

# 长寿命裂变产物在聚变驱动 次临界堆包层中嬗变的中子学优化分析

朱晓翔, 吴宜灿

(中国科学院等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031)

**摘要:**商用裂变堆乏燃料中高放长寿命裂变产物(LLFP)由于其具有很强的放射毒性,所以对于它们的嬗变处理非常重要。在对世界上关于 LLFP 嬗变处理的广泛调研的基础上,考虑到 LLFP 的同位素分离技术的发展水平,选择了 LLFP 中<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和<sup>135</sup>Cs 的嬗变处理装料的化学形式,分析了不同慢化剂材料对嬗变能力的影响,同时针对聚变驱动次临界堆的多功能双冷核废料嬗变包层(DWTB)进行了 LLFP 嬗变的中子学设计和优化分析。

**关键词:**聚变;次临界堆;嬗变;包层;裂变产物

**中图分类号:**TL61.3 **文献标识码:**A **文章编号:**0258-0918(2004)02-178-06

## Neutronic optimal analysis for the transmutation of long-lived fission products in the blanket for the fusion-driven subcritical system

ZHU Xiao-xiang, WU Yi-can

(Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei of Anhui Prov. 230031, China)

**Abstract:** It is very important for transmutation of long-lived fission products (LLFP) due to the serious radioactive hazard of the LLFP from commercial fission reactors. Considering the developing level of LLFP isotopic separation technology, the chemical forms for transmutation of <sup>99</sup>Tc, <sup>129</sup>I and <sup>135</sup>Cs are presented. This paper discussed the transmutation effect of the different moderators on the burning efficiency. The dedicated dual-cooled long-lived radioactive waste transmutation blanket (DWTB) for the Fusion-Driven Subcritical system (FDS) has been considered to transmute LLFP. As the part of the DWTB conceptual design, the optimized LLFP compositions and form designs have been done to improve the

收稿日期:2004-04-05;修回日期:2004-05-19

基金项目:国家自然科学基金(10175068)中科院知识创新工程项目资助

作者简介:朱晓翔(1977-),男,安徽人,博士生,2003年获合肥工业大学硕士学位,从事中子物理学研究

performance of LLFP transmutation. Neutronics optimal calculation about LLFP transmutation has been carried out to compare the performances of different LLFP transmutation designs.

**Key words:** fusion; subcritical; transmutation; blanket; fission product

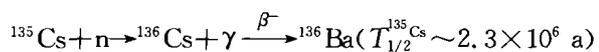
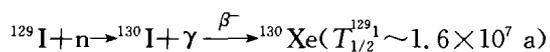
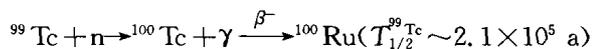
## 0 引言

目前运行的商用堆核废料中包含着大量的高放超铀元素 (TRU), 包括钚 (Pu) 和微量锕系元素镎 (Np)、镅 (Am)、锔 (Cm) 等, 以及高放长寿命裂变产物 (Long-lived Fission Products, LLFP), 这些废料带来了一系列的潜在安全问题, 如运输、贮存和核扩散等。因此, 必须寻求一种可行、安全、经济高效的方法处理这些高放射性废料 (High Level Waste, HLW), 全世界对核废料的处理问题提出了一系列的方案并开展了相应的研究。高放废物的核嬗变处理由于其“一劳永逸”、“变废为宝”的特点具有诱人的前景。它是利用核反应装置 (反应堆、加速器) 把废物中的长寿命放射性核素转变为短寿命或稳定核素。而利用聚变中子处理核废料的次临界堆系统 (FDS) 研究工作在国际上已受到了广泛关注<sup>[1,2]</sup>。

聚变驱动次临界堆的多功能工作包层结合了聚变反应和裂变反应中子性能和增殖能量的特点, 利用聚变中子源实现多种功能 (如产氦、增殖核燃料、嬗变核废料等)。关于聚变驱动次临界堆目前的概念设计 (FDS-I) 请参照文献<sup>[3~5]</sup>。本文是基于上述概念所提出的多功能次临界双冷核废料嬗变包层 (Dual-cooled Waste Transmutