

反应堆控制材料论文集

科学出版社

反应堆控制材料论文集

中国科学院原子核科学委员会編輯委员会編译

科学出版社

1964

內 容 簡 介

本論文集中包括了有关反应堆控制材料、控制棒制造方法,选择控制材料的原则,以及对控制材料的核性能要求等十六篇文章。其中描述了各类控制材料的吸收性能、机械性能、抗腐蝕性能及抗輻射损伤能力等。

反 应 堆 控 制 材 料 论 文 集

中国科学院原子核科学委员会編輯委员会編譯

*

科学出版社出版 (北京朝阳門大街 117 号)

北京市书刊出版业营业許可証出字第 061 号

中国科学院印刷厂印刷 新华书店总經售

*

1964 年 5 月第 一 版

书号: 2961 字数: 203,000

1964 年 5 月第一次印刷

开本: 850×1168 1/32

(京) 0001—2,200

印张: 7 11/16

定价: [科七] 1.30 元

目 录

控制材料的核性能要求·····	1
关于反应堆控制吸收材料选择的若干问题·····	13
反应堆控制用吸收材料·····	30
硼及含硼材料·····	42
含硼控制材料·····	72
硼不銹鋼合金·····	86
分別固定的含硼毒素(吸收)棒·····	101
用作反应堆控制材料的碳化硼·····	117
压水反应堆(PWR)用的控制棒材料銀-鈾-鎳合金的 冶金設計及性能·····	129
核反应堆控制用的銀基合金的熔炼和制造·····	158
用粉末軋制法制造金属陶瓷控制棒·····	175
复合控制棒的制备·····	183
实验性沸騰水反应堆(EBWR)控制棒的材料、制造及性能··	192
鉛控制棒制造方法的一些新发展·····	203
一些稀土元素金属陶瓷体的抗輻照损伤性能·····	217
用圓形模子热挤压复杂形状的一种方法·····	228

控制材料的核性能要求

斯蒂文司 (H. E. Stevens)

美国纽约州斯开奈克塔蒂城诺尔斯原子动力实验室*

本文研究了对用于热中子能谱或近热中子能谱动力反应堆的控制材料的控制能力有影响的核因素。同时比较了用作中子吸收剂的一些主要元素及同位素,并叙述了在物理上对这些元素和这些同位素的要求,如棒的厚度、表面密度及重量比等。本文也说明了超热吸收的重要性及动力反应堆中因长期中子照射引起燃料的核效应,并叙述了吸收同位素(如镅)的特点,最后说明了包皮及毒物稀释剂的散射截面对控制能力的有害影响。

中子吸收材料主要用来控制热中子能谱或近热中子能谱的反应堆。在选择控制材料时,首先应考虑的问题是吸收截面,因为棒必须对热中子有足够大的“黑度”,但“黑度”又不宜过大。为了测定材料是否有足够大的截面,通常用 $N\sigma t$ 作为标准来衡量,这里的 N 是每立方厘米緻密材料所含的原子数, σ 是麦克斯韦中子能量分布下的平均微观热吸收截面,而 t 是控制棒翼片的厚度。如果某种毒物的 $N\sigma$ 不够大,这可能是因

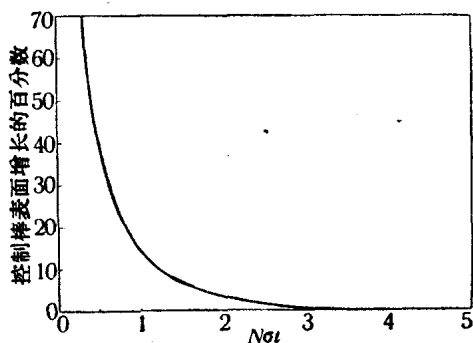


图1 控制棒表面增长值与黑度的关系
(假定 $N\sigma t < \infty$)

* 美国原子能委员会委托通用电气公司管理。

为其理論密度太低，或是因为它在其母体材料中的浓度受到冶金方面的限制，不过可以通过应用較厚的控制翼片或增加控制棒的表面来达到核性能方面的要求。

图 1 說明了当 $N\sigma t < \infty$ 时要求相应增长的控制棒表面积。图中的曲綫实际上是与棒周围介质的 L/λ 有关的（这里的 L 是扩散长度，而 λ 是輸运平均自由程）。然而，这不是决定性的参数。图 1 是选用 $L/\lambda = 2$ 为代表值作出的。通常选择 $N\sigma t = 2$ 作为棒厚度过大与表面过大之間的折衷值。此后，为了方便起见， $N\sigma t = 2$ 将被称为“黑度”标准。在这基础上，表 1 第八栏列出了对于几种热中子毒物，热黑度所需要的毒物总量。

在选择控制棒材料时，另一要考慮的問題是毒物原子由于在长期持續的高功率反应堆中被中子照射而引起的燃耗或損失。在功率运轉期間，控制棒有一部分豎插在活性区的高中子流中，特别是如果裂变产物氙引起反应性瞬时变化，那就更需用控制棒了。例如，在濃縮鈾活性区寿命期間，以功率 100 兆瓦运轉 4000 小时就可在裂变中生产出約 200 克分子的中子。据估計，約有 10% (20 克分子) 的中子将被控制棒吸收。棒吸收中子后，黑度一般是降低了，因而如果棒在 4000 小时后仍需滿足黑度标准，在开堆前就必须先加上額外的毒物。理想的情况是将額外毒物不均匀地加入，因为棒吸收中子是不均匀的。表 1 第九栏列出了在理想的情况下燃耗所需的額外毒物最低量^[1]。需要的額外毒物总量是在下述假設基础上进行計算的，即假設在燃烧期間，有 20 克分子的吸收核被烧掉了。吸收核的同位素丰度在計算額外毒物时已考慮在內，而所有子元素的吸收截面都假設为零。銻有几个重要的有吸收能力的子元素，在本文总结內將較詳細地說明它。

为了制造簡便，通常是希望把毒物材料均匀地分布在棒中。在这种情况下，表 1 中所列材料的最低量是很不够的，因为不均匀的燃耗会使棒的局部效能遭受破坏。燃耗所需的額外毒物最大数量約为平均燃耗的六倍。按最大数量毒物設計出的棒在反应堆活性区寿命期間內不会失去任何效能。

表中許多低截面的吸收剂,其“黑度”所需的总量要比燃耗所需的最低量(20 克分子)还大相当多。在这种情况下,不均匀的燃耗是个不重要的問題。这些低截面的吸收剂有铯、銀、銻、鉛、銻及金。对这些毒物說来,如果它們均匀地分布在棒中,表中所列出的总量便是足够的。然而,要注意,銀棒約需有 1/4 吋厚才能成为“黑体”。另一方面如果冶金方面需要的話,铯可以作为包皮或制成合金。銻具有和铯相同的用途,虽然它的燃耗較大。

平均热截面为 3470 靶的硼-10,不必用很大的量,就能使棒成为黑体。因此,最初均匀分布的毒物的不均匀燃烧問題是极其严重的,为避免失控所需的硼的总量約为表 1 所列最低总量的两倍。在較高截面材料如鎘或釷的情况下,表中所列的总量必需增大一倍以上。对截面处于鉛¹⁷及硼¹⁰之間的吸收核來說,表中所列的总量应增加 1—2 倍。

目前,銻和釷作为控制毒物的可能性是值得注意的。尤其銻更值得注意,因为它有五种有助于避免因燃耗而引起失去控制的相邻吸收同位素。只有其中两种同位素,即鏈中的第一种及第三种,出現在天然銻中。天然釷有两种极高截面的吸收同位素及五种小截面或未知截面的同位素,那两种高吸收同位素 Gd¹⁵⁵ 及 Gd¹⁵⁷,其間显然并无很強的吸收同位素,因而不能形成如銻那样的同位素鏈。通常釷比銻更迅速地失去其作为毒物的效能,因而不适用于棒的高燃耗部份。然而,釷要比銻便宜得多,并能以合理的浓度用于控制棒的低燃耗部份。

天然銻含有 47.8% 的 Eu¹⁵¹ 及 52.2% Eu¹⁵³。这些同位素和另外三种高吸收同位素的截面列于下表:

Eu ¹⁵¹	9000 ± 3000 靶
Eu ¹⁵² (13 年)	5500 ± 3000 靶
Eu ¹⁵³	420 ± 100 靶
Eu ¹⁵⁴	1500 ± 400 靶
Eu ¹⁵⁵	1400 ± 4000 靶

Eu¹⁵¹ 的吸收可能形成 Eu¹⁵² 的两种同質异能素的一种。大約以

表

元素或核	平均热面 截 (靶)	重要同位 素的丰度 (%)	黑体的表 面 密 度 (克/厘米 ²)	密 度 (克/厘米 ³)	厚 (厘米)	度 (吋)
锂	62		0.362	0.53	0.68	0.270
锂 ⁶	818	7.52	0.024	0.53	0.045	0.018
硼	651		0.054	2.3	0.023	0.009
硼 ¹⁰	3470	18.8	0.0093	2.3	0.004	0.0016
铯	130		2.56	12.5	0.20	0.080
银	54		6.47	10.5	0.62	0.240
银 ¹⁰⁷	26	51.4				
银 ¹⁰⁹	71	48.6				
镉	2210		0.165	8.6	0.0192	0.0077
镉 ¹¹³	18000	12.3				
铟	165		2.26	7.3	0.310	0.124
铟	4760		0.100	7.2 ^b	0.0139	0.0055
铟 ¹⁴⁹	57200	13.8				
铊	3980		0.128	7.3 ^b	0.0175	0.0070
铊 ¹⁵¹	7800	47.8				
钨	39800		0.0128	7.6 ^b	0.0017	0.00068
钨 ¹⁵⁵	60600	14.7				
钨 ¹⁵⁷	139000	15.7				
铋	950		0.55	8.1 ^b	0.068	0.027
铋 ¹⁸¹	2340	28.2				
铋	144		3.78	8.6 ^b	0.44	0.176
铋	96		6.05	?	~0.67	0.270
铋 ¹⁷⁶	3120	2.6				
铅	91		6.38	13.4	0.471	0.188
铅 ¹⁷⁷	320	18.4				
铪	73		8.28	20	0.414	0.166
铪	372		1.6	22.4	0.075	0.030
铪 ¹⁹¹	820	38.5				
铪 ¹⁹³	104	61.5				
金	85		7.52	19.3	0.392	0.157
汞	330		1.97	14.22	0.138	0.0552
汞 ¹⁹⁹	2160	16.8				

a: 6×10^3 吋² 控制厚片表面(一面)。

b: 用X射线法测得的氧化物密度。

黑体所需 总量 ^a (公斤)	20克分子燃 耗所需的总 量(公斤)	总 量 (公斤)	总 厚 度 (吋)	用 法		在 200 吋寬不 銹鋼片中的重 量比(%)
				单一材料	彌散体	
13.7	1.6	15.3	0.300			
0.9	0.12	1.02	0.020		b	0.67
2.05	1.06	3.11	0.014		b	1.39
0.35	0.20	0.55	0.0025		b	0.23
97.1	2.0	99.1	0.082		b	52
245	2.2	247	0.242			
6.24	18.4	24.6	0.030		b	4.4
85.1	2.3	87.4	0.128	b		
3.85	21.5	25.3	0.036		b	3.0
4.66	6.36	11.0	0.017		b	
0.48	10.2	10.7	0.0151		b	0.35
20.8	11.6	32.4	0.042		b	14.8
143	?	?	?	?		
229	135	364	0.430			
241	19.4	252	0.197	b		
314	3	317	0.167	b		
63.4	10	73.4	0.035		b	34
28.4	4	288	0.159	b		
74.5	23.8	98.3	0.073		b	44

16% 的几率形成寿命十分短的同质异能素, 它将蜕变成成为钷的低截面同位素。其余 84% 的吸收形成寿命 13 年的 Eu^{152} 。把铈的五种同位素联系起来的微分方程已经解出了^[2]。天然铈的同位素

