

钹手册

212 科技图书馆《钹手册》翻译组

1972

互不相关的误操作同时发生,才可能引起临界事故。

现将临界控制所用的某些方法列出如下:

①将工艺容器设计成几何安全的。这时中子漏失很多,使得不论容器中有多少裂变物质均可防止临界;

②对物料成份从操作方面进行控制。例如在溶液体积一定的情况下,限制裂变物质浓度;

③根据安全质量限额,限制单次操作中处理的物料量为次临界量,或者用限制批料量的方法;

④规定贮存阵列中允许放置的物料数量和种类,并限制阵列中物料的空间分布;

⑤可以使用可溶毒物或固定毒物,以增大质量限额或使容器成为几何安全容器。

在某些情况下,为了在保证核安全的前提下尽量提高工作效率,往往综合采用数种控制方法。

27-2 作为核安全基础的临界数据

在参考资料[1]中简要地给出了有关铀的临界数据,这些数据是确定铀的核安全基本依据。在资料[2]中给出了推荐的核安全限额。有关核安全的另一本非常有用的参考书是最近出版的《化学和冶金工厂临界控制卡尔斯鲁埃(Karlsruhe)讨论会会议录》[3]。

本节介绍的铀系统临界数据主要来源如下:铀金属的数据是洛斯-阿拉莫斯科学实验室和劳伦斯辐射实验室得到的,还有一些是洛伐基平原工厂提供的;铀溶液的数据主要援引自汉福特完成的实验结果[4-10],Horton和McCullen[11]在第一届日内瓦会议上以及Bertrand等人[12]在第二届日内瓦会议上曾报告过的铀水溶液的其它一些临界实验结果。

在汉福特,Kruesi等人完成的早期实验[4],直接确定了轻水反射和慢化的均匀铀溶液最小临界质量。在他们研究的铀浓度范围内(最大约为136克铀/升),还得到了一些关于几何形状、杂质原子浓度、铀同位素组份、反射作用以及温度对临界质量影响的数据。

特别是得到了硝酸根对硝酸铀溶液临界质量的影响数据。此外,还得到了一些关于 Pu^{240} 对铀稀溶液临界参数的影响数据,但 Pu^{240} 同位素含量范围仅为0.54—4.40%。

根据汉福特的早期实验数据,确定了均匀铀—水系统的最小临界质量为509克 Pu^{239} 。这一最小临界值是在一定条件下,即在直径约为12吋的球体、水反射、铀浓度为33克/升的条件下得到的。在《核安全指南》[3]中推荐的安全质量限额(每批料0.22公斤铀,误投两批料是安全的)就是根据这一最小临界值给出的。

最近,汉福特又得到了铀浓度最大约为400克铀/升的硝酸铀溶液临界实验数据。

对无慢化的 α 相铀金属(密度为19.5克/厘米³),水反射时最小临界质量为5.6公斤,无反射时最小临界质量估计为10公斤[1]。对含4.5% Pu^{240} 的 δ 相铀金属球(铀密度为15.66克/厘米³),无反射时其临界质量据Jarvis[13]报导为16.28公斤;根

据这些数据得出铀密度为15.44克/厘米³的纯Pu²³⁹裸球临界质量为16.28公斤。水反射δ相铀金属最小临界质量为7.6公斤^[1]。

对树脂玻璃和石墨慢化的铀装置^[14]，曾发表过一些次临界增殖测量结果。将铀金属片和树脂玻璃片堆成圆柱几何形状得到的数据等地地换算成球的数据，则可用于定性估计其慢化程度介于溶液和固体金属之间的等慢化系统的临界质量。

汉福特铀临界质量实验室用PuO₂—聚苯乙烯压块（氢/铀原子比为15，铀密度为1.12克/厘米³）进行的临界实验，提供了中等慢化能谱系统进一步的数据^[15]。PuO₂—塑料燃料的铀密度范围包括了分离工厂中可以形成的铀沉淀物和聚合物的整个密度范围。

Bidinger等人^[16]完成的次临界中子增殖测量，确定了硼对铀和浓缩铀氢慢化系统临界参数的影响。这些测量结果以及其它一些核安全实验，对于应用中子吸收剂进行临界控制^[17-18]是有用的。

27-2.1 理想的铀—水混合物临界参数

理想的铀—水混合物临界参数是操作和处理铀时确定核安全条件的基本依据。对这种系统来说，除稀溶液和最高密度的金属外，目前尚缺乏足够的精确数据确定其临界质量和尺寸。

曾用中子输运程序和多群扩散方法对实验数据和理论计算结果进行过比较^[20-24]，然后用这些理论计算方法对那些尚无实验数据的氢/铀原子比和铀浓度范围算出其临界数据。

图27.1—27.4表示由临界和次临界实验得到的数据。图中虚线部分是理论计算确定的一些数值。应当指出，在目前所用的DSN方法*和核截面数据情况下，计算的临界质量误差约为±10—15%。

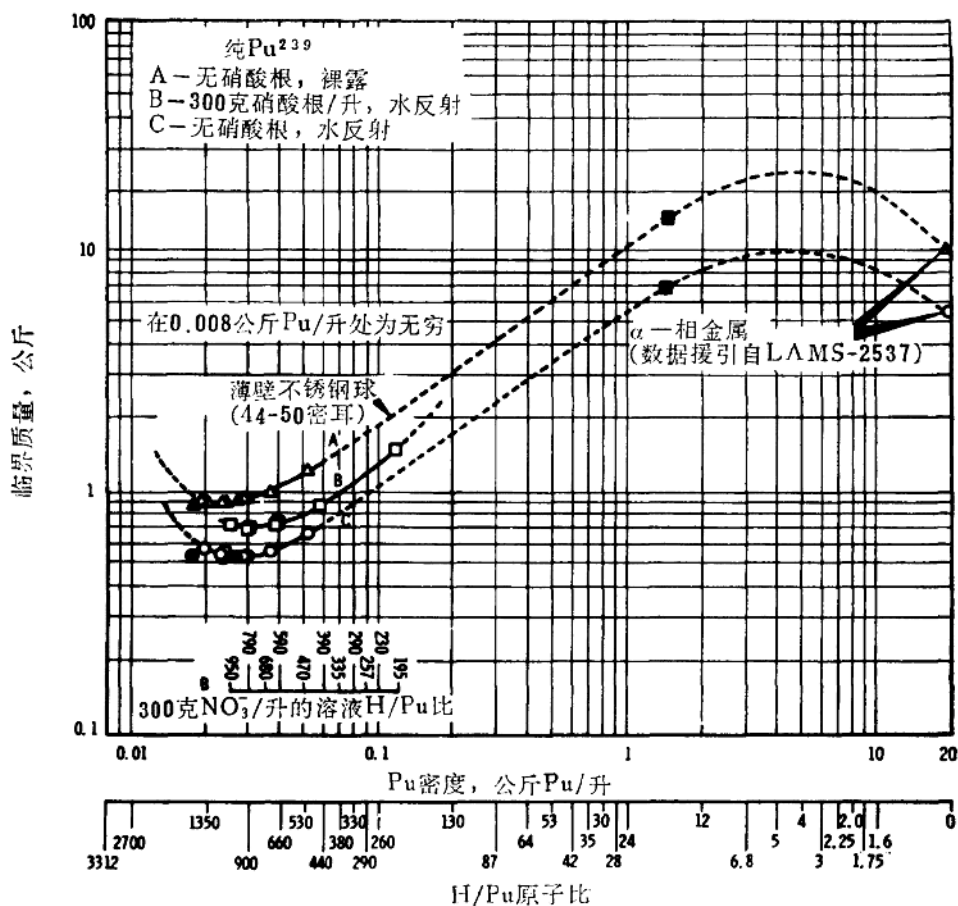
27-2.2 均匀PuO₂—水混合物的临界参数

水中铀原子的均匀混合物的临界参数资料系用来确定临界参数的下限值（即最小临界尺寸和质量等），但这种混合物实际上是很少遇到的。均匀的PuO₂和Pu(NO₃)₄系统却更有实际意义，因为它们在实践中经常遇到。

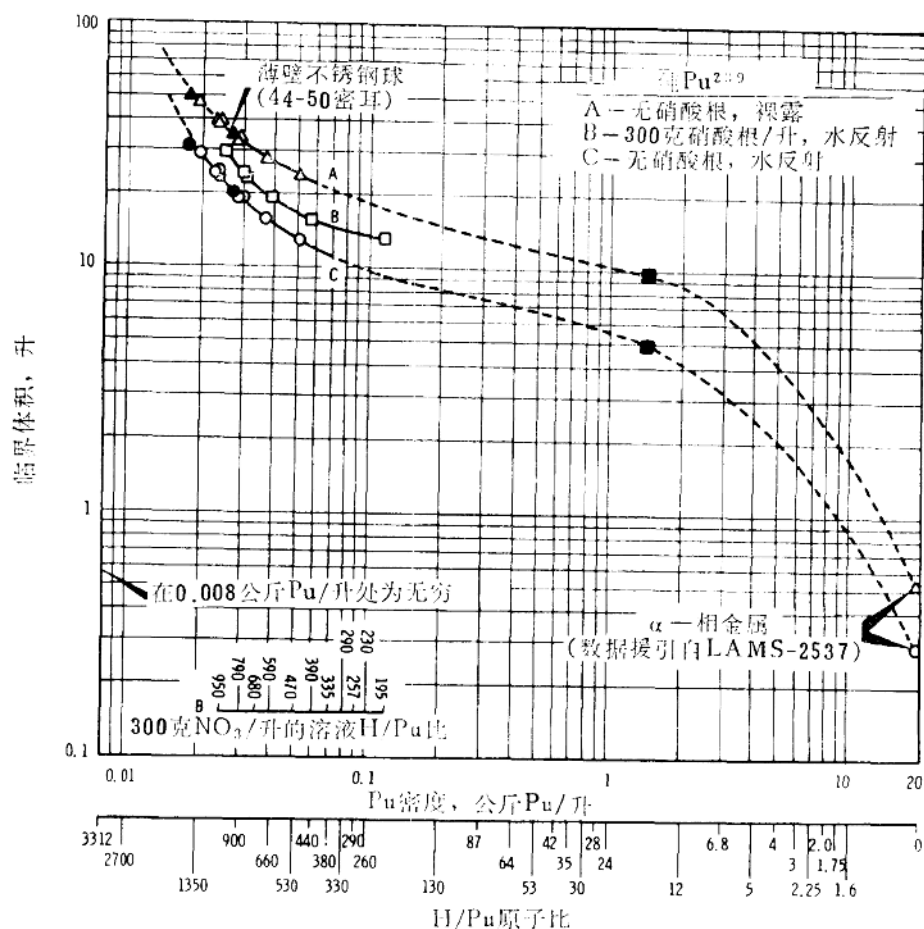
某些化合物，如有机络合物、PuO₂和PuO₂的水合物（铀聚合物），会因误操作在硝酸铀工艺液流的水相中形成。例如，硝酸铀溶液和高温蒸发器器壁接触，可以形成氧化铀；当硝酸铀溶液在适当的pH条件下稀释或加热时，会形成聚合物^[25-28]。

关于铀聚合物密度和成份的资料很少，但它的密度显然大大地取决于形成条件（即pH、温度和浓度等）。曾有人认为铀聚合物密度可能为1—2克/厘米³。沉淀聚合物的分子式尚未最后确定，汉福特的实验工作表明大概是PuO₂·xH₂O的形式，很可能是PuO₂(H₂O)_{7.5}。

*DSN是洛斯—阿拉莫斯科学实验室为输运计算编制的一种计算机程序。

图27.1 均匀水慢化 Pu^{239} 球体的临界质量

- 水反射球，实验数据已外推到硝酸根浓度等于零，并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- 水反射球，根据裸球数据作等曲率转换得到的数据($\lambda_{\text{反射}} - \lambda_{\text{裸}} = 3.3$ 厘米)。
- 水反射球，实验数据已外推到300克/升硝酸根，并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- △ 裸球，根据反射球数据作等曲率转换得到的数据($\lambda_{\text{反射}} - \lambda_{\text{裸}} = 3.3$ 厘米)。
- ▲ 裸球，实验数据已外推到硝酸根浓度等于零，并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- 裸的和反射的 PuO_2 -聚苯乙烯立方体临界数据，对密度做了校正并转换为球形。

图27.2 均匀水慢化 Pu^{239} 球体的体积

- 水反射球, 实验数据已外推到硝酸根浓度等于零, 并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- 水反射球, 根据裸球数据作等曲率转换得到的数据 ($\lambda_{\text{反射}} - \lambda_{\text{裸}} = 3.3$ 厘米)。
- 水反射球, 实验数据已外推到300克/升硝酸根, 并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- △ 裸球, 根据反射球数据作等曲率转换得到的数据 ($\lambda_{\text{反射}} - \lambda_{\text{裸}} = 3.3$ 厘米)。
- ▲ 裸球, 实验数据已外推到硝酸根浓度等于零, 并对 Pu^{240} 的影响作了修正。
- 裸的和反射的 PuO_2 -聚苯乙烯立方体临界数据, 对密度做了校正并转换为球形。

