

压水反应堆一回路水中二次带电粒子核反应产物的比活度

龚学余¹, 郭兰英¹, 何宪¹, 凌球¹,
黄锦华², 张国书², 王英明³

(1. 中南工学院 技术物理系, 湖南 衡阳 421001; 2. 核工业西南物理研究院, 四川 成都 610041;
3. 中国核动力研究设计院, 四川 成都 610041)

摘要:压水反应堆内的快中子与一回路水中的氢发生弹性散射产生的高能量的质子与水中核靶发生核反应产生了具有放射性的核素。以秦山二期压水堆为例, 计算了高能中子通量, 求出了质子能谱, 然后计算了一回路水中由 $^{16}\text{O}(p, \gamma)^{13}\text{N}$ 反应产生的 ^{13}N 、 $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ 反应产生的 ^{18}F 和 $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 反应产生的 ^{11}C 的产生率。根据一回路水的循环特征, 获得了这些核素的比活度。

关键词:核反应; 放射性; 比活度; 中子通量; 质子谱

中图分类号: TL375.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6931(2000)02-0166-07

在核电站运行过程中, 压水堆压力容器顶部的控制棒驱动机构和反应堆一回路管道可能发生破裂(这种情况已经在一些在役的反应堆上出现), 产生一回路水泄漏。为了确保反应堆的安全运行, 必须研制一套有效的监测系统对泄漏进行连续监测, 同时能准确地给出泄漏率。压力容器中的水是高温高压的, 一旦泄漏到安全壳内将变成气体并与安全壳中的空气混合, 因此对泄漏的监测变为对安全壳内空气的监测, 于是人们提出监测 ^{13}N 的基本思想。 ^{13}N 来源于二次带电粒子 $^{16}\text{O}(p, \gamma)^{13}\text{N}$ 反应。 ^{13}N 是一种具有 β^+ 衰变的放射性核素, $T_{1/2} = 9.96 \text{ min}$, 放射出的 β^+ 粒子与负电子发生湮灭生成两个能量为 0.511 MeV 的光子, 通过测量安全壳内空气中能量为 0.511 MeV 的光子数目, 就可确定泄漏率。针对一回路水中一些主要核素, 研究和计算3种由于二次带电粒子核反应产生的放射性核素的比活度, 即 $^{16}\text{O}(p, \gamma)^{13}\text{N}$ 核反应产生的 ^{13}N 、 $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ 核反应产生的 ^{18}F 和 $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 核反应产生的 ^{11}C 。

1 高能中子通量谱和(n, n)反应率

1.1 中子通量谱

计算是针对秦山二期压水反应堆, 其反应堆物理计算是先计算多群中子能谱(中子能量只

收稿日期: 1999-01-18; 修回日期: 1999-07-13

基金项目: 核工业总公司“八五”、“九五”重点攻关项目子课题(95-2)

作者简介: 龚学余(1962—), 男, 湖南桃江人, 副教授, 核工程与核技术应用专业

到 10 MeV),然后并成少群参数(4群)作临界计算,得到堆内的少群中子通量。而需要的高能中子通量必须重新计算。计算采用空间一维柱模型,计及堆芯有限高度 H 的中子泄漏,按照堆芯介质的分布,划分为 12 层同心的圆环区,中子能量从 0 ~ 20 MeV 之间分成 44 群。44 群微观截面从 175 群并群得到(175 群截面数据来自 IAEA 提供的 FENPL/MG,以及核工业西南物理研究院基于 ENDF/B- 并补充的裂变燃料多群截面库),第 43 和 44 群考虑了共振能区的屏蔽效应和热中子的非均匀栅格效应。中子输运采用 ANISN 程序,在 P_1S_4 近似下得到 $k_{eff} = 1.019$,中子相对通量空间能谱 $\phi_0(r, E)$ 对空间平均后得到中子相对通量能谱 $\overline{\phi_0(E)}$ 。图 1 示出堆中平面高能中子通量随能量的变化,下标“0”表示相应于堆中平面 $z = 0$ 的相对值,即一维计算归一化后的数值。由堆的总功率可以得到通量的绝对值,设堆的总功率为 P_t (MW),每次裂变释放的能量为 E_{fi} (MeV),则堆的总裂变率 A (s^{-1}) 为:

