

高中子通量 反应堆中的材 料辐照技术

〔苏〕

B.A. 齐卡诺夫
B.B. 萨姆索诺夫 著

111

原子能出版社

内 容 简 介

本书阐述了在高中子通量研究堆上辐照各种材料的技术和方法。列举了研究堆及其实验孔道的主要物理参数和工艺参数，讨论了材料辐照、燃料元件和燃料样品考验用回路装置、辐照罐装置的结构和优缺点，还介绍了在辐照过程中为直接研究材料性能进行的实验的某些特点。由于多孔道研究堆的利用效率在很大程度上取决于实验的规划和准备工作，所以作者对这方面的问题也给了一定的注意。本书是对上述内容进行概括和系统阐述的初次尝试。

Техника облучения материалов в реакторах
с высоким нейтронным потоком
В. А. Цыканов, Б. В. Самсонов
АТОМИЗДАТ 1973

高中子通量反应堆中的材料辐照技术

[苏] В. А. 齐卡诺夫 Б. В. 萨姆索诺夫 著
米绍曾、马凤藻、李耀鑫 译

原子能出版社出版

(北京 2108 信箱)

国防科委印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本 787×1092 $\frac{1}{32}$ ·印张 7 $\frac{5}{8}$ ·字数 168 千字

1981年8月第一版·1981年8月第一次印刷

印数 001—950 ·统一书号: 15175·342

定价: 0.96元

序 言

如果我们不去研究现有结构材料的性能，不去研制新的结构材料，就无法取得技术上的进展。动力工程的蓬勃发展，迫使我们研制和使用不仅在常温时而且在高温时具有足够强度的各种材料。核动力工程的发展，对结构材料又提出了特殊的要求。核反应堆结构材料，除承受载荷和温度作用外，还经受强烈的堆辐射。在一定的条件下这种辐射使材料性能发生很大的变化。中子射入材料所引起的核反应产物的积累以及晶体结构中缺陷的形成，是性能发生变化的主要原因。巨大的裂变能量的释放使核燃料材料工作条件更为恶劣。具有高动能的核裂变碎片比中子造成的损伤更大；受阻后留在燃料内的碎片对燃料有很强的不利影响。尤为有害的是气体裂变产物，它们的积累导致核燃料的肿胀，并使反应堆释热元件产生很大的应力。

由此可见，若不对材料辐照效应进行大量的研究，以及对新堆型结构特别是元件进行实际工况下的预先考验，那么发展核动力工程是不可能的。研究堆就是为此目的服务的。为加速材料辐照研究的进程，并在短期内取得必要的数据，人们力求在研究堆上得到尽可能高的中子通量，装备更多的实验孔道，来进行材料辐照及元件和燃料样品的考验工作。

研究堆除考验材料外还有其它的用途。目前广泛应用的人工放射性同位素，主要是在研究堆里通过辐照各种靶件材

料获得的。人们研究用堆辐射来强化某些工艺流程，并在工业部门开始应用。

在所有情况下都需要在最佳条件下辐照材料。在进行实验工作时，通常要求测量辐照的基本参数。为辐照材料设计的各种装置虽与所用的堆的性能有关，但在解决问题上仍具有很多技术上和方法上的共同特征。辐照装置就是使用这些共同的原则去建立和控制所需的辐照参数的。

随着研究工作的开展和对实验精度要求的提高，同时也随着研究堆越来越复杂（提高堆中子通量密度的后果），进行辐照是一项相当复杂的课题。事实上辐照技术已成为反应堆技术中一个单独的领域。

本文实质上是对研究堆中材料辐照方法和技术进行系统整理的初步尝试。作者在内容上不求详尽，希望读者提出批评意见。

本书是为已熟悉研究堆基本原理和技术以及辐照材料学基本课题的读者而撰写的，是从事堆技术、堆材料学工作的科研人员、工程师以及相应专业高年级大学生的一本有用的参考书。

目 录

序言

第一章 高中子通量研究堆和反应堆 实验规划..... (1)

§1.1 引言 (1)

§1.2 在研究堆上获得高中子通量的原理 (2)

§1.3 研究堆分类 (7)

§1.4 研究堆的主要物理参数 (10)

§1.5 研究堆的主要技术参数 (17)

§1.6 高通量研究堆上的实验规划 (21)

