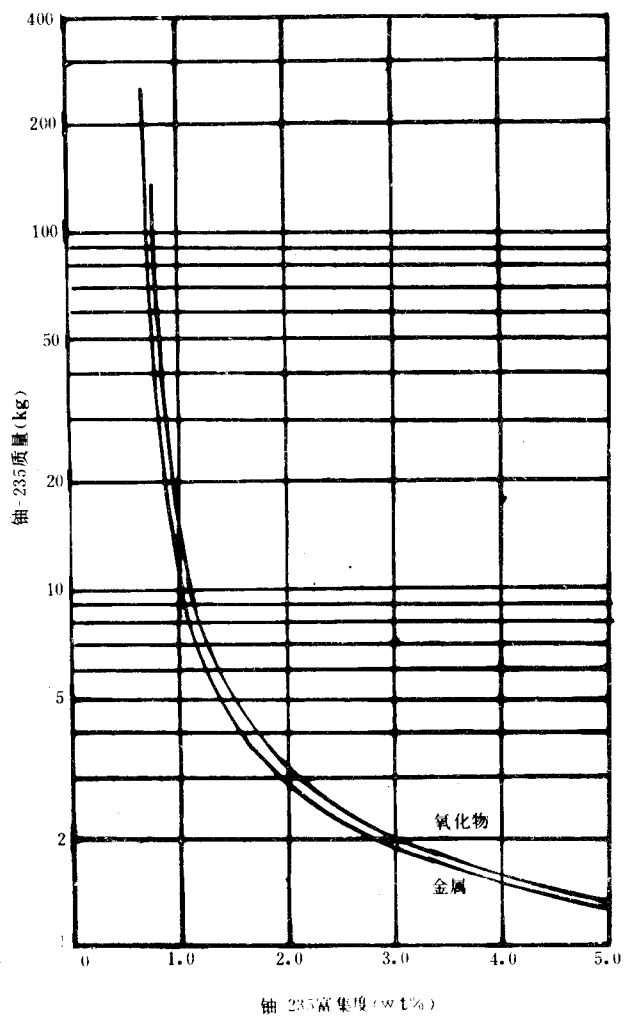


图1 铀水栅的质量限值

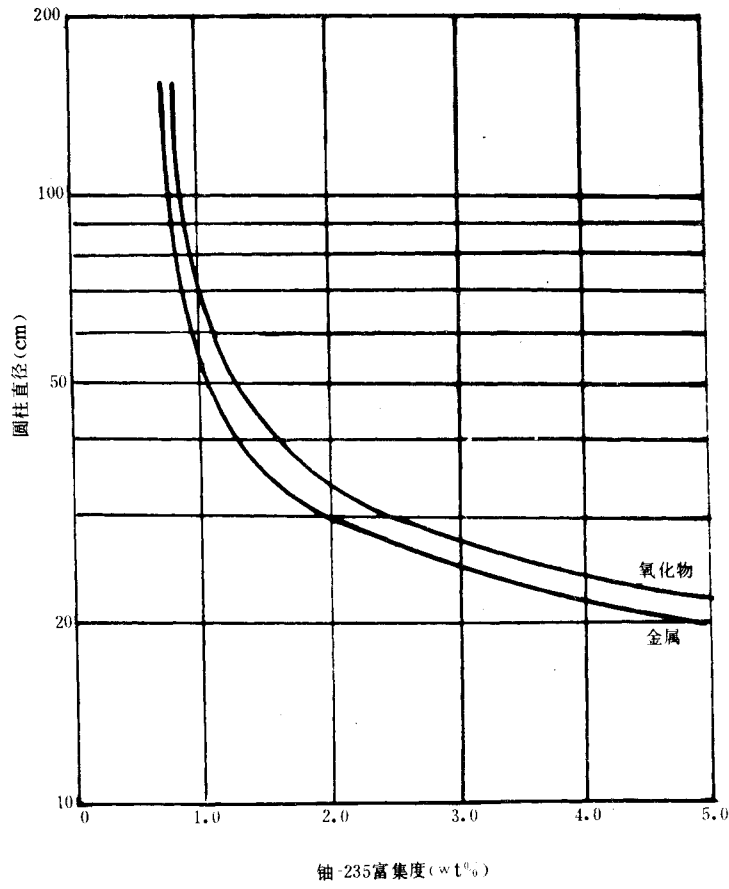


图 2 铀水栅的圆柱体直径限值

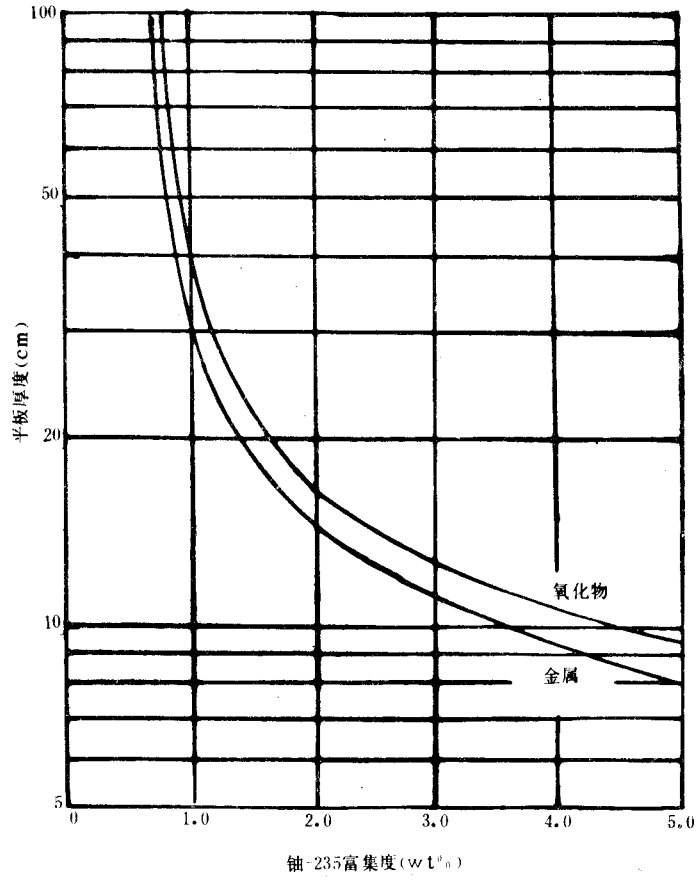


图3 铀水栅的平板厚度限值

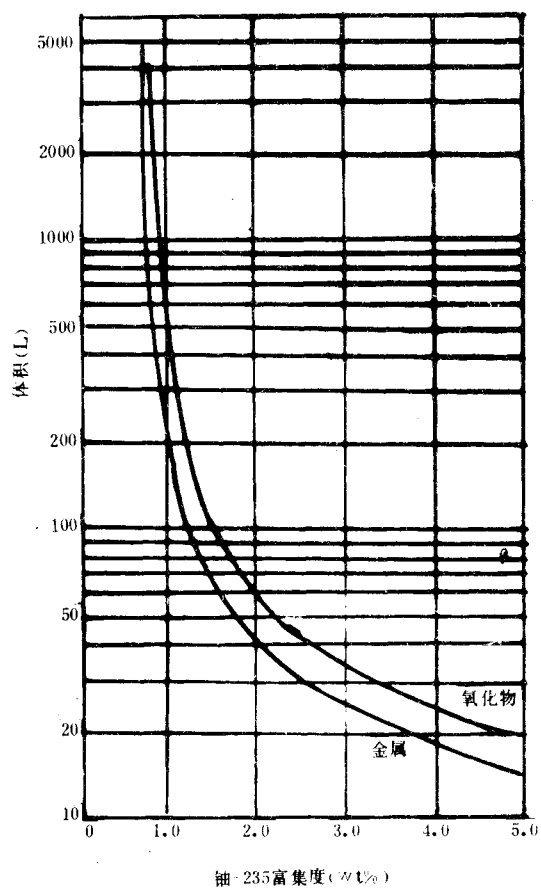


图 4 铀水栅的体积限值

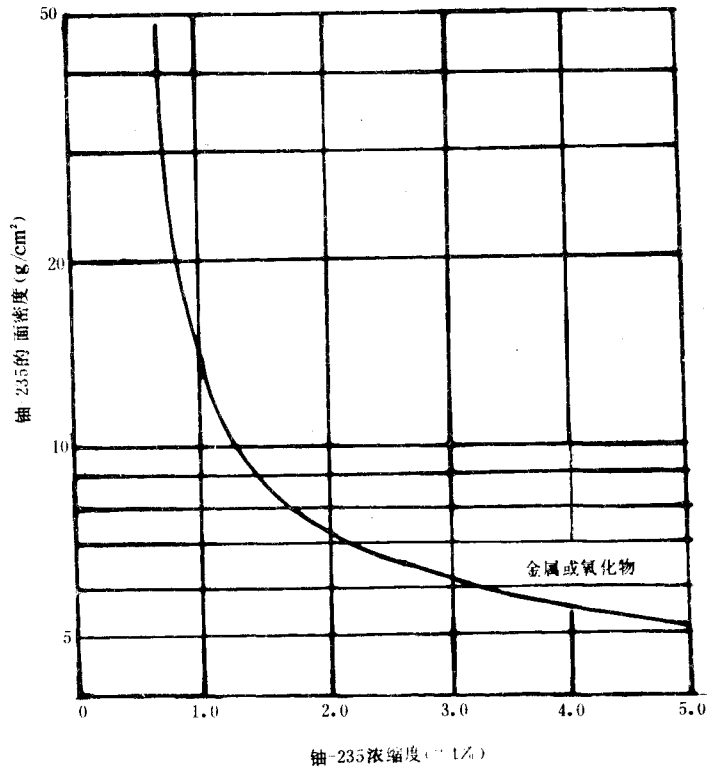


图 5 铀水栅的面密度限额

7.2 低富集度铀的水溶液系统

多参数控制的另一用法是对保持均一的铀水溶液同时控制铀的铀-235 富集度和表 1 中规定的一个参数。表 6 列出了将富集度控制在所述限值内时含铀均一水溶液的次临界限值。这里均一铀水溶液的浓度不得超过其饱和溶液的浓度(对于 UO_2F_2 溶液,其饱和溶液的浓度值取 5mol/L;对于 $UO_2(NO_3)_2$ 溶液,取 2.5mol/L)。

表 6 低富集铀均一水溶液系统的次临界限值

参 数	富集度 wt% ²³⁵ U	次 临 界 限 值	
		UO_2F_2	$UO_2(NO_3)_2$
铀-235 质量,kg	10.0	1.07	1.47
	5.0	1.64	3.30
	4.0	1.98	6.50
	3.0	2.75	—
	2.0	8.00	—
圆柱直径,cm	10.0	20.1	25.2
	5.0	26.6	42.7
	4.0	30.2	58.6
	3.0	37.4	—
	2.0	63.0	—

续表 6

参 数	富集度 wt % ²³⁵ U	次 临 界 限 值	
		UO ₂ F ₂	UO ₂ (NO ₃) ₂
平板厚度, cm	10.0	8.3	11.9
	5.0	12.6	23.4
	4.0	15.1	33.7
	3.0	20.0	—
	2.0	36.5	—
体积, L	10.0	14.8	26.7
	5.0	30.6	111.0
	4.0	42.7	273.0
	3.0	77.0	—
	2.0	340.0	—

7.3 含钚-240的 Pu(NO₃)₄ 均一水溶液

对于含钚-240的 Pu(NO₃)₄ 均一水溶液,可按钚中钚-240同位素的丰度,将表 1 中的 Pu(NO₃)₄ 溶液限值加大。但其增加量受制于钚-241的丰度。表 7 列出了三组不同同位素组成的 Pu(NO₃)₄ 均一水溶液的次临界限值。使用这些限值计算同位素组成时,必须将钚-238或钚-242扣除。

对于钚与天然铀完全混合的情况,其限值可进一步放宽。详细情况见 GB/T 15146.6。

表 7 含钚-240 硝酸钚均一水溶液系统的次临界限值

参 数	次 临 界 限 值		
	≥5wt % ²⁴⁰ Pu ≤1wt % ²⁴¹ Pu	≥15wt % ²⁴⁰ Pu ≤6wt % ²⁴¹ Pu	≥25wt % ²⁴⁰ Pu ≤15wt % ²⁴¹ Pu
质量, kgPu	0.57	0.78	1.02
圆柱直径, cm	17.4	19.5	21.3
平板厚度, cm	6.7	8.0	9.2
体积, L	10.0	13.6	17.2
浓度, gPu/L	7.8	8.9	10.2
氢与钚原子数比	3 340	2 980	2 600
面密度, gPu/cm ²	0.28	0.34	0.4

