

文章编号: 1007- 4627(2000) 03-0255-04

次临界系统处理钚及高放锕系元素的概念研究*

沈姚崧, 刘成安

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

摘要: 对加速器驱动的次临界反应堆处理反应堆级钚和高放锕系废物进行了概念性设计的研究. 建立了以液态铯系合金金属为载热剂的次临界堆芯模型, 利用 ADVBISON 程序对该问题进行了数值计算, 得到了满意的中子学、能耗和放射性衰变等结果.

关键词: 加速器驱动; 放射性活度; 潜在生物危害因子; 裂变产物; 能耗

中图分类号: O571.5 文献标识码: A

1 引言

目前世界上所用的商业反应堆大部分是轻水堆, 它是以铀为燃料, 主要消耗 ^{235}U . 如果仅依靠 ^{235}U , 核能将和其他常规能源一样缺乏持续发展的可能. 为了解决核燃料的问题, 一些国家发展快中子增殖堆, 利用 ^{238}U 增殖钚作快堆的燃料. 快堆从原理上看能够解决核燃料的问题, 但是它需要后处理分离钚, 而且对钚的处理量将远远大于热堆中钚的量. 现有轻水堆乏燃料中也含有大量的钚. 曾经有人对全球反应堆产钚量作过估计^[1]: 1985年全球反应堆钚的积累速度是每年45 t, 到2000年达到每年90 t, 1990年, 西方各国的反应堆钚总积累量达到715 t, 到2000年将增加一倍. 这些钚可通过后处理回收. 由于世界上大型后处理厂不断增加, 从乏燃料中分离的反应堆级钚也不断增加, 除了一部分在反应堆内消耗外, 大部分反应堆级钚将会积累下来. 1994年已分离的剩余的反应堆级钚的数量已达到大约150 t, 从1994到2004年, 从商业反应堆内将分离大约160 t 剩余的反应堆级钚. 大量的反应堆级钚的积累带来了极大的危险, 因为反应堆级钚也可以作为核武器用材料, 一样能够产生核爆炸, 只不过临近质量比武器级钚要大, 加上自发裂变中子影响, 爆炸效率要低一些. 美国于1957年进行过利用低 ^{239}Pu 含量的钚装料的核试验.

另外核能发展留下了大量的核废料. 这些核废

料中含有高放废物, 除了钚的各种同位素外, 还包括一些长寿命的锕系元素如 ^{237}Np , ^{241}Am , ^{245}Am 等、长寿命的裂变产物 ^{99}Tc , ^{129}I 等和高放射性的裂变产物 ^{90}Sr , ^{137}Cs 等一样, 都会对环境产生很大的危害. 现在对这些废物的处置还无有效的方法和手段, 只能通过玻璃化后深地层埋藏. 这个方法并不能最终解决问题, 还会留下核隐患. 而且高放废物中的某些核素(如 ^{237}Np 和 ^{241}Am) 如果提炼出来也有可能制造核爆炸装置. 所以从防止核扩散的角度来看, 应该对剩余的钚和产生高放废物进行处理.

近年来, 利用加速器加速后的质子轰击重离子靶产生的散裂中子源来驱动次临界反应堆的装置在国际和国内受到了越来越多的重视, 加速器驱动的反应堆来处理核废物和作为洁净核能源系统的应用研究已成为这个领域中的热点. 本文研究了用加速器驱动的次临界反应堆系统来处理剩余的反应堆级钚和反应堆产生的高放废物, 利用次临界堆的深燃耗, 把钚和高放废物彻底地转化掉, 防止核扩散的可能性, 使得钚转化中产生的能量能够用来发电, 达到洁净能源的目的.

2 方法和模型

利用新编程的 ADVBISON 程序来进行中子(光子)通量和能量、能耗以及放射性活度、生物潜在危害因子等量的计算. 其中反应堆中子通量计算

* 收稿日期: 1999-06-15, 修改日期: 1999-11-23

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19677201)

作者简介: 沈姚崧(1972-), 男(汉族), 浙江海宁人, 博士, 从事原子核物理研究.

采用一维中子光子耦合的 S_n 输运方法, 核密度(燃料)计算采用矩阵离散方法, 利用得到的核素密度计算放射性活度和生物毒性. 数据库包括中子截面数据库, 共有271个同位素核的22种中子截面数据(中子能群划分为52群, 从0.022 eV–20 MeV); 光子截面数据库共有从1号元素到98号元素的5种光子截面数据(光子能群划分为32群, 从0.01–20 MeV); 衰变核数据库共有约600个衰变核的数据(包括衰变方式、半衰期、各种衰变能和衰变分支比等量); 裂变产物库包含 Th, U, Pa, Np, Pu, Am 和 Cm 等裂变同位素. 关于方法、程序和数据库的详细描述可以参考文献[2, 3].

本文的数值模型如图1所示, 在图1所示的处理反应堆级钚和高放铀系废物的模型中, 第一层是加速器驱动的散裂中子源. 考虑到现有加速器能够达到的束流强度不高, 采用质子束流强度1.2 mA, 能量1.2 GeV, 加速器功率1.44 MW, 中子源强为 $4.05 \times 10^{17} \text{ (n/s)}$ [3], 这些参数是可望达到的, 有一定的实际可行性. 第二层是高放铀系废物层, 在这层中放入铀系元素是利用该层离中子源近, 中子能谱硬, 铀系元素的裂变俘获比大, 对处理铀系元素有利. 轻水堆产生的高放废物经过冷却、回收及浓缩后, 其各元素的成分分别为 ^{238}Pu (1.41%), ^{239}Pu (51.47%), ^{240}Pu (23.69%), ^{241}Pu (7.73%), ^{242}Pu (4.76%), ^{237}Np (4.54%), ^{241}Am (5.11%), ^{243}Am (0.92%), ^{244}Cm (0.19%), ^{245}Cm (0.18%). 由于散裂中子源能谱很硬, 次临界堆燃料耗深, 产生的热量大, 普通反应堆用的载热剂—气体或水的热容量比较小, 作为载热剂从反应堆中带出的能量一般难以达到热工设计的要求, 所以在这个模型中采用液态铋系金属合金作为载热剂, 各元素成分为 Bi (44.7%), Pb (22.6%), Sn (8.3%), In (19.1%) 和 Cd (5.3%), 以上元素各同位素成分都为天然成分^[4]. 该铋系金属合金的熔点为 47°C [4]. 由于使用了液态金属, 高放铀系废物不需要包壳材料, 直接放入液态金属中. 该层约放入5%左右的高放铀系废物. 第三和第五层是壁, 材料为 SS-316 钢. 第四层是放有反应堆级钚的主要层, 我们采用的方案是把反应堆级钚作成约 8–10 mm 直径的小球, 把钚小球均匀的放在铋系液体金属内, 大约放有 5% 左右的反应堆级钚(密度约 $\rho = 15.0 \text{ g/cm}^3$, 成分为 ^{238}Pu (1.3%), ^{239}Pu (56.6%), ^{240}Pu (23.2%),

^{241}Pu (13.9%) 和 ^{242}Pu (4.7%). 第六层是裂变产物层, 这些裂变产物来自于第二和第四层中的裂变元素, 其中含有一些长寿命的高放裂变产物, 把它分离出来放在第六层中嬗变可以降低其毒性. 第七层是屏蔽层, 采用石墨作为材料. 模型采用柱几何, 堆芯高 1 m.

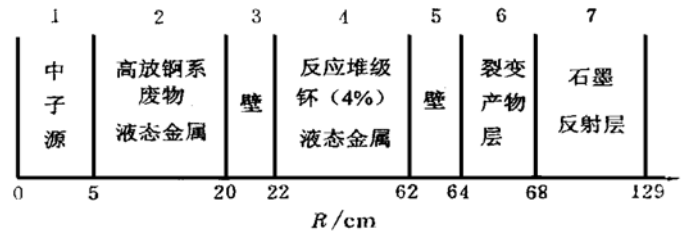


图1 处理反应堆级钚和高放铀系废物的模型(R 为柱半径)

可以发现, 图1所示的模型中裂变材料没有增殖能力, 当燃烧一段时间后, 由于裂变材料的下降会导致有效增殖因数的下降, 从而热功率也会下降, 这样就达不到处理的目的. 我们设计图1模型的出发点就是利用该模型中的液体铋系金属合金实现在线加料, 在第四层中, 当反应堆级钚的浓度下降时, 加入反应堆级钚, 保持整个堆芯的有效增殖因数的稳定, 从而保证热功率的稳定, 保持反应堆长时间的运行. 这样, 既能使第二层中的高放铀系废物能够彻底的嬗变, 又能处理掉反应堆级钚, 还能输出电能.

3 数值结果和分析

反应堆堆芯的有效增殖因数 K_{eff} 和热功率 P 随时间的变化很小, 启动时为0.995, 到第3年时也为0.995左右, 整个演变过程保持平衡. 对应的功率曲线也保持平稳, 在整个堆芯运行时间内, 功率始终保持在1.9 GW, 包层平均功率密度保持在约 1.8 kW/cm^3 . 曾介绍过, 所用的加速器功率大约在1.44 MW, 一般电能转化为质子能量的效率大约为30%, 所以该加速器所需的电功率为4.8 MW. 按照目前的反应堆热电转化技术, 反应堆堆芯所产生的原始热量可以达到每一单位的热能大约能产生三分之一单位的电能. 对于图1中的堆芯, 能够有600 MW 的电能输出, 加速器耗电只占整个电输出的0.8%.

图2是各种同位素核在反应堆内密度的变化情况. (a) 图是第二层铀系废物层中各核素密度的变

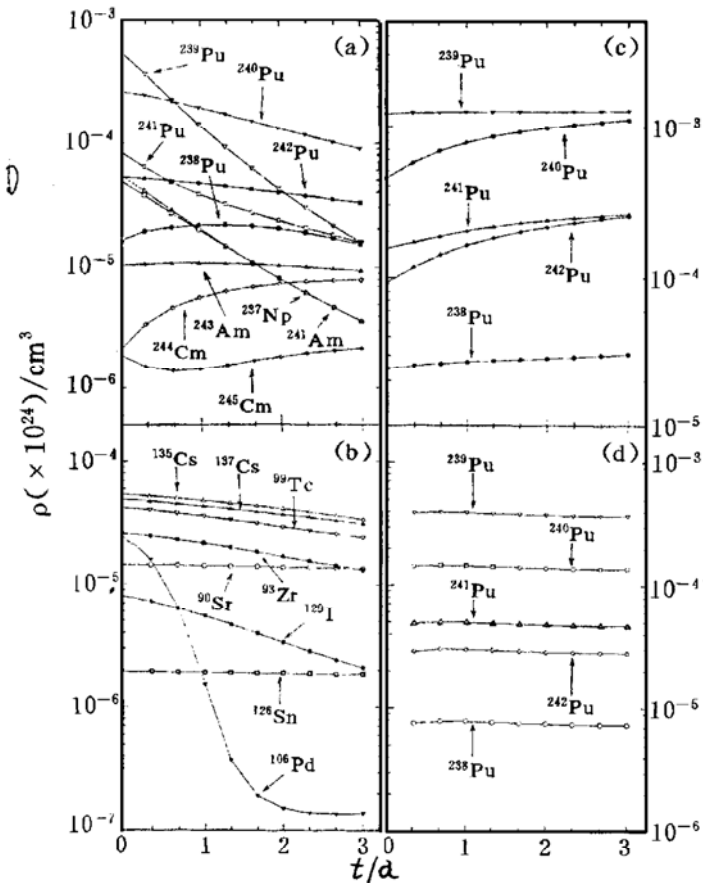


图2 图1所示的堆芯模型运行时各种同位素核密度随时间的变化情况

化情况, 给出了10个主要高放长寿命废物核的嬗变. 可以看到²³⁹Pu、²⁴¹Pu、²³⁷Nd 和²⁴¹Am 的密度下降1个量级或1个量级以上; ²³⁸Pu、²⁴⁰Pu、²⁴²Pu 和²⁴³Am 有不同程度的下降; ²⁴⁴Cm 和²⁴⁵Cm 略有上升, 这是因为其含量太低, 一部分 Am 同位素俘获中子转变为 Cm 同位素. 进一步研究表明, Cm 同位素在达到一定浓度后将下降, 只要没有铀同位素的存在, 所有的锕系废物几乎全部能够嬗变完^[31]. (b) 图是给出第六层裂变产物中的几个长寿命高放废物核素的密度变化, 可以看到, ¹⁰⁶Pd 很快就嬗变完, ¹²⁹I 和⁹³Zr 的密度有较大的下降, ⁹⁹Tc、¹³⁵Cs 和¹³⁷Cs 也有一定程度的下降, 而⁹⁰Sr 和¹²⁶Sn 的变化很小. (c) 图和(d) 图分别表示第四层中反应堆级钚的钚同位素核密度的变化和加入的反应堆级钚的数量. 可以看到, ²³⁹Pu 的密度基本维持不变, 加入的²³⁹Pu 和消耗的²³⁹Pu 基本相等, 这是维持反应堆有效增殖因数和热功率稳定的重要保证; ²³⁸Pu 的密度基本保持不变, 而²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu 和²⁴²Pu 的密度有不同程度的增长, 慢慢趋于平衡, 这说明在次临界堆中, 钚同位素各成分比与普通轻水堆有所不同. 从图上可知, 钚各同位素成分应该是²³⁹Pu 和²⁴⁰Pu 各占40%左右; ²⁴¹Pu 和²⁴²Pu 各占9% - 10%; 剩下1%左右

的²³⁸Pu. 这个结果很有意义, 由于²⁴⁰Pu 的迅速增加使得堆中残留的钚作为武器用的可能大大减小. (d) 图表明在线加入钚的速度基本上是恒定的, 大约每四个月200 kg 钚, 也就是说, 该堆芯模型每年将消耗 600 kg 反应堆级钚, 燃烧为 1.1×10^6 MWd/t, 是普通轻水堆燃烧的二十多倍, 可见次临界反应堆具有深的燃烧.

图3给出这个堆芯模型第二层和第六层在运行时和停堆后的放射性活度及潜在生物危害因子 (BHP) 随时间的演化情况. 从图中可以看到, 在反应堆运行期间, 第二层放射性活度和 BHP 曲线在开始时都略有增加, 这是因为产生了一些短寿命的高放元素, 然后曲线开始下降. 虽然在图2中各长寿命锕系核都有不同程度的减少, 但是由于反应堆运行过程中产生了一些短寿命的高放元素, 所以在运行期间放射性活度和 BHP 的变化有限. 在图2(a) 中的锕系元素其半衰期一般都长达几千到上百万年, 所以衡量长寿命高放锕系产物的嬗变情况可

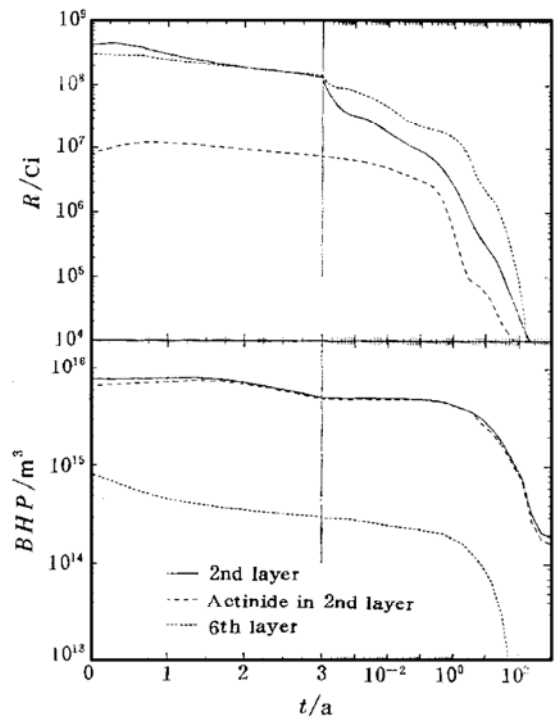


图3 图1所示的模型第二层和第六层放射性活度(上图)和潜在生物危害因子 BHP(下图) 随时间的演化情况 其中左半图是反应堆运行时的变化情况; 右半图是停堆后的变化情况, BHP 的数值是对空气而言的.

以通过计算反应堆停堆且冷却若干年后的情况, 这时候短寿命的高放锕系元素已经衰变完了. 从图3 中可以看到, 第二层中的放射性活度在停堆后就开始迅速下降, 10年后已经下降了3个多量级. BHP

曲线在停堆后的1年内下降缓慢, 10年左右出现一个显著的下降, 这说明第二层的钢系废物 BHP 在运行3年内已经嬗变掉一个多量级, BHP 是衡量生物毒性的量, 所以高放废物的毒性三年内下降了一个量级(文献[3]指出, 如果该反应堆运行10年, 其 BHP 将下降4-5个量级). 从图3可以知道, 放射性活度的贡献主要来自裂变产物, BHP 的贡献主要来自钢系元素. 第六层裂变产物的曲线表明, 裂变产物的 BHP 曲线在反应堆运行期间保持一个匀速下降, 停堆后1年后出现一个迅速的下降, 这说明在反应堆运行期间, 部分高放裂变产物被转化为较短寿命的元素, 这些元素在停堆1年后就逐渐衰变完, 导致整个裂变产物的 BHP 曲线在这个时刻有一个陡峭的下降. 由于放射性活度主要反映短寿命高放产物的特性, 所以对放射性活度起贡献的主要来自裂变产物, 钢系元素的贡献很小. 而生物潜在危害因子主要反映长寿命高放产物的特性, 所以高放钢系元素是 BHP 的主要贡献, 这从图3中的第二层钢系元素 BHP 曲线和该层的总的 BHP 曲线几乎重合可以知道.

参 考 文 献:

- [1] Albright D. World Inventories of Plutonium. Report Pu/CEES, 1987, 195.
 [2] 沈姚崧, 刘成安. 核爆炸产物放射性衰变过程的研究[J]. 原子核物理评论, 1998, 15(2): 103-109.

4 小结

总的来说, 图1的堆芯模型是一个在散裂中子源驱动下的次临界堆芯, 具有下列优点:

(1) 次临界反应堆运行在次临界条件下杜绝了反应堆超临界事故, 堆芯设计相对简单.

(2) 能够一次性不停堆地将高放钢系元素和反应堆级钚充分彻底地燃烧掉, 并且剩余的钚中其 ^{240}Pu 的含量大大增加, 降低了作武器材料的可能, 这也为处理武器级钚提供了一个好的方法.

(3) 采用低熔点的铋系金属合金作为载热剂能够实现在线加料, 使反应堆能够长时间运行. 次临界堆燃耗达到 10^6 MWd/t, 而快堆为 10^5 MWd/t, 商业轻水堆还要低, 这说明次临界堆提高了燃料的效率, 液态金属能够带出大量的热量, 反应堆体积也要小得多.

(4) 图1模型能够自处理产生的高放废物, 达到洁净能源的目的.

我们希望, 本文处理剩余高放废物和反应堆钚的方案能够为这些问题的解决提供一种可能的选择和思路.

- [3] 沈姚崧. 加速器驱动的次临界系统及其应用的理论研究[D]. 中国工程物理研究院博士论文. 1999.
 [4] edited by Robert C. CRC Handbook of Chemistry and Physics. Weast, CRC Press, 1977, 378.

Study on Subcritical System Disposing Plutonium and High-level Actinides*

SHEN Yao-song, LIU Cheng-an

(Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

Abstract: Disposition of the reactor-plutonium and high-level actinides by using accelerator-driven subcritical reactor was studied theoretically and the corresponding core model using liquid Bi-alloy as the reactor coolant was proposed. The satisfied numerical results of neutronics, burn-up and radioactivity were obtained by the ADVBISON code.

Key words: accelerator-driven; radioactivity; biological hazard potential; fission product; burn-up

* Foundation item: NSFC(19677201)