

核堆-3007

在动力反应堆内生产放射性 同位素的现实性和经济性研究

中国科学院原子核科学委员会編輯委员会

文 献 編 輯 室 編 輯

內 容 簡 介

本文以六种具有代表性的放射性同位素——鈷⁶⁰、氙、碳¹⁴、磷³²、鈉²⁴和鉀⁴²为例，討論了在希平港压水堆、德累斯頓沸水堆和皮卡有机慢化堆內生产放射性同位素的問題。文章在說明了生产和处理同位素的一般問題之后，具体分析了在各个反应堆內适于生产同位素的位置、靶料的装入量、同位素产量、靶料对反应堆的影响等方面的問題。

文中对經濟方面的問題也作了分析。因所占篇幅不大，而且有一定的参考价值，故予保留。

譯自美国原子能委员会报告 AECU-4355, "A Study of the Feasibility and Economics of Radioisotope Production in Power Reactors", 由 C. B. Magee 等著。1930年2月出版。由蔡銘呆譯，聶錦麟校。

目 录

摘要.....	1
第一章 緒言.....	4
一、研究目的.....	4
二、研究中考慮的几种同位素.....	4
三、研究中的做法.....	5
第二章 同位素生产和处理的一般性問題.....	7
一、激活計算.....	7
二、同位素生产中涉及的化学問題.....	13
三、可銷售的同位素生产費用.....	18
第三章 德累斯頓沸水堆內同位素生产.....	23
一、反应堆的描述.....	23
二、可放置靶的部位.....	24
三、各个靶位的描述和推荐的靶材料装入量.....	24
四、在选定部位生产的总放射性和比放射性.....	29
五、靶材料对反应堆的影响.....	33
六、經濟分析.....	36
七、摘要和結論.....	41
第四章 皮卡有机减速反应堆內同位素生产.....	43
一、反应堆的描述.....	43
二、可放置靶的部位.....	44
三、各个靶位的描述和推荐的靶材料装入量.....	44
四、在选定部位生产的总放射性和比放射性.....	47
五、冷却-减速剂中的同位素生产.....	50
六、靶材料对反应性的影响.....	52
七、經濟分析.....	54
八、摘要和結論.....	59
第五章 希平港压水堆內同位素生产.....	60
一、反应堆的描述.....	60
二、可放置靶的部位.....	60
三、各个靶位的描述和推荐的靶材料装入量.....	61
四、在选定部位生产的总放射性和比放射性.....	63
五、經濟分析.....	67
六、摘要和結論.....	71
附录A 靶激活的特殊情况.....	72
附录B 通量扰动問題.....	74

附录C 对于加入反应堆活性区的毒素的补偿问题.....	76
附录D 增高德累斯顿反应堆中燃料浓缩度所需的费用.....	79
附录E 增高皮卡有机减速反应堆中燃料浓缩度所需的估计费用.....	81
参考文献.....	83

摘 要

这份研究报告涉及到在三种动力反应堆内各种不同部位生产的六种具有代表性的放射性同位素的比放射性（以每克靶核的居里数计算）和总放射性的确定问题。所考虑的同位素是钴⁶⁰（5.28年）^①、氚（12.26年）、碳¹⁴（5600年）、磷³²（14.3天）、钠²⁴（15.0小时）和钾⁴²（12.4小时）。所考虑的三种特定型式的动力反应堆是德累斯顿沸水堆、皮卡有机减速反应堆和希平港压水堆。

这项研究工作的另一个任务是进行同位素生产的经济分析。这种分析包括：根据现行价格确定可能获得的收入，估算总费用和估计每种同位素的新价格（对现行的原子能委员会售价而言）。这些新价格是根据每种同位素生产的估计成本和生产者的合理利润（15%的销售利润）确定的。

下面是研究所得的一些重要和一般性的结论：

1. 如果选用最佳的靶位，并且假定靶的装入量非常保守，则所有三种反应堆都能生产出极大量的（与目前的市場情况相比）氚、碳¹⁴和比放射性较高的钴⁶⁰（每克10至30居里）。显然，总产量取决于反应堆的类型，并与反应堆的大小成比例：德累斯顿反应堆最大，希平港反应堆次之，皮卡反应堆最小。

2. 在所考虑的反应堆活性区内没有一处位置（皮卡有机减速反应堆中的有机减速-冷却剂除外）适宜于生产寿命较短的同位素（磷³²、钠²⁴和钾⁴²），原因是无法频繁和周期性地接近那些部位。因此，建议在每一反应堆活性区的边缘装设传送管，作为在这些反应堆内生产短寿命同位素的唯一实用的方法。

3. 采用传送管，则所有三种反应堆（在磷³²的生产方面希平港反应堆除外）均能生产出许多倍于现行市場销售量的短寿命同位素（包括所考虑的三种短寿命同位素和其他许多短寿命同位素），以及除此之外的许多其他中等寿命的同位素。

4. 在三种反应堆中任一反应堆的活性区圆筒或内部热屏蔽之外所考虑的靶位都不适宜于同位素生产，因为这些地方的热中子和快中子通量很低。

选出以下两种特殊的同位素生产方式进行经济分析：（1）反应堆综合生产所考虑的六种同位素，产量仅等于美国1959年所有这六种同位素的估计市場销售量（或为其生产能力的一部分）；（2）单一生产最大量的各种长寿命同位素或磷³²。未考虑钠²⁴和钾⁴²的最大限度生产量，因为所有反应堆对这两种同位素的生产能力大大超过任何合理假定的市場销售量。

六种同位素的1959年估计市場销售量是将1959年1月至6月的美国原子能委员会销售量线性推算到年末而求出的。表1对推算的计划市場情况和1959年财政年度中原子能委员会的实际销售量（完成了同位素产量计算后即可获得此数据）进行了比较。

若进行综合生产（上述第一种方案），则德累斯顿反应堆能够生产出等于1959年全部计划市場销售量（或稍少一些）的所有六种同位素。希平港反应堆具有等于84%每种长寿命

① 括号内的时间为半衰期——校者注

表 1 1959 年六种同位素计划销售量与实际销售量的比较

同 位 素	1959年计划市场销售量 (居里)	1959年财政年度销售量 (居里)
钴 ⁶⁰	183,000	210,982
氙	40,800	50,063
碳 ¹⁴	14.4	12.7
磷 ³²	166.0	183.3
钠 ²⁴	5.0	4.2
钾 ⁴²	13.0	11.2

同位素 (钴⁶⁰、氙和碳¹⁴) 1959年计划市场销售量, 37%磷³² 的市场销售量及许多倍于钠²⁴ 和钾⁴² 市场销售量的生产能力。皮卡反应堆具有相当于每种长寿命同位素1959年计划市场销售量的40%和许多倍于磷³²、钠²⁴ 及钾⁴² 市场销售量的生产能力。根据在德累斯顿和希平港反应堆内综合生产等于1959年市场销售量或其一部分的同位素情况, 估算出了各种同位素的新价格。对于在皮卡反应堆内综合生产同位素的情况, 没有估算新的价格, 因其生产长寿命同位素的能力很低。表 2 列出了在德累斯顿和希平港反应堆内进行综合生产时的同位素估计价格, 及原子能委员会的现行价格, 以资比较。

表 2 综合生产时的同位素估计新价格

同 位 素	原子能委员会的 每居里价格*	每 居 里 的 新 价 格	
		德 累 斯 顿	希 平 港
钴 ⁶⁰	3,105美元**	0,379美元	0.65 美元
氙	2,192美元	1,095美元	1.84 美元
碳 ¹⁴	13,341美元	4,000美元	4,730美元
磷 ³²	1,290美元	1,020美元	1,485美元
钠 ²⁴	8,600美元	10,440美元	10,620美元
钾 ⁴²	2,800美元	4,700美元	4,780美元

* 这些价格包括了操作费用。

** 钴⁶⁰ 的价格取决于比放射率。所给价格是在德累斯顿反应堆内生产的钴⁶⁰ 的价格。在希平港反应堆内可以生产出三种等级的钴⁶⁰, 其原子能委员会价格分别为每居里2,105美元、3,105美元和4,105美元。

在最大量地单一生产每种长寿命同位素和磷³² 的情形下, 根据所生产的全部同位素都能销售出去的假设估算了新价格。表 3 归纳列出了三种反应堆的这种分析结果。

表 3 中列出的新价格可与表 2 中列出的原子能委员会价格相比较。在皮卡和希平港反应堆中均能生产出三种等级的钴⁶⁰, 其原子能委员会价格将分别为每居里 2,105 美元 (1—10 居里/克), 3,105 美元 (11—25 居里/克), 4,105 美元 (26—40 居里/克)。

兹对以上两表中所概括的结果作如下一些说明:

1. 不论是综合生产或是单一生产, 生产长寿命同位素 (钴⁶⁰、氙和碳¹⁴) 在经济上都比生产短寿命同位素更为有利。除了在皮卡反应堆内的氙的生产之外, 每一种情况都表明了长寿命同位素的价格可大大降低。短寿命同位素在比较中处于不利地位, 因为研究中所使用的价格计算公式受包装费用的影响极大, 而且短寿命同位素的装货件数较长寿命同位素要多得多。假如将包装费用降低或增加每一装货件的平均居里数, 则短寿命同位素的价格将可相应地降低。

表 3 德累斯顿沸水堆中的最大产量

同 位 素	年产量 (居里)	等于1959年计划市 场销售量的倍数	每居里的新的 估 算 价 格	按15%计算的 年 利 润
钴 ⁶⁰	581,500	3.2	0.47 美元	41,060美元
氙	335,620	8.2	1.38 美元	69,580美元
碳 ¹⁴	141.6	9.8	2,820美元	59,780美元
磷 ³²	408	2.5	1,530美元	93,630美元
皮卡有机减剂反应堆中的最大产量				
钴 ⁶⁰	159,030	0.87	0.80 美元	19,030美元
氙	47,790	1.17	2.26 美元	16,330美元
碳 ¹⁴	30.13	2.07	4,970美元	22,410美元
磷 ³²	6,552	39.5	557美元	546,650美元
希平港压水堆中的最大产量				
钴 ⁶⁰	243,520	1.33	0.71 美元	25,870美元
氙	166,840	4.09	1.36 美元	33,900美元
碳 ¹⁴	72.3	5.02	3,000美元	32,610美元
磷 ³²	81.5	0.49	2,390美元	29,200美元

2. 在这项研究所作的经济分析中, 未考虑放射性同位素的衰减因素。衰减对于碳¹⁴的价格毫无影响, 对氙的价格也几乎没有影响。放射性总量的衰减损失或许会使钴⁶⁰的价格增高10%至20%。所有三种反应堆都能生产出大大超过于市场销售量的钠²⁴和钾⁴²。因此, 这类同位素的过量生产将是补偿操作处理和运输时的衰减损失的一种可行的办法。然而, 这并不意味着在处理过程中可以不要求速度; 这类同位素的半衰期非常之短, 以致放射性总量会在几天之内消失殆尽。在德累斯顿和皮卡反应堆内, 可以过量生产磷³², 但在希平港反应堆中不能过量生产。在这三种反应堆中, 皮卡有机减剂反应堆是最适合于生产磷³²的, 因为可以装置传透管的地方的快中子通量较高。为补偿衰减损失的过量生产势必使处理费用有所增高, 但并不会影响在短寿命同位素生产中具有主导作用的包装费用。

3. 虽然由于所能生产出来的长寿命同位素仅占现行市场销售量的一小部分, 因而未估算在皮卡有机减剂反应堆内综合生产所有六种同位素时的新价格, 但是已经估算出生产等于市场销售量40%的长寿命同位素和等于全部市场销售量的其他同位素所需的费用为每年308,530美元。上述数量的同位素的价值, 根据现行的原子能委员会价格计算, 约为650,000美元。显然, 价格有降低的余地, 而生产者仍可获得合理的利润。在较大的有机减剂反应堆中, 价格甚至可以进一步降低。可变费用随产量成正比增长, 但固定费用将保持不变, 大约与研究中为皮卡有机减剂反应堆所估计的固定费用相同。

第一章 緒 言

一、研究目的

关于在核反应堆内生产同位素的问题已经进行过很多研究。其中最重要的有：阿貢国立实验室的一个研究小组所做的关于一个同位素生产反应堆的全面设计研究^[1-12]；菲利浦石油公司的一个研究小组所做的关于一个专门用于生产钴⁶⁰的材料试验反应堆的概念设计研究^[1-23]；布鲁克海文国立实验室 Pierce 和 Richman 两个所做的关于一个同时生产工业蒸汽和钴⁶⁰的反应堆的初步设计研究^[1-33]；西屋电气公司 Morris 和 Schultz 两人所做的关于在试验用反应堆中生产同位素的研究^[1-42]；以及最近由通用核工程公司完成的关于综合生产钴⁶⁰和氙用的最佳反应堆系统的研究^[1-53]。

上述的大多数研究所涉及的是专为生产同位素而设计的反应堆，而本文所考虑的是在专门发电的反应堆内生产同位素的问题。目的之一是要确定，在不大大地影响反应堆的设计或输出功率的条件下是否可能进行有意义的同位素生产。另一个目的是要确定，可能生产的各种同位素的比放射性和总放射性以及生产费用是否能达到如此的地步，使反应堆经营者或其他对同位素生产感兴趣的私人企业有利可图。

正如下一节中将要讨论的，本文仅限于考虑少数几种放射性同位素的生产。但是，这并不意味着只打算生产本文所考虑的那几种同位素；只不过是用这些同位素作为可以实现的同位素生产数量和质量的具有代表性的重要例子而已。

研究中考虑了三种类型的热中子动力反应堆，即沸水堆、压水堆和有机减速剂反应堆。考虑的这三类反应堆的具体例子为：德累斯顿沸水堆、希平港压水堆和皮卡有机减速剂反应堆。虽然在研究过程中必然密切涉及到这三个反应堆的特殊设计，但是并不希望本文的研究结果仅应用于这三个反应堆，相反，却希望本文报道的研究结果能一般地适用于目前正在设计的，或者更现实些说，适用于将来要设计的上述三种反应堆类型。

二、研究中考虑的几种同位素

研究中考虑了六种同位素的生产：钴⁶⁰、碳¹⁴、氙¹³³、磷³²、钠²⁴和钾⁴²。所以选择钴⁶⁰的原因是因为这种同位素在放射线照相和放射线治疗中得到广泛的应用，为此，它的每年总居里数销售量是所有同位素中的最大一种，并且因为它将来有可能被用作极大规模的照射源。后一种用途看来取决于钴⁶⁰的价格能否大大地降低^[1-63]。碳¹⁴的销售量虽不大，但是它在科研工作中非常重要；它的单位成本很高。所以把它包括在内，是因为它的销路是确有保证的，而且它的成本降低具有很大的重要性。然而，必须了解到，含碳¹⁴示踪原子的化合物的成本，由于在其制备和分配中所耗的劳动力，不会因碳¹⁴价格的降低而随着大大降低。选择在工业上和科研工作中都很重要的氙是因为它的销售量比较大，并且看来将大量与时俱增。磷³²主要在医学方面得到很重要的应用，虽然，销售的居里数较少，由于它的单

位成本很高，所以每年的收益是很大的。同样，它的成本降低也很重要。本文之所以考虑在医学研究领域中有用，但目前需要量还不大的鈉²⁴和鉀⁴²，主要是为了研究在上述三类反应堆内生产短寿命同位素的可能性问题。

被研究的六种同位素和有关于它们的选择问题的一些数据列于表 I-1 中。

表 I-1 关于所选六种同位素的数据

同 位 素	半 衰 期	原子能委员会的 每居里销售价格	1959 财 政 年 度	
			銷出的居里数	收 入 *
Co ⁶⁰	5.28 年	2至5 美元	210,982	691,008美元
H ³	12.26 年	2 美元	50,063	106,035美元
C ¹⁴	5600 年	13,000 美元	12.7	286,090美元
P ³²	14.3 天	1000至3000美元	183.3	193,036美元
Na ²⁴	15.0小时	7000 美元	4.2	10,872美元
K ⁴²	12.4小时	2000 美元	11.2	22,438美元

* 收入中未包括每次装货的16美元的操作处理费用。

在表 I-1 中可以看出，其中有三种同位素的寿命极长，而另外三种的寿命比较短。由于半衰期的不同，因此需要采用不同的方法生产该两组同位素。这一事实将在本报告的后几章中着重加以讨论。

表 I-1 中的原子能委员会销售价格抄自橡树岭的产品目录和价格表^[1-7]，并且根据 1959 年 6 月份的情况作了修订。如表 I-1 中所示，钴⁶⁰的价格随着比放射性的不同，在每居里 2 至 5 美元之间变化。比放射性很高的磷³²，在装运量小于和等于 249 毫居里时，其价格为每居里 1100 美元，装运量超过 249 毫居里时为每居里 1000 美元，而无载体的磷³²的价格是每居里 3000 美元，这种价格范围在表中也表示出来了。有关销售的居里数和 1959 年财政年度收入额的数据是由同位素发展局工业照射处处长 J.E.Machurek 提供的^[1-8]。

三、研究中的做法

为了进行本文的研究工作，可以有多种做法。一种做法是先确定同位素的市场销售水平，然后分析反应堆为满足假定的市场需要的生产能力。接着再分析生产费用。对这种做法曾经做过了认真的考虑，但是最终被放弃了，因为假设的市场销售水平是武断的，不确切的，而且只有反应堆本身才能最好地确定它自己的生产能力。因此，所采取的做法是，确定每一反应堆中的每种同位素的最大产量，将产品的质量和数量与当前的要求相比较，接着分析综合生产各种同位素时的产量，最后对适合于每一反应堆的最大产量或综合性生产方式的具体情况进行经济分析。

这种解决问题的做法步骤如下：

1. 确定所能生产的六种同位素的随中子通量和照射时间而变化的比放射性。
2. 选定供生产这六种同位素用的适当的靶材料。
3. 确定三个反应堆活性区内或其周围可能放置靶材料的部位。
4. 就可以用来装放靶材料的管子类型和可能装入的靶材料总量，对每一选定的部位进行分析。

5. 根据选定部位处的有效中子通量，计算出在适度的照射时间内所能生产的每一种同位素的比放射性和总放射性。

6. 根据第 5 个步骤中所得出的结果，取消那些不适用的同位素生产位置，不再进行考虑。

7. 仅仅利用最好的靶位，确定每种同位素的最大产量和所有六种同位素的综合生产产量。

8. 针对最大产量及综合生产方式进行经济分析，并根据 15% 的同位素销售利润确定新的价格。

在本报告的第二章中，将讨论六种同位素的一般性生产问题，其中包括计算同位素产量的诸方程，靶材料的处理，以及处理和运输同位素所需的设备和费用。

在第三、第四和第五章中，将详细讨论三个反应堆内的同位素生产问题。在这三章的末尾都扼要叙述了所得出的、有关每一反应堆中同位素生产问题的一些较重要的结论。

第二章 同位素生产和处理的一般性问题

一、激活计算

1. 一般激活方程

这里要讨论的是置于核反应堆中子通量内的稳定靶核的激活问题。概括放射性同位素的增长率和损失率的微分方程式如下:

$$\frac{dN_p(t)}{dt} = \phi \sigma_{ac}^T N_T(t) - \lambda_p N_p(t) - \phi \sigma_{ab}^P N_p(t) \quad (1)$$

方程中的符号含义如下:

$$\frac{dN_p(t)}{dt} = \text{放射性同位素产品原子浓度随时间变化的速率 (原子/厘米}^3\text{/秒)}$$

$$\sigma_{ac}^T = \text{靶核的激活截面 (产生所希望的同位素) (厘米}^2\text{/核)}$$

$$\phi = \text{相应的中子通量 (中子/厘米}^2\text{/秒)}$$

$$N_T(t) = \text{靶核的原子浓度 (原子/厘米}^3\text{)}$$

$$\lambda_p = \text{放射性同位素产品的衰变常数 (秒}^{-1}\text{)}$$

$$N_p(t) = \text{放射性同位素产品的原子浓度 (原子/厘米}^3\text{)}$$

$$\sigma_{ab}^P = \text{放射性同位素产品的总吸收截面 (厘米}^2\text{/核)}$$

方程(1)中右面第一项表示通过靶核的激活而得到的放射性同位素增量,第二项表示因放射性衰减而造成的损失,第三项是由于放射性同位素产品本身吸收中子而造成的损失。第一项(增量项)取决于靶核的浓度,而此浓度本身为时间的函数。对于稳定的靶核,浓度与时间的函数关系如下式所示:

$$N_T(t) = N_T^0 \exp(-\phi \sigma_{at}^T t) \quad (2)$$

式中: N_T^0 ——时间为零时的靶核原子浓度, ϕ ——相应的中子通量, σ_{at}^T ——靶核的总吸收截面(厘米²/核), t ——从零开始的照射时间(秒)。将方程(2)代入方程(1),并在 t 等于零时 $N_p(t)$ 为零的条件下进行积分,即得下式:

$$N_p(t) = \frac{\phi \sigma_{ac}^T N_T^0}{(\lambda_p + \phi \sigma_{ab}^P - \phi \sigma_{at}^T)} \left\{ \exp(-\phi \sigma_{at}^T t) - \exp(-[\lambda_p + \phi \sigma_{ab}^P] t) \right\} \quad (3)$$

式中符号的含义与前同。

方程(3)给出了放射性同位素的原子浓度(原子/厘米³)。

将方程(3)乘以 λ_p , 除以靶核的质量密度(克/厘米³)和每居里相当的每秒衰变数(3.7×10^{10})即可求得比放射性[居里/克(靶核)]。因为靶核的原子浓度等于其质量密度乘以阿伏伽德罗常数(6.0248×10^{23}), 除其原子量, 所以将方程(3)变换为比放射性后, 结果得出如下形式的方程:

$$A_p(t) = \frac{\lambda_p \phi \sigma_{ac}^T N^0}{A_T (3.7 \times 10^{10}) (\lambda_p + \phi \sigma_{ab}^P - \phi \sigma_{at}^T)} \times$$

$$\times \left\{ \exp(-\phi \sigma_{ab}^T t) - \exp(-[\lambda_p + \phi \sigma_{ab}^T] t) \right\} \quad (4)$$

式中: $A_s(t)$ ——放射性同位素的比放射性 (居里/克靶核), N^0 ——阿伏伽德罗常数, A_T ——靶原子的克原子量, 其余符号的含义与前同。

本文将利用方程(4)计算在所述三个动力反应堆内的各种不同位置产生的六种同位素 (钴⁶⁰、氟、碳¹⁴、磷³²、钠²⁴和钾⁴²) 的放射性。

2. 对长寿命同位素的应用

本文所考虑的三种长寿命同位素是钴⁶⁰、氟和碳¹⁴。所有这三种同位素是由于稳定靶核俘获了热中子而产生的。因为这些同位素的半衰期较长, 所以需要较长的照射时间才能获得较高的比放射性。由于照射时间较长, 因而需要考虑靶核的燃耗问题, 为此, 必须使用以上给定形式的方程(4)。

计算这三种同位素的产量时所用的有关参数列于表 II-1 中。表中给出的氟和碳¹⁴的半衰期取材于1956年4月版的核素表^[2-1]。钴⁶⁰的半衰期及所有热中子(2200米/秒)截面数据来源为1958年7月版的BNL-325^[2-2]报告。

钴⁶⁰的生产反应并非如表 II-1 中所示那样简单。实际上, 约44%的钴⁵⁹俘获热中子的结果产生半衰期为10.4分的准稳态钴^{60m}。因为99.7%的钴^{60m}蜕变是同质异能跃迁为5.28年的钴⁶⁰, 并且因为钴^{60m}的半衰期较短, 所以在钴⁶⁰的产量计算中略去中间同位素是可以的。

表 II-1 中所示钴⁵⁹的激活截面与吸收截面之间的差别 (36 与 37 靶恩之间的差数)、可能并不真实, 因为除了钴⁶⁰的形成之外, 文献中未指出还有其他反应。这里将采用 36 靶恩作为上述两种截面之值。

氮¹⁴的激活截面与吸收截面之间的差异是实在的。1.75靶恩是(n,p)的反应截面, 此截面与总吸收截面(1.88靶恩)之间的差数是形成氮¹⁵的(n,r)反应截面。

表 II-1 H³, Co⁶⁰, C¹⁴ 及其靶核的生产反应和核参数

同位素	半衰期	$\lambda_0(\text{秒}^{-1})$	生产反应	2200 米/秒截面(靶恩)			平均截面(靶恩)		
				σ_{av}^T	σ_{ab}^T	σ_{ab}^P	σ_{ac}^T	σ_{ab}^T	σ_{ab}^P
H ³	12.26 年	1.795×10^{-9}	Li ⁶ (n, α)H ³	945	945	可略去	605	605	可略去
Co ⁶⁰	5.28 年	4.17×10^{-9}	Co ⁵⁹ (n, γ)Co ⁶⁰	36.0	37.0	6	23.0	23.7	3.8
C ¹⁴	5600 年	3.93×10^{-12}	N ¹⁴ (n, p)C ¹⁴	1.75	1.88	可略去	1.12	1.20	可略去

表 II-2 P³², Na²⁴, K⁴² 及其靶核的生产反应和核参数

同位素	半衰期	$\lambda_p(\text{秒}^{-1})$	生产反应	相当的平均截面, σ_{ac}^T (靶恩)
P ³²	14.3天	5.6×10^{-7}	S ³² (n, p)P ³²	0.10
Na ²⁴	15.0小时	1.28×10^{-5}	Na ²³ (n, γ)Na ²⁴	0.343
K ⁴²	12.4小时	1.55×10^{-5}	K ⁴¹ (n, γ)K ⁴²	0.705

表 II-1 中列出的平均截面是利用适用于 $1/v$ 规律的截面公式, 根据 2200 米/秒截面值计算出来的, 得出计算式如下:

$$\sigma(\text{平均}) = \sigma(2200 \text{ 米/秒}) \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sqrt{\frac{393^\circ K}{T^\circ K}}$$

此公式给出的平均截面是可与“中子温度”为 $T^\circ K$ 时, 在麦克斯韦-玻耳兹曼分布范围内积分而得的热中子通量配合使用的一种截面。在非吸收介质中, “中子温度”即是介质的温度。在吸收介质中, 低能中子的优先吸收使中子的能谱硬化, 于是使“中子温度”稍高于介质温度。本文所考虑的三个反应堆(德累斯顿、皮卡和希平港)中的减速剂的平均温度在 525 至 $550^\circ F$ 之间。因为不知道精确的中子能谱硬化程度, 而且为了限制所需的计算次数, 所以假定所有三个反应堆内的“中子温度”都是 $550^\circ F$ (或 $561^\circ K$)。

若上面的公式中使用这一温度值, 则使 2200 米/秒截面变换为平均热中子截面值的因数为 0.64。这一因数被用来计算表 II-1 中列出的所有平均截面。

表 II-1 中列出的参数之值已被用于方程 (4) 中, 用以确定三种长寿命同位素的比放射性, 对于各种不同的热中子通量值, 比放射性都是照射时间的函数。图 II-1 中示出了获得的有关钴⁶⁰生产方面的某些结果, 此图是描述长寿命同位素比放射性的时间行为的典