$$A = 0.624 \times 10^{19} P_t / E_{fi} \tag{1}$$

通量的相对值到绝对值的转化因子为 A / k_{eff} 。

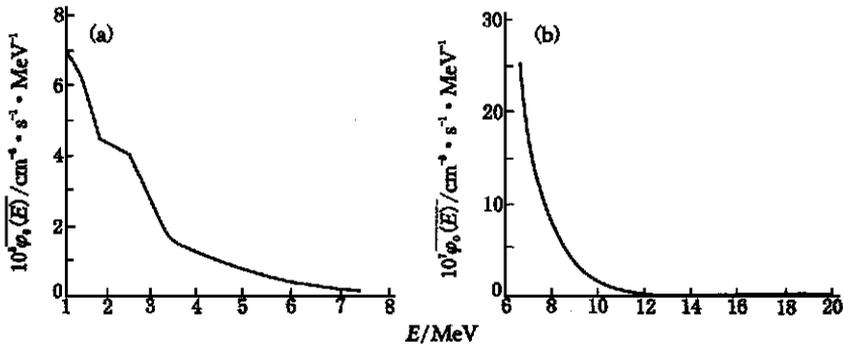


图 1 堆中平面中子相对通量

Fig. 1 Relative neutron flux in reactor midplane

(a) — 1 ~ 7 MeV; (b) — 7 ~ 20 MeV

1.2 中子与氢的弹性散射反应率

对 $z = 0$ 处 1 cm 高堆芯的裂变总数归一后,该区域中 $E_g \sim E_{g+1}$ 能量范围内的 g 群中子与氢的弹性散射反应率为:

$$R_{0,g} = \int_{E_{g+1}}^{E_g} dE N_H s_0(r, E) 2 r dr \tag{2}$$

式中: N_H 为介质中氢核密度; s_0 为中子与氢的弹性散射截面。假设堆芯轴向中子通量按余弦函数分布,对全高度堆芯的裂变总数归一后,相应的反应率为:

$$R_{T,g} = \frac{\int_{-H_c/2}^{H_c/2} N_H s_0(r, E) 2 r \cos(\frac{y}{H}) dy}{\int_{-H_c/2}^{H_c/2} \cos(\frac{y}{H}) dy} = R_{0,g} \tag{3}$$

式中: $H = H_c + 2r_0$, H_c 为堆芯高度, r_0 为外推距离。故相应堆功率为 P_t 时,全堆的氢弹性散射反应率的绝对值为:

$$R_a = \sum_g R_{0,g} \cdot \frac{A}{k_{\text{eff}}} \quad (4)$$

若堆的体积为 V , 则单位体积中的绝对反应率为:

$$R_{\text{av},g} = \frac{R_{a,g}}{V} = CR_{0,g} \quad (5)$$

式中: $C = BP_i / V$, $B = 0.624 \times 10^{19} / (E_{fi} \cdot k_{\text{eff}})$ 。

2 反冲质子能谱

2.1 单能中子的反冲质子谱

1 个能量为 E 的中子经质子散射后, 其能量服从 $1/E$ 分布, 即中子能量出现在 $E \sim E + dE$ ($E < E$) 的几率为:

$$f_n(E \sim E) dE = \frac{1}{E} dE \quad (6)$$

考虑质子静止, 根据能量守恒, 反冲质子的能量 $E_p = E - E$ 。其中: E 为入射中子能量; E 为散射中子能量。显然 E_p 的取值区间为 $[0, E]$ 。反冲质子能量在 $E_p \sim E_p + dE_p$ 范围内的几率与中子能量在 $E \sim E + dE$ 范围的几率 $f_n(E \sim E) dE$ 相对应, 即

$$f_p(E_p) dE_p = \frac{1}{E} dE_p \quad (7)$$

由上式知 $f_p(E_p)$ 与 E_p 无关, 所以, 反冲质子在 $[0, E]$ 内均匀分布。

2.2 能量在 $E_p \sim E_p + dE_p$ 内的反冲质子数

若能量为 E 的中子与氢发生弹性散射的反应率为 $R(E)$, 则能量出现在 $E_p \sim E_p + dE_p$ 的质子数为 $R(E) dE_p / E$ 。由于堆中中子能量连续分布, 因而中子与氢的弹性散射反应率也是随能量连续分布的。由此可知能量在 $E_p \sim E_p + dE_p$ 内的质子数 $R(E_p)$ 为中子能量从 E_p 到 E_{max} 之间的中子所产生的反冲质子的叠加, E_{max} 为堆中最大中子能量, 在计算中取为 20 MeV。为了便于数值计算, 将能量区间 $[E_p + dE_p, E_{\text{max}}]$ 分成 n 个小区间, 若在第 i 个区间 $[E_i, E_i + E_i]$ 内的弹性散射反应率为 $R_i(E_i)$, 则 $R(E_p)$ 为:

$$R(E_p) = \sum_{i=1}^n \frac{R_i(E_i)}{E_i} dE_p \quad (8)$$

若按能群划分上述区间, 会给计算结果带来误差, 因此在进行数值计算时将原来的能群再均分细, 对应能群的散射反应率也进行均分。在能量 E_p 附近单位能量间隔、单位时间、单位体积中的质子数 $N(E_p)$ 为

$$N(E_p) = \frac{R(E_p)}{dE_p} = \sum_{i=1}^n \frac{R_i(E_i)}{E_i} \quad (9)$$

质子能量大于 6 MeV 的 $N(E_p) / (BP_i) \sim E_p$ 的变化曲线示于图 2。

3 带电粒子核反应

在堆中质子能量为连续分布, 要求出堆中带电粒子与靶发生核反应的反应率, 必须先分别求出质子在不同能区内的反应率, 然后进行求和。若单位时间内由 (n, n) 反应产生能量在 $E_p \sim E_p + E_p$ 内的质子数为 $R(E_p)$, 当 E_p 很小时, 质子能量近似为 E_p , 则 $R(E_p)$ 个质子发生

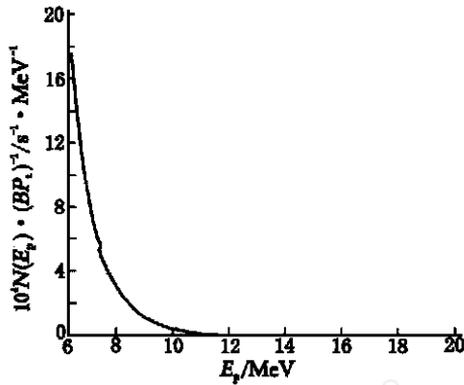


图2 质子数谱

Fig. 2 Proton spectrum

的反应数为:

$$R_{p,i}(E) = \frac{E_p}{E_s} \frac{R(E_p) N(E)}{(-dE/dx)} dE \tag{10}$$

式中: E_s 为核反应阈能,不同核反应取值不同, $^{16}\text{O}(p, n)^{13}\text{N}$ 反应为 6.5 MeV, $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ 反应为 3 MeV, $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 反应为 3.5 MeV; $\sigma(E)$ 是相应的核反应截面,图 3 示出了它们的激发曲线; N 为单位体积中的靶核数,可表示为 $N = N_A f_n f_w / A$,其中 ρ 为水的密度, N_A 为阿伏加德罗常数, f_n 为靶核同位素的天然丰度, f_w 为靶核在水中的质量百分比; $-dE/dx$ 为靶物质对带电粒子的阻止本领,由 Bethe-Bloch 公式^[11]描述:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4}{m_e v^2} \frac{e^4 Z_1^2 N Z_2}{I(1 - \beta^2)^2} \left[\ln \frac{2 m_e v^2}{I(1 - \beta^2)} - \beta^2 - \left(\frac{c}{Z_2} + \beta \right) \right] \tag{11}$$

式中: m_e 为电子质量; Z_1 为入射粒子的电荷数; Z_2 为阻止物质(靶核)的原子序数; I 是阻止物质的平均电离电位,近似为 $I = I_0 Z_2$,这里 $I_0 = 11.6 \text{ eV}$; v 为入射粒子速度, $\beta = \frac{v}{c}$, c 为光速; $(\frac{c}{Z_2} + \beta)$ 是考虑了密度效应和壳层效应的修正。若靶核由化合物组成,则阻止本

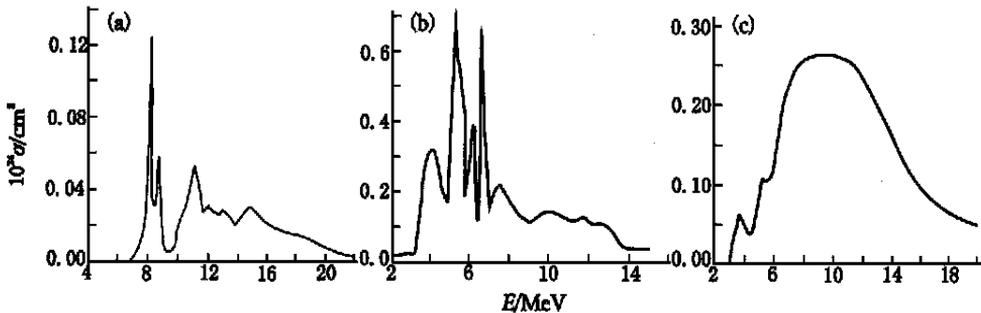


图3 不同反应的激发曲线

Fig. 3 Excitation curve of different kinds of nuclear reaction

(a) $^{16}\text{O}(p, n)^{13}\text{N}$ 反应; (b) $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ 反应;
(c) $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 反应