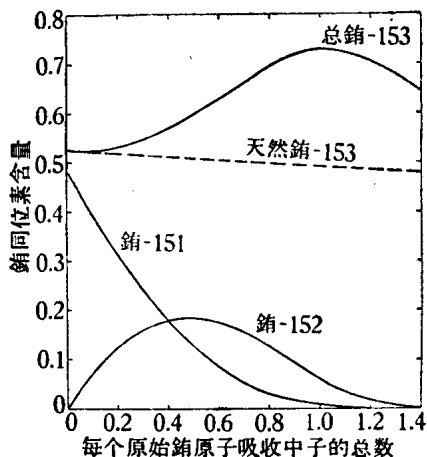


图2 铈同位素随吸收中子总数的变化——第一部分

无论如何, 表 1 中热黑体所需的毒物量是最佳的数值。就是在慢化很好的反应堆中, 超热吸收对控制能力的贡献也是十分重要的。要使控制棒成为对超热中子的黑体, 需要更多的毒物, 这在图 5 中说明, 在图 5 中对 1/16 吋厚的镉片与 0.200 吋厚的铪片进行了比较; 同时还示出了一个典型的热中子能谱。该能谱之尾部一直延伸到远远超过了镉在 0.4 电子伏处折断的能谱。在超热

成份与每个初始铈原子所吸收的中子数的函数关系表示在图 2 与图 3 中。天然铈的相对截面与燃耗的关系见图 4。从图 4 可以得到两个结论。每个原始铈原子吸收一个以上的中子处的坪表明, 当天然铈数量七倍于热中子黑体所需数量时, 即能维持无限长期的燃耗。第二, 表 1 中所示的 20 克分子燃耗所需的铈的总量高了二倍。

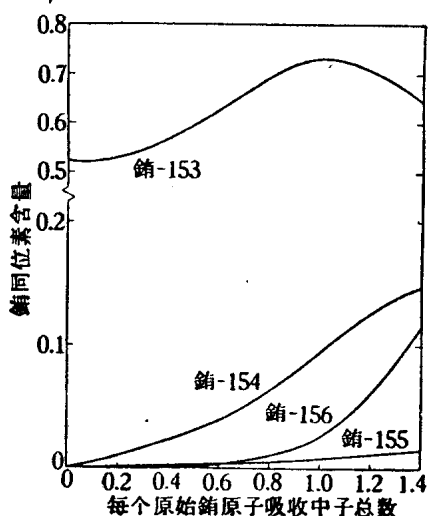


图3 铈同位素随吸收中子总数的变化——第二部分

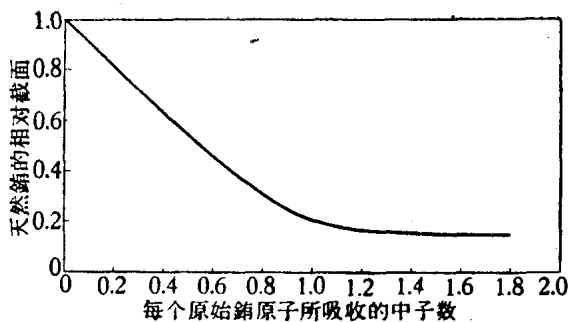


图4 天然鈾的截面随所吸收的中子总数的变化

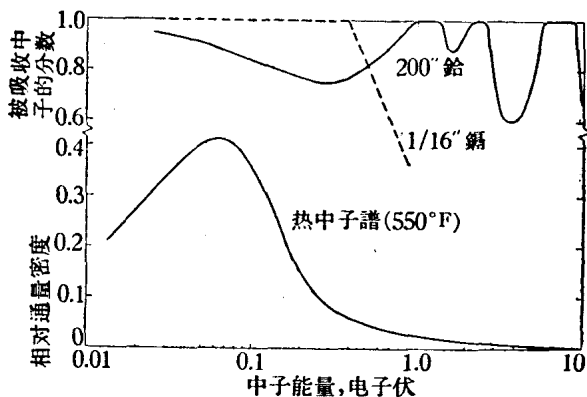


图5 鈾和鈾的吸收能力的比较

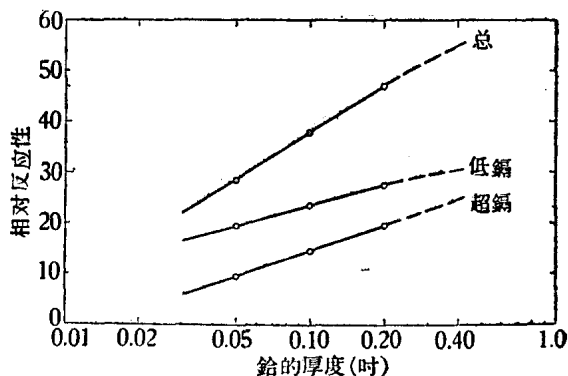


图6 从临界装置实验所得到的鈾的低鈾和超鈾效能的比较

区域内，鉛的巨大共振峯俘获了許多鎳所不能俘获的超热中子。用 1/16 吋厚的鎳复盖不同厚度的鉛片所得出的实验数据见图 6^[3]。对于 0.200 吋的鉛，約有 40 % 的控制效能是由超鎳俘获得到的。由于多数毒物的截面随中子能量的增加而迅速減低，故很难比鉛优越。因而就需要較厚的控制棒或增加彌散体中的毒物浓度。后者用硼来说明是容易的。表 1 中示出不銹鋼中只需要 0.15 % (重量比) 的硼-10 就可以使 0.200 吋厚的片成为热黑体。这种控制片在图 7 中与鉛进行了比較。很明显，鉛是比較优越的。含較大重量百分数的硼能增加其超热吸收。如图 8 所示，临界装

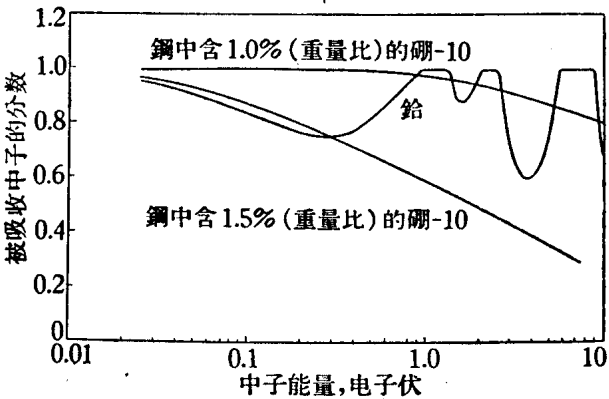


图 7 鉛和硼-10 的吸收能力 (0.200 吋厚片) 的比較

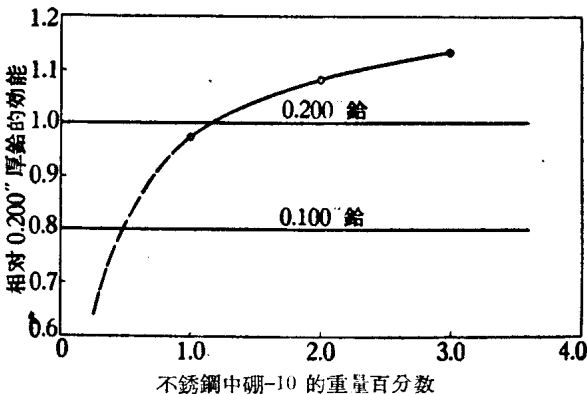


图 8 从临界装置实验所得的鉛及硼效能的比較

置数据表明,在不銹鋼中需含 1.2% (重量比)的硼-10,才能与鉛的效能相当^[4]。此含量为表 1 所示热黑体所需含量的八倍。以其他毒物材料进行的相似实验証明了超热效应的重要。例如在不銹鋼中需要含 18% (重量比)的氧化鎢,才能与鉛的效能相当。这約是表 1 中热黑体所需量的五倍。虽然 0.124 吋厚的鈾就已成为热黑体,但其吸收能力只相当于 0.200 吋厚鉛的 91%。

因而,超热吸收的要求支配着控制棒毒物的选择,这种要求在大多数情况下比燃耗或热黑体标准有更多的限制。在超热吸收及长期燃耗方面其他毒物要超过鉛是困难的。

从表 1 中看来,鈾可能是一种良好的控制棒材料。它具有高的热黑度及小的燃耗增量。然而,如图 9 所示,鈾在 5—8 电子伏时的吸收能力較低。可以加入在 5.5 电子伏时有共振吸收的銀以

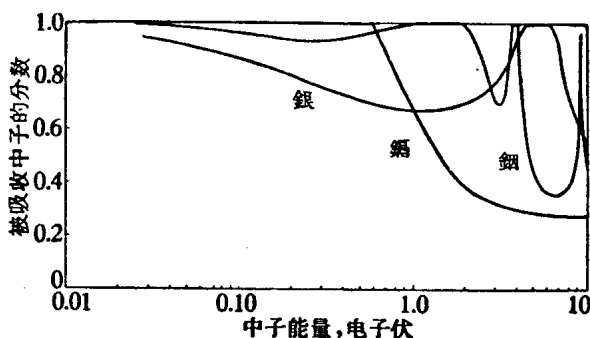


图 9 鎘、鈾、銀吸收 (0.200 吋厚片) 的比較

形成一种 50-50 的混合物。这就改进了鈾的高能降低现象,如图 10 中间的一条曲线所示,但因为鈾这时只有原有厚度的一半,所以在 0.3 电子伏附近产生了一个弱吸收区。其总结果是吸收效能仍有损失。由于鎘在 0.4 电子伏以前吸收能力很好,所以可加上鎘以形成 33-33-33 的新混合物。这就改进了在 0.3 电子伏时的弱吸收区域,但是因为鈾和銀这时只有原有厚度的 2/3,结果 3.0 电子伏时的低点恶化了,人们发现 71% 的銀, 10% 的鎘及 18% 的鈾 (均为重量比) 的混合物比 0.200 吋厚鉛的效能要强 5%^[4]。因而通过加入一些带有补充共振吸收的毒物材料的办法,可使效能得到

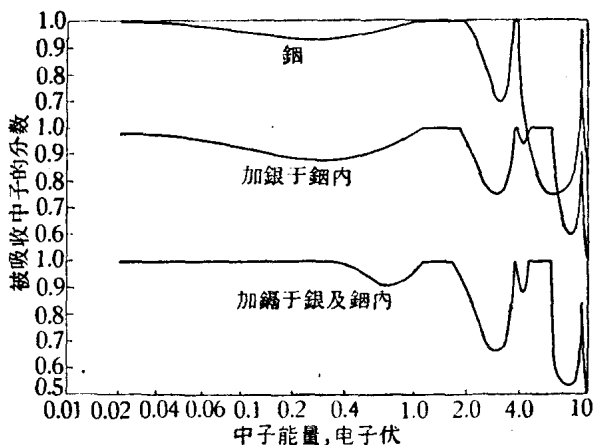


图10 带有补充共振(0.200吋厚片)的混合吸收材料

少量改进。目前在厚为0.200吋的鉛及氧化鎢的混合物中加入少量的銀是最适宜的,它比純鉛的效能約強18%。

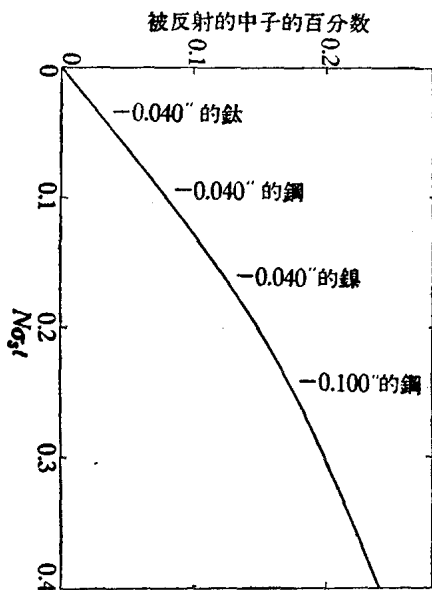


图11 包皮内中子散射引起的效能损失

在选择控制棒材料时,另一实际应考虑的问题是控制棒内的中子散射效应。通常毒性材料本身就具有散射性能,如銀,它的散射截面是其热截面的1/10。在彌散体中,稀释剂如鋼或鈦的散射截面也很大。此外,通常需使用包皮,以免毒性材料受到腐蝕。包皮可在中子触及毒物前就把它們反射回去。

在选择包皮材料中,其散射效应已由图11表明。該图說明了被厚度为

t , 散射截面为 $N\sigma_s$ 的包皮从黑吸收剂反射回去的中子百分数。厚度为 0.100 吋的鋼包皮可反射 17% 的中子, 而厚度为 0.040 吋的鋼只能反射 8% 的中子。鈦比鋼好些, 鎳最差。

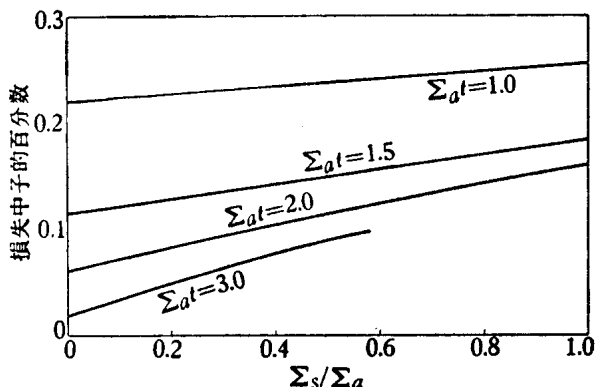


图 12 因吸收剂薄片内部散射而引起的效能损失

毒物内的散射效应见图 12。例如, $\Sigma_{at} = 2$ 而无散射截面的热中子吸收材料硼-10 能容许 6% 热中子穿过吸收剂, 即穿过全厚的吸收材料有 6% 效能遭到损失。散射截面增加为吸收截面的 20% 时, 准许损失 8.3% 热中子, 这是由于散射添入了 2.3% 的热中子损失。这一特例符合于用鋼作硼-10 的稀释剂而制成 0.200 吋厚的控制片。这两种散射损失中, 因有包皮而引起的损失尤为重要。因而只要腐蚀的要求允许, 包皮应制得尽可能薄。

总之, 前面的讨论说明, 为使控制棒在中子能量的广阔范围内 (至少 10 电子伏) 都是黑体, 必须选择高性能的控制棒毒物。在选择超过 2000 靶的高截面毒物时, 燃烧也是一个应考虑的主要问题。对 0.200 吋厚的控制片而言, 铪在这两方面的性能都是领先的。铈及铪的混合物或铈、铈、银的混合物也都是有希望的。如果允许高燃烧的话, 则硼-10 在鋼中约有 2% (重量比) 的高浓度的情况下也许是最好的。用散射材料稀释高截面毒物是可以允许的, 但应仔细选择低散射截面的包皮并应保持腐蚀所允许的那样薄。

[譯自 "Nuclear Science and Engineering", 4,

No. 3. 373—385 (1958)]

参 考 文 献

- [1] W. A. Northrop: KAPL-M-WAN-(8) (1959) (not released).
- [2] A. P. Bray: KAPL-M-PB-1 (1957) (not released).
- [3] R. G. Luce: KAPL-M-ATR-11 (1956) (not released).
- [4] R. R. Eggleston: SFR-Ph-269 (1956) (not released).

关于反应堆控制吸收材料 选择的若干問題

安德遜 (W. K. Anderson)

美国紐約州斯开奈克塔蒂城諾尔原子动力实验室*

本文从定性的观点, 研究了使用各种不同冷却剂并在相当广的中子能譜范围内运转的核反应堆的控制材料选择問題。本文討論的材料包括鉛、硼、鎘、銻、銀、鎢、釷及鈾。本文提供选择材料的根据只須稍加改变就能允許用于目前实际上已提出的任何反应堆控制。材料的討論研究是从要求良好的核性能、冶金上制备可能性、抗腐蝕性、抗輻照损伤、經濟性等观点来进行的, 并尽可能照顾到全面的放射性問題。

引 言

核反应堆的控制一般是通过改变反应堆活性区的反应性来完成的。正的反应性的变化是通过移动燃料、改变減速剂的密度或改变活性区的洩漏而完成。負的反应性变化是通过活性区内吸收材料浓度的改变而达到的。本文主要叙述关于后一种方法中控制材料的选择問題。

各种核反应堆首先可以根据它們的主要中子能譜分成以下三类: 热中子反应堆, 中能中子反应堆及快中子反应堆。对所有这些类型的反应堆, 有的正在考虑使用、有的已經使用了毒物控制。反应堆也可以根据它們的主迴路冷却剂来分类。用在热中子反应堆的三种主要冷却剂是水、二苯、及气体如氨、二氧化碳或氮。液体碱

* 美国原子能委员会委託通用电气公司管理。