7.4 含钚-240的钚与水混合物

对于 PuO₂ 形式的钚与水的混合物(可以是非均匀的),其钚的次临界质量限值按照钚-240丰度的递增次序分别为 0.53、0.74 和 0.99kg。这三个限值所对应的三组钚-240和钚-241的同位素组成与表 7 相同。

附录 A
可能造成工艺条件变化的典型事例
(参考件)

按照 GB 15146.1 的要求,必须周密地确定每一工艺过程在正常和可信异常工况下是次临界的,并要弄清哪些工况下 k_{eff} 最大。下面是一些值得考虑的造成工艺条件变化的一些典型例子:

- A1** 由于容器凸胀、腐蚀或破裂,或制造时不符合技术条件,使容器偏离规定形状或规定尺寸。
- A2** 由于误操作、标签不当、设备故障、或样品分析操作出错,使易裂变材料质量增加。
- A3** 由于下列原因使慢化剂与易裂变材料原子数之比偏离规定值:
- a. 仪器或化学分析方法不准确;
 - b. 水、油、雪(即低密度的水)、纸板、木料或其他慢化材料,以淹没、喷淋或以其他方式影响单体或多体系统;
 - c. 慢化剂的蒸发或转移;
 - d. 溶液中易裂变材料沉淀;
 - e. 添加慢化剂使浓溶液稀释;
 - f. 空气泡进入贮存水池内的燃料组件排之间。
- A4** 由于下列原因使中子损失份额改变:
- a. 固体吸收剂因腐蚀或浸出而损失;
 - b. 慢化剂数量改变;
 - c. 溶液中的中子吸收剂或易裂变材料因沉淀而重新分布;
 - d. 慢化剂或溶液中的固体中子吸收剂因聚集而重新分布;
 - e. 加到溶液中的中子吸收剂未达到规定数量,或者未达到规定的分布方式;
 - f. 样品分析技术未能得到正确的浓度数据。
- A5** 由于下列原因使反射效率改变:
- a. 出现额外材料(例如水或人体)引起反射体厚度增加;
 - b. 反射体组分变化,使中子吸收剂减少(例如因吸收剂包壳被腐蚀)。
- A6** 由于下列原因使单体之间、单体与反射层之间的相互作用变化:
- a. 出现额外的单体或反射体(例如人体);
 - b. 单体放置位置不当;
 - c. 单体间的慢化剂和吸收剂损失;
 - d. 保持单体间隔的架子倒塌。
- A7** 易裂变材料密度增加。

附录 B
计算方法验证示例
(参考件)

本附录给出一个虚构的示例,目的在于说明如何按照第 5 章的规定验证计算方法。其中的 ^{292}Fi 是一种虚构的易裂变核素。

B1 问题

验证一种用于计算水反射的 ^{292}Fi 溶液次临界质量限值的方法,其溶液浓度为 $2\sim 32\text{g}^{292}\text{Fi}/\text{L}$,形状

