

文章编号: 1001-4322(2013)01-0227-06

高温堆乏燃料贮罐中子屏蔽性能计算*

李文茜, 李 红, 谢 锋, 曹建主, 方 晟

(清华大学 核能与新能源技术研究院, 北京 100084)

摘 要: 球床模块式高温气冷堆采用包覆颗粒球形燃料元件, 在反应堆运行过程中, 不断排出的乏燃料球将被装入乏燃料贮罐。乏燃料贮罐应选取适当的材料和厚度, 对光子和中子进行有效屏蔽, 使罐外的剂量率满足相应的限值要求。为此, 使用张弛长度法和蒙特卡罗模拟法研究乏燃料贮罐的中子屏蔽性能。屏蔽材料为铁和含硼聚乙烯, 计算了铁和不同 B₄C 含量聚乙烯的屏蔽性能, 并给出了乏燃料贮罐装满乏燃料球后, 乏燃料球自吸收对贮罐外剂量率的影响。两种方法计算结果吻合很好, 可以为实际工程中的屏蔽设计提供参考意见。

关键词: 高温堆; 乏燃料; 屏蔽性能; 蒙特卡罗模拟

中图分类号: X34

文献标志码: A

doi:10.3788/HPLPB20132501.0227

球床模块式高温气冷堆(HTR-PM)是一种具有良好安全性的堆型。与压水堆、沸水堆和重水堆等传统堆型不同, HTR-PM 采用包覆颗粒球形燃料元件。在核电站的运行过程中, 从反应堆不断地排出乏燃料球, 乏燃料球将被装入乏燃料贮罐。乏燃料球会释放出很强的 γ 射线和中子, 乏燃料贮罐应选取合适的材料和适当的厚度, 对 γ 射线和中子进行有效屏蔽, 使乏燃料贮罐外的剂量率满足相应的限值要求。本文主要研究乏燃料贮罐的中子屏蔽性能, 针对乏燃料球的中子源项, 主要是 2~8 MeV 的快中子, 结合国内外已有的研究成果, 讨论屏蔽材料的种类和厚度的选取原则和方法, 然后采用理论计算方法和蒙特卡罗模拟方法, 对乏燃料贮罐的屏蔽性能进行计算。本文理论计算采用的张弛长度法与蒙特卡罗模拟方法的计算结果互为验证, 为高温堆乏燃料贮罐的屏蔽设计提供了重要的指导意见。

1 源项及屏蔽方法

高温堆的燃料球主要由石墨基体和低富集二氧化铀燃料颗粒组成。乏燃料的中子源项主要由自发裂变和 (α, n) 反应构成。随着冷却时间的增加, 中子源强会有一定的衰减。

在计算中, 按照保守的原则, 中子源项以达到堆芯平衡后刚卸出堆的乏燃料球的中子源强为基础, 同时, 对中子能量也按保守原则进行了简化归并。归并后的总中子源强见表 1, 表中给出的是乏燃料罐内装满燃料球的情况, 中子能量分区为 2, 4, 6, 8 MeV 的快中子, 总的中子产额为 $6.15 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, 其中 50.4% 来自自发裂变, 49.6% 来自 (α, n) 反应。

大体上, 对于中子的屏蔽应分为两类考虑^[1], 一类是能量较低的热中子和次热中子, 一类是能量较高的超热中子和快中子。

对于能量较低的热中子和次热中子, 可以使用中子俘获截面较高的材料, 例如镉(Cd)、钆(Gd)、硼(B)、锂(Li)。但是, 镉和钆在吸收中子的同时伴随着较强的俘获 γ 射线, 在使用这类材料时, 需要对次级 γ 射线进行附加屏蔽。对于硼和锂, 次级 γ 射线较弱, 尤其是硼, 在这方面性能更好, 结合经济因素, 硼是最佳的选择。

对于能量较高的超热中子和快中子, 使用多层的屏蔽结构更为合理, 因为它们不能通过辐射俘获反应直接被阻止。这时, 应首先选取适当的材料将其慢化, 慢化的主要方式是弹性散射和非弹性散射。例如, 对于 1 MeV

表 1 乏燃料罐装满乏燃料球时的中子源强

Table 1 Neutron source intensity while the spent fuel tank is full of spent fuel spheres

E /MeV	intensity/s ⁻¹		
	spontaneous fission	(α, n) reaction	total
2	2.07×10^8	1.70×10^8	3.77×10^8
4	8.97×10^7	1.00×10^8	1.90×10^8
6	—	3.48×10^7	3.48×10^7
8	1.29×10^7	—	1.29×10^7

* 收稿日期: 2012-06-26; 修订日期: 2012-07-17

基金项目: 国家重大科技专项基金项目(ZX06901)

作者简介: 李文茜(1984—), 女, 博士, 助理研究员, 主要从事反应堆安全研究; mili@mail. tsinghua. edu. cn。

以上的快中子,可以先使用重金属材料(铁、铋、铅、钨,等),通过非弹性散射使中子能量很快降低到与原子核的第一激发能级相应的能量以下,再使用含氢物质(水、聚乙烯、石蜡、泥土,等),通过弹性散射使中子能量进一步降低到热中子能区,最后,使用热中子吸收截面大、辐射俘获 γ 射线能量低的材料(锂、硼)吸收热中子。

一些复合材料也是很常用的中子屏蔽材料。例如混凝土和重混凝土,既含有轻元素,也含有较重的元素和一定的水分,兼具中子和 γ 的屏蔽性能,并具有良好的结构性能。又如含硼聚乙烯,含有大量的氢和一定数量的硼,既可以通过弹性散射慢化中子,又可以吸收热中子,且易于加工成型。此外,近年来,一些性能优良的新型复合材料也成为研究的热门^[2],例如硼铅混合屏蔽材料、碳化硅复合材料等。

Maruyama T 等在 400 keV 加速器上用 T(d,n) 反应提供 15.6 MeV 的中子源,研究了不同屏蔽材料对中子的屏蔽效果^[3]。结果显示,对于 50 cm 厚度的单一材料,屏蔽性能由高到低依次为铁、聚乙烯、含硼石蜡(含硼 3%)、含硼木料(含硼 3%);对于 50 cm 厚度的组合叠加材料,采用铁和聚乙烯多层反复堆叠的效果最好。郭海萍、郭洪生等在 200 kV 加速器上用 T(d,n) 反应提供 14.1 MeV 的中子源^[4-5],研究了 3 种含不同 B₄C 比例的聚乙烯样品(其中含 B₄C 的质量分数分别为 0, 10%, 50%)对中子的屏蔽效果。测量结果显示,含 10% B₄C 聚乙烯的屏蔽性能优于其他两种样品。也有一些基于蒙特卡罗方法的计算^[6],通过模拟的方法比较分析了铁、铋、铅、钨、石蜡、聚乙烯和水等材料对中子的屏蔽特性。

通过以上分析,并综合考虑乏燃料贮罐的结构性能需求和经济因素,本文最终选取铁和含 5% B₄C 的聚乙烯作为乏燃料贮罐的屏蔽材料。

2 计算方法与结果

张弛长度法是计算中子剂量较为常用的一种理论计算方法。对于能量为 E_0 的各向同性中子点源,屏蔽层内的中子通量密度为

$$\Phi_j = \frac{S(E_0)B}{4\pi r_j^2} \exp\left[-\sum_{i=1}^j \frac{\Delta r_i}{\lambda_i}\right] \quad (1)$$

式中: Φ_j 为中子通量密度; $S(E_0)$ 为中子源强; r_j 为源至第 j 个探测点的距离; Δr_i 即 $r_i - r_{i-1}$; λ_i 为能量为 E 至 E_0 的中子在 r_i 至 r_{i-1} 屏蔽段内的张弛长度; E 和 E_0 为散射中子和源中子的能量; B 为快中子的初始积累因子。

在介质里距源 3 个张弛长度范围内,中子减弱曲线是偏离指数形式的。这种偏离是由于散射中子积累的结果。对于含氢介质,与源相距 3 个自由程以上的区域,不必考虑初始积累因子,即可设 $B=1$,因为这时测量的张弛长度本身已经包括了所考虑的阈能以上的散射中子的贡献。对于非含氢介质,即使是离源较远的计算点也应考虑初始积累。

本文使用张弛长度法进行计算,查文献^[7]得到铁和碳化硼含量为 5% 的含硼聚乙烯的张弛长度、积累因子和中子通量到剂量当量的转换系数,将中子源项假设为点源,没有考虑燃料球的自吸收作用。计算得到 45 cm 铁、45 cm 铁加 15 cm 含硼聚乙烯这 2 种情况的结果如表 2 所示。

