

# 聚变化学及用放化方法研究 高能中子核反应

王方定

可控热核反应是五十年代提出的重大科研项目。自1952年苏联在实验室条件探测到高温产生的热核中子以来<sup>[1]</sup>，三十年中这项工作有了很大的发展。尤其是七十年代以来，在实现能量得失相当的目标上进展很快。1970年苏联在T-3装置上的得失比 $*Q=10^{-9}$ ，而1980年美国的PDX装置和西德的ASDEX装置的Q值已达0.2 ( $Q=10$ 就能实现聚变堆发电)。目前认为只需要增加装置的尺寸就可以达到实现聚变堆发电的Q值。因此预计九十年代中就有可能将氘-氦等离子体热核聚变能转变成电能，并投入地区性电网<sup>[2]</sup>。

在这一研究领域，等离子体物理虽然始终居于中心地位，但近十年来，由于开始向实用聚变堆的方向发展，综合地研究涉及多种学科的问题已经逐步提上日程。有关的化学问题开始受到重视，已在比较广泛的范围内进行了研究，并成为放射化学的一个分支“聚变化学”。

目前国际原子能机构组织了美、苏、日及西欧进行托卡马克堆(INTOR, International TOKAMAK Reactor)的国际合作。围绕着这个堆的设计，提出了不少化学问题，并呼吁国际科学界的重视。近来在轻核燃料循环、高能中子引起核反应过程的放化研究、等离子体与物质相互作用中的化学问题、冷却剂及堆材料有关的化学等方面均有文献报道。

本文目的在于介绍聚变化学的研究概况，并扼要叙述用放化方法研究高能中子引起的核反应方面的工作。为能说明上两问题，先简略地介绍可控聚变反应。

建立热核聚变堆在科学上的可行性已由在太阳中持续存在的事实所证实。从原子核的平均结合能看，质量数小于40左右的核素原则上都可以释放聚变能而作为燃料。但由于氘、氦点火所需温度低，易于实现，目前研究的第一代聚变堆均以氘、氦作为燃料。所利用的核反应是：



氘氦反应除提供能量外，同时提供与锂反应产生氦的中子，形成 ${}^2\text{H}-{}^3\text{H}-\text{Li}$ 循环。因为氘丰富地蕴藏于海水，而锂亦足供世界能源未来几千年的需要，所以有人称它们是“用之不竭”的能源。

为取得正的能量平衡，氘氦必须加热到点火温度 $\sim 10 \text{ keV}$ ，并约束足够长的时间。能量得失相当采用 Lawson 判据表示，即等离子体密度  $d$  与能量约束时间  $\tau$  的乘积必须超

\*  $Q = \text{热核聚变所产生的能量} / \text{加热等离子体所需的能量}$ 。

过一项为等离子体温度函数的临界值。在~10 keV时 Lawson 判据为： $d \cdot \tau_e \geq 10^{14} \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。到1980年底美国在 Alcator 装置上的  $d \cdot \tau_e$  已达  $3 \times 10^{13} \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。

炽热的等离子体如与容器壁发生接触就会使等离子体温度因与容器达到平衡而下降。同时，器壁因被加热而蒸发出杂质，也会抑制聚变反应并使器壁受到损伤。所以必须把等离子体约束起来，使其离开反应堆壁，才能使聚变反应维持下去。研究了两种不同的等离子体约束体系，即磁约束和惯性约束。目前研究最成功的聚变装置是 TOKAMAK。它是一种磁约束体系。近十年来所进行的 TOKAMAK 工作获得了许多有意义的物理和工程等方面的知识，下一代的大型 TOKAMAK 装置即将进入得失相当。正在建造中的这类装置有美国的 TFTR，日本的 JT-60 和苏联的 T-20。INTOR 亦将实行点火，连续提供能量，并增殖生产氚。堆的峰热功率~60万千瓦，预计在九十年代前期运行。

### 一、聚变化学研究概况

从聚变堆取得能量的物理图象可以设想为：聚变反应在环形真空容器中进行，容器中充入燃料氢混合同位素，经欧姆加热（或绝热压缩、中性束注入加热）使燃料成高温等离子体而发生反应（1）。持续的高温等离子体被超导磁铁约束在容器中心，但反应产生的14 MeV 高能中子则穿透容器而达到堆的再生区，并与堆外层的结构材料发生核反应，其与再生材料锂按反应（2）作用而生成可用作燃料的氚。聚变反应产生的能量经中子携带及电磁辐射积累在再生区而使结构材料热化，必须选用适当的冷却剂将热能带出并用于发电。图1<sup>[3]</sup>为一种受到重视的聚变堆设计方块图。中子束流在堆中的空间分布示例于图2<sup>[4]</sup>。

从上述简要的物理图象中可以看到，在聚变堆运行过程及燃料、结构材料中，涉及到许多化学问题，这些问题目前均归于聚变化学的范畴，现将一些研究报道中的主要课题归纳概述于下。

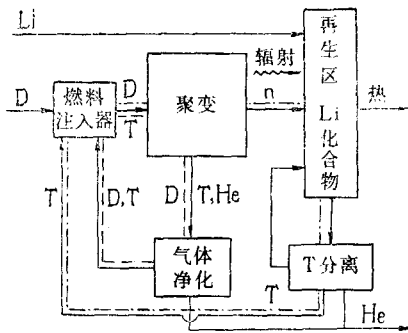


图1 聚变堆设计方块图  
 ----- 等离子体排放循环；  
 - · - · - 增殖循环。

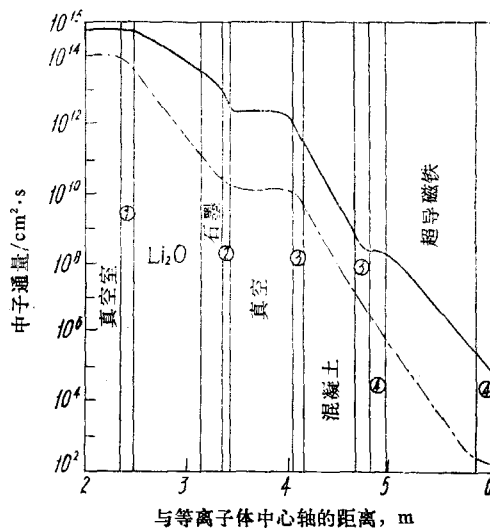


图2 日本原子能所设计例中中子束流的空间分布  
 ①——第一壁；②——铅；③——硼酸盐水溶液；④——绝缘体；——总中子；- · - · - 14 MeV中子。

## 1. 核燃料循环

和裂变核燃料一样,聚变核燃料也有其制备、增殖、回收及废物处理等问题。运转中的聚变堆在燃料供应、等离子体排放中也有许多化学问题。这些工作目前均围绕着锂和氦进行研究。从图 1 可以看到,以聚变堆为中心,核燃料进行增殖循环和等离子体排放循环,加上锂和氦的生产,构成核燃料循环的主要内容。

锂化学方面探索了氢、氦、氖、氧、氮、碳在锂中的溶解度及其凝聚化合物的热力学性质;测定了  $10^{-10}$  巴下氢、氦的分压与其在锂中浓度的关系;对氦在锂中溶解度及锂的氟化物蒸气压的研究提出有可能用分馏法从液态锂中分离氦<sup>[5]</sup>。

聚变堆所需的氦是从裂变堆生产的。其可能的反应有:



为实现反应(2),除需研究锂化学外,还要研究提取氦的工艺。反应(3)的热中子反应截面 0.56 毫靶,在重水反应堆中  ${}^2\text{H}$  的量很大,运行中不断积蓄氦,如能研究出经济的脱氦工艺将是变害为利的重要措施。至于反应(4)产生的氦,据估计为每  $10^4$  次裂变有一个氦原子生成<sup>[7]</sup>。目前对反应(2)生产氦的工艺已有相当详细的研究,而反应(3)和(4)产生氦的分离还只是作为三废处理的研究课题进行一些工作。