不限。

B2 方法

选用的方法由适用于球形系统的 XYZ 计算机程序和一组三群截面组成。溶液被盛在带水反射的球形薄壳容器中。容器壳的核特性与水的核特性无明显的不同。

可供利用的临界实验数据如表 B1 所示。

表 B1 可供利用的临界实验数据

浓度 $\rho, \text{g}^{292}\text{Fi/L}$	临界半径, cm
2	19.9
8	10.7
16	10.2

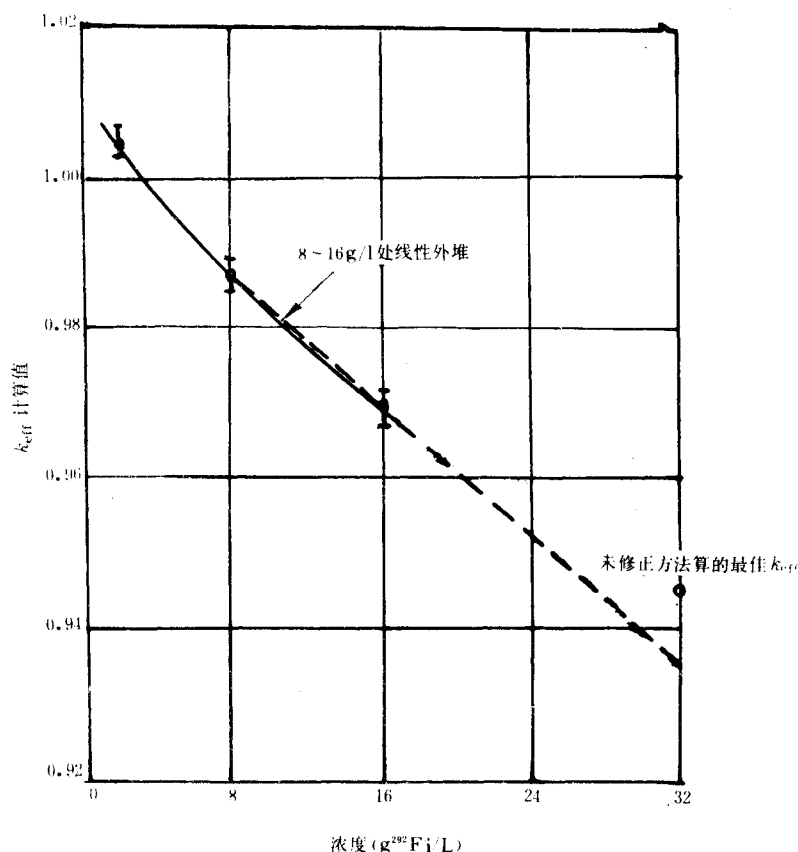
B3 验证

B3.1 将 XYZ 程序装入当地计算机。用该程序计算程序本身所带的例题。将所得结果与程序原编制者利用该程序计算同一例题所得到的结果进行比较。比较结果表明该程序能在当地的计算机上正确地计算多区球形系统。

B3.2 对三个实验点进行计算。所得结果如表 B2 所示。表中标出的误差是由实验数据的误差带来的。所作的计算收敛到 k_{eff} 的计算误差为 ± 0.0001 , 这一误差与实验误差相比是很小的。在实验数据所覆盖的范围内 ($2 \sim 16 \text{g}^{292}\text{Fi/L}$), k_{eff} 的计算值差不多是浓度的线性函数, 而且似乎没有理由会偏离光滑曲线。但是, 必须将计算方法的适用范围扩展到浓度为 $32 \text{g}^{292}\text{Fi/L}$ 处。在 $2 \sim 16 \text{g}^{292}\text{Fi/L}$ 之间, k_{eff} 与浓度的关系曲线呈轻微的凹状(见图 B1)。因此, 如果将 8 和 $16 \text{g}^{292}\text{Fi/L}$ 两点的 k_{eff} 计算值线性外推到 $32 \text{g}^{292}\text{Fi/L}$ 处, 得到的 k_{eff} 估计值可能明显偏小, 如图 B1 所示。线性外推所得结果是 $k_{\text{eff}} = 0.936$ 。显然, 由于外推的范围较大, 需要另找支持性数据。

表 B2 对三个实验点的计算结果

浓度 $\rho, \text{g}^{292}\text{Fi/L}$	k_{eff}
2	1.0046 ± 0.0057
8	0.9864 ± 0.0041
16	0.9696 ± 0.0041

图 B1 临界实验系统 k_{eff} 计算值与 ^{292}Fi 浓度关系

B3.3 鉴于计算出的 k_{eff} 随浓度的增加而偏小,为此专门进行了研究以查明其原因。研究结果发现: ^{292}Fi 的超热俘获截面的不确定度很大,这可能是造成 k_{eff} 计算结果随浓度增加而偏小的原因。为此,将超热俘获截面调小 20%,重新计算后得到的结果如表 B3 所示。这一改动使 k_{eff} 随浓度的增加而出现的偏移大大减小,预计在浓度为 $32\text{g}^{292}\text{Fi}/\text{L}$ 处的 k_{eff} 值大约为 1.01。

表 B3 用修正后的方法获得的结果

浓度 $\rho, \text{g}^{292}\text{Fi}/\text{L}$	k_{eff}
2	1.0109
8	1.0084
16	1.0106

B3.4 对浓度为 $32\text{g}^{292}\text{Fi}/\text{L}$ 的系统完成了如表 B4 所列出的计算。表中数据表明,对该两个系统的计算结果,其反应性差或相对偏倚为 $\delta k_{eff}/k_{eff} = -0.068 \pm 0.002$ 。