

文章编号: 1007-4627(2018)02-0210-06

启明星 II 次临界非稳态热中子注量率测量

金锦^{1,2}, 朱庆福¹, 王志光², 周琦¹, 骆鹏^{2,†}, 柯国土^{1,†}

(1. 中国原子能科学研究院, 北京 102413;

2. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

摘要: 中子注量率及分布是反应堆的重要参数, 本工作通过核数守恒在非稳态情况下的推导和求解, 从理论上论证了次临界反应堆非稳态情况下中子注量率测量的可行性。将活化法和固体径迹法有机结合, 利用固体径迹探测器标定活化片的测量数据, 测量了启明星 II 零功率装置的 He-3 管实验孔道内及反应堆外壁的中子注量率的分布, 并与模拟计算结果进行了比较, 利用 MCNPX 程序得到的模拟计算结果与实验结果的趋势一致, 证明了该测量方法可以测量低通量的中子注量率, 可实现反应堆不同时刻、不同位置的中子注量率测量, 为 CiADS 技术的研发提供了实验数据与技术支持。

关键词: ADS; 中子注量率; 活化法; 固体径迹法

中图分类号: TL411^{+.1} **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.35.02.210

1 引言

目前核电发展面临的最主要问题之一是乏燃料安全处置。加速器驱动次临界系统 (Accelerator Driven Sub-critical System, ADS) 被国际公认为是解决乏燃料问题最有前景的技术途径之一^[1]。为证明 ADS 装置的安全性、可靠性、环境可行性以及预期的经济效益, 需要针对 ADS 特有的堆物理特性以及靶-堆耦合特性展开深入的实验研究, 验证堆芯物理设计方法、模型、程序和核数据。中国科学院近代物理研究所和中国原子能科学研究院联合设计和构建了“ADS 嬗变系统”零功率装置——启明星 II, 该装置具备 ADS 堆物理验证实验研究的要求。启明星 II 是世界首座专门针对 ADS 系统中子物理特性研究的“双堆芯”零功率装置, 可在水堆和铅堆两种堆芯结构下开展实验研究, 既能在次临界状态下运行, 又能在临界状态下运行。在启明星 II 的“双堆芯”中, 铅基堆的能谱较硬, 中子物理特性更接近于 ADS 耦合集成系统。该装置为我国首台加速器驱动嬗变研究装置 (China Initiative Accelerator Driven System, CiADS) 的研发提供了准确可靠的测量系统测试平台、设计程序及数据库的实验验证平台和科研及操纵人员教育培训平台^[2]。

ADS 的次临界中子学问题与常规反应堆的临界中子学问题不同。ADS 装置包含次临界反应堆、高功率

加速器束流和散裂中子靶, 堆芯结构更加复杂。ADS 的中子特征不仅与反应堆的结构、材料及燃料装载量有关, 还与外中子源的特性有关。ADS 的次临界中子学是 ADS 技术研发的一个关键问题。对于原本用于临界堆中子学的计算方法与实验手段, 在处理外源驱动的次临界中子学问题时的可行性、适用性和可靠性都需要进行专门的实验验证和优化。

中子注量率的测量是反应堆中子学实验的基础, 也是反应堆研究的重点内容之一^[3]。反应堆中子学的很多参数都是通过中子注量率测量得到的, 例如: 不均匀系数、辐照能力、中子能谱、反应性等。未来 ADS 系统中子测量与分析方法的探索与可行性验证能够为 CiADS 装置的中子测量提供技术参考, 为此, 本工作通过对非稳态下的中子活化核数守恒方程的推导和求解, 从原理上论证了次临界非稳态下测量中子注量率的可行性; 提出了将活化片和固体径迹探测器相结合的非稳态热中子注量率测量方法。利用这一方法, 完成了启明星 II 铅基堆芯的 He-3 孔道内及反应堆外壁的中子注量率分布曲线的测量, 验证了该实验方法的有效性, 并为 MCNPX^[4] 计算方法的验证和优化提供了基础实验数据。

2 启明星 II 铅基堆基本结构

启明星 II 铅基堆分别使用 U-235 富集度为 90% 的金

收稿日期: 2017-08-06; 修改日期: 2018-02-28

基金项目: 中国科学院战略先导科技专项 (XDA03010202); 国家自然科学基金资助项目 (91426301)

作者简介: 金锦 (1988-), 女, 河南开封人, 硕士, 从事核能科学与工程研究; E-mail: jin@impcas.ac.cn

† 通信作者: 柯国土, E-mail: kgt2000@163.com; 骆鹏, E-mail: luopeng@impcas.ac.cn.

属铀和 20% 的八氧化三铀粉末两种材料作为核燃料，活性区高度均为 40 cm。富集度 90% 的金属铀靠内侧、20% 的八氧化三铀粉末靠外侧，以同心圆的排布方式围绕着堆芯中心的中子源区，满装载时两种燃料分别排列 4 圈和 11 圈。中子源区在堆芯中央，为圆桶状的空腔结构。铅冷堆芯靠外侧设有聚乙烯慢化层，外围的 3 圈 20% 富集度的燃料插入慢化层中。铅冷堆芯外围的反射层由三部分组成，下反射层和侧反射层为石墨，上反射层为金属铍和聚乙烯。铅冷堆芯安全棒与调节棒布置在石墨反射层中，分别使用碳化硼和镅作为中子吸收体。He-3 管实验孔道也布置在石墨反射层中^[5]。启明星 II 铅基堆堆芯排布方式如图 1 所示。

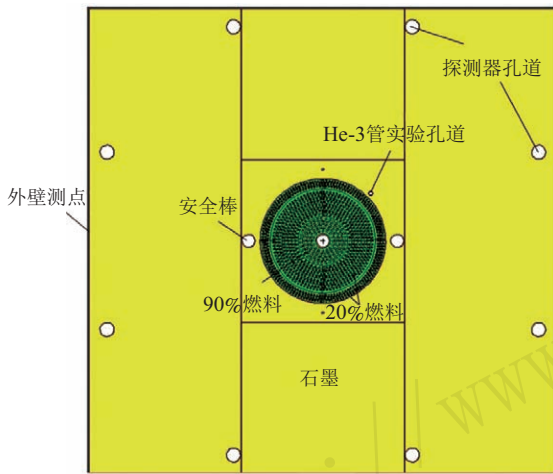


图 1 (在线彩图) 启明星 II 铅冷堆芯排布方式示意图

3 实验原理

本研究采用活化片法和固体径迹探测器法两种离线测量方式开展启明星 II 中子注量率分布随时间变化曲线的测量研究。

3.1 活化片探测器

活化法是测量中子注量率相对分布最常用的方法，它具有灵活性强、适应性强、对中子场扰动小、灵敏度宽的优点。将活化片放在待测中子场中不同位置，经与中子发生核反应产生特征 γ 射线能量已知的活化核，通过测量活化核的衰变活度 (特征峰的面积计数)，再根据衰变活度与通量的关系就可以测量相对中子注量率分布。

传统的活化片测量中子注量分布是基于临界、功率不变条件的假设推导的，本工作在传统活化法测量理论的基础上，推导出在次临界、变功率条件下测量相对中子注量分布的理论公式。具体推导过程如下。

首先，根据核数守恒原理，放射性核数净增加率等于其产生率减去其损失率，即

$$\frac{dN^*(t)}{dt} = P(t) - \lambda N^*(t), \quad (1)$$

其中： t 为辐照时间； N^* 为放射性核数； $P(t)$ 为产生率。

假设在极短的时间间隔 δt 内通量分布与时间 t 无关，所用的探测物质极薄且其核密度 N 为常数，则 δt 时间内的产生率 $P(t)$ 可以表示为

$$P(t) = N \int_{\delta V} \int_0^{\infty} \phi(\mathbf{r}, v) \sigma(v) dv d\mathbf{r}, \quad (2)$$

其中： δV 为探测片的体积； $\sigma(v)$ 为活化片的中子活化截面； $\phi(\mathbf{r}, v)$ 为探测器所在位置的中子注量率。假设在探测器体积元 δV 内中子能谱分布与空间无关，测量中使用的活化片的活化截面在低能区满足 $1/v$ 规律，则式 (2) 变为

$$\begin{aligned} P(t) &= N \sigma_0 v_0 \int_{\delta V} \int_0^{\infty} n(\mathbf{r}, v) dv d\mathbf{r} = N \sigma_0 v_0 \bar{n} \delta V \\ &= N \sigma_0 \bar{\phi} \delta V, \end{aligned} \quad (3)$$

其中： v_0 为最可几速度； σ_0 为对应活化截面； \bar{n} 为对探测器体积平均中子密度； $\bar{\phi}$ 为平均中子注量。

将放射性产生率 $P(t)$ 带入公式 (1)，假设在中子场中开始照射的瞬间 $t=0$ 时 $N^*(0)=0$ ，解此微分方程可得

$$N^*(t) = e^{-\lambda t} \int P(t) e^{\lambda t} dt = N \sigma_0 \delta V e^{-\lambda t} \int \bar{\phi} e^{\lambda t} dt. \quad (4)$$

由公式 (4) 可以看出，与稳定功率下得到的微分解不同，非稳态下的放射性核数 N^* 不与注量率成正比，但是考虑到在运行时，可以认为相同区域待测点的注量率的涨落随功率同步变化。假设编号为 n 的测点位置的中子注量率为 $\bar{\phi}_n$ ，参考测点的中子注量率为 ϕ_0 ， k_n 为分布常数，待测点的中子注量率符合以下关系：

$$\bar{\phi}_n = k_n \bar{\phi}_0. \quad (5)$$

将公式 (5) 代入公式 (4) 可以得到

$$N_n^*(t) = k_n N \sigma_0 \delta V e^{-\lambda t} \int \bar{\phi}_0 e^{\lambda t} dt = k_n N_0^*(t), \quad (6)$$

根据放射性活度定义有

$$A_n(t) = k_n A_0(t). \quad (7)$$

由此可以证明，在变化的中子场中照射某种靶核时，照射一段时间 t 后，探测片放射性活度的相对分布可以代表探测点处的中子注量率的相对分布。下面求解停堆时各测点的放射性活度 A_n 。

假设照射结束的時刻为 t_1 , 在 $t(>t_1)$ 时刻公式 (1) 的产生项为 0, 解此方程得到

$$N_n^*(t) = N_n^*(t_1)e^{-\lambda(t-t_1)}, \quad (8)$$

则在通过高纯锗探测器进行光子计数测量的时间段 t_2-t_3 内得到的放射性总计数 c 为

$$\begin{aligned} c_n &= \varepsilon \int_{t_2}^{t_3} A_n(t) dt = \varepsilon A_n(t_1) \int_{t_2}^{t_3} e^{-\lambda(t-t_1)} dt \\ &= \frac{\varepsilon A_n(t_1)}{\lambda} e^{-\lambda(t_2-t_1)} (1 - e^{-\lambda(t_3-t_2)}), \end{aligned} \quad (9)$$

其中: ε 为探测效率。

综上所述, 由高纯锗探测器测得时间间隔 t_2-t_3 时间间隔内, n 号探测片的特征峰计数 c 即可求得停堆时各测点的放射性活度 A_n

$$A_n(t_1) = \frac{\lambda c_n}{\varepsilon e^{-\lambda(t_2-t_1)} (1 - e^{-\lambda(t_3-t_2)})}. \quad (10)$$

3.2 固体径迹探测器

固体径迹探测器是一种记录带电粒子径迹的积分探测器, 能够测量极低水平的绝对中子注量率。与在线功率监测相结合, 能够可靠地测量中子注量率随运行状态的变化。

本研究所用固体径迹探测器是将易裂变材料 U-235 和径迹材料白云母的薄片紧贴在一起制成的。将固体径迹探测器放在中子场中, 易裂变材料核与中子发生反应, 裂变成两个运动方向相反的碎片。裂变碎片在径迹材料晶体中产生核径迹, 经过化学蚀刻使径迹扩大, 在显微镜下观测并记录探测器上的径迹数 N_T , 便可求得辐照中子场的绝对中子注量率。和裂变碎片产生的这种损伤比较, α 粒子和 γ 射线对介质晶体的损伤影响可忽略。

在中子注量率为 $\phi(t)$ 的中子场中辐照固体径迹探测器, 设靶材料的易裂变原子数为 N , 裂变截面为 $\hat{\sigma}_f$, 辐照时间为 T , 则固体径迹探测器的裂变靶在 T 时间内的裂变数可表示为 $\int_0^T \phi(t) \hat{\sigma}_f N dt$, 裂变碎片在径迹材料上留下的核径迹数为 N_T , 可由下列方程计算,

$$N_T = \hat{\sigma}_f N \varepsilon \mu \int_0^T \phi(t) dt, \quad (11)$$

其中: ε 为固体径迹探测器探测裂变碎片的效率; μ 为裂变碎片穿过裂变靶厚度时的自吸收修正因子。

公式 (11) 说明了核径迹数与中子注量率的积分成正比。只要知道参数 $\hat{\sigma}_f$, N , ε , μ , 就可以在测量核径迹数之后, 确定中子注量率的积分

$$\int_0^T \varphi(t) dt = \frac{N_T}{\hat{\sigma}_f N \varepsilon \mu}, \quad (12)$$

然后将中子注量结合功率曲线, 就可以得到不同运行状态的中子注量率曲线。

4 实验测量

中子注量率测量方法的选择与中子能谱有关, 从图 2 可以看出, He-3 孔道中的中子绝大多数是热中子 (能量在 10 eV 以下的中子约占 99.996%), 而外壁的中子能量比 He-3 孔道中的更低, 因此在实验中可以忽略高能中子对测量结果的影响。根据待测点处中子能谱的特征, 活化片采用了容易与热中子发生活化反应的材料金; 固体径迹探测器采用了容易与热中子发生裂变反应的材料 U-235 和径迹材料白云母。测量时将一片活化片和一片固体径迹探测器紧贴在一起, 利用固体径迹探测器来标定活化片的活度与中子注量的关系, 实现了确定位置中子注量的测量。最后根据功率曲线对中子注量进行微分, 就得到了中子注量率随时间的变化。这种探测方法可以同时测量多个探测点的中子注量率, 并且能够同时测量极低水平和高水平的中子注量率; 由于探测器的体积小, 更便于测量反应堆不同位置的中子注量率。

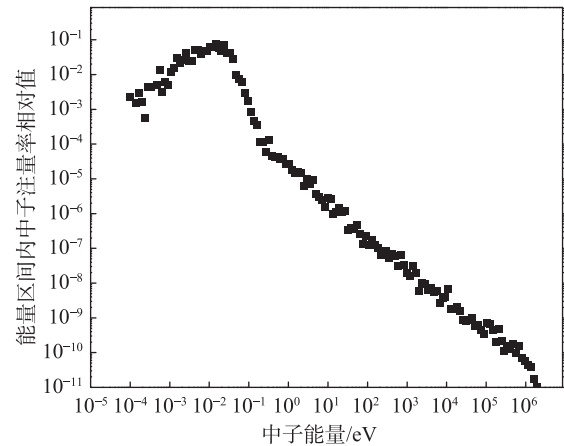


图 2 He-3 管实验孔道中的中子能谱分布

实验时选择了 He-3 管实验孔道内及反应堆外壁两个探测点。He-3 管实验孔道在反射层近堆芯一侧, 此处中子注量水平较高, 对其中子注量进行模拟可以得到相对可靠的计算结果; 反应堆外壁的通量水平非常低, 在用 Monte Carlo 方法计算时存在计算结果比实际结果偏低且统计误差较大的现象^[6], 所以测量该处的中子注量率可以量化模拟方法对该处中子注量率的低估程度, 有助于后续工作对模拟方法的改进。

为了测量热中子注量率分布, 在 He-3 孔道内沿轴向布置了 6 个金活化片探测器 (自上而下, 金片编号从 1

到6) 和一个固体径迹探测器, 将固体径迹探测器(编号S01#)与3号金活化片重叠放置用来标定活化片活度与固体径迹计数的关系。另外, 还在铅基堆外壁上布置了一个固体径迹探测器(S02#)。

然后根据次临界度装载燃料后, 运行铅基堆, 按需要改变运行状态, 包括: 安全棒和调节棒的插拔、安全块的升降、吹入和吹出中子源、跳源等。本工作分别在 $k_{\text{eff}}=0.996, 0.980, 0.960$, 三种次临界条件下进行了实验, 有效增值因数 k_{eff} 代表了反应堆的不同次临界状态, 测量时的功率监测器种类和监测位置为: 当次临界度为0.996时, 中子源位置在源区顶端, 用BF3计数

管进行功率监控; 当次临界度为0.980和0.960时, 中子源位置在源区底部(活性区中心偏下), 用He-3计数管进行功率监控。

5 结果和讨论

次临界反应堆运行一段时间后, 首先利用高纯锗 γ 谱仪系统测量和处理得到了各测点活化片的测量结果(见表1), 通过公式(10)可以得到各测点中子注量率的相对分布。然后利用固体径迹蚀刻系统观测到单视野平均径迹数, 根据公式(12)得到了中子积分注量(见表2)。

表1 活化片测量结果

k_{eff}	编号	等待时间/s	测量时间/s	γ 峰面积	重量/mg	误差/%
0.996	1	46 568	15 000	620	76.47	4.60
	2	5 168	10 051.76	954	75.8	3.42
	3	15 488	10 000	1 822	71.16	2.47
	4	25 808	10 000	2 569	72.45	2.01
	5	36 608	10 000	3 222	74.18	1.80
	6	62 588	15 000	3 624	77.06	1.67
0.980	1	954	1 800	740	75.28	4.16
	2	3 679	1 440.3	973	73.47	3.25
	3	5 169	1 800	1 862	72.15	2.47
	4	7 452	672.52	2 369	71.64	2.00
	5	8 208	1 011.61	3 763	74.72	1.59
	6	9 308	983.07	2 001	68.10	2.26
0.960	1	954	1 800	567	70.82	4.65
	2	3 679	1 440.3	1 165	71.22	3.10
	3	5 169	1 800	2 925	71.2	1.91
	4	7 452	672.52	1 898	78.39	2.31
	5	8 208	1 011.61	3 583	74.05	1.81
	6	9 308	983.07	3 329	71.57	1.71

表2 固体径迹测量结果

k_{eff}	测量位置编号	单视野平均径迹数	径迹数误差/%	积分注量/n	稳定运行注量率/(n/cm ² /s)
0.996	S01#	1.890	0.79	3.670×10^9	6.371×10^5
	S02#	0.065	1.56	1.821×10^6	1.514×10^3
0.980	S01#	8.535	0.62	1.658×10^{10}	2.718×10^6
	S02#	0.293	1.29	8.193×10^7	7.523×10^3
0.960	S01#	4.810	0.91	9.341×10^9	2.435×10^6
	S02#	0.151	1.98	4.232×10^6	5.573×10^3

由于功率监测曲线的面积与中子注量是相关的, 根据功率监测曲线对中子注量进行微分, 可以得到中子注量率随时间的变化。以He-3管实验孔道中子注量率变化为例(见图3), 根据铅基堆次临界度、运行状态和源特征, 可以在图3中查找对应的He-3管实验孔道中子注量率。图4给出了稳定运行时He-3实验孔道中沿轴向的中子注量率分布图。

从表2和图4中可以明显看出中子源的位置对次临界堆功率水平和中子注量率分布的影响: 当中子源位于中子源区底部时, 测得的He-3孔道内和外壁处的中子注量率比源位于顶部时的更大。这是因为当中子源位置偏离反应堆活性区中心时, 核燃料吸收中子发生裂变反应的几率更小, 即使 k_{eff} 较大($k_{\text{eff}}=0.996$)也可能导致次临界堆的源中子倍增数减小。而 $k_{\text{eff}}=0.980$ 和

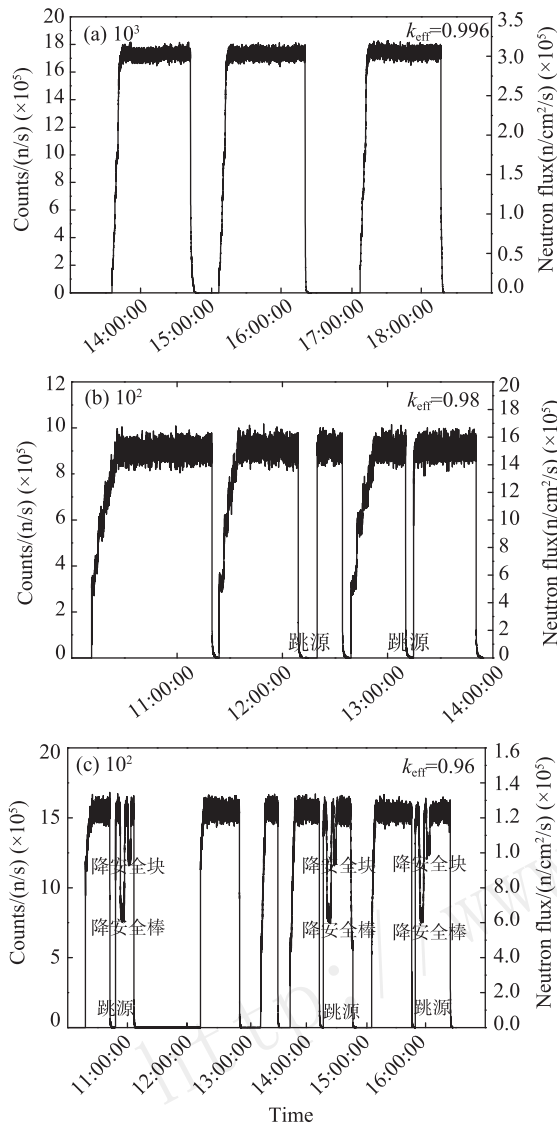


图 3 He-3 管实验孔道中子注量率与功率的关系

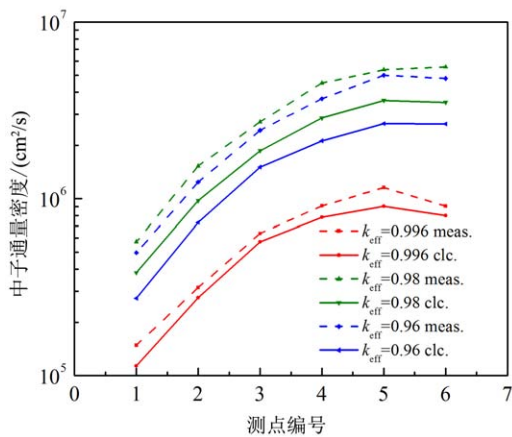


图 4 (在线彩图) He-3 实验孔道轴向中子注量率分布图

$k_{\text{eff}}=0.960$ 的测量结果说明, 在同等条件下, k_{eff} 越小次临界堆的源中子倍增数越小, 全堆功率水平和中子注

量率水平越小。

为了验证测量方法的有效性, 本工作采用 Monte Carlo 模拟程序 MCNPX 2.7.0, 对 He-3 管实验孔道的中子注量率进行了模拟计算。从图 4 可以看出, 模拟结果与实验结果的趋势一致。在次临界度较浅的条件下, 二者的符合度更好; 在次临界度较深时, 模拟结果比实验结果偏低的现象较为明显。这是由于当次临界度更深时, Monte Carlo 程序在进行粒子抽样时的空间统计涨落更大, 使得计算结果的低估程度更大。

6 结论

本文在核数守恒原理的基础上推导出次临界非稳态方法的理论公式, 提出了活化片和固体径迹探测器相结合的非稳态中子注量率测量方法。通过测量启明星 II 铅基堆芯的 He-3 孔道内及反应堆外壁的中子注量率, 证明该方法可以测量低通量的中子场, 也可以测量反应堆不同时刻、不同位置的中子注量率。利用 MCNPX 程序得到的模拟计算结果与实验结果的趋势一致, 但随着次临界度的加深, 计算结果的低估程度也随之增高。

本工作为未来 CiADS 工程提供了一种可靠的中子注量率测量方法, 有利于验证 CiADS 的物理设计, 有利于改进 CiADS 屏蔽计算方法和提高辐射防护设计的可靠性, 还可以为 CiADS 的安全运行提供依据。

参考文献:

- [1] NIFENECKER H, MEPLAN O, DAVID S. Accelerator Driven Subcritical Reactors[M]. Grenoble (France): Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, 2003: 2.
- [2] ZENG Gang. The Accelerator Driven Evolution Research Project Proposal[R]. Beijing: Chinese Academy of Sciences, 2015. (in Chinese)
(曾钢. 加速器驱动嬗变研究装置项目建议书[R]. 北京: 中国科学院, 2015.)
- [3] SHI Yongqian. Neutronics Experimental Nuclear Reactor Technology[M]. Beijing: Atomic Energy of China Publishing House, 2011: 65. (in Chinese)
(史永谦. 核反应堆中子学实验技术[M]. 北京: 中国原子能出版社, 2011: 65.)
- [4] PELOWITZ D B. MCNPX User's Manual, Version 2.7.0. Los Alamos National Laboratory; 2011. LA-CP-11-00438.
- [5] ZHU Qingfu. The Detailed Design Physics Report of Critical Device[R]. Beijing: China Institute of Atomic Energy, 2014. (in Chinese)
(朱庆福. 铀棒临界实验装置物理详细设计报告[R]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2014.)
- [6] VAN WIJK A J, VAN DEN EYNDE G, HOOGENBOOM J E. Annals of Nuclear Energy, 2011, **38**: 2496.

Measurement of Thermal Neutron Flux in Unsteady State for ADS Venus II

JIN Jin^{1,2}, ZHU Qingfu¹, WANG Zhiguang², ZHOU Qi¹, LUO Peng^{2,†}, KE Guotu^{1,†}

(1. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

2. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

Abstract: Neutron flux measurements were carried out at VENUS-II lead-based zero power reactor by neutron activation method combined with solid-state nuclear track detectors (SSNTD). This experimental method was proposed based on the principle of nuclear number conservation when a foil was irradiated in an unsteady-state neutron field. By this method, thermal neutron flux distributions inside the He-3 duct were measured when VENUS-II was operated under unsteady-state. The neutron flux distributions were also calculated with MCNPX code and were consistent with the experimental data. In addition, the neutron fluxes in the outer layer of VENUS-II were measured under steady-state. These results would benefit the further study of experimental methods for neutron flux measurement and provide important support for the design of CiADS.

Key words: ADS; neutron flux; Activation method; SSNTD method

<http://www.npr.ac.cn>

Received date: 6 Aug. 2017; **Revised date:** 28 Feb. 2018

Foundation item: Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (XDA03010202); National Natural Science Foundation of China (91426301)

† Corresponding author: KE Guotu, E-mail: kgt2000@163.com; LUO Peng, E-mail: luopeng@impcas.ac.cn.