表 2 张弛长度法计算乏燃料贮罐外表面 30 cm 处的剂量率
Table 2 Dose rate at 30 cm from the outside surface of the spent fuel tank calculated by relaxation length method

E/MeV	dose rate/(mSv · h ⁻¹)	
	45 cm Fe	45 cm Fe + 15 cm PE
2	0.19	5.45×10^{-3}
4	5.04×10^{-2}	1.76×10^{-3}
6	9.06×10^{-3}	3.68×10^{-4}
8	3.43×10^{-3}	1.52×10^{-4}
total	0.25	7.73×10^{-3}

3 FLUKA 模拟和计算结果

近年来,蒙特卡罗模拟方法在辐射屏蔽设计领域得到越来越广泛的应用。本文选用由欧洲 CERN 开发的 FLUKA 程序进行计算^[8]。本文构建了 2 种屏蔽结构几何模型:只有 45 cm 铁屏蔽(图 1);45 cm 铁加 15 cm 含硼聚乙烯(不同 B₄C 含量)(图 2)。

FLUKA 可以抽样复杂的源项,包括源粒子的位置、方向、能量分布和权重等参数。考虑到实际应用中乏燃料球将均匀地分布在乏燃料罐内,本文将源项设计为在乏燃料罐的内部圆柱体空间均匀抽样,并按照每个能量区间的源强来抽样中子能量,向 4π 方向各向同性发射源粒子。

3.1 45 cm 铁屏蔽的计算结果

使用 FLUKA 模拟计算了只有 45 cm 铁屏蔽时乏燃料罐的中子屏蔽性能,包括剂量率和乏燃料贮罐外透射出的中子能谱。SimpleGEO 软件可以同时显示几何模型结构和剂量率的三维空间分布,模拟计算结果如图

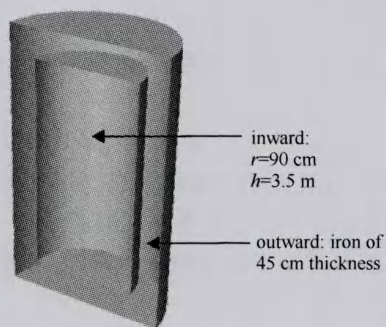


Fig. 1 Geometric model of 45 cm iron shielding

图1 45 cm 铁屏蔽的几何模型

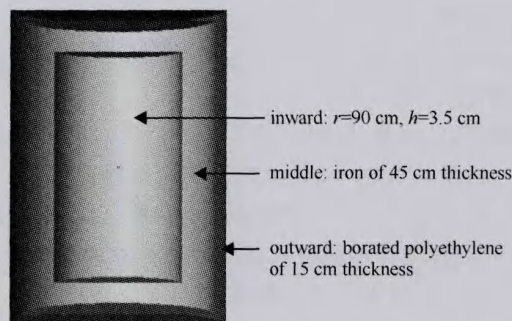


Fig. 2 Geometric model of 45 cm iron with 15 cm borated polyethylene

图2 45 cm 铁加 15 cm 含硼聚乙烯的几何模型

3 所示。本文利用 FLUKA 计算的剂量率一律指周围剂量当量率^[10],所使用的剂量转换因子取自 ICRP74 号报告^[11-12]。从图 3 可见,乏燃料贮罐内的剂量率较高,约为 30 mSv/h。在乏燃料罐外,顶部中心区域的剂量率高于罐侧面的剂量率。

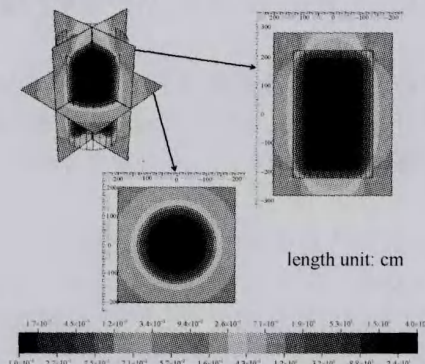


Fig. 3 Three dimensional spatial distribution of the dose rate with 45 cm iron (mSv/h)

图3 45 cm 铁屏蔽剂量率的三维空间分布(mSv/h)

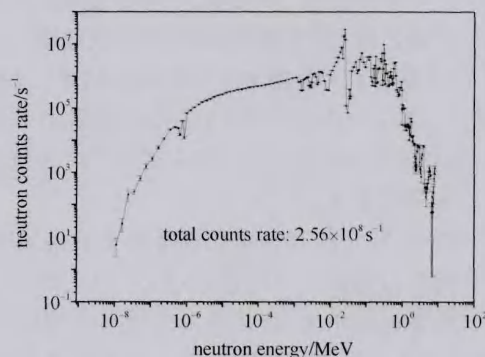


Fig. 4 Neutron spectrum emitted outward from iron shielding

图4 从铁屏蔽向外发射的中子能谱

分别统计了侧面半高度处和顶面中轴线处距离外表面 30 cm 处的中子剂量率、光子剂量率和总剂量率。顶面总剂量率的蒙特卡罗模拟结果为 0.49 mSv/h(相对不确定度 1.09%),张弛长度法的计算结果为 0.25 mSv/h,二者吻合很好。但是,此剂量率较高,不满足辐射防护要求(剂量率不大于 0.03 mSv/h)。

由统计数据可知,从铁屏蔽向贮罐外面 4π 发射的中子总计数率为 $2.56 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$,中子能谱如图 4 所示,快中子的计数率明显降低,计数率高的中子能量段已降到 1 MeV 以下。可见,45 cm 的铁对 2~8 MeV 的快中子有很好的慢化作用。但是,铁只能慢化中子,不能吸收中子,应该进一步采用含硼材料来吸收中子。

3.2 45 cm 铁加 15 cm 不同碳化硼含量聚乙烯的计算结果

进一步用 FLUKA 计算 45 cm 铁屏蔽外加 15 cm 含硼聚乙烯时,乏燃料罐的中子屏蔽性能。含硼聚乙烯中, B_4C 质量分数分别为 0.5%, 10%, 15%, 对应的含硼聚乙烯的密度分别为 0.91, 0.99, 1.07 和 1.15 g/cm^3 。表 3 列出了乏燃料贮罐顶面表面 30 cm 处的剂量率计算结果。

表3 顶面表面 30 cm 处的剂量率

Table 3 Dose rate at 30 cm position from upside surface

	dose rate at different B_4C content/($\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$)			
	0	5%	10%	15%
neutron	0.6 (4.25%)	0.38(16.6%)	0.26(13.9%)	0.17(16.7%)
photon	5.9(0.68%)	1.8(0.75%)	1.7(0.57%)	1.6(1.00%)
total	6.4 (0.99%)	2.2(2.73%)	1.9(2.68%)	1.7(2.98%)
ratio of photon to total	92%	82%	89%	94%

分析表 3 数据,可以得出以下结论:

① 总剂量由中子剂量和光子剂量组成,由于铁和含硼(或不含硼)聚乙烯对初级中子已经有很好的慢化和

吸收作用,屏蔽体外的光子剂量一般比中子剂量高约一个量级,这主要是 (n, γ) 反应造成的。

②不含 B_4C 时,表面 30 cm 处的总剂量率为 $6.4 \mu\text{Sv/h}$,含 5% B_4C 时,总剂量率降低到原来的 1/3,屏蔽效果明显改善。

③随着 B_4C 含量的增加(从 5% 到 15%),中子剂量率明显降低(从 0.38 到 $0.17 \mu\text{Sv/h}$),光子剂量率缓慢降低(从 1.8 到 $1.6 \mu\text{Sv/h}$),总剂量率也缓慢降低(从 2.2 到 $1.7 \mu\text{Sv/h}$),且光子剂量率占总剂量率的份额明显增加(从 82% 到 94%)。这是由于含硼聚乙烯属于低密度材料,对光子的屏蔽效果不好。因此,进一步提高聚乙烯中的硼含量并不能有效降低屏蔽体外的总剂量率。此时,如果需要进一步降低剂量率,可在最外层增加铁等重金属材料,对光子进行衰减。

④张弛长度法给出 B_4C 含量为 5% 时,屏蔽体外表面 30 cm 处的剂量率为 $7.7 \mu\text{Sv/h}$,比蒙特卡罗模拟法计算的结果 $2.2 \mu\text{Sv/h}$ 高。这是因为张弛长度法计算时存在一些偏保守的假设,例如,假设源是紧贴着乏燃料贮罐的内表面发射的,所取张弛长度、积累因子等数据也是偏保守的,这势必造成对剂量率结果的高估。

⑤结合前面的结果可知,45 cm 的铁可以将总剂量率降低约 2 个量级,15 cm 的含硼聚乙烯可以再将总剂量率降低约 2 个量级,这种结构设计可以使乏燃料贮罐外的剂量率满足剂量限值的要求。

为了进一步研究铁、聚乙烯、含硼聚乙烯的屏蔽效果,统计了从乏燃料罐内部到铁、从铁到聚乙烯(或含硼聚乙烯)、出聚乙烯(或含硼聚乙烯)的中子能谱。

图 5(a)给出了不含硼情况下的模拟结果。其中,从内部到铁的中子能谱除源项中子在 2, 4, 6, 8 MeV 处有 4 个峰之外,其余均为次级中子(主要是散射中子)的结果,中子总计数率为 $2.6 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$;从铁到聚乙烯的中子能谱中,快中子部分明显减少,热中子部分明显增高,中子计数率降为 $4.2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$;经过聚乙烯层的屏蔽后,中子计数率降低至 $8.0 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ 。

图 5(b)给出了含 10% 碳化硼情况下的模拟结果。其中,从内部到铁的中子能谱与不含硼情况下的一致。从铁到含硼聚乙烯的中子能谱中,1 eV 以上部分与不含硼情况下基本一致,1 eV 以下部分的中子计数率明显低于不含硼情况的结果,这是因为中子具有较强的散射特性,该层能谱的统计同时包含了从含硼聚乙烯返回铁,再从铁进入含硼聚乙烯的中子。由此也可以看出,不含硼的聚乙烯对中子有较强的慢化作用,但不能吸收慢化后的热中子,使热中子能谱区形成一个峰,而含硼聚乙烯可以吸收热中子,相应的热中子区就不存在峰。

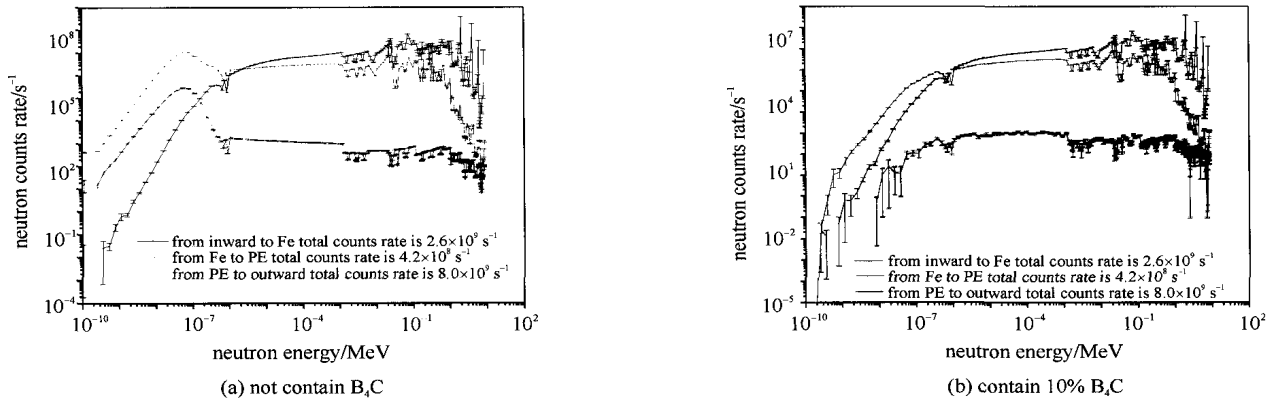


Fig. 5 Comparison of the neutron spectra

图 5 中子能谱的比较

图 6 中比较了不同碳化硼含量聚乙烯向贮罐外面发射的光子能谱。从中也可以看出,增加 B_4C 后次级光子明显减少,但是 B_4C 含量对结果影响不明显,特别是对 2 MeV 以上的光子。图 7 给出了最外层为含 5% 碳化硼聚乙烯的剂量率三维空间分布,可以更加直观地反映屏蔽的效果。

3.3 考虑乏燃料球自吸收的计算结果

前文计算中将乏燃料贮罐内部空间假设为真空,即没有考虑乏燃料球对中子射线的自吸收。实际上,乏燃料贮罐内部均匀的填充了上万个直径约为 6 cm 的乏燃料球。FLUKA 可以按照材料的质量分数、体积分数或是原子分数方便地构造混合物。本文按照乏燃料球的实际材料组份构建了内部填充物,并考虑了间隙空气所占的份额,将其假设为均匀的混合物,填充在内部空间中。在这种情况下计算了 45 cm 铁屏蔽外加 15 cm 含硼聚乙烯(碳化硼含量为 5%)时,乏燃料罐的中子屏蔽性能。

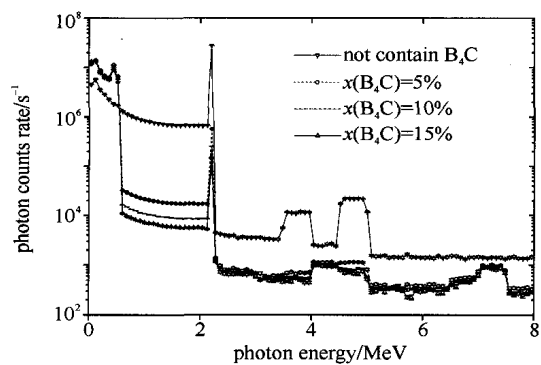


Fig. 6 Comparison of the γ spectra emitted from polyethylene with different B_4C contents

图 6 不同碳化硼含量聚乙烯的出射光子能谱的比较

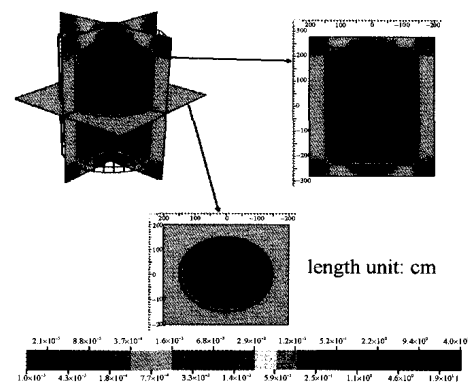


Fig. 7 Three dimensional spatial distribution of the dose rate with 45 cm iron and 15 cm B_4C (mSv/h)

图 7 45 cm 铁屏蔽加 15 cm B_4C 剂量率的三维空间分布 (mSv/h)

表 4 列出了乏燃料贮罐侧面半高度处和顶面中轴线处距离外表面 30 cm 处的剂量率,并同时比较了不考虑自吸收情况下的结果。可见,考虑自吸收后,总剂量率可再下降约 1 个量级,仅为 0.6 μ Sv/h,且侧面剂量率和顶面剂量率的数值更为接近。

表 4 表面 30 cm 处的剂量率

Table 4 Dose rat (μ Sv/h) at 30 cm position from outside surface

	at harf of the height		at central axis of top	
	not consider the self-absorption	conside the self-absorption	not consider the self-absorption	conside the self-absorption
neutron dose rate	0.08(5%)	0.02(8%)	0.38(17%)	0.03(19%)
photon dose rate	1.0(0.1%)	0.45(1%)	1.8(1%)	0.55(7%)
total dose rate	1.1(0.3%)	0.5(1%)	2.2(3%)	0.6(6%)

4 结 论

本文使用张弛长度法和蒙特卡罗模拟研究了乏燃料罐的中子屏蔽性能。根据以往的研究经验,蒙特卡罗模拟计算结果往往可以给出更为接近实验测量结果的数据。而本文计算指出,当采用 45 cm 铁屏蔽加 15 cm 含硼聚乙烯(B_4C 含量为 5%)时,考虑乏燃料球的自吸收作用,乏燃料罐外表面 30 cm 处的剂量率最高为 0.6 μ Sv/h,仅为天然本底的 6~10 倍,如果进一步提高含硼聚乙烯中 B_4C 的含量,剂量率降低的效果并不显著。本文采取的 FLUKA 蒙特卡罗模拟方法与张弛长度方法的计算结果吻合很好。最终,乏燃料贮罐选取的屏蔽结构为 45 cm 铁和 15 cm 含 5% B_4C 的聚乙烯。

参考文献:

[1] Dianoux AJ, Lander G. Neutron data booklet[Z]. Institut Laue-Langevin, France, 2003.

[2] 罗征,周新贵,于海蛟,等.核屏蔽材料研究与进展[C]//第十二届反应堆数值计算与粒子输运学术会议. 2008. (Luo Zheng, Zhou Xingui, Yu Haijiao, et al. Research and development of nuclear shielding material//12th Reactor Numerical Calculation and Particle Transport Academic Conference, 2008)

[3] Maruyama T, Bouts CJ. Attenuation of 15 MeV neutrons in multilayer shields composed of steel, polyethylene and borated materials[J]. *Phys Med Biol*, 1972, 17(3): 420-424.

[4] 郭海萍,安力,牟云峰,等. D-T 中子照射下含硼聚乙烯球泄露 γ 能谱测量[J]. 原子能科学技术, 2005, 39(3): 198-201. (Guo Haiping, An Li, Mou Yunfeng, et al. Measurement of leakage gamma spectra in boron-containing-PE spheres by D-T neutron. *Atomic Energy Science and Technology*, 2005, 39(3): 198-201)

[5] 郭洪生,彭太平,何锡钧,等. 含硼轻材料屏蔽 14.1 MeV 中子的实验研究[J]. 原子能科学技术, 2005, 39(3): 474-476. (Guo Hongsheng, Peng Taiping, He Xijun, et al. Radiation-shielding effects of the $B_4C+(CH_2)_n$ to D-T neutron. *Atomic Energy Science and Technology*, 2005, 39(3): 474-476)

[6] 赵新辉,谷德山,任万彬,等. 基于 MCNP 程序模拟的 14 MeV 中子准直屏蔽材料的研究[J]. 东北师大学报:自然科学版, 2006, 38(4): 59-63. (Zhao Xinhui, Gu Deshan, Ren Wanbin, et al. Study on the shielding material of 14 MeV neutrons collimation based on MCNP. *Journal of Northeast Normal University: Natural Science Edition*, 2006, 38(4): 59-63)

- [7] 李德平, 潘自强. 辐射防护手册第一部分: 辐射源与屏蔽[M]. 北京: 原子能出版社, 1987. (Li Deping, Pan Ziqiang. Radiation protection manual part 1: radiation source and shielding. Beijing: Atomic Energy Publication, 1987)
- [8] Ferrari A, Sala P R, Fasso A, et al. FLUKA: a multi-particle transport code[CP]. CERN-2005-010, 2008, INFN TC_05/11, SLAC-R-773.
- [9] Theis C, Buchegger K H, Brugger M, et al. Interactive three dimensional visualization and creation of geometries for Monte Carlo calculations[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2006, **562**: 827-829.
- [10] ICRU Report 47. Measurement of dose equivalents from external photon and electron radiations[C]//International Commission on Radiation Units and Measurements, 1992.
- [11] ICRP Publication 74. Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation[C]//International Commission on Radiological Protection, 1996.
- [12] Roesler S, Stevenson G R. Deq99. f- A FLUKA user-routine converting fluence into effective dose and ambient dose equivalent[CP]. Technical Note CERN-SC-2006-070-RP-TN, 2006, EDMS No. 809389.

Neutron shielding effects of spent fuel tank of high temperature reactor

Li Wenqian, Li Hong, Xie Feng, Cao Jianzhu, Fang Sheng

(Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: High temperature gas cooled reactor-pebble bed module (HTR-PM) adopts the coated particle spherical fuel elements, during the reactor's running, the constantly discharged spent fuel spheres will be loaded into the spent fuel tank. The spent fuel tank should use proper materials and thicknesses to shield gammas and neutrons effectively, and guarantee the dose limit not to be exceeded outside the tanks. Both relaxation length method and Monte Carlo simulation method were employed to study the neutrons' shielding capabilities of the spent fuel tank. Iron and borated polyethylene were chosen to be the shielding materials. The shielding capabilities of iron and borated polyethylene with different B_4C contents (mass fraction 0, 5%, 10% and 15%) were calculated. The effect of the spent fuel spheres' self-absorption to the dose rate outside the tank was also considered, when the tank was full of the spent fuel spheres. The calculation results of these two methods are in good agreement, and provide important guiding suggestions for the shielding design in the practical engineering.

Key words: high temperature reactor; spent fuel; shielding effect; Monte Carlo simulation