

文章编号: 0258-0926(2021)03-0055-04; doi:10.13832/j.jnpe.2021.03.0055

辐照对银铟镉控制棒价值的影响分析

张立东, 赵 均

中广核研究院有限公司, 广东深圳, 518026

摘要: 为分析银铟镉 (Ag-In-Cd) 控制棒内各核素经反应堆中子辐照后的消耗情况以及核素消耗对控制棒价值的影响, 本研究采用蒙特卡罗程序模拟了 Ag-In-Cd 控制棒内主要核素在反应堆运行期间的燃耗, 并结合控制棒宏观中子吸收截面和控制棒内的中子注量率水平变化, 分析了辐照前后控制棒价值的变化。研究结果表明, 控制棒中 ^{113}Cd 随着辐照时间增加而加速消耗, ^{107}Ag 、 ^{109}Ag 和 ^{115}In 消耗速率相对较慢; 控制棒总的宏观中子吸收截面在辐照后降低, 但是 ^{107}Ag 、 ^{109}Ag 和 ^{115}In 的中子吸收截面明显地增加; 辐照后控制棒内的中子注量率增大, 控制棒总中子吸收率无明显变化, 即控制棒价值无明显变化。

关键词: 银铟镉 (Ag-In-Cd) 控制棒; 辐照消耗; 控制棒价值

中图分类号: TL345 **文献标志码:** A

Study on Irradiation Effect for Value of Ag-In-Cd Control Rods

Zhang Lidong, Zhao Jun

China Nuclear Power Technology Research Institute Co., Ltd., Shenzhen, Guangdong, 518026, China

Abstract: In order to study the main neutron absorber nuclides of the Ag-In-Cd control rods in the reactor and its effect on the control rod value, Monte Carlo method is used to simulate the burnup of the main nuclides in Ag-In-Cd control rods during the reactor operation, and the neutron flux in the control rod and the macroscopic cross-section are analyzed, to investigate the value of the control rods before and after irradiation. The results show that the nuclide ^{113}Cd in control rods decreases sharply with the increasing of the irradiation time, while ^{107}Ag , ^{109}Ag and ^{115}In decrease slowly; the macroscopic cross-section of the control rods decreases, while the macroscopic cross-section of ^{107}Ag , ^{109}Ag and ^{115}In increase; the neutron flux in the control rods increases, hence the neutron absorber rates in the Ag-In-Cd equal to that in the no-irradiation control rods.

Key words: Ag-In-Cd control rod, Irradiation consumption, Control rod value

0 引言

银铟镉 (Ag-In-Cd) 控制棒目前被广泛应用于压水堆核电站, 其主要作用是补偿堆芯的剩余反应性以及提供足够的安全停堆裕量。反应堆运行时, 控制棒下端部插入堆芯, 控制棒处于较高中子注量率的辐照场内, 造成控制棒内中子吸收材料的不断消耗。由于中子吸收截面大的核素消耗较快, 随着辐照时间的增加, 中子吸收截面大的核素占比逐渐降低, 而中子吸收截面较小的核素相对消耗较慢, 其占比逐渐增加, 因此随着辐

照时间的累积, 控制棒的宏观吸收截面会发生变化^[1]。

对于采用全控制棒提供剩余反应性补偿的堆芯而言, 反应堆运行期间需要一直保持控制棒处于插入状态, 因此和传统的含有可溶硼的反应堆相比, 此类反应堆的中子辐照时间更长, 中子吸收截面较大的核素消耗更快, 控制棒的宏观吸收截面变化也会更加明显。Bourgoin^[2]和龙冲生^[3]等人通过理论模拟给出了控制棒辐照后各元素随中子注量率变化的关系。李攀^[4]、LV^[5]、

收稿日期: 2020-04-24; 修回日期: 2020-12-08

作者简介: 张立东 (1985—), 男, 工程师, 现主要从事反应堆辐射防护设计方面的研究, E-mail: zhangldong@cgnpc.com.cn

RISOVANY^[6]等人研究了控制棒消耗对控制棒价值的影响,研究认为随着辐照时间的增加,控制棒价值逐渐减小。上述理论研究都表明控制棒在反应堆内受到辐照时,控制棒内的核素成分会发生变化,同时控制棒价值也受到一定影响。

目前,在压水堆核电站运行期间也发现控制棒价值随运行时间的增加而不断衰减的情况,但是控制棒价值的衰减相对较小,因此在堆芯设计中通常不考虑控制棒价值随时间的变化,这与上述研究中压水堆控制棒辐照消耗和价值衰减的研究结论有一定差别。本文从控制棒核素消耗出发,研究控制棒内各核素经中子辐照后的核素质量含量的变化情况,结合控制棒宏观中子吸收截面的变化和控制棒内的中子反应率变化,对辐照前后的控制棒价值变化进行研究。

1 控制棒中子吸收截面计算

Ag-In-Cd 控制棒的芯体初始质量成分为:80%为 Ag,15%为 In,5%为 Cd,各种核素的初始成分如表 1 所示。采用目前压水堆广泛使用的燃料组件为研究对象,其燃料富集度为 3.20%,每个燃料组件包括 264 根燃料棒(部分燃料棒载有钷可燃毒物)、24 根锆合金导向管(用于放置控制棒组件、中子源组件或阻流塞组件)、1 根锆合金仪表测量管,按 17×17 方阵排列成正方形栅格,共 289 个棒位,棒与棒间的中心距离为 1.26 cm。假设燃料组件的活性段高度为 220 cm,

表 1 Ag-In-Cd 控制棒内的初始核素质量分数及一群等效截面

Tab. 1 Initial Nuclide Mass Fraction and Isotopes Mass Content in Ag-In-Cd

核素	质量分数/%	一群等效截面/cm ²
¹⁰⁷ Ag	41.440	3.39×10 ⁻²
¹⁰⁹ Ag	38.560	8.10×10 ⁻²
¹¹³ In	0.645	6.85×10 ⁻²
¹¹⁵ In	14.355	6.85×10 ⁻²
¹⁰⁶ Cd	0.060	2.32×10 ⁻⁵
¹⁰⁸ Cd	0.045	1.67×10 ⁻⁵
¹¹⁰ Cd	0.620	4.03×10 ⁻⁴
¹¹¹ Cd	0.640	7.05×10 ⁻⁴
¹¹² Cd	1.205	3.26×10 ⁻⁴
¹¹³ Cd	0.615	1.19×10 ⁻¹
¹¹⁴ Cd	1.445	3.15×10 ⁻⁴
¹¹⁶ Cd	0.370	1.60×10 ⁻⁵
总计	100	3.00×10 ⁻¹

假设一组 Ag-In-Cd 控制棒插入单个燃料组件时的插入深度为 80 cm,然后计算燃料组件的有效增殖因子(k_{eff}),同时统计控制棒内中子注量率以及各核素与中子发生反应的反应率,最后计算控制棒内 Ag、In、Cd 同位素的质量分数和一群等效宏观截面。

控制棒的总中子吸收截面是控制棒内所有核素的中子吸收截面的总和,可表示为^[7-8]:

$$\Sigma_{\text{Ag-In-Cd}} = \sum_i^n \sigma_i \quad (1)$$

式中, σ_i 为第*i*种核素的中子吸收截面; n 为控制棒中核素的数目; i 为控制棒内第*i*种核素。

由表 1 可知,虽然 ¹¹³Cd 的初始含量仅有 0.615%,但 ¹¹³Cd 的一群等效截面最大,约占总截面的 39.2%;¹⁰⁹Ag 的一群等效截面约占总截面的 26.6%;¹¹³In 和 ¹¹⁵In 的一群等效截面均约占 22.5%;¹⁰⁷Ag 占 11.1%;其余核素的总截面占比不足 1%。

2 控制棒主要中子吸收核素消耗计算

2.1 控制棒内中子吸收核素的辐照反应

由于控制棒中的主要中子吸收核素为 ¹¹³Cd、¹⁰⁷Ag、¹⁰⁹Ag 和 ¹¹³In、¹¹⁵In,因此本文在消耗计算中也主要分析这 5 种核素。

上述核素在控制棒中主要发生以下反应:

¹⁰⁷Ag 俘获中子生成 ¹⁰⁸Ag,¹⁰⁸Ag 经 β 衰变为 ¹⁰⁸Cd(衰变分支比为 97.7%,半衰期为 2.4 min);¹⁰⁹Ag 俘获中子后生成 ¹¹⁰Ag,¹¹⁰Ag 再经 β 衰变生成 ¹¹⁰Cd(衰变分支比为 97.7%);¹¹³Cd 俘获中子后生成 ¹¹⁴Cd;¹¹³In 俘获中子后生成 ¹¹⁴In,¹¹⁴In 再经 β 衰变生成 ¹¹⁴Sn(衰变分支比为 98.1%,半衰期为 72 s);¹¹⁵In 俘获中子后生成 ¹¹⁶In,¹¹⁶In 再经 β 衰变生成 ¹¹⁶Sn(半衰期仅为 14 s)。这些生成产物的中子吸收截面都很小。

2.2 控制棒中核素消耗计算

为分析控制棒中各核素的消耗量,本文模拟了仅由控制棒提供反应性控制的反应堆堆芯的运行模式,控制棒插入组件中的长度为 133 cm,单个组件的辐照功率为 3.6 MW,采用带燃耗计算功能的蒙特卡罗程序计算控制棒在辐照 1200 d 后的剩余核素成分。为了分析控制棒空间自屏效应对核素消耗量的影响,建模时将控制棒沿径向方向等距离划分为 10 层,从外向内依次命名为 1 层、2 层、...、10 层,然后采用临界源模型计算每层中

各核素被辐照一段时间后的相对剩余量。

表2为辐照1200 d后控制棒各层中的核素含量,由表2可知,辐照1200 d后最外层(10层)的 ^{113}Cd 仅剩余33.7%,消耗较多,这主要是由于 ^{113}Cd 的中子吸收截面大(其热中子吸收截面约 $2 \times 10^{-24} \text{ m}^2$)导致的;各层中 ^{107}Ag 、 ^{109}Ag 和 ^{113}In 、 ^{115}In 相对消耗较少,这些核素的中子吸收截面相对较小(约比 ^{113}Cd 低2个数量级);从最外层到最内层, ^{108}Cd 、 ^{110}Cd 和 ^{114}Cd 含量显著增加,结合2.1节的分析可知这些核素主要是中子吸收截面相对较大的核素(^{107}Ag 、 ^{109}Ag 和 ^{113}Cd)吸收中子后的产物。综上,控制棒中子吸收截面大的核素辐照后含量显著降低,且辐照后的产物的中子吸收截面较小,结合式(1)可知,这将导致控制棒总的中子吸收截面发生变化。

3 核素消耗对于控制棒价值影响

由表2可知,辐照后控制棒中中子吸收截面较大的核素有一定的消耗,尤其是 ^{113}Cd 消耗更为明显,这就导致了控制棒总的中子吸收截面发生较为明显的变化,进一步导致控制棒吸收中子能力发生变化。因此有必要研究控制棒中核素消耗对于控制棒价值的影响。假设一束控制棒在堆芯辐照后有99.9%的 ^{113}Cd 生成了 ^{114}Cd ,以 ^{114}Cd 作为控制棒在堆内辐照后核素组分,并对其进行辐照实验来研究和评估核素消耗对控制棒价值的影响。

采用单组件模型研究辐照对控制棒价值的影响,模型四周采用了全反射边界条件以模拟无限堆芯,并假设控制棒插入组件的深度为133 cm,燃料组件的其他参数与第1节相同。分别计算在没有插入控制棒、插入未经辐照的控制棒以及插

入经辐照后的控制棒的燃料组件的 k_{eff} 。经计算,没有插入控制棒时,燃料组件的 k_{eff} 为 1.19768 ± 0.00009 ;插入未经辐照控制棒时,燃料组件的 k_{eff} 为 1.14573 ± 0.00004 ;插入经辐照后的控制棒时,燃料组件的 k_{eff} 为 1.14626 ± 0.00004 。因此,当控制棒插入堆芯133 cm时,未辐照的控制棒的价值约为5195 pcm($1 \text{ pcm} = 10^{-5}$),而经辐照的控制棒的价值约为5142 pcm。换言之,在 ^{113}Cd 消耗99.9%以后,控制棒价值仅变化了53 pcm,约变化了1%,即控制棒中 ^{113}Cd 辐照消耗了99.9%对于控制棒价值的影响几乎可以忽略。

k_{eff} 可通过系统内中子产生率与系统内中子的总消失率(包括吸收率和泄漏率)的比值计算得到,其中泄漏率的大小主要取决于堆芯尺寸和几何形状,外边界条件相同的模型中子泄漏率是相等的。根据 k_{eff} 的计算公式可知, k_{eff} 相同的情况下,中子的吸收率应该是相等的。而控制棒中子吸收率计算结果显示, ^{113}Cd 消耗99.9%的控制棒中核素的归一化中子的反应率为 $3.26 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$,未经辐照的控制棒中核素的归一化中子的反应率为 $3.28 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$,2种控制棒内的中子的反应率相差0.6%,即控制棒的中子吸收率也基本不变。

表3为辐照前后控制棒内各核素的一群等效截面及辐照前后的比值,根据表3中可知,辐照后 ^{113}Cd 的一群等效截面为 $4.59 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$,控制棒的总一群等效截面为 0.275 cm^2 ,相对于 ^{113}Cd 没有消耗的控制棒(即辐照前),控制棒的总一群等效截面减少了11%,与采用式(1)计算的结果(减小40%)相差较大,说明随着 ^{113}Cd 的消耗,控制棒内各核素的一群等效截面发生了变化。

表4为辐照前后控制棒内Ag和In 2种元素

表2 Ag-In-Cd控制棒在反应堆内辐照后的核素的相对剩余量 %

Tab. 2 Remained Isotopes in Ag-In-Cd Alloy after Irradiation

核素	1层	2层	3层	4层	5层	6层	7层	8层	9层	10层
^{107}Ag	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.8	99.7
^{109}Ag	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.8	99.8	99.8	99.6	99.3
^{115}In	99.4	99.4	99.4	99.4	99.3	99.3	99.1	98.9	98.4	96.9
^{114}Cd	101.5	101.5	101.7	101.9	102.4	103.4	105.3	109.1	116.2	128.1
^{112}Cd	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1	100.1
^{113}In	99.6	99.6	99.6	99.6	99.6	99.6	99.5	99.5	99.5	99.4
^{111}Cd	100.0	100.0	98.7	98.7	98.6	98.6	98.6	98.6	98.5	98.4
^{113}Cd	96.4	96.4	96.0	95.4	94.3	92.0	87.4	78.6	61.8	33.7
^{110}Cd	108.0	108.1	108.3	108.6	109.0	109.9	111.5	114.5	120.7	142.1
^{116}Cd	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
^{106}Cd	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9
^{108}Cd	166.3	166.7	167.5	168.6	171.1	175.9	184.3	199.7	232.1	324.5

表3 辐照前和辐照后控制棒内各核素的一群等效截面及比值

Tab. 3 Nuclide Macroscopic Effective Cross-Section of One Group in Ag-In-Cd Control Rods before and after Irradiation

核素	未辐照截面 /cm ²	辐照后截面 /cm ²	一群等效截面比值 (辐照后/辐照前)
¹⁰⁷ Ag	3.4×10^{-2}	5.08×10^{-2}	1.4970
¹¹³ In、 ¹¹⁵ In	6.9×10^{-2}	1.02×10^{-1}	1.4873
¹⁰⁶ Cd	2.3×10^{-5}	2.35×10^{-5}	1.0138
¹⁰⁸ Cd	1.7×10^{-5}	1.70×10^{-5}	1.0182
¹¹⁰ Cd	4.0×10^{-4}	4.70×10^{-4}	1.1661
¹¹¹ Cd	7.1×10^{-4}	8.54×10^{-4}	1.2119
¹¹² Cd	3.3×10^{-4}	3.42×10^{-4}	1.0473
¹¹³ Cd	1.2×10^{-1}	4.59×10^{-2}	0.0038
¹¹⁴ Cd	3.2×10^{-4}	2.72×10^{-4}	0.8627
¹¹⁶ Cd	1.6×10^{-5}	1.56×10^{-5}	0.9756
¹⁰⁹ Ag	8.1×10^{-2}	1.20×10^{-1}	1.4807
所有核素	3.04×10^{-1}	2.75×10^{-1}	1.1067

的核素的两群截面变化。可以看出,当控制棒内¹¹³Cd消耗后(即辐照后),Ag和In的热群等效截面增大了2.5倍以上,超热群和快群等效截面则降低至原来的96%,总的一群等效截面增加约50%。说明了¹¹³Cd消耗以后,Ag和In吸收热中子的比例大幅度增加,这主要是因为¹¹³Cd的热中子吸收截面大,对Ag和In形成了自屏效应;当¹¹³Cd消耗以后控制棒对热中子的自屏效应消失,所以Ag和In的热中子吸收截面增大。因此,Ag-In-Cd控制棒中¹¹³Cd辐照消耗以后,Ag和In的热中子比例增大,热中子吸收截面增大。

表4 辐照前后控制棒中主要中子吸收核素的两群等效截面变化

Tab. 4 Nuclide Macroscopic Effective Cross-Section of Two Groups in Ag-In-Cd Alloy before and after Irradiation

核素	等效截面比值(辐照后/辐照前)		
	热群(中子能量 <0.625 eV)	超热群和快群(中子能量 >0.625 eV)	全能群
¹⁰⁷ Ag	2.77	0.96	1.53
¹¹³ In、 ¹¹⁵ In	2.59	0.96	1.51
¹⁰⁹ Ag	2.73	0.96	1.51

综合表3和表4可知,虽然¹¹³Cd消耗以后,Ag和In的等效截面增加,但是增加量小于¹¹³Cd消耗导致的截面减少量,由于中子反应率为中子注量率和中子吸收截面的乘积,若¹¹³Cd消耗前

和消耗后控制棒内中子吸收率相同,则在¹¹³Cd消耗后控制棒内的中子注量率会有增加。计算结果显示,在相同的堆芯参数条件下,当采用辐照后控制棒时,控制棒内的中子注量率将比采用未辐照控制棒的中子注量率高9.6%,而辐照后的总有效截面比辐照前减低了11%,因此控制棒内的中子反应率几乎不变,控制棒价值没有明显变化。

4 结论

本文分析了Ag-In-Cd控制棒经辐照后的各核素的质量含量的变化情况以及核素变化对控制棒价值的影响,得到以下结论:

Ag-In-Cd控制棒在反应堆内辐照后,随着辐照时间的变化,中子吸收截面大的核素消耗的较快,如¹¹³Cd;随着¹¹³Cd消耗,控制棒内主要的中子吸收核素的热中子吸收比例增加,一群等效截面也明显增加;控制棒中¹¹³Cd消耗后,控制棒内的中子注量率增加,控制棒价值无明显变化。

参考文献:

- [1] GALAHOM A A. Investigation of different burnable absorbers effects on the neutronic characteristics of PWR assembly [J]. Annals of Nuclear Energy, 2016, 94(8): 22-31.
- [2] BOURGOIN J, COUVREUR F, GOSSET D. The behaviour of control rod absorber under irradiation[J]. Journal of Nuclear Materials, 1999(275): 296-304.
- [3] 龙冲生,肖红星,高雯,等. Ag-In-Cd芯体辐照后化学成分的计算[J]. 原子能科学与技术, 2015, 49(10): 1844-1848.
- [4] 李攀,于雷,陈玉清. 压水堆控制棒价值的亏损速率研究[J]. 原子能科学与技术, 2015, 49(S1): 382-385.
- [5] LV D, LU J, RAN G, et al. Ball milling and sintering of neutron absorber Mo-based Tb₂O₃-Dy₂O₃ composite and its characterization [J]. Powder Technology, 2018(331): 226-235.
- [6] RISOVANY V D, VARLASHOVA E E, SUSLOV D N. Dysprosium titanate as an absorber material for control rods [J]. Nuclear Engineering and Technology, 2014, 46(4): 513-520.
- [7] RAHELEH K. Sensitivity analyses of the use of different neutron absorbers on the main safety core parameters in MTR type research reactor [J]. Nuclear Engineering And Technology, 2014, 46(4): 513-520.
- [8] AYGÜN B. High alloyed new stainless steel shielding material for gamma and fastneutron radiation [J]. Nuclear Engineering and Technology, 2019, 46(4): 513-520.

(责任编辑:周茂)