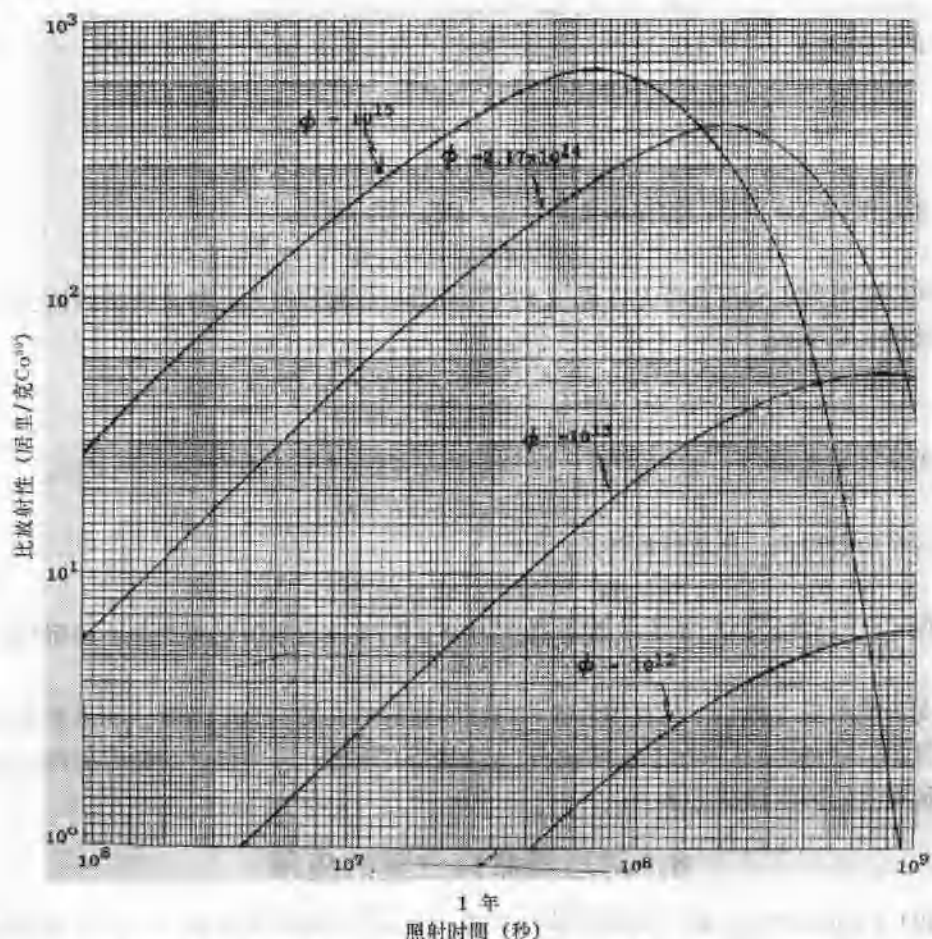


图 II-1 在各种不同有效热中子通量值下, 所得钴⁶⁰的比放射性与照射时间的函数关系

型例子。可以看出,对应于每一通量值,在比放射性-时间曲线上有一最大值——通量越大,达到最大值的时间越短。在过了最大值之后,由于靶的燃耗影响变得愈益重要,于是比放射性随着时间而降低。在绘制图 II-1 中的曲线时选用了对应于通量 2.17×10^{14} 的值,因为在这种通量情况下,方程(4)中的两个指数项在生产钴⁶⁰时是相等的,因而可求出方程的奇解。

在本报告的后几章中,将报道在三个动力反应堆中所能产生的比放射性。为了便于比较,对于所有三个反应堆中生产的三种长寿命同位素都采用一年的照射时间。在图 II-2 中,绘出了一年时间内可以获得的钴⁶⁰和铯的比放射性随热中子通量而变的曲线关系。可以看出,在这两种情况中,当中子通量较高时,两种同位素的比放射性均趋于不变,不再增加。铯的比放射性曲线的变直较钴⁶⁰更为显著,这是因为铯¹³⁷的截面较大。任何一种情况下的绝对最大比放射性都只能在中子通量为无限大值时才可达到。对于铯,在通量为 10^{14} 时极接近于绝对的最大比放射性。

图 II-2 未示出碳¹⁴的生产情况,因为在照射时间为一年和中子通量达到 10^{14} 的数量级时,碳¹⁴的产量随照射时间和中子通量成线性关系增加。现在来考虑方程(4)中的指数项。它们是:

$$\exp(-\sigma_a^T t) - \exp(-[\lambda_p + \phi \sigma_a^P]t)$$

假如指数很小(对于上述条件下的碳¹⁴的生产来说就是如此),则可写作:

$$\exp(-\phi \sigma_a^T t) = 1 - \phi \sigma_a^T t$$

和

$$\exp(-[\lambda_p + \phi \sigma_a^P]t) = 1 - [\lambda_p + \phi \sigma_a^P]t$$

如在方程(4)中一样,将两项重新合併,则得下列因数:

$$(\lambda_p + \phi \sigma_a^P - \phi \sigma_a^T)t$$

上式中乘时间 t 的組合項在方程(4)的分母中也同样存在。将此公因式消去,方程(4)就简化成下式:

$$A_s(t) = \frac{\lambda_p \phi \sigma_a^T N_0 t}{A_T (3.7 \times 10^{10})} \quad (5)$$

将表 II-1 中所列关于碳¹⁴生产的一些参数代入方程(5),则得到下面的结果:

$$A_s(t) = 5.13 \times 10^{-24} \phi t$$

在一年的时间内,比放射性将为:

$$A_s(1 \text{ 年}) = 1.62 \times 10^{-16} \phi \quad (6)$$

方程(6)已被用来计算中子通量高达 10^{14} 中子/厘米²/秒时的碳¹⁴随通量而变的比放射性。

本文研究中所考虑的、具有较大吸收截面的靶材料仅钴⁵⁹和铯¹³⁷两种。应当着重指出的是,在计算这些靶的激活时所用的热中子通量都是有效值,其中已计及靶所引起的扰动。中子通量有效值的求法见附录 B。

3. 对短寿命同位素的应用

方程(4)可以被简化成一种更简单的形式,用以计算本文所考虑的三种寿命较短的同位素(磷³², 钠²⁴, 钾⁴²)的比放射性,方程(4)可以简化成更简单的形式。首先,在所有

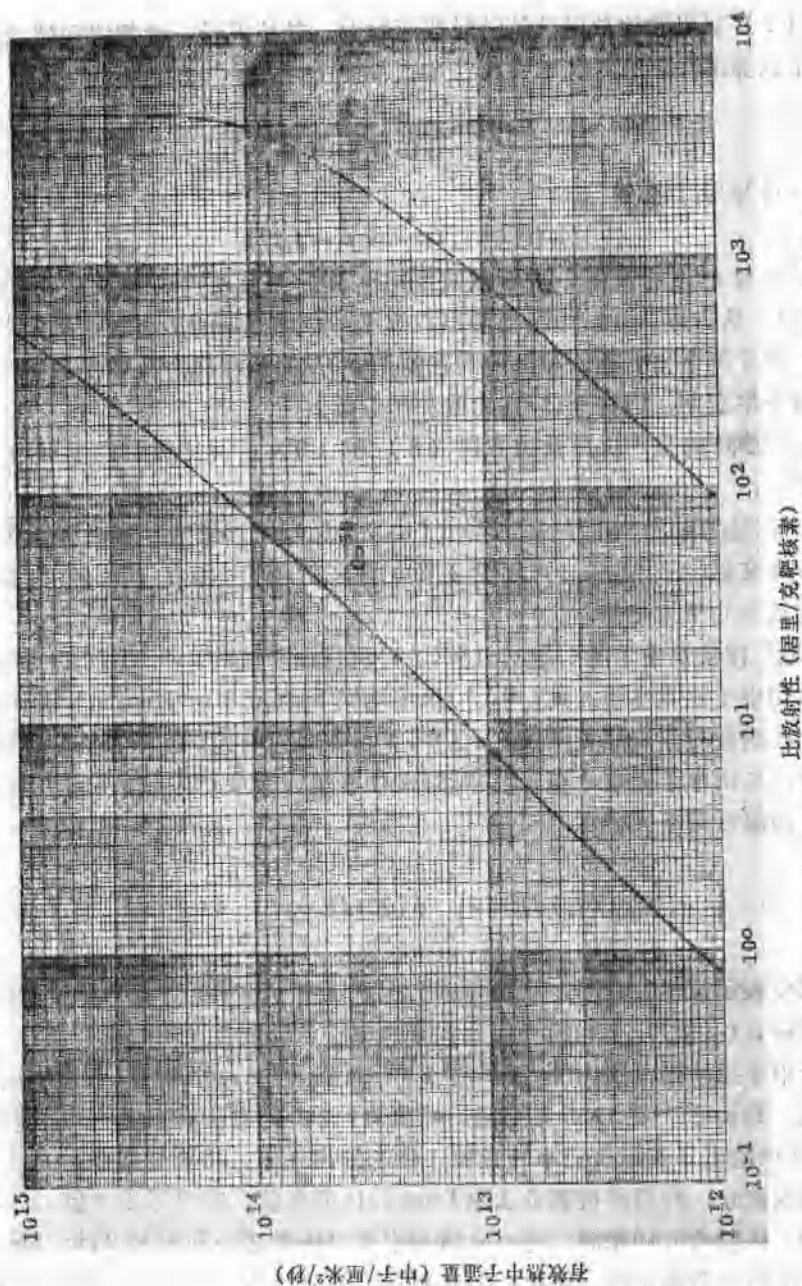


图 II-2 一年照射时间内所生产的钴⁶⁰和氚的比较放射性与有效热中子通量的函数关系

情况下，諸放射性核的吸收截面均可忽略不計，因此不存在 σ_{a0}^T 这个参数。其次，靶核的吸收截面也很小，以致对于任何合理的照射时间和通量来说，可以不考虑它的燃耗，于是，方程(4)中的第一个指数项实质上等于一。同样，对于任何合理的通量值来说，与 λ_p 值比较， $\phi\sigma_{a0}^T$ 项小得可以不計，因此可从 $(\lambda_p - \phi\sigma_{a0}^T)$ 式中消去。在这些条件下，方程(4)便简化成如下形式：

$$A_S(t) = \frac{\phi\sigma_{a0}^T N^0}{A_T(3.7 \times 10^{10})} (1 - \exp(-\lambda_p t)) \quad (7)$$

由方程 (7) 算出的比放射性值随时间而增大, 并接近于一常数饱和值。比放射性的饱和值可按式算出:

$$A_s^s = \frac{\phi \sigma_a^T N^0}{A_T (3.7 \times 10^{10})} \quad (8)$$

故方程 (7) 可写为:

$$A_s(t) = A_s^s (1 - \exp(-\lambda_p t)) \quad (9)$$

达到饱和比放射性的快慢取决于放射性同位素的半衰期 (或衰变常数, 此常数等于 $0.693/\text{半衰期}$)。从方程 (9) 中很易看出, 等于一个半衰期的照射时间将能产生 $1/2$ 的饱和比放射性。等于两个半衰期的照射时间将能产生 $3/4$ 的饱和值; 三个半衰期, 则将为 $7/8$ 的饱和值; 四个半衰期, 则将为 $15/16$ 的饱和值等等。

磷³², 钠²⁴和钾⁴²的生产反应及按方程 (8) 和 (9) 计算比放射性所用的各有关参数列于表 II-2 中。

钠²⁴和钾⁴²都是通过由热中子所引起的 (n, γ) 反应而产生的。这些反应的 2200 米/秒激活截面自参考文献 [2-2] 得来。可用第 2 节中所讨论的同一因数 (0.64) 将 2200 米/秒的截面值换算为适当的平均热值。