领按布拉格相加规则处理。若 dE/dx 以 MeV/cm 为单位, Bethe-Bloch 公式可以表示为:

$$-\frac{dE}{dx} = 0.508 \times 10^{-24} \frac{Z_1^2 Z_2 N}{2} \left[\ln \frac{1.022^2}{11.6 \times 10^{-6} Z_2 (1 - \beta^2)} - 2 - \left(\beta + \frac{c}{Z_2} \right) \right] \quad (12)$$

$$\beta^2 = \frac{(E/mc^2)^2 + 2(E/mc^2)}{(E/mc^2 + 1)^2}$$

式中: m 为入射粒子质量; E 为入射粒子能量 (MeV)。利用式 (12), 对式 (10) 进行数值积分可求出 $R_{p,i}$ 。若在 $[E_s, E_{\max}]$ 间划分 n 个小区间 (此划分与求质谱划分区间对应), 则总的反应率为:

$$R = \sum_i R_{p,i}(E) \quad (13)$$

秦山二期堆总裂变功率 $P_t = 1930$ MW, 堆体积 $V = 2.0456 \times 10^7 \text{ cm}^3$, 则 $^{16}\text{O}(p,)^{13}\text{N}$ 的反应率 $R(^{13}\text{N}) = 4.796 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。 ^{18}O 的核密度为 $2.04 \times 10^{-3} N(^{16}\text{O})$, $N(^{16}\text{O})$ 为一回路水中 ^{16}O 的核密度, $^{18}\text{O}(p,)^{18}\text{F}$ 的反应率 $R(^{18}\text{F}) = 2.494 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。 ^{11}B 的天然丰度 $f_n = 80.2\%$, 在一回路水中的质量百分比 $f_w = 1.174 \times 10^{-6}$, $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 的反应率 $R(^{11}\text{C}) = 6.003 \times 10^3 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

4 一回路水中放射性核素的比活度

设一回路水流经压力壳内的时间为 t_s , 循环一周的总时间为 T , 则在外回路流经的时间为 $T - t_s$ 。由于中子与氢核反应产生质子, 与水中的核素反应产生放射性核素的产额极小, 与堆芯内的氢、氧等核数相比可以不计, 故可以认为氢、氧等靶核的核数为常数, 在循环过程中不损耗。水通过压力壳时受到辐照, 在压力壳内活化生成的放射性核素的浓度 $N(t)$ 随时间的变化服从以下微分方程:

$$\begin{cases} \frac{dN(t)}{dt} = R - (\lambda + a) N(t) \\ t = 0, N(0) = 0 \end{cases} \quad (14)$$

式中: R 为活化核的生成率, $\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$; λ 为活化核的衰变常量, s^{-1} ; a 为活化核的吸收截面, cm^2 ; ϕ 为有效注量率, $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。解此方程, 水第 1 次通过压力壳内, 在出口处放射性核素的浓度为:

$$N(t_s) = \frac{R}{\lambda + a} (1 - e^{-(\lambda + a)t_s}) \quad (15)$$

式中: $\lambda + a$ 。第 1 次活化后放射性核素在一回路内的循环过程中, 由于衰变、净化、更换, 以及在压力壳内再吸收、泄漏等损失项, 使放射性核素浓度不断减少。在外回路 $N(t)$ 随时间的变化率可以表示为:

$$\begin{cases} \frac{dN(t)}{dt} = -\left(\lambda + \frac{Q}{V} + a + \frac{t_s}{T}\right) N(t) \\ t = 0, N(t) = N(t_s) \end{cases} \quad (16)$$

式中: η 为净化装置除去活化核效率; Q 为净化水流量, $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$; V 为一回路的总水量, cm^3 ; $\frac{t_s}{T}$ 为一回路水的更换率, s^{-1} ; $\frac{t_s}{T}$ 表示流经压力壳内的时间在整个一个回路循环时间中所占比例,

等效于 a 项的作用项减少了 $\frac{t_s}{T}$ 倍, 泄漏项没有考虑。当水循环一周以后, 第 1 次活化的放射性核素浓度由式(16)可以得到:

$$N(T) = N(t_s)e^{-(T-t_s)} \quad (17)$$

式中: $= + \frac{Q}{V} + + a \frac{t_s}{T}$, 进入第 2 轮循环活化核浓度按式(14)变化, 初始条件不同, 在压力壳出口处放射性核素的浓度为:

$$N(2t_s) = N(t_s) + N(t_s) \quad (18)$$

式中: $= e^{-T}$ 。 n 次循环以后, 压力壳出口处放射性核素的浓度为:

$$N(nt_s) = N(t_s) \frac{1 - e^{-nT}}{1 - e^{-T}} \quad (19)$$

若令 $t = nT$, 则在运行 t 时间后放射性核素浓度 $N(t)$ 为:

$$N(t) = \frac{R}{(1 - e^{-t_s})} \frac{1 - e^{-nT}}{1 - e^{-T}} \quad (20)$$

秦山二期堆一回路水流经堆芯所需的时间 $t_s = 0.789$ s, 循环一周的时间 $T = 7.428$ s, 不考虑循环过程中的净化、更换、再吸收和泄漏, 可以得到满功率运行时, 一回路水中 ^{13}N 的浓度为 $4.781 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$, 比活度为 $5.544 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$ 。 ^{18}F 在一回路水的浓度为 $2.520 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$, 比活度为 $2.655 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$, ^{11}C 在一回路水中的浓度为 $1.124 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$, 比活度为 $6.36 \times 10^2 \text{ Bq cm}^{-3}$ 。

5 结论

本工作以秦山二期压水反应堆为例, 计算了一回路水中由二次带电粒子的核反应产生的放射性核素的比活度。其结果是 ^{13}N 的比活度为 $5.544 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$, ^{18}F 的比活度为 $2.655 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$, ^{11}C 的比活度为 $6.36 \times 10^2 \text{ Bq cm}^{-3}$ 。这些结果的获得为研制监测反应堆压力容器和一回路水的泄漏、保证反应堆安全运行的监测系统提供了理论依据。

感谢中国原子能科学研究院的罗璋琳教授、刘桂生教授, 核工业第二研究设计院的杨广利教授对本工作提出的有益建议。

参考文献:

- [1] 复旦大学、清华大学、北京大学合编. 原子核物理实验方法(上册)[M]. 北京:原子能出版社, 1985.

Specific Radioactivity Produced by the Secondary Charged Particle Nuclear Reaction in the Primary Circuit Water of PWR

GONG Xue-yu¹, GUO Lan-ying¹, HE Xian¹, LING Qiu¹,
HUANG Jin-hua², ZHANG Guo-shu², WANG Ying-ming³

(1. Central-south Institute of Technology, Hengyang 421001, China; 2. Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, China; 3. Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610041, China)

Abstract : The neutron in the pressure water reactor (PWR) core scatters on the hydrogen nuclei of primary coolant to produce the energetic proton, then proton reacts with the target nuclei in primary coolant to produce radionuclide. In this paper we take the Qinshan second periodic pressure water reactor as a sample: first, calculate the high energy neutron flux and obtain the proton spectrum; then, calculate the productive rate of the radionuclides, which are ^{13}N produced by $^{16}\text{O}(p,)^{13}\text{N}$ reaction, ^{18}F produced by $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ reaction, ^{11}C produced by $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ reaction; final, according to the circulation character of primary circuit water, obtain the specific radioactivities of these radionuclides.

Key words : nuclear reaction; radioactivity; specific radioactivity; neutron flux; proton spectrum

秦山核电厂辐照监督管修复工作通过部级鉴定

中国原子能科学研究院反应堆工程研究设计所完成了联结管弹簧、抓头组件的拆装,进行了相应的焊接工艺评定和检验,以及辐照监督管状况检查等工作,修复结果符合技术条件中的各项要求。其中为实施修复所设计的适合热室操作的多功能台架,定位准确可靠、便于在热室中实现联结管钻孔、穿插弹簧及弹簧焊接的联结管弹簧修复,具有创新性、可靠性和可操作性。此修复工作已通过部级鉴定。

摘自中国原子能科学研究院《原子能院报》