无限长圆柱的临界直径, 厘米

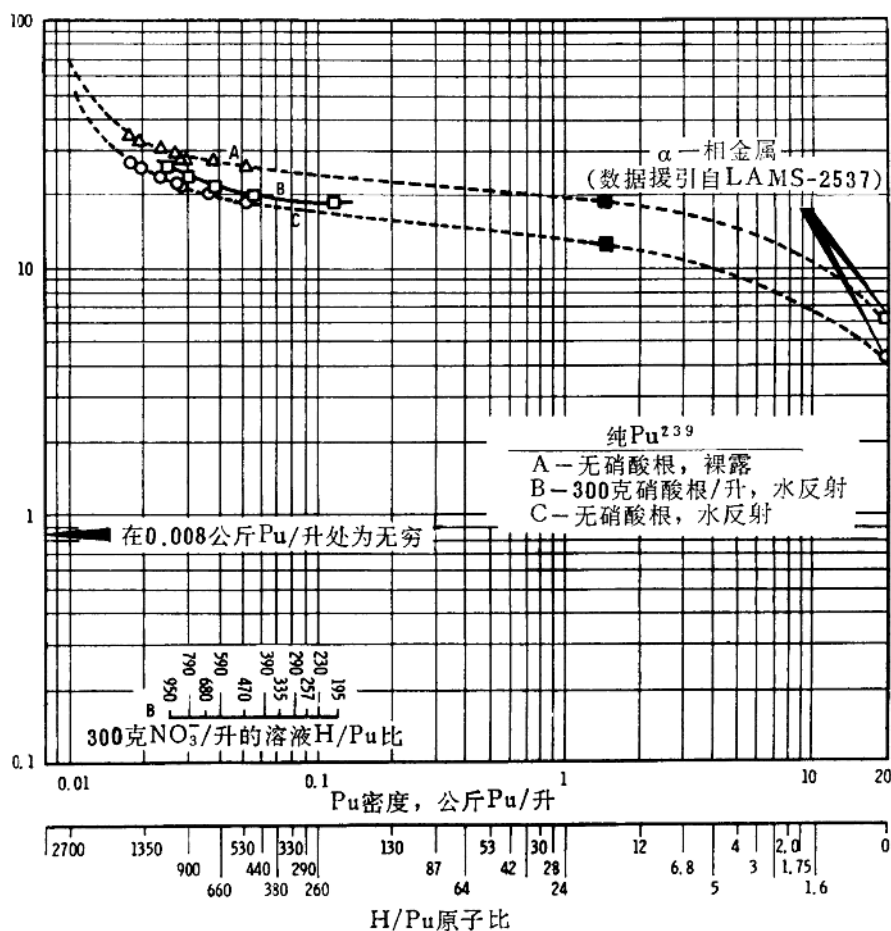


图27.3 均匀水慢化 Pu^{239} 系统的无限长圆柱最小临界直径 (根据球的数据作等曲率转换估算得到的数据)

□、△、○ 在等曲率转换中所用的外推长度数值如下:

反射球的 $\lambda = 5.9$ 厘米

裸球的 $\lambda = 2.6$ 厘米

反射圆柱的 $\lambda = 6.4$ 厘米

裸圆柱的 $\lambda = 2.8$ 厘米

■ 从 PuO_2 -聚苯乙烯混合物的临界数据作等曲率转换得到的估算值。

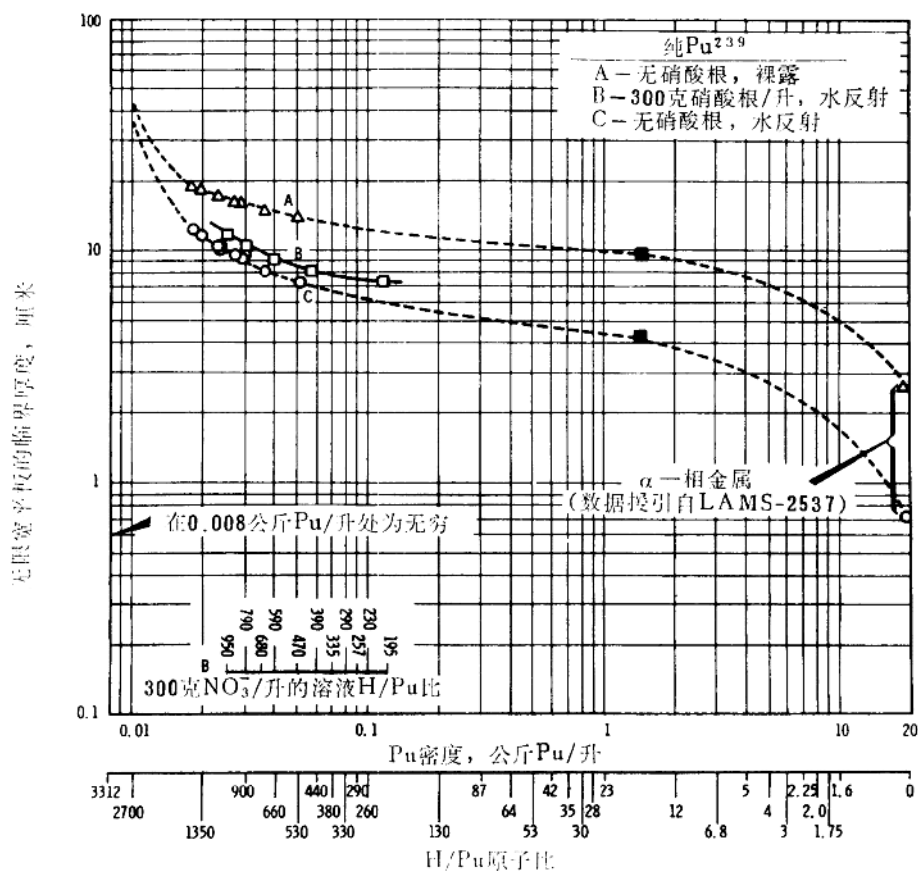


图27.4 均匀水慢化Pu²³⁹系统的无限宽平板最小临界厚度 (根据球的数据作等曲率转换估算得到的数据)

□、△、○ 在等曲率转换中所用的外推长度数值如下:

反射球的 $\lambda = 5.9$ 厘米

裸球的 $\lambda = 2.6$ 厘米

反射平板的 $\lambda = 6.6$ 厘米

裸平板的 $\lambda = 3.2$ 厘米

■ 从PuO₂-聚苯乙烯混合物的临界数据作等曲率转换得到的估算值。

这些异常化合物过去曾在工艺流程的某些固定部位发现过，但当时尚无足够的分析数据去加以鉴别，因此现在只好根据工艺流程的性质和遇到的不正常条件去说明它们确实存在。

PuO_2 通常是部分钚金属离析过程中形成的一种产物；在燃料元件制备中，氧化钚可作为钚冶金的原料。

对 PuO_2 -水混合物的钚密度和氢/钚原子比曾作过一些测量^[27]。在图27.5中给出了测量结果，同时还给出了钚-水混合物的氢/钚原子比。当氢/钚原子比较小时， PuO_2 -水混合物的钚密度显著小于钚-水混合物的钚密度（当氢/钚比为4时， PuO_2 -水混合物的钚密度为3.5，而钚-水混合物为5）。