磷³²是由硫³²俘获快中子所引起的 (n, p) 反应而产生的。此反应的实际阈处在稍低于 2 兆电子伏的中子能量水平。此 (n, p) 反应的实际反应率是在适当的能量区内, 将快中子通量分布函数与作为能量函数的、 (n, p) 截面的乘积积分求得的。如 Hughes^[2-3] 所讨论的那样, 当快中子通量分布为已知时 (例如直接由裂变产生的快中子情况), 这种阈反应截面的平均值可用下式表示:

$$\int_0^\infty \sigma(E) \phi(E) dE = \bar{\sigma} \int_0^\infty \phi(E) dE = \sigma^0 \int_{E(\text{有效})}^\infty \phi(E) dE$$

式中第一个积分表示实际反应率, $\bar{\sigma}$ 是与总的积分快中子通量配合使用的平均值, σ^0 是一个仅与有效能阈 $E(\text{有效})$ 以上的那一部分积分快中子通量配合使用的截面值。

关于裂变中子通量谱范围内 $S^{32}(n, p)P^{32}$ 反应的 $\bar{\sigma}$, σ^0 和 $E(\text{有效})$ 的许多不同数值已有过报道。Trice^[2-4] 在 1955 年报道, σ^0 值为 0.280 靶恩及有效阈值为 2.8 兆电子伏。在 Trice 的论文中给出了实际反应率的数值, 但未给出 $\bar{\sigma}$ 值。将裂变中子通量分布函数在 0 至 ∞ 的范围内积分, 并用所得积分去除 Trice 的反应率值, 即可求得 $\bar{\sigma}$ 值。曾经做过这种计算, 求得的 $\bar{\sigma}$ 值约为 0.10 靶恩。这一 $\bar{\sigma}$ 值与本报告作者之一利用较 Trice 所用的更新的截面数据所求出的近似值相符。因此, 0.10 靶恩已被公认为可与总积分裂变中子通量配合使用的 $S^{32}(n, p)P^{32}$ 反应的平均截面。

将表 II-2 中给出的参数代入方程 (8), 得出作为热中子通量函数的钠²⁴和钾⁴²每克靶核的饱和比放射性计算式为:

$$A_s^s(\text{Na}^{24}) = 2.42 \times 10^{-13} \phi \quad (10)$$

和

$$A_s^s(\text{K}^{42}) = 2.80 \times 10^{-13} \phi \quad (11)$$

为了生产这些放射性, 假定的照射时间为七天。此时间代表基本上达到饱和放射性所需的足够的半衰期数。因此, 方程 (10) 和 (11) 即被用来计算钠²⁴和钾⁴²的产量。

将生产磷³²的参数代入方程(8)即得:

$$A_s^s(P^{32}) = 5.10 \times 10^{-14} \phi_F \quad (12)$$

式中 ϕ_F 是裂变谱总积分通量。对于磷³²的生产,假定的照射时间为两个半衰期(28.6天)。如上面所指出的,方程(9)表明,这样的照射时间能得到3/4的饱和放射性。因此,在本报告的后面几章中将用下式计算磷³²的产量:

$$A_s(P^{32}) = 3.82 \times 10^{-14} \phi_F \quad (13)$$

4. 同位素生产的特殊情况

在本文报道的研究过程中,必须处理要求修改基本方程的两种特殊激活情况。一种是含有靶核的循环流体进、出于中子通量场的情况。另一种情况是含有靶核的循环流体不仅进、出于中子通量场,而且还在恒定速率下进行净化和补充。适用于这两种特殊情况的方程的推导见附录A。

二、同位素生产中涉及的化学问题

为了生产出可以销售的同位素,除了靶材料在堆内的照射之外,还涉及到许多问题。在照射之前必须进行靶材料的制备,然后须将靶包装在适当的材料内。照射之后,必须将靶材料从容器中取出来,而且在大多数情形下,必须用化学方法将所需要的同位素从靶中的其他元素中分离出来,然后制成适合于包装和运输的化学形态。在许多情况下,化学处理费用往往占可销售同位素最终成本的很大一部分。

动力反应堆经营者仅提供生产同位素所需的照射设备是可能的。如此安排的话,则化学处理将由其他单位负责,这些单位可以是专门建立起来的化学处理公司,或是那些制备标记化合物的公司。这样就需要将照射过的靶材料运往处理地点,然后再从这些地点运至经销公司或消费单位。对于短寿命同位素的生产,除非处理地点距生产反应堆很近,否则,这种安排方案是十分不现实的。

我们感到,处理和运输准备是同位素生产中非常重要的部分,而且这方面的费用往往很大,因此如果不彻底考虑这两方面的问题,是不全面和真实的。所以,在以下几段中,将就以下几个问题,对本文所研究的六种同位素逐一进行讨论分析:靶材料及其制备;照射后的操作处理和加工成可销售的同位素的方法。在本章的第三节中将考虑这些同位素的生产费用。

1. 氚

有二篇研究报告在一定程度上详细叙述了由 $Li^6(n, \alpha)H^3$ 反应生产氚的问题。其中一篇报告叙述了在橡树岭石墨堆内利用中子照射锂⁶(LiF)得到的最初几立方厘米氚的生产和纯化情况^[2-5]。另一篇报告介绍了英国哈威尔研究所的氚生产方法,此方法中所采用的靶材料是一种含12%Li-88%Mg的合金^[2-6]。虽然在本文报道的研究工作中考虑选用LiF作为靶材料,仍将在下面讨论这两种方法。

(a) 靶材料及其制备

由于下列原因,在橡树岭选用了LiF作为生产氚的原料化合物: