

文章编号:1000-6931(2001)02-0139-08

# MOX 燃料混料过程的优化

李怀林,李文焱

(中国原子能科学研究院 反应堆工程研究设计所,北京 102413)

**摘要:**本文采用 House holder 变换法对 MOX 燃料混料过程中 Pu 同位素均一化问题进行优化计算,并用轨迹求解法对球磨中的转速问题进行了初步探讨。

**关键词:**Pu 同位素均一化;House holder 变换法;球磨转速

**中图分类号:**TL352.24;O151.26 **文献标识码:**A

MOX (Mixed-oxide fuel) 燃料是快堆、压水堆的重要核燃料,已在法、英、俄罗斯等国得到实际应用。 $UO_2$ 、 $PuO_2$  粉末的混和是 MOX 燃料生产过程的关键工艺之一,包括 Pu 同位素均一化、 $UO_2$  与  $PuO_2$  粉末的混和、球磨阶段。目前,MOX 燃料主要用于替代轻水堆中部分铀燃料,约占堆芯的 1/3。从堆物理考虑,需确定 MOX 燃料中 Pu 同位素含量,以满足原以 U 为燃料的反应堆的设计要求。由于反应堆类型不同,能耗各异,所产生的乏燃料中 Pu 同位素含量则随之发生变化,因此,从后处理厂得到的不同批次的  $PuO_2$  中 Pu 同位素含量差异很大,需在各批次中进行选择,以保证混合后的  $PuO_2$  中 Pu 同位素含量达到规定的要求(同位素含量均一化),并使 Pu 尽可能多地投入生产中<sup>[1,2]</sup>,即解决如何选料和用量为多少的问题。另外,MOX 燃料芯块为  $PuO_2$  与  $UO_2$  粉末按规定百分比混合后烧结而成的  $(U, Pu)O_2$ ,  $UO_2$  和  $PuO_2$  粉末的活性对烧结过程、燃料堆内行为、后处理过程中的溶解性有重要的影响<sup>[3]</sup>。因此,需要确定球磨的转速,使球磨过程最佳化。

本工作对 MOX 燃料混料中 Pu 同位素均一化及球磨速度选择进行分析,对 Pu 同位素均一化和用量优化采用线性最小二乘问题的 House holder 变换法<sup>[4]</sup>进行计算,对球磨速度的选择进行初步探讨。

## 1 Pu 同位素均一化过程

MOX 燃料混料过程<sup>[1]</sup>可分为两个阶段:首先,在不同批次的  $PuO_2$  中进行选择,按规定的

收稿日期:1999-12-09;修回日期:2000-01-03

作者简介:李怀林(1971—),男,河北滦南人,助理研究员,在职硕士研究生,核材料专业

同位素含量制备出  $\text{PuO}_2$  原料,即 Pu 同位素含量均一化;然后,将制备好的  $\text{PuO}_2$  与  $\text{UO}_2$  按规定的百分比进行均匀混合。

### 1.1 Pu 同位素均一化过程分析

Pu 同位素含量均一化过程如下。

1) 给出混合后 6 种同位素  $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Am}$  的规定含量  $P_R$ 。

2) 从现有  $n$  批  $\text{PuO}_2$  中选择  $p$  批来制备满足 1) 所要求的  $\text{PuO}_2$ ,其可能的组合有  $C_n^p$ 。

3) 对每 1 种组合,通过下列超定方程组(6 个方程, $p$  个未知数)计算这  $p$  批料的用量和同位素含量值,将计算结果中的负值舍去,得到  $K$  ( $< C_n^p$ ) 种组合。每 1 种同位素  $i$  的用量都应满足

$$m_j P_{ij} = P_{Ri} \quad m_j \quad j = 1, 2, \dots, p$$

其中: $m_j$  为  $p$  批中第  $j$  种  $\text{PuO}_2$  的质量; $P_{ij}$  为第  $j$  种  $\text{PuO}_2$  中第  $i$  种同位素的含量; $P_{Ri}$  为混合后第  $i$  种同位素的含量。

对于满足同位素成分要求的组合  $a$  的结果,可表示为如下向量形式:

$$C_a = [m_{a1} \dots m_{an}]^T$$

式中: $n - p$  个矩阵元等于 0,这是因为在这种组合中只选择了  $p$  批料的缘故。

4) 从 3) 得到的用量可能超出  $p$  批料的总量,因此,需计算其合适的用量。为此,再从  $K$  种可能的组合中选出  $q$  种,组合数为  $C_K^q$ ,计算每 1 种组合方式是否满足质量约束。其过程为:

$$r_1 \times C_1 + r_2 \times C_2 + \dots + r_q \times C_q = [m_1 \dots m_n]^T$$

$r_i$  为满足同位素约束的  $C_i$  所占的质量百分比,为未知数,可从上式中解出。因此,组合  $C_i$  中第  $j$  种  $\text{PuO}_2$  的合适用量为  $r_i \times m_{ij}$ 。

从以上分析可以看出:优化计算的关键为线性超定方程组的求解。

### 1.2 线性最小二乘问题的 House holder 变换法

采用线性最小二乘问题的 House holder 变换法<sup>[4]</sup>计算上述过程。

设超定方程组为

$$AX = B$$

其中: $A$  为  $m \times n$  阶线性无关的矩阵( $m > n$ ), $X$ 、 $B$  均为  $n$  维列向量。

用 House holder 变换将  $A$  进行 QR 分解,即

$$A = QR$$

设

$$E = B - AX$$

用正交矩阵  $Q^T$  左乘上式两端,得

$$Q^T E = Q^T B - Q^T AX = Q^T B - RX$$

$Q^T$  为正交矩阵,有

$$E \cdot \frac{1}{2} = Q^T E \cdot \frac{1}{2} = Q^T B - RX \cdot \frac{1}{2}$$

其中, $\cdot$  表示矩阵或向量的欧氏范数。

若令

$$Q^T B = [C, D]^T, \quad RX = [R_1, O]^T X$$

其中: $C$  为  $n$  维列向量, $D$  为  $m - n$  维列向量, $R_1$  为  $n \times n$  阶上三角矩阵, $O$  为  $(m - n) \times n$

阶零矩阵。则有

$$E \frac{1}{2} = C - R_1 X \frac{1}{2} + D \frac{1}{2}$$

因此,当  $X$  满足  $R_1 X = C$  时,  $E \frac{1}{2}$  将取最小值。

由上所述,求解线性最小二乘问题  $AX = B$  的主要步骤如下。

1) 对  $A$  进行 QR 分解,即

$$A = QR$$

其中: $Q$  为  $m \times m$  阶正交矩阵; $R$  为  $m \times n$  阶上三角矩阵。且令

$$R = [R_1, O]^T$$

其中: $R_1$  为  $n \times n$  阶上三角矩阵。

2) 计算

$$[C, D]^T = Q^T B$$

其中: $C$  为  $n$  维列向量。

3) 利用回代计算方程组

$$R_1 X = C$$

$X$  即为所求。

### 1.3 算例

文献[2]给出的算例如下。

后处理厂提供的 8 批  $PuO_2$  的同位素百分含量及总质量如下:

批号	同位素百分含量(%)						总质量(g)
	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	
1	0.260	70.979	23.446	3.836	0.990	0.491	64 266.574
2	1.681	57.287	24.134	10.374	5.577	0.955	53 471.914
3	1.642	57.979	23.603	10.608	5.198	0.979	52 377.445
4	1.582	58.283	23.537	10.553	5.081	0.973	39 417.227
5	1.781	56.726	24.002	10.914	5.586	1.000	52 240.734
6	1.793	56.390	24.737	10.193	5.929	0.967	35 714.723
7	1.858	55.827	24.896	10.267	6.182	0.981	27 408.137
8	1.835	55.928	24.273	11.079	5.883	1.012	48 677.184

要求按 3 种批料组合制备下列百分比的  $PuO_2$  :

同位素	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
百分含量(%)	1.478 26	59.391 46	23.989 51	9.442 42	4.801 21	0.897 15

对此例,采用 House holder 变换法进行计算,并用 FORTRAN 77 编制计算程序。与文献[2]相对应的组合方式的优化质量组合及其同位素百分含量的计算结果列于表 1。

表 1 优化质量组合及其同位素百分含量计算结果

Table 1 The optimized mass combination and the isotopic percentage

组合 类型	批号	优化质量/g	同位素百分含量/ %					
			<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
1. 2. 5	1	14 987. 4 (14 923. 8)	1. 474 011 (1. 473 90)	59. 402 420 (59. 398 09)	23. 979 560 (23. 977 60)	9. 445 663 (9. 444 96)	4. 814 526 (4. 814 17)	0. 891 123 (0. 891 06)
	2	47 853. 5 (47 650. 5)						
	5	27 003. 4 (27 888. 3)						
1. 2. 8	1	2 786. 2 (2 886. 8)	1. 468 576 (1. 468 46)	59. 385 470 (59. 380 94)	24. 057 820 (24. 055 97)	9. 395 172 (9. 394 44)	4. 812 203 (4. 811 84)	0. 888 416 (0. 888 36)
	2	5 617. 5 (5 821. 5)						
	8	5 933. 0 (6 146. 7)						
1. 3. 6	1	13 727. 4 (13 738. 4)	1. 485 699 (1. 485 56)	59. 389 950 (59. 386 24)	23. 978 170 (23. 976 26)	9. 435 781 (9. 436 04)	4. 817 509 (4. 817 12)	0. 900 828 (0. 900 76)
	3	44 989. 5 (45 026. 4)						
	6	31 870. 0 (31 895. 0)						
1. 3. 8	1	13 749. 4 (13 681. 2)	1. 473 678 (1. 473 66)	59. 404 750 (59. 399 92)	24. 017 520 (24. 015 56)	9. 465 549 (9. 464 78)	4. 750 618 (4. 760 23)	0. 896 044 (0. 895 97)
	3	7 387. 2 (7 361. 1)						
	8	42 742. 7 (42 530. 5)						
1. 4. 6	1	1 449. 5 (1 440. 5)	1. 4713 84 (1. 471 26)	59. 396 620 (59. 391 90)	23. 985 420 (23. 983 46)	9. 440 068 (9. 439 31)	4. 813 724 (4. 813 33)	0. 900 767 (0. 900 70)
	4	4 698. 4 (4 669. 5)						
	6	3 843. 5 (3 819. 4)						
1. 4. 7	1	10 265. 8 (10 256. 3)	1. 472 977 (1. 472 65)	59. 394 920 (59. 389 82)	23. 976 410 (23. 974 34)	9. 435 971 (9. 435 17)	4. 825 969 (4. 825 55)	0. 902 357 (0. 902 28)
	4	34 718. 3 (22 489. 4)						
	7	22 510. 4 (34 687. 0)						
1. 5. 7	1	7 305. 9 (7 339. 5)	1. 494 257 (1. 472 65)	59. 389 810 (59. 389 82)	24. 010 420 (23. 974 34)	9. 448 153 (9. 435 17)	4. 767 068 (4. 825 55)	0. 898 187 (0. 902 28)
	5	25 236. 2 (25 352. 5)						
	7	4 896. 3 (4 916. 7)						

注:括号内为文献[2]的值

由表 1 所列数据可见:House holder 变换法的计算结果与文献[2]的结果相差不大,这说明

线性最小二乘问题的 House holder 变换法可应用于 MOX 燃料 Pu 同位素均一化计算。

#### 1.4 多种可能的选择

从计算中可以看到:满足 Pu 同位素均一化优化计算的结果并不唯一,这为实际应用提供了更多选择。例如:PuO<sub>2</sub> 从生产到应用有时间限制,假如批料 5 即将到期,应尽快投入生产,但在上例中,需经两次生产过程才能将该批料得到最大利用,而采用下列组合,在 1.5.7 方式下,一次即可将批料 5 用完(表 2)。

表 2 特定批料一次使用组合方式  
Table 2 The once applying combination for speck batch

组合 类型	批号	优化质量/g	同位素百分含量/%					
			<sup>239</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
1.2.3	1	10 359.9	1.465 369	59.404 510	23.965 130	9.433 928	4.849 079	0.889 214
	2	50 707.3						
	3	8 794.7						
1.2.8	1	1 370.5	1.468 576	59.385 470	24.057 820	9.395 172	4.812 203	0.888 416
	2	2 763.3						
	8	2 918.5						
1.3.6	1	1 494.1	1.485 699	59.389 950	23.978 170	9.435 781	4.817 509	0.900 828
	2	4 896.8						
	6	3 468.9						
1.3.7	1	9 046.8	1.488 357	59.387 920	23.969 250	9.431 804	4.828 886	0.902 280
	3	30 776.8						
	7	17 270.7						
1.3.8	1	14 718.9	1.473 678	59.404 750	24.017 520	9.465 549	4.750 618	0.896 044
	4	7 908.1						
	8	45 756.6						
1.4.6	1	12 160.0	1.471 384	59.396 620	23.985 420	9.440 068	4.813 724	0.900 767
	4	39 416.4						
	6	32 244.2						
1.5.7	1	15 123.2	1.494 257	59.389 810	24.010 420	9.448 153	4.767 068	0.898 187
	5	52 239.1						
	6	10 135.4						

#### 1.5 不同组合方案 C<sub>n</sub><sup>p</sup> (p 不同) 的比较

对不同组合方案 C<sub>8</sub><sup>3</sup>、C<sub>8</sub><sup>4</sup>、C<sub>8</sub><sup>5</sup> 的所有组合方式的同位素含量进行计算。结果表明:C<sub>8</sub><sup>4</sup> 组合方案的 Pu 同位素含量与文献[2]的算例规定值最为接近,其产量与 C<sub>8</sub><sup>3</sup> 相近,而 C<sub>8</sub><sup>5</sup> 则差别显著。

## 2 球磨转速的确定

由 UO<sub>2</sub> 粉末和均一化的 PuO<sub>2</sub> 粉末按一定百分比组成的混合物需经球磨工艺研磨,使其具有一定的活性。球磨的工作原理为:在旋转的鼓室中,磨球被鼓室壁携带到达一定的高度点后脱离鼓室壁落下,并对位于其下的混合物进行冲击,持续一段时间后,混合物被研磨到要求具有的活性。

为简单起见,只讨论最外层磨球的运动<sup>[4]</sup>。如图 1 所示,鼓室的半径为  $R$ 、转动角速度为  $\omega$ ,磨球的半径为  $r$ 、质量为  $m$ ,其脱离点  $A_1$  的径向与  $y$  轴的夹角为  $\alpha$ 。在  $A_1$  处,磨球的  $m^2(R-r)$  与其重力的径向分量  $mg\cos\alpha$  相平衡,即  $m^2(R-r) = mg\cos\alpha$ ,  $\alpha = [g\cos / (R-r)]^{1/2}$ 。

当  $\alpha = 0$  时,重力与离心力平衡的转速  $\omega_c$  为临界转速,  $\omega_c = [g / (R-r)]^{1/2}$ 。磨球脱离鼓室壁后,在  $xOy$  坐标系内的运动方程为

$$x = vt\cos\alpha, \quad y = vt\sin\alpha - gt^2/2$$

其中:  $t$  为磨球飞行时间;  $v$  为磨球的脱离速率,  $v = \omega(R-r)$ 。

显然,磨球的运行轨迹为抛物线,即

$$y = x \tan\alpha - gx^2 / (2v^2\cos^2\alpha)$$

磨球降落点  $B_1$  的坐标( $xOy$  坐标系下)应满足圆方程:

$$[x - (R-r)\sin\alpha]^2 + [y + (R-r)\cos\alpha]^2 = (R-r)^2$$

由此可得:

$$x^2 - x/\cos^2\alpha + y^2 = 0$$

这样,可解得  $y_{A_1} = 0$ ;  $y_{B_1} = -4(R-r)\sin^2\alpha\cos\alpha$ 。其中:  $y_{A_1}$  为脱离点  $A_1$  本身的纵坐标;  $y_{B_1}$  为降落点  $B_1$  的纵坐标。

球磨利用磨球的动能进行粉碎,其最有利的工作转速应使磨球具有最大的下落距离。磨球脱离鼓室后能达到的高度  $y_{\max} = v^2\sin^2\alpha / (2g)$ , 最高点到降落点的距离  $H = y_{\max} - y_{B_1} = \frac{9}{2}(R-r)\sin^2\alpha\cos\alpha$ 。

由  $dH/d\alpha = 0$ , 在  $0 \sim \pi/2$  范围内可得  $\cos\alpha_{\text{eff}} = 0.5774$ 。

尽管不可能使各层磨球都达到最有利的脱离角  $\alpha_{\text{eff}}$ , 但最外层磨球的动能最大、数量最多,其在球磨过程中起的作用最大。因此,球磨速度的选择应使磨球的角速度  $\omega_{\text{eff}} = 0.76\omega_c$ 。

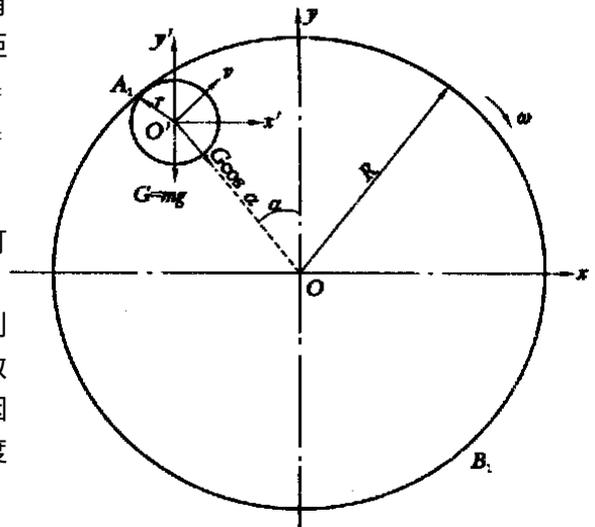


图 1 最外层磨球的运动状态

Fig. 1 The moving of the outer-layer milling ball

### 3 讨论

1) 对比文献[2]与用线性最小二乘问题的 House holder 变换法的计算结果可知: 两者的同位素百分比含量和优化质量相差不大,这说明 House holder 变换法可应用于 MOX 燃料 Pu 同位素均一化计算。

2) 从计算中可看出: 满足同位素百分比含量的优化计算结果并不唯一,这为实际应用提供了更多的选择。

3) 对本工作的算例,在不同的混料组合方案中,  $C_3^4$  组合方案最为有利。若将选出的  $C_3^3$ 、

$C_8^4$  混料类型再各自独立混合,所得混合物的 Pu、Am 分布与规定值相差很小。因此,  $C_8^3$ 、 $C_8^4$  都可用于两次混合。

4) 我国待建的 MOX 燃料制造实验室规模较小。只相当于我国实验快堆一次装料量或秦山核电站几个组件的用量。因此,为了节省资金,缩短建设周期,可考虑在一条生产线上既生产快堆用又生产水堆用的 MOX 燃料,其混料过程可按图 2 进行。

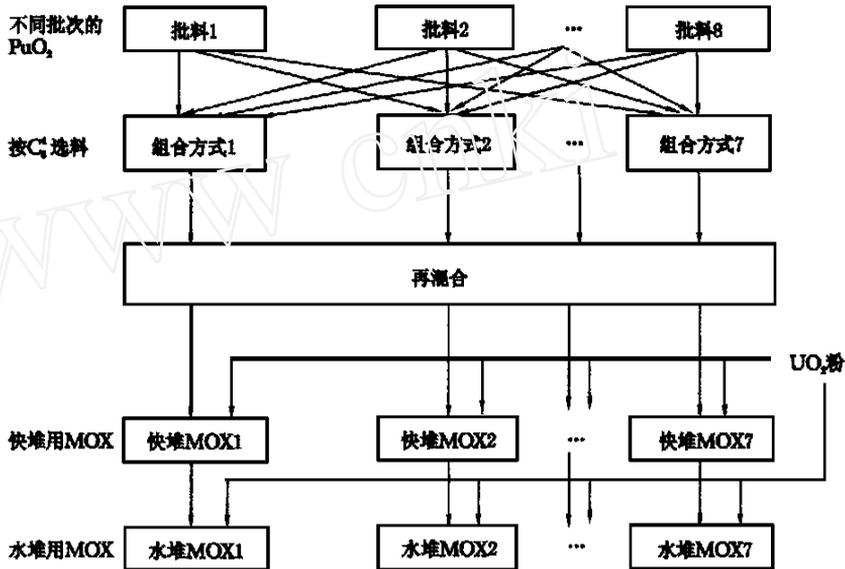


图 2 MOX 混料建议流程图

Fig. 2 Advised flow chart of MOX blending

5) 球磨最有效的工作条件应是使数量最多的最外层磨球的动能最大,这时,磨球的转动角速度为临界转动角速度的 76%。这一分析结果与文献[3]的试验结果相符合。

华大平老师、韩化同志为本工作提供了很多帮助,特此感谢。

#### 参考文献:

- [1] Didie H, Alen V, Jean V, et al. Mixed-oxide Fuel Fabrication Technology and Experience at the Belonucleaire and CFCa Plants and Further Developments for the MELOX Plant[J]. Nucl Technol, 1994, 106:60~82.
- [2] Britton J, Guelfi P, Nougues B. Isotopic Homogeneity and Batch Mixing Constrains[A]. Recycling of Plutonium and Uranium in Water Reactor Fuels: IWGFPT/35[C]. Vienna: IAEA, 1990. 145~149.
- [3] Warin D, Bauer M, Seiss M, et al. Mechanisms of Dry Ball Milling in MOX Fabrication[A]. Recycling of Plutonium and Uranium in Water Reactor Fuel: IAEA-TECDOC-941[C]. Vienna: IAEA, 1997. 107~111.
- [4] 刘先志. 球磨绝对最高粉碎产量装载因数的推求及球磨在运用中力的关系[J]. 力学学报, 1959, 3(1): 45~79.

## Optimisation for the Blending of MOX Fuel

LI Huai-lin , LI Wen-dan

( China Institute of Atomic Energy , P. O. Box 275-51 , Beijing 102413 , China)

**Abstract :** The blending of  $UO_2$  and  $PuO_2$  powders is the key technology in the MOX fuel manufacturer. The Pu isotopic homogeneous , blending of  $UO_2$  and  $PuO_2$  and ball milling will be done in the blending process. In the paper , the House holder transform is applied to calculate the Pu isotopic homogeneous , and the track method is adopted to calculate speed of ball milling. All of the calculated results are accordance with the those from reference.

**Key words :** Pu isotopic homogeneous ; House holder transform ; speed of ball milling

## 核废物管理的科学基础(第 22 卷)

### Scientific Basis for Nuclear Waste Management

编者 : David J. Wronkiewicz. 1999 年 MRS 出版。

《核废物管理的科学基础》研讨会于 1998 年 11 月 30 日至 12 月 4 日在波士顿召开。代表 16 个不同国家的 190 位作者向大会提交了论文。会议收集了其中的 162 篇文章 , 分为 18 个专题加以发表 , 它们是 :

陶瓷废物固化体的性能鉴定 ; 陶瓷废物固化体的腐蚀 ; 玻璃特性及结构 ; 乏燃料 ; 自然模拟 ; 容器腐蚀 ; 金属废物固体腐蚀 ; 放射性核素的溶解度 ; 辐射效应 ; 放射性核素吸附 ; 废物处理以及微生物效应等。

摘自中国原子能科学研究院《科技信息》