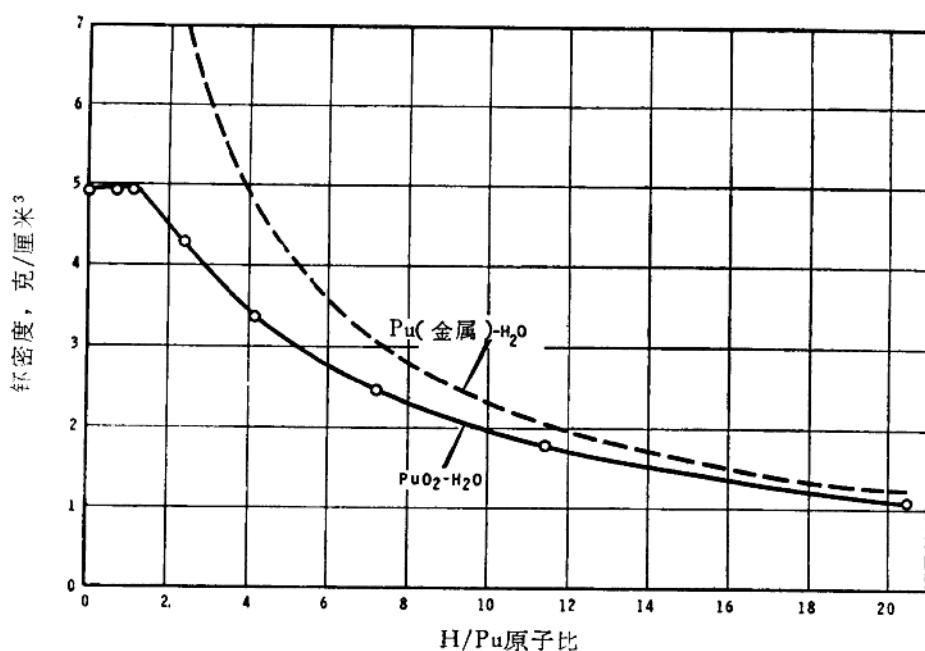


图27.5 钚浓度与氢/钚原子比的关系

前面曾提到，汉福特用 PuO_2 -聚苯乙烯压块作过一些临界实验^[16]，其实验数据提供了 PuO_2 均匀系统临界参数的某些资料。这种系统的中子谱是介于热系统和快系统之间的中能中子谱。鉴于这种系统只有很少的数据，故在这里作进一步的详细介绍。

实验所用的 PuO_2 -聚苯乙烯压块是用100筛目的聚苯乙烯和 PuO_2 在一个2吋³的模具内压制成的。立方压块中的钚密度为1.12克/厘米³（2.2%的 Pu^{240} ），其氢/钚原子比等于15。有些立方压块切割成1吋和1/2吋厚的小块，以便实验装置的尺寸可按1/2吋的尺度改变。

用聚苯乙烯 $(\text{CH})_x$ 做 PuO_2 -塑料压块的基材有以下几个优点：它有良好的成型性

质,可在高温下压缩成型,得到接近理论值的压块密度,而且从压块中释出的气体很少*。

实验是利用图27.41和27.42所示的遥控并合台机械装置进行的。实验期间,对于准立方体、长柱体、薄板等各种几何形状的直角棱柱体确定了临界尺寸和质量。对有反射的装置,用6吋厚的人造萤光树脂($C_6H_8O_2$)作反射体。6吋厚的人造萤光树脂反射体的反射作用大约与无限厚的人造萤光树脂等效。

对各个实验装置确定的临界尺寸和质量摘录于表27.1中。

表27.1 PuO_2 -聚苯乙烯压块的临界数据(氢/钚原子比=15; $Pu^{240}=2.20\%$)

反 射 体	临 界 尺 寸, 吋			临界质量, 公斤Pu	
	长	宽	高	实验数据†	修正的数据
萤光树脂	20.35	18.16	3.56 ± 0.02	23.41 ± 0.13	24.15 ± 0.14
萤光树脂	16.28	15.14	4.07 ± 0.02	17.85 ± 0.09	18.41 ± 0.09
萤光树脂	12.21	12.21	5.17 ± 0.02	13.72 ± 0.05	14.15 ± 0.05
萤光树脂	10.18	10.18	6.47 ± 0.02	11.93 ± 0.04	12.31 ± 0.04
萤光树脂	9.16	9.16	7.79 ± 0.02	11.63 ± 0.03	12.00 ± 0.03
萤光树脂	8.14	8.14	9.79 ± 0.03	11.45 ± 0.04	11.81 ± 0.04
萤光树脂	6.11	7.12	19.70 ± 0.03	15.24 ± 0.02	15.71 ± 0.02
无反射†	12.21	12.21	13.25 ± 0.03	35.15 ± 0.08	36.25 ± 0.08
无反射‡	12.08	12.08	13.61 ± 0.06	—	36.49 ± 0.16
无反射‡	12.08	12.08	12.88 ± 0.08	—	34.50 ± 0.21

† 未作修正的数据; $\rho=1.086$ 克Pu/厘米³。

‡ 对塑料燃料包壳作了修正; $\rho=1.12$ 克Pu/厘米³。

‡ 对控制棒材料、底部反射和塑料燃料包壳作了修正; $\rho=1.12$ 克Pu/厘米³。

如果任意地选取外推长度为2.5厘米,则准立方体裸露装置的临界曲率为 224×10^{-4} 厘米⁻²。对人造萤光树脂反射的装置测得的临界尺寸,若用 7.28 ± 0.5 厘米的外推长度,则与 224×10^{-4} 厘米⁻²的曲率数值相符。由上述曲率和外推长度数值可得出裸露的或全反射的无限平板临界厚度分别为 16.0 ± 0.4 厘米和 6.4 ± 0.3 厘米,这两个临界数据的误差反映了任意选取的裸露装置外推长度有0.5厘米的误差。

图27.6画出了临界高度与横向曲率之间的关系。图中的两条实线,是根据常数曲率 224×10^{-4} 厘米⁻²对裸露和反射装置分别用2.5厘米和7.28厘米的外推长度计算得到的。图27.6中还给出了12群扩散理论的计算结果。同时也给出了对全水反射钚-水混合物计算得到的临界数据,其钚-水混合物的氢/钚原子比为15,相应的钚浓度为1.62克/厘米³。

* 释出气体估计是因钚的自热产生的——译者注。

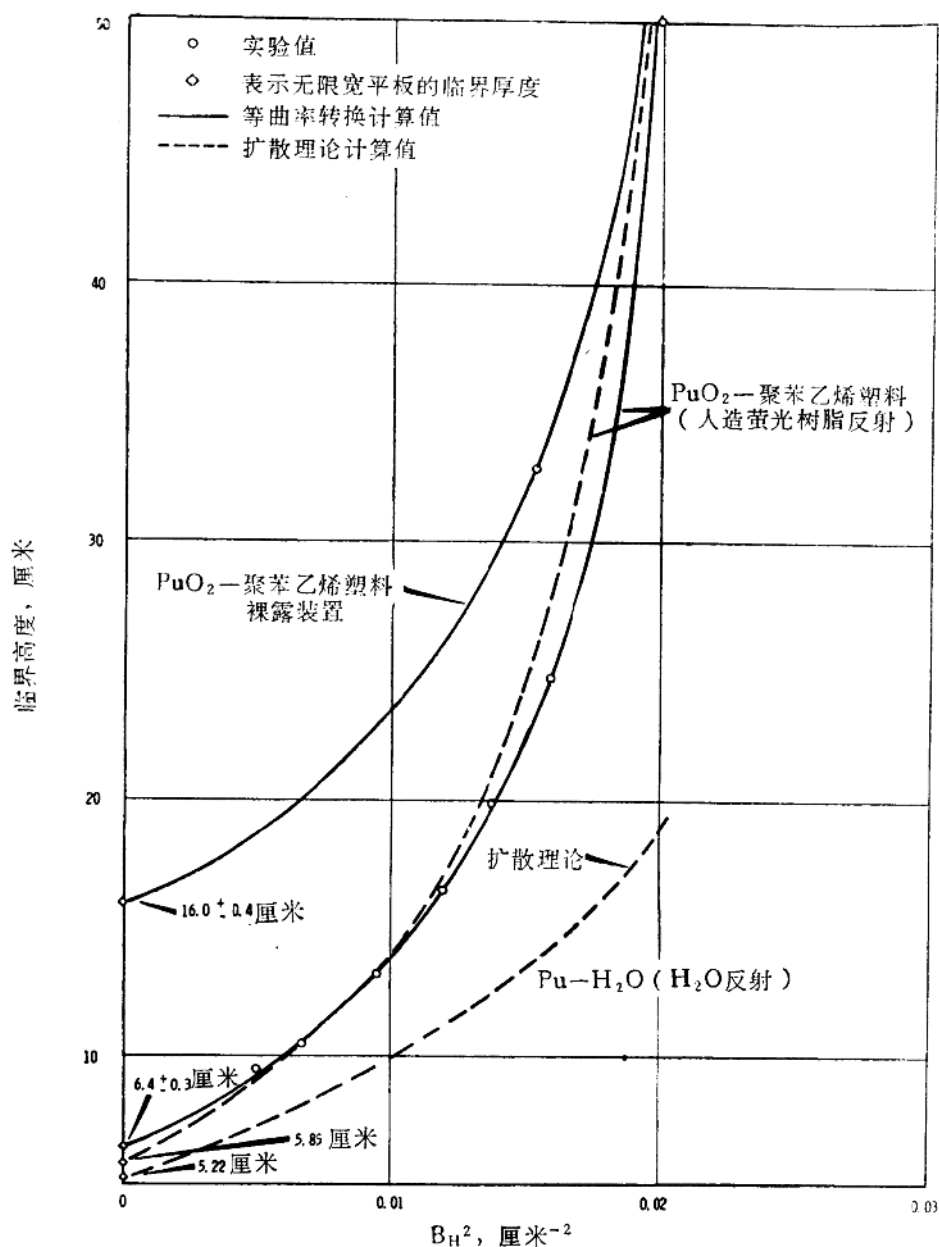


图27.6 裸的和6吋人造荧光树脂反射的 PuO_2 -聚苯乙烯压块 ($\text{H}/\text{Pu}=15$) 临界高度与横向曲率的关系

曾用一维多群中子扩散程序^[20]作过一系列的临界计算。计算是在 IBM 7090 数字计算机上进行的, 计算中用了18组能群^[21]。在这里及下一节中, 将给出这些计算的某些结果。

对 PuO_2 -水系统计算的临界质量如图27.7所示, 其中 PuO_2 的密度假定在氢/钚原子比等于零时为11.46克/厘米³。根据图27.5所示的实测密度, 计算得到的临界质量如图27.8所示, 计算的无限长圆柱临界直径示于图27.9。

PuO_2 系统和铀系统的临界质量之所以有很大差别是由于在氢/钚原子比较小钚系统的密度较小。将理论密度为11.46克/厘米³的 PuO_2 临界质量计算结果, 同氢/钚比为零、密度为5.6克/厘米³的 PuO_2 临界质量计算结果进行比较, 也可以十分明显地看出密度的影响。

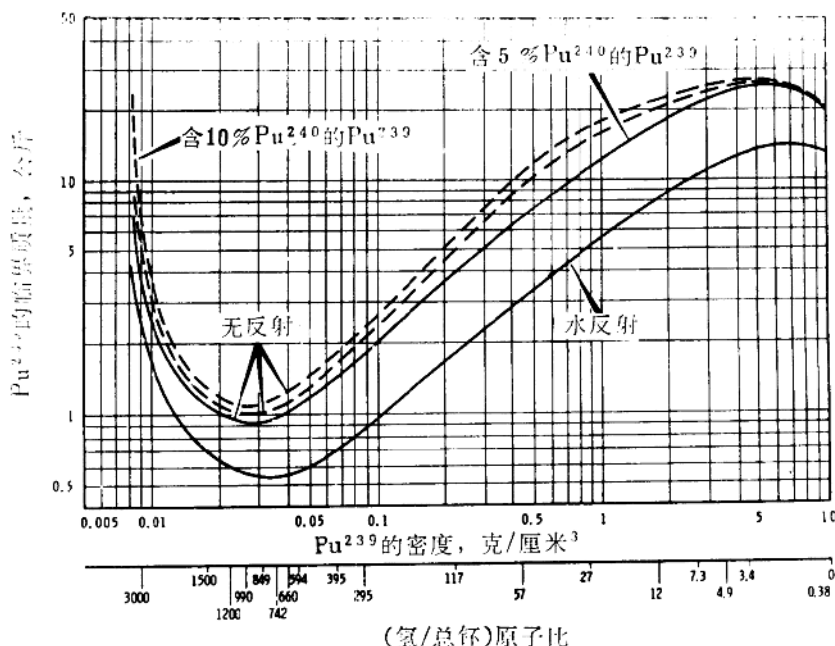


图27.7 计算得到的水慢化 PuO_2 球体临界质量*

必须强调指出, 上述 PuO_2 计算结果尚未得到实验验证。但是, 这些计算表明, 由于 PuO_2 密度减小临界质量大为增加, 这就使我们对这类系统的临界参数有了进一步的了解。

对 Pu_2O_3 和水的均匀混合物, Clark^[28]计算了材料曲率, 其外推长度可由球、无限长圆柱、无限宽平板的临界尺寸计算得到。

* 图27.7横坐标“ Pu^{239} 的密度”估计应为“总钚密度”——译者注。

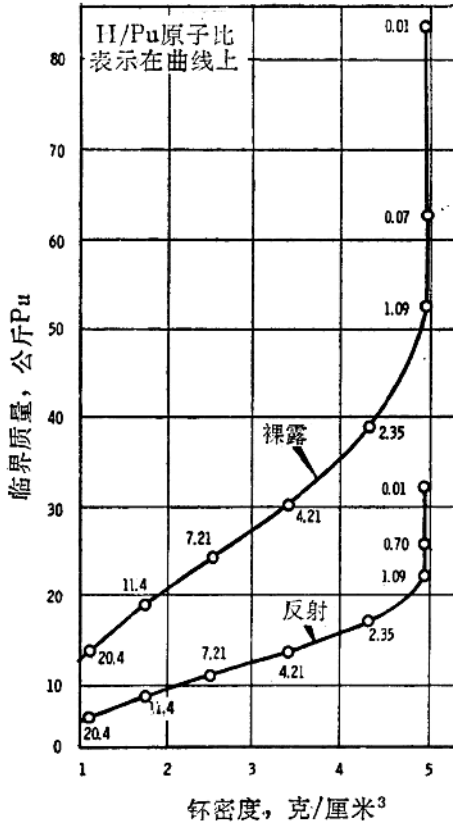


图27.8
计算的水慢化 PuO_2 球体临界质量(根据测量的 PuO_2 密度计算)

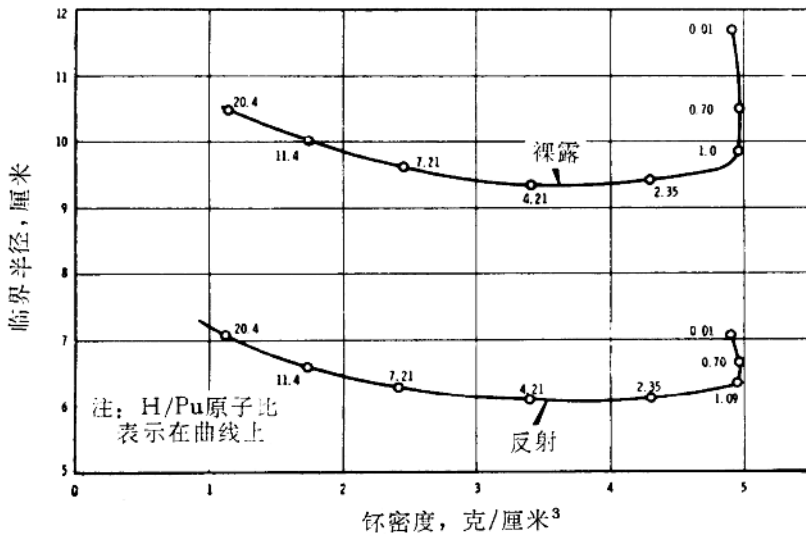


图27.9 计算的水慢化 PuO_2 无限长圆柱临界半径(根据测得的 PuO_2 密度计算)

27-2.3 Pu^{240} 对临界参数的影响

洛斯-阿拉莫斯的快临界装置测量表明, Pu^{240} 的净裂变产生率约为 Pu^{239} 的三分之二。还曾指出, Pu^{239} 中的 Pu^{240} 含量小于约 10% 时, 快临界装置的临界质量略有增加^[20]。因此, 对确定快临界装置的临界质量来说, 当 Pu^{240} 在钚金属中的含量小于 10% 时, 可认为 Pu^{240} 大致与 Pu^{239} 等效。

汉福特的 P-11 实验提供了 Pu^{240} 含量不大于 4% 的钚稀溶液临界质量的一些有限数据。有一组实验包括四个实验, 唯一的实验变量是 Pu^{240} 含量, 这组实验用来检验以前计算 Pu^{240} 影响时所用的计算方法。在表 27.2 中给出了这组实验的测量和计算结果^[20, 21]。可以看出, 氢/钚原子比和临界质量的变化范围是很小的, 但 $K_{\text{有效}}$ 的计算值却不精确地等于 1, 也没有指出结果的趋向或系统误差。

表 27.2 对 14 吋水反射 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 溶液 (~110 克硝酸根/升) 球计算的 $K_{\text{有效}}$

Pu^{240} , %	H/Pu 原子比	测量的钚临界质量*, 克	计算的临界装置 $K_{\text{有效}}$
0.54	824	626	1.0000
1.76	860	656	1.0010
3.12	911	700	0.9942
4.05	953	720	0.9987

* 包括 Pu^{240}

若与实验相符, 则每一种情况下计算的 $K_{\text{有效}}$ 应当等于 1。

对 $\text{Pu}-\text{H}_2\text{O}$ 系统, 萨瓦那河的 Clark^[28] 也曾利用输运近似作过多群计算。在许多情况下, 计算值与 Kruesi 等人^[4] 的临界实验结果作了比较。Clark 的计算与实验值符合得很好。

曾对 5%、10% Pu^{240} 的水慢化 PuO_2 球以及 Pu^{240} 含量不大于 20% 的水慢化钚球计算了 Pu^{240} 对临界参数的影响, 其结果表示在图 27.7 和图 27.10-27.15 中^[20, 21]。对 0%、5% Pu^{240} 的 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 溶液, 其计算结果表示在图 27.19-27.24 中。

在钚浓度较高, 如氢/钚原子比小于 50 时, Pu^{240} 的有效共振吸收截面对计算结果是非常灵敏的, 因此不能期望计算结果十分可靠。 Pu^{240} 作为一种中子毒物, 其影响程度取决于氢/钚原子比。计算表明, 当氢/钚原子比为 20-60 时, Pu^{240} 对临界质量的影响最大, 对更小的氢/钚原子比其影响减小。在汉福特实验中, 稀钚溶液是盛在 14 吋的水反射球内, 实验得出 Pu^{240} 每增加 1%, Pu^{239} 的临界浓度约增加 3%^[4]。

Pu^{240} 对临界参数的影响还同存在除水以外的其它稀释剂 (如 HNO_3) 有关。这种影响已在 Pu^{240} 含量不大于 7.5%, HNO_3 浓度分别为 2、4、6 M 的情况下作了详细研究^[21]。钚假定以 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 的形式存在。研究结果如图 27.16 所示。结果表明, Pu^{240} 引起的临界质量增大作用将随 Pu^{240} 和 HNO_3 浓度的增加而减小。可以看出, 钚浓度约

为600克/升时影响最大。这种影响是同单能级共振俘获理论一致的, 虽然影响的绝对数值不一定准确。这里给出的结果与早先的计算不一致, 早先的计算给出的 Pu^{240} 影响较小, 故较保守〔24〕。在氢/钚原子比和硝酸根浓度的宽广范围内, 曾根据汉福特P-11实验考虑了这些计算的绝对精确度, 结果表明, 在本章给出的计算结果中, 在氢/钚原子比约为200-1100, NO_3^- 浓度由80到600克/升的范围内, 其临界质量的误差不超过10%〔21〕。在上述范围以外, 计算的 Pu^{240} 增大作用未必更差。由最近在高钚和高硝酸根浓度情况下得到的临界数据来看, 随着钚浓度的增加其计算结果误差变大, 但仍然倾向于偏保守, 即计算的临界质量小于实验测量的数值〔10〕。总的趋向是低估了随硝酸根离子浓度增加, Pu^{240} 引起的临界质量的增加。当总钚浓度超过 100 克/升时, Pu^{240} 的影响比图27.16所示的数据还稍大些。

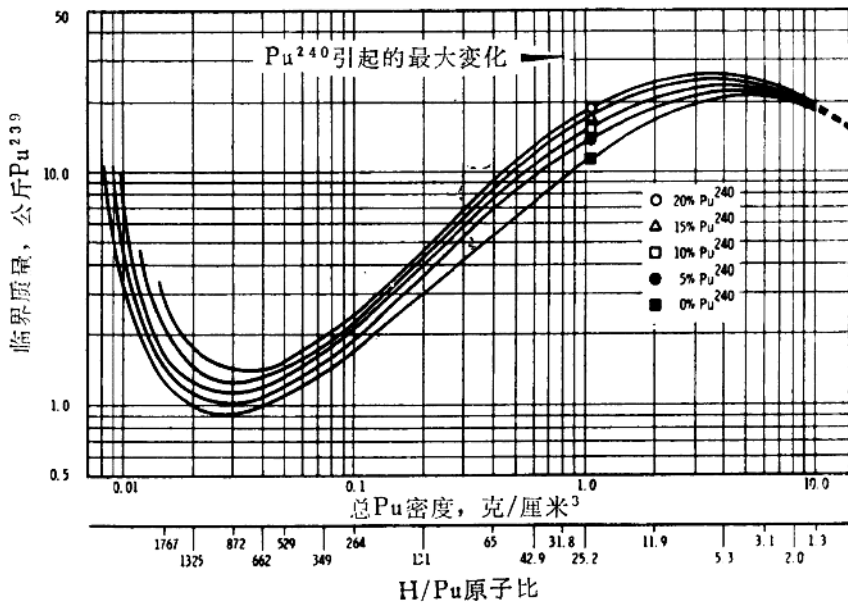


图27.10 对含有 0-20% Pu^{240} 的水慢化钚球计算的 Pu^{239} 临界质量与总钚密度的关系

图27.15所示的多群扩散理论计算结果给出了 Pu^{240} 对理想的钚-水溶液最小临界质量的影响〔21〕。在 Pu^{240} 含量不大于10%的范围内, 钚中每增加 1% Pu^{240} 时, Pu^{239} 裸球的最小临界质量约增加 2%。

多群扩散理论计算给出的 Pu^{240} 引起的临界质量和临界尺寸的增加尚需经过实验验证, 但目前这些计算已表明, 根据理想的 Pu^{239} -水系统临界参数确定工艺设备的核安全时, 将具有固有的安全因子。

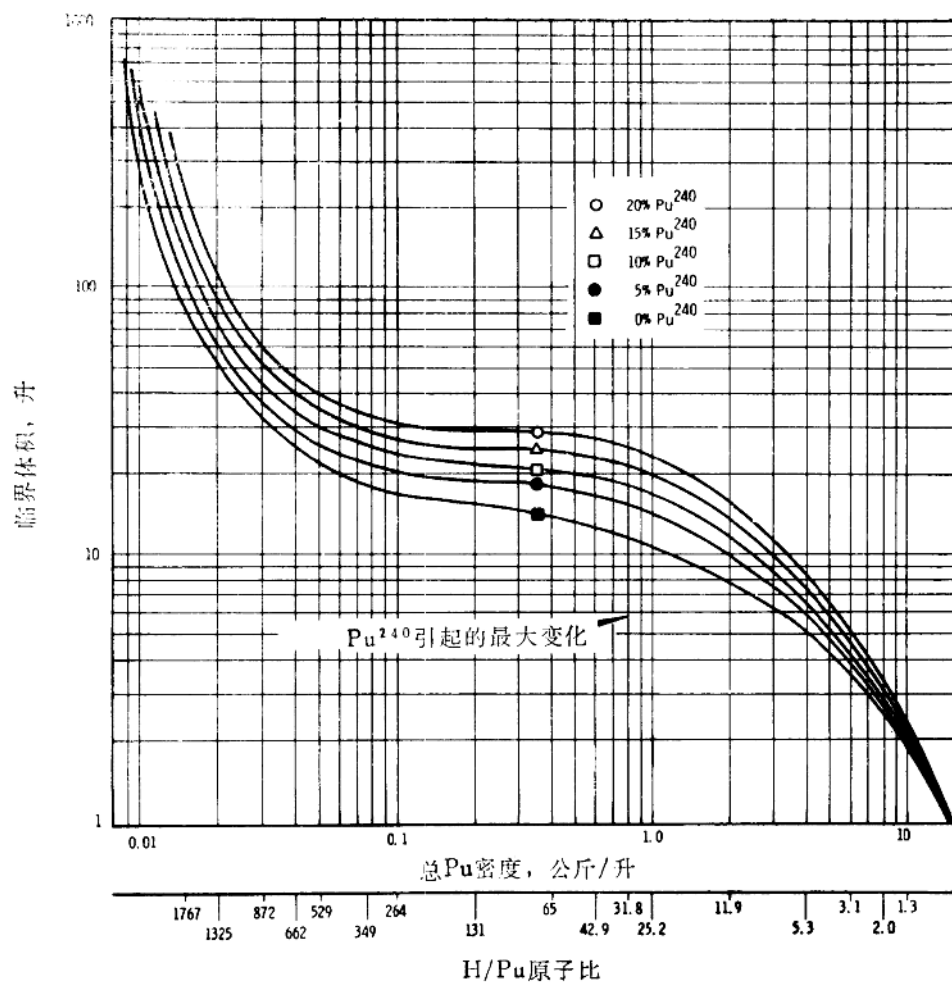


图27.11 对含有0—20% Pu^{240} 的水慢化铀球计算的 Pu^{239} 临界体积与总铀密度的关系

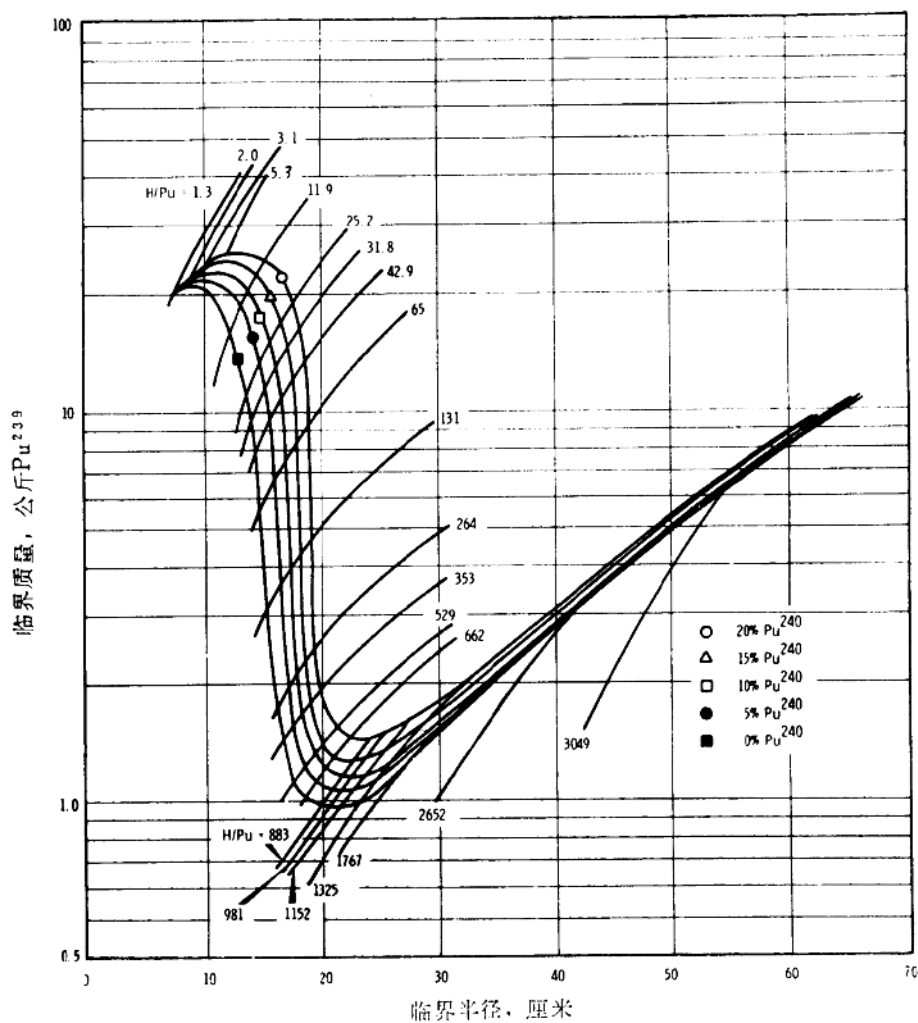


图27.12 对含有0-20% Pu^{240} 的水慢化裸球计算的 Pu^{239} 临界质量与临界半径的关系

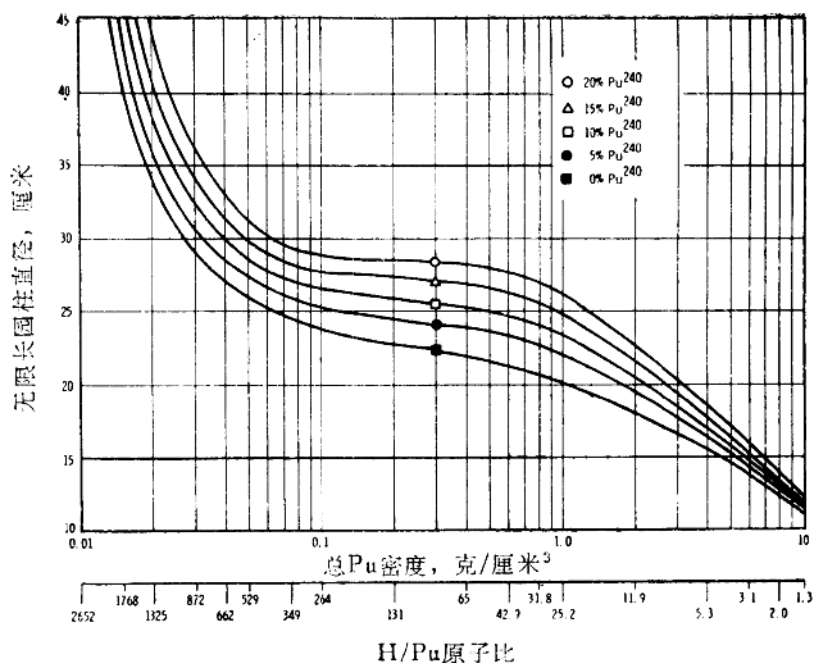


图27.13 对含有0—20% Pu^{240} 的水慢化裸无限长圆柱计算的临界直径与总钚密度的关系

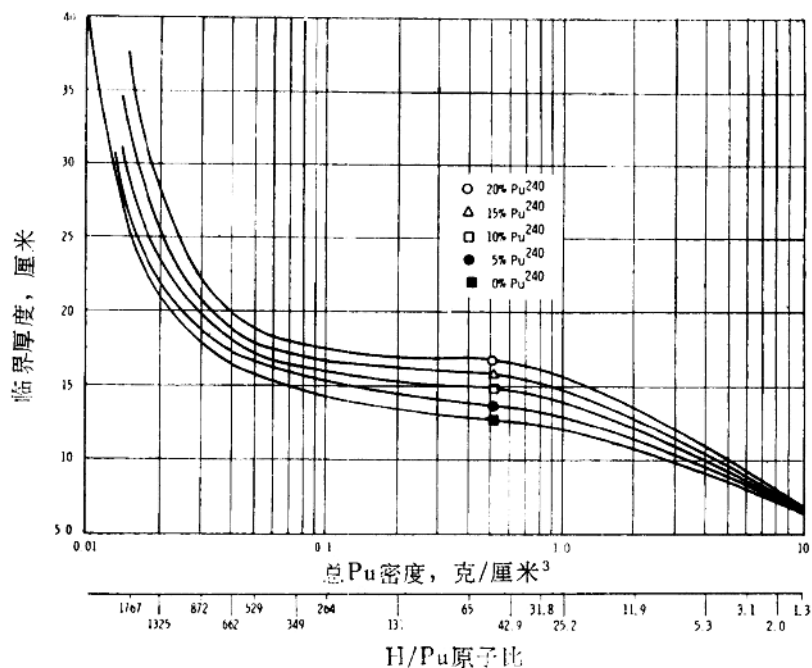


图27.14 对含有0—20% Pu^{240} 的水慢化钚混合物无限宽平板计算的临界厚度与总钚密度的关系