为了设计从再生区回收氦后再提供使用的系统,必须了解所生成的氦的化学状态及其行为。氦除通过反应(2)生成外,还可通过具有一定阈能的  ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha){}^3\text{H}$  反应产生。这些反应生成的氦能量为 2.73~10.5 MeV。这种高能反冲氦的化学反应及行为与聚变堆的开发有关,因此应当研究有关的热原子化学及氦的游离行为。日本的工藤博司等<sup>[6]</sup>研究了拟用作聚变堆增殖材料的  $\text{Li}_2\text{O}$  照射后氦的游离行为,认为 98% 的氦以氦水形式存在。

## 2. 等离子体与物质相互作用中的化学问题

在真空容器中约束燃烧的高温等离子体应由纯净的氦氖组成。但在运行过程中,第一壁(构成聚变堆堆芯的真空容器面向等离子体的器壁)和孔阑(套在第一壁环内的金属环,以减少等离子体与第一壁的相互作用)表面不断受到侵蚀,壁厚和壁组成发生变化,不但堆结构材料受到损伤,而且其腐蚀产物混入等离子体成为稀释燃料、降低等离子体功率密度、增加能量损失使等离子体温度下降的有害杂质。因此必须研究等离子体与物质相互作用所引起的问题。

D. M. Gruen 等人<sup>[6]</sup>评述了磁约束热核聚变装置中等离子体与物质的相互作用及杂质控制的问题。

## 3. 冷却剂、结构材料及有关的分析化学方法

聚变堆所用冷却剂及结构材料中的化学问题如:氦-氖分离、净水化学、液态锂的腐蚀性及阻腐剂的研究等都已有人进行。在分析化学方面如:冷冻色谱技术、核磁共振技术也都是在开发聚变堆时不可缺少的方法。

## 二、用放化方法研究高能中子核反应

聚变反应堆是一个强大的高能中子源，其堆芯处的 14 MeV 中子通量可达  $10^{14} \sim 10^{15} / \text{s} \cdot \text{cm}^2$ 。预估在第一壁处的中子能谱亦有 20% 在 10 MeV 以上，比快堆堆芯的谱硬得多。因此它需要包括快堆、核武器、加速器范围的核反应数据，以用于燃料循环、核加热、辐射损伤效应、感生放射性及辐射屏蔽等方面的设计。

### 1. 聚变堆研究对核数据的要求

图 3 给出了聚变堆第一壁处的中子能量分布<sup>[3]</sup>。这个预估图的总中子通量  $\sim 2.8 \times 10^{15} / \text{s} \cdot \text{cm}^2$ 。由于冷却剂的反散射使通量的 75% 在 14 MeV 以下。第一壁外中子能谱随着经历

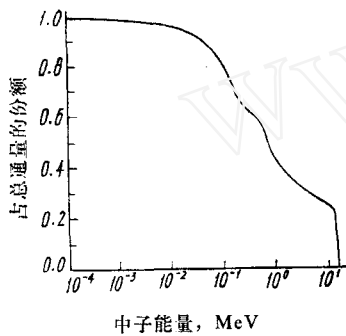


图 3 预估第一壁处中子通量随能量的分布

庞大体积的再生材料和其它结构材料的进一步慢化，因而所需核数据无论从中子能谱还是从靶子材料看，范围都相当广泛。在核燃料方面虽然美国的工作认为在所感兴趣的能区范围(1~100 keV) 已能满足聚变研究的需要<sup>[9]</sup>，但日本在设计  $2 \times 10^6$  千瓦(热)的聚变堆时认为点火温度 10 keV 时的 (d, t) 截面对计算、控制功率特别重要，而这个数据目前差异较大，尚需提高精度<sup>[4]</sup>。对于利用反应(2)及反应  ${}^7\text{Li} + n \rightarrow {}^4\text{He} + n + {}^3\text{H} - 2.47 \text{ MeV}$  增殖氦，在设计时认为<sup>[9, 10]</sup>，目前(2)式的截面精度已能满足要求，而上式的截面及次级中子能谱分布的不确定性导致氦增殖比的不确定度为 2~7%，还需作一些测量以便将不确定度降到 1~2%。