§1.7 游泳池式高通量研究堆 (30)

§1.8 压壳式高通量研究堆 (36)

§1.9 压管式高通量研究堆 (57)

第二章 材料辐照的主要目的和条件以及反应

堆实验装置 (61)

§2.1 引言 (61)

§2.2 燃料材料的主要特性 (63)

§2.3 非裂变材料的主要特性 (72)

§2.4 载热剂 (76)

§2.5 反应堆材料辐照的目的和任务 (84)

§2.6 研究堆的实验装置 (96)

第三章 材料辐照过程中中子物理参数和辐射

释热的测量 (131)

§3.1 决定材料辐照条件的主要物理参数 (131)

§3.2 燃料元件和燃料样品内中子通量与释热的测量 (137)

§3.3 中子通量降抑的测量 (151)

§3.4	燃料样品和燃料元件模型组件中释热的测量	(155)
§3.5	中子通量的监测	(159)
§3.6	结构材料中辐射释热的测量	(162)
第四章	样品温度的测量	(173)
§4.1	引言	(173)
§4.2	连续控制温度的方法	(174)
§4.3	温度监测	(180)
第五章	辐照方法	(184)
§5.1	在辐照罐装置中辐照结构材料和低释热燃料 样品	(184)
§5.2	在回路装置中辐照燃料样品与考验燃料元件	(202)
§5.3	生产放射性同位素和积累超铀元素时靶 件材料辐照的特点	(221)
§5.4	在辐照过程中材料性能研究方法的特点	(223)
附录	现代高通量研究堆的主要参数	(插页)
参考文献		(228)

第一章 高中子通量研究堆 和反应堆实验规划

§1.1 引言

对研究堆提出的首要要求是确保最高的中子通量密度。现代研究堆的热、快中子通量为 10^{14} — 10^{15} 中子/厘米²·秒或更高。对反应堆来说，即使不再提任何其它要求，为满足这样高的中子通量也是不容易的。实际上对研究堆还有很多其它的要求。第二个重要的要求是保证最充分地利用所获得的中子通量，重要的不是要在反应堆活性区或反射层的某一点上，而是要在足以容纳许多实验孔道的体积内获得指定的中子通量。反应堆中子通量越高、实验体积越大，那么它的热功率也就越大。与此同时结构也就更加复杂，投资与运行费用也大大增加。复杂的堆结构时常给实验者带来很多麻烦：为了利用堆的中子必须选用复杂而昂贵的实验装置。此外，反应堆的物理参数还应满足以下要求：能谱应具有一定的硬度，实验孔道内放置辐照样品后，中子通量的降抑应为允许值等等。

因此，在研究堆的建造中必须满足很多相互矛盾的要求，而且根据堆的用途不同，连那些主要要求也不一致。但不论怎样，现代高通量研究堆都是一种复杂而昂贵的设备，在反应堆上进行研究工作时，要求建立一定的方法，配备复杂的

技术装置。

§1.2 在研究堆上获得高中子通量的原理

任何反应堆活性区和反射层内的中子都消耗在维持裂变链式反应再生中子的过程中，并被活性区和反射层材料所吸收。通常只有很少一部分中子从核反应堆逸出。不参与维持链式反应的剩余中子份额由下式确定：

$$(k_{\infty}-1)/k_{\infty} \quad (1.1)$$

其中： k_{∞} —与反应堆活性区相当的无限介质中的增殖系数。部分中子由于泄漏而逸出反应堆，其余中子被反射层材料、实验装置的结构材料和实验样品本身所吸收。提醒一点，组成反应堆活性区的材料对中子的有害（非裂变）吸收在计算 k_{∞} 值时要考虑，因而这里不予讨论。由于上述原因，研究堆的剩余中子只有一部分可有效利用。设计研究堆时应力求使这一部分中子数量尽可能最大。

从(1.1)式可见，研究堆应具有最大的 k_{∞} 值，因此在这种堆中通常使用高浓缩的核燃料，并选用对中子有害吸收最小的材料作为活性区的其它材料。

我们来分析一下实验装置安装在活性区中的热中子研究堆。自然，希望在这种堆的活性区中获得最大的中子通量。为简便起见，假设活性区体积内中子通量的宏观分布与均匀堆相同。在大多数情况下这种假设是正确的。设活性区体积内的平均热中子通量为 $\bar{\Phi}$ ，核燃料浓度为 ρ ，燃料同位素核

裂变截面为 σ_f ，堆热功率为 Q ，活性区体积为 V 。很容易写出反应堆热功率和平均热中子通量之间的关系：

$$Q = \bar{\Phi} \rho \sigma_f V / 3.1 \times 10^{10} \text{瓦} \quad (1.2)$$

其中 3.1×10^{10} 裂变/秒·瓦相当于功率为1瓦时每秒钟的裂变数。这里忽略了超热中子裂变释出的能量，因为在此种堆型中这部分释能很小，可忽略不计。

由于研究堆中感兴趣的值是中子通量密度，因而将(1.2)式改写成以下形式：

$$\bar{\Phi} = 3.1 \times 10^{10} Q / \rho \sigma_f V \text{中子/厘米}^2 \cdot \text{秒} \quad (1.3)$$

由此可见，为了提高反应堆中子通量，必须加大堆热功率和降低核燃料浓度。然而如上所述，核燃料浓度的降低将导致 k_∞ 的减小，这是不利的。因此在降低核燃料浓度的同时，尽量在活性区内选用吸收截面小的材料：用重水做慢化剂和载热剂，用铝合金做结构材料。

因此，在研究堆里获得高中子通量的方法之一是使用低浓燃料和吸收截面小的材料组成高热负荷的活性区。核燃料浓度可用活性区内裂变同位素的初始装载量来表示。例如1克 ^{235}U 含有 0.256×10^{22} 个核。如堆活性区装载 G 克 ^{235}U ，则 $\rho V = 0.256 \times 10^{22} G$ 。据此，(1.3)式可改写为

$$\begin{aligned} \bar{\Phi} &= 1.21 \times 10^{-11} [Q / \sigma_f \cdot G] \\ &= 1.21 \times 10^{-11} (\bar{q}_G / \sigma_f) \end{aligned} \quad (1.4)$$

其中， $\bar{q}_G$ —为分摊到1克核燃料的堆平均功率。

最大热中子通量高于平均值，并可用平均热中子通量乘以活性区体积内热中子通量分布不均匀系数来得到。在绝大多数情况下，热中子通量在活性区体积内的分布与燃料裂变密度或释热分布几乎一致。由于测量裂变密度或释热较为简

单，通常不使用热中子通量分布不均匀系数，而用释热率的体积不均匀系数 $K_v = q_{\text{最大}} / \bar{q}_G$ 。

这样，热中子最大通量可用下式计算：

$$\Phi_{\text{最大}} = 1.2 \times 10^{-11} K_v (\bar{q}_G / \sigma_f) \quad (1.5)$$

欲求活性区任意一点的中子通量值，只需将该点的 q_G 值代入(1.4)式就可得出。所用的 σ_f 值是按堆内中子能谱对 $\sigma_f(E)$ 取平均值得到的。按能谱平均的 σ_f 值总是小于中子速度为2200米/秒的 σ_f 值。例如美国萨瓦娜河的重水反应堆上平均值 $\sigma_f = 450$ 靶^[1]。从(1.5)式可知，这种堆的 $\bar{q}_G$ 值应尽可能的大。但是这个数值越大，堆连续运行的周期就越短，因为很快就达到燃料的极限燃耗，这时堆运行所必需的后备反应性也就等于零。将反应堆活性区烧过的燃料更换成新的燃料时必须停堆。停堆的周期取决于冷却元件所需的时间。反应堆运行时元件热负荷越高，需要冷却的时间就越长。例如上面提到的萨瓦娜河反应堆换一次料需要三昼夜，而堆连续运行期限总共7—10昼夜^①。所以这种堆在最佳情况下利用系数是0.7—0.8。这个堆的热中子通量最大值可达 $4 \cdot 10^{15}$ 中子/厘米²·秒。如果把这种堆的中子通量提高到 10^{16} 中子/厘米²·秒，那么堆利用系数可能下降到0.5。这是此种类型高通量堆的缺点之一。

当使用低浓核燃料和不得不力求有效利用剩余中子时，为了减少相对泄漏量，这种反应堆活性区的尺寸通常相当大。这种堆的热功率可达几百兆瓦，故燃料消耗特别大，投资和运行费用也很高。这是此种类型反应堆的第二个缺点。

① 最初几个换料周期内反应堆连续运行期限为6—7昼夜，后来增加²³⁵U的装料（中子通量相应降低）使连续运行期限延至10昼夜。

许多研究工作需要恒定的辐照条件，如中子通量值为常数。因为随着燃耗加深核燃料浓度下降，当功率保持恒定时，堆中子通量将从某一初始值增大到某个最终值，这些数值由（1.4）式中相应的核燃料的初始浓度和最终浓度而定。这也可算做这种类型反应堆的另一个缺点，因为只是对少数个别工作（例如生产放射性同位素和积累超铀元素等）来说中子通量的恒定不起决定性的作用，而只有反应堆在一个换料周期内的连续运行过程中辐照样品的积分通量才是重要的。

用下式可表示出一个换料周期内反应堆活性区中子通量的变化：

$$\Phi(t) = \Phi_0 / [1 - (\alpha/T)t] \quad (1.6)$$

其中 Φ_0 和 $\Phi(t)$ 为反应堆初期和某一时刻 $t(t \leq T)$ 时相应的中子通量。 T 为一个换料周期所延续的时间； α 为换料周期内核燃料的相对燃耗。用下列公式可以求出某个时间内的中子积分通量：

$$\Phi(t) = \int_0^t \frac{\Phi_0}{1 - \frac{\alpha}{T}t} dt = -\frac{\Phi_0 T}{\alpha} \ln \left(1 - \frac{\alpha}{T}t \right) \quad (1.7)$$

此种类型反应堆的优点在于能够同时辐照大量的材料，因为在很大体积范围内均可获得一定的中子通量。

另一种广泛使用的研究堆是带有中子阱的反应堆。如在反应堆活性区内利用慢化性能好的材料造成一个腔（中子阱）。来自活性区的快中子由于慢化在此腔内产生高通量的热中子。从活性区来的快中子通量正比于活性区的裂变密度即正比于单位体积的释热率 q_v 。

为了在阱内获得高通量的中子，无需降低活性区体积内

的燃料浓度。相反，燃料浓度越高，从活性区流向阱方向的中子通量中的快中子的份额就越大。而活性区燃料浓度高就允许大幅度地降低 k_{∞} 值而不冒风险，并可使用散热面积大的燃料组件，而且由于在这种情况下对材料吸收中子性能的要求大大降低，因而选用结构材料的范围扩大了。

为了提高 q_v 值通常采用以高强度、耐腐蚀和允许在很高的热负荷下运行的结构材料制成的片状元件。活性区燃料浓度时常高到使反应堆能以中能中子启动。这类反应堆活性区体积相当小，因而即使单位体积热负荷极高，堆热功率也不大。最常用水或水与铍的混合物做中子阱的慢化剂。在其它条件相同的情况下，阱内热中子通量值取决于阱的材料及其尺寸。阱有最佳尺寸。例如对水来说，圆柱阱的最佳直径等于11厘米。这类反应堆活性区外侧最好用铍做反射层，从而减小活性区体积和堆的热功率。如果反射层具有足够的厚度，则可使穿越活性区侧表面的快中子得以慢化，并在反射层内形成高热中子通量。这里的热中子也能用于实验。外侧的铍反射层内最高热中子通量共计约为阱内热中子通量的 $1/4-1/5$ 。此外，在反射层内距活性区不同距离的位置上安放实验孔道，就能够利用各种能谱的中子，因为随着距离的增加快中子通量连续下降，而热中子通量连续上升，且在距活性区为 $\sqrt{\tau}$ 附近（ τ —反射层材料慢化长度的平方）热中子通量达到最大值，当接近反射层边界时热中子通量又缓慢下降。众所周知，在大多数材料辐照研究中，快中子和中能中子比较重要。

从阱式反应堆作用原理的分析中看出它的优点：

第一个优点在于可能使用既不明显降低堆物理参数又能

经受高热负荷的结构材料。用作元件包壳的镍、不锈钢和用作燃料稀释剂的镍、铜和不锈钢都属于这些材料。不排除使用其它材料的可能性。确保高的表面热负荷并具有最佳的散热表面就可以得到高的体积热负荷，即获得高通量的快中子（而在阱内还有热中子）。

第二个优点在于这种反应堆热中子通量的最大值与活性区的燃料浓度无关。在燃料浓度高，而按燃料单位重量计算热负荷比较低的情况下，可以显著地延长堆连续运行的时间。通常阱式反应堆连续运行周期将近 1 个月，而相同中子通量非阱式堆连续运行周期大约为 1 星期。

第三个优点是在实验中可能使用任意能量的中子。此外阱式堆看来可以使中子通量密度达到 10^{16} 中子/厘米²·秒甚至更高，而对非阱式堆来说获得此通量有很大的困难。

阱式堆的缺点是阱的实验体积有限，因此应在辐照数量不大的材料时采用。然而只要多建造几个阱和相应地扩大堆活性区体积和功率这一缺点很容易克服。

鉴于上述种种优点，高通量阱式堆已获得广泛的应用。本章末尾将以苏联的 CM-2^[2-4]（苏维埃中能反应堆）和美国的 HFIR^[5]（高通量同位素反应堆）为例说明这类堆型的主要特征。

§1.3 研究堆分类

首批低通量（将近 10^{13} 中子/厘米²·秒）研究堆作为通用堆可进行任意实验：辐照各种材料、生产人工放射性同位素并利用引出的中子束进行核物理和固体物理方面的研究工

作。其原因是低中子通量堆活性区元件释热率低；堆结构比较简单。由于反应堆结构简单，就可以使用不太复杂的一般无需强制冷却的实验装置。若把研究堆对实验工作的适应性这一概念理解为实验人员利用该堆中子进行研究工作的难易程度的话，就可以说，中子通量低于 10^{14} 中子/厘米²·秒的研究堆具有良好的适应性。

随着中子通量强度提高到 10^{14} 中子/厘米²·秒，堆结构更为复杂，并导致所用实验装置的复杂化。往往实验装置的复杂，要求堆本体结构必须满足一定的条件才能在堆内放置。当中子通量达到 10^{15} 中子/厘米²·秒或更高时，反应堆对实验工作的适应性更差。

由于这种堆的高辐射释热，不论是冷却堆本体结构还是冷却实验装置都非常困难。通常用于进行某种实验的复杂装置对另一种实验就不适用。例如在高通量堆引出强中子束的孔道里不允许用来辐照材料(对材料无法冷却)。把考验释热量大的燃料样品用的并备有强冷却系统的垂直孔道用于其它目的是不适宜和不经济的。

在进行任何实验时都必须利用反应堆的各种条件来得到最高的中子通量和最佳的试验参数。由于所进行的实验不同，满足这些要求的物理原理也有所区别。因此随用途的不同，研究堆及其实验装置各不相同。

现代高中子通量研究堆按用途可分为三类：1.生产同位素和辐照材料用高中子通量堆；2.中子束引出用反应堆；3.元件考验用回路式堆。

这种分类是基于上述每种堆不仅主要物理原理以及主要要求不相同，而且往往相互矛盾。比如，为了从每单位热功

率得到尽可能大的热中子通量，生产同位素的阱式堆要求大量中子都聚集在活性区的中子阱体积内。而在作为中子束引出用的反应堆里，束内的高中子通量是通过中子从活性区到侧反射层体积的最大泄漏来达到，侧反射层是由吸收中子很少的慢化剂所组成。在一个反应堆里兼顾上述这些性能势必导致堆结构的复杂化和热功率的增加，费用也将随热功率成比例的增加。

对这种类型的堆还必须有其它的要求，这些要求使建堆更为复杂。例如极其严格地要求中子束引出用堆在降低侧防护以外地区的本底辐射的同时还得减少束流方向的防护厚度。从而必须使用昂贵的防护材料（以钢、铸铁、铅等代替其它场合用的水泥防护）。这种堆的反射层最好使用重水^[6]。这两个要求对同位素和回路堆则完全是多余的，况且重水的应用使堆本体及堆的辅助系统都更加复杂化。

对回路堆提出的要求完全不同。回路堆的尺寸和功率取决于被考验元件的尺寸和同时运行的实验孔道的数量。回路堆主要应该保证每个孔道内考验条件的独立性并在整个考验期间保持恒定。上述要求基本上也就决定了回路堆活性区结构和控制机构。

由于我们不准备讨论在引出的中子束上进行实验的方法，故不再赘述这类堆型。材料辐照和同位素生产用堆与回路堆在用途和参数上不同，但在有些情况下，在这些堆上两种工作都可进行。不过应该注意到，在指定完成某些特定工作的堆上去进行其它性质的研究工作，则其条件不是最佳的或者工况是不经济的。然而除了堆的主要目的（针对这些目的装备所有的结构并选取各种参数）外，如果并不妨碍反应

堆完成自己的主要任务，有时预先考虑把堆用于其它一些用途也是必要的。例如苏联的 CM-2 堆主要供在高通量的热中子和快中子情况下辐照材料(其中包括生产超铀元素)、考验燃料样品和模式元件用。但从堆反射层引出了 5 个中子束，这对反应堆完成其主要任务并没有明显的妨碍。

§1.4 研究堆的主要物理参数

堆的中子通量与热功率成正比，但不同的堆有不同的比例系数。在热功率一定的情况下，中子通量越高反应堆越完善。为了评价反应堆的完善程度引入研究堆“质量”的概念^[8]。研究堆“质量”是指反应堆中子通量的最大值与其热功率之比：

$$K = \Phi_{\text{最大}} / Q \quad (1.8)$$

虽然这一比例关系可以用来比较反应堆，但是它并不充分，因为这里没有说明具有给定中子通量的实验体积以及利用这一体积进行实验的可能性。为了考虑实验体积将(1.8)式的分子 $\Phi_{\text{最大}}$ 最好用堆实验体积 $V_{\text{实}}$ 和此体积内平均中子通量 $\bar{\Phi}$ 的乘积来代替。由于放进去辐照的样品吸收中子，堆实验体积内的中子通量比原始值减少了。这个现象叫做中子通量的降抑，用降抑系数表征

$$k_{\text{D}} = \Phi / \Phi_0 \quad (1.9)$$

其中 Φ_0 和 Φ 一对应堆实验装置中子通量的原始（无样品）值和终结（有样品）值。似乎(1.8)、(1.9)关系式足够用来比较反应堆了，即 $K k_{\text{D}}$ 乘积越大反应堆越完善。然而中子通量的降抑既取决于样品的吸收性能，也取决于堆实验体积周围

材料的物理性能。可见放置同一样品于不同的堆，甚至放置同一样品于同一个堆的不同实验孔道将导致不同的 k_d 值。所以还需利用其它标准来比较反应堆。

我们感兴趣的反应堆是将样品置于实验体积内利用堆产生的中子进行辐照。对这种堆可规定如下标准。设堆有 n 个辐照孔道，每个孔道的体积是 V_i ，孔道中平均中子通量为 $\bar{\Phi}_i$ 。由于中子通量的降抑取决于样品和反应堆的特性，为了摆脱与样品性能有关的不定因素，采用以下方式进行比较。如果实验孔道中样品的宏观中子吸收截面 $\Sigma_{a,i}$ 与反应堆安放实验装置相同部位的材料的宏观吸收截面相等的话，可以认为通量不产生降抑，分析时可使用原始通量值 Φ_i 。对具有实验装置的反应堆活性区体积来说，是指均匀化了的活性区材料的宏观截面；对阱式堆来说，是指阱内慢化剂材料的宏观吸收截面。这时，表征单位时间内样品吸收中子的作用次数的反应堆的总生产率可写成下式：

$$\Pi = \sum_{i=1}^n \Phi_i V_i \sum_{a,i} \quad \text{中子/秒} \quad (1.10)$$

如果堆功率为 Q 千瓦，那么在活性区体积内每秒钟产生大约 $7.5 \times 10^{13} Q$ 中子。所以中子的有效吸收份额可写成下式：

$$\eta_0 = \sum_{i=1}^n \Phi_i V_i \sum_{a,i} / (7.5 \times 10^{13} Q) \times 100\% \quad (1.11)$$

此式可看成是研究堆的理想有效利用系数。按照(1.10)和(1.11)所确定的准则，可以对材料辐照堆的生产能力和经济效果进行比较。在短期内必须辐照大量材料时，使用 Π 值高的堆。为了获得经济的辐照工况，需要 η_0 值高的堆。这两个数值都很高的反应堆可算做最好的研究堆。