第一壁面临着最大的化学、 $\gamma$  辐照和中子辐照负荷，使其受到各种损伤。就中子引起的核反应而言，它导致的 (n,  $\alpha$ ), (n, p) 反应发生氢和氦的聚集，使结构材料中生成空穴。同时它导致的级联核反应使结构材料嬗变。据估计如用铌做第一壁材料 20 年内将有 23% 的铌通过各种核反应嬗变成稳定的和极长寿命的锆和钼。由于第一壁处的中子通量大，能谱又硬，而 (n,  $\alpha$ ), (n, p) 反应在  $E_n \approx 10 \text{ MeV}$  时比 5 MeV 时要大 10~100 倍，因此，此处 (n,  $\alpha$ ), (n, p) 的截面数据十分重要。目前尚缺少这方面的数据，或精度不够高而需进一步测定<sup>[11]</sup>。除 (n,  $\alpha$ ), (n, p) 的数据外，还有注意得不多的嬗变核特别是长寿命放射性核素如  ${}^{93}\text{Zr}$ ,  ${}^{94}\text{Nb}$ ,  ${}^{99}\text{Tc}$  等的核反应截面，和 (n, d), (n,  ${}^3\text{He}$ ), (n,  ${}^3\text{H}$ ) 截面的测定。并通过这些核反应截面的系统学来分析、推断长寿命嬗变核的截面，以提供选择壁材料的信息。此外在结构材料的感生放射性，中子及  $\gamma$  射线的加热效应及辐射屏蔽等方面都对核数据提出了要求。

### 2. 测定核数据用的放射化学方法

由上可见，中子轰击引起核反应截面的测量是聚变堆开发提出的一项重要任务。测量反应截面广泛地采用活化法和能谱法。两种方法各有优缺点，可以互相补充使用。活化法属于放射化学工作范畴。西德的 S.M.Qaim 在这方面作了不少工作。

活化法的优点是：可以分辨 (n, p), (n, n'p) 和 (n,  $\alpha$ ), (n, n' $\alpha$ ) 反应；对 (n,  ${}^3\text{He}$ ), (n, T) 反应的灵敏度高<sup>[3, 12]</sup>。用放化法测定中子核反应并研究反应系统学已有不少报

道, 现将研究情况分述于下。

**(1) (n, t) 反应** 除燃料增殖是藉再生区中轻核的 (n, t) 反应取得外, 在聚变堆的强快中子通量作用下, 中等及重核的 (n, t) 反应亦不像在裂变堆中那样可以忽略, 因而系统地研究 (n, t) 反应, 日益引起人们的兴趣。

用活化技术结合放化分离测定了  $E_n = 14.6 \text{ MeV}$  下  $^{32}\text{S}$ ,  $^{40}\text{Ca}$ ,  $^{50}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{64}\text{Zn}$ ,  $^{70}\text{Ge}$ ,  $^{89}\text{Y}$ ,  $^{92}\text{Mo}$ ,  $^{139}\text{La}$ ,  $^{197}\text{Au}$  的 (n, t) 截面, 测得值均在毫靶数量级。并观察到在中等和重元素中的 (n, t) 截面值随靶核的非对称参数  $(N - Z)/A$  的增加而减小。测定中采用了分析反应产物法和离线回收氚法。实验是用  $300 \text{ keV}$  氘的 (d, t) 反应中子, 在通量为  $(7 \sim 9) \times 10^9 / \text{s} \cdot \text{cm}^2$  下进行的。测定值误差为  $30 \sim 50\%$ 。

此外还用真空萃取法研究了  $23 \text{ MeV}$  中子引起的 Ag, Bi, Cu 的 (n, t) 截面<sup>[14]</sup>; 用模拟聚变堆再生区装置、放化分离测氚法研究了氚产率的空间效应<sup>[33]</sup>; 和  $[(n, t) + (n, n't)]$  反应截面的测定<sup>[15]</sup>。

在 (n, t) 反应截面的测定中, 由于核物理探测技术尚不能研究所放射的氚谱、截面值低须要进行化学分离和浓集才易于测定反应产物等原因, 这一反应还需用放化方法测定。它的测定不仅在取得聚变能有实用意义, 而且在核结构的研究上也有一定意义<sup>[13]</sup>。

**(2) (n,  $^3\text{He}$ ) 反应** 用放化法测定了  $E_n = 14.6 \text{ MeV}$  时  $^{45}\text{Sc}$ ,  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{75}\text{As}$ ,  $^{93}\text{Nb}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{31}\text{P}$ ,  $^{115}\text{Zn}$  的 (n,  $^3\text{He}$ ) 反应截面或截面上限<sup>[16]</sup>, 测得的截面值在  $2 \sim 10$  微靶间。对中等和重核,  $\sigma$  几乎为一常数。对  $^{71}\text{Ga}(n, ^3\text{He})^{69}\text{Cu}$  反应用 CuS 吸附  $^{69}\text{Cu}$  法,  $^{133}\text{Cs}(n, ^3\text{He})^{131}\text{I}$  用  $\text{CCl}_4$  萃取法,  $^{93}\text{Nb}(n, ^3\text{He})^{91}\text{Y}$  用离子交换法进行放化分离以浓集产物核进行测定<sup>[3]</sup>。测定的  $^{101}\text{Tc}(n, ^3\text{He})^{97}\text{Nb}$   $\sigma \leq 7$  微靶是将靶子经沉淀和萃取处理以浓集纯化  $^{97}\text{Nb}$  而测得的<sup>[17]</sup>。与 (n, t) 反应的情况相似, (n,  $^3\text{He}$ ) 的实验值还不多, 已有的一些数据矛盾也很大, 如  $^{103}\text{Rh}(n, ^3\text{He})^{101}\text{Te}$  上限值从  $0.4$  微靶到  $1500 \sim 3500$  微靶<sup>[18]</sup>, 因此用放化法与高分辨  $\gamma$  能谱技术相结合测定这类反应截面值还有许多工作可做。

**(3) (n, n'p) 反应** 活化法可以分辨出能谱法不能分辨的 (n, p) 与 (n, n'p) 反应道。用放化法分离以测定  $^{84}\text{Sr}(n, n'p)^{83}\text{Rb}$ ,  $^{92}\text{Mo}(n, n'p)^{91}\text{Nb}$ ,  $^{183}\text{W}(n, n'p)^{182}\text{Ta}$ ,  $^{58}\text{Ni}(n, n'p)^{57}\text{Co}$  诸反应的产物而定反应截面已有报道

**(4) (n, n' $\alpha$ ) 反应** 用活化法测量 (n, n' $\alpha$ ) 反应截面可以与 (n,  $\alpha$ ) 反应相分辨。用放化法分离以测定  $^{115}\text{In}(n, n'\alpha)^{111}\text{Ag}$ ,  $^{71}\text{Ga}(n, n'\alpha)^{67}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}(n, n'\alpha)^{61}\text{Co}$ ,  $^{99}\text{Tc}(n, n'\alpha)^{95}\text{Nb}$  诸反应的产物而定反应截面已有报道<sup>[3]</sup>。测得的  $\sigma(n, n'\alpha)$  约为  $\sigma(n, \alpha)$  值的  $20\%$ , 所以在计算辐射损伤时不能忽略 (n, n' $\alpha$ ) 反应的贡献。

**(5) (n, p) 反应** 用放化法分离  $^{99}\text{Tc}(n, p)^{99}\text{Mo}$ ,  $^{101}\text{Ru}(n, p)^{101}\text{Tc}$ ,  $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ ,  $^{75}\text{As}(n, p)^{75}\text{Ge}$ ,  $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ ,  $^{115}\text{In}(n, p)^{115}\text{Cd}$ ,  $^{127}\text{I}(n, p)^{127}\text{Te}$  及希土元素 (n, p) 反应的产物以测定反应截面已有报道<sup>[3, 19]</sup>。并以所得数据作了截面与非对称参数  $(N - Z)/A$  的关系图, 以期能预估一些核素的 (n, p) 截面。

**(6) (n,  $\alpha$ ) 反应** 用放化法分离测定了  $^{55}\text{Mn}(n, \alpha)^{52}\text{V}$ ,  $^{62}\text{Ni}(n, \alpha)^{59}\text{Fe}$ ,  $^{100}\text{Mo}(n, \alpha)^{97}\text{Zr}$ ,  $^{203}\text{Tl}(n, \alpha)^{200}\text{Au}$  及一些希土元素的 (n,  $\alpha$ ) 反应截面。

### 三、小 结

聚变堆的实现在我国虽然还是比较遥远的事, 但作为技术储备并配合目前有关工作的

需要,在充分利用现有条件的情况下也可以考虑作一点具体的安排。据初步了解,除西南物理研究所在进行等离子体与物质相互作用的研究外,聚变化学的其它部份尚少有研究。因此,建议有条件的单位根据自己的长处和需要,做点深入的调研,适当地安排一些工作。初步的想法是:

**1. 用化学方法研究高能中子核反应** 由上文可见,测定核截面数据不但对聚变堆工艺是有意义的,从学科上看它是核化学的内容之一,通过它的研究还可以建立起快速、低放等分离、分析技术。近年来我们测定裂变产额的技术不但能作为这项研究工作的基础,还能因这一工作的开展,进一步得到提高。在此基础上又能进一步开展带电粒子核化学的研究工作。因此今后应注意开展用放化法研究高能中子核反应的工作。

**2. 氚废物处理研究** 结合到原子能所重水堆已经出现的含氚废水处理问题,和我国核能计划中动力堆燃料循环所产生的氚废物处理问题,应积极把有关氚化学的课题提上日程。

**3. 氢-锂体系的研究** 氢-锂体系化学是聚变堆燃料循环的核心问题之一。对它的研究既可以因此而开展一些热力学的基础工作又能建立一些固、气相化学研究的技术和条件。

上述三方面工作的开展,对聚变堆设计及轻核燃料循环能作为开发未来能源的技术储备,而在目前又能与充分利用加速器开展核化学研究及发展核电应用紧密联系,看来是有近期实现的可能的。

在完成本文过程中,曾得到崔凤吉同志的帮助,特此致谢。

### 参 考 文 献

- [1] L. A. Artsimovich, Proc. 2nd Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, p/2298, Vienna, Vol. 31, 1958, p. 6.
- [2] 李整武,原子能科技通讯,第4期,7(1981).
- [3] S. M. Qaim et al., *J. Radioanal. Chem.*, **39**, 35(1976).
- [4] 关泰,原子力工业, **22** (2), 20 (1976).
- [5] J. H. Deran et al., *At. Energy Rev.*, **18**, 553 (1980).
- [6] 工藤博司,田中吉左右,日本原子力学会志, **20**, 871 (1978).
- [7] E. L. Albenesius & R. S. Ondrejcin, *Nucleonics*, **18** (9), 100 (1960).
- [8] D. M. Gruen et al., Plasma Chemistry I—Topics in Current Chemistry (S. Veprek & M. Venugopal Ed.), Berlin, Springer Verlag, 1980, p. 45.
- [9] Don Steiner, Proc. Conf. Nucl. Cross Section and Technology, NBS Spec. Publ. 425, 1975, p. 646.
- [10] D. Steiner & M. Tobias, *Nucl. Fusion*, **14**, 153 (1974).
- [11] S. M. Qaim & G. L. Stocklin, Proc 8th Symposium on Fusion Technology, EUR 5182 e, 1974, p. 939.
- [12] S. M. Qaim, Proc. Conf. Nucl. Cross Section and Technology, NBS Spec. Publ. 425, 1975, p. 664.
- [13] S. M. Qaim & L. Stocklin, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **35**, 19 (1973).
- [14] S. M. Qaim et al., *J. Radioanal. Chem.*, **21**, 395 (1974).
- [15] S. M. Qaim et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 3639 (1974).
- [16] S. M. Qaim, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 239 (1974).
- [17] *ibid.*, **35**, 3669 (1973).
- [18] M. Diksic et al., *ibid.*, **36**, 477 (1974).
- [19] Taraneh Mavaddat et al., *ibid.*, **36**, 935 (1974).

(编辑部收到日期:1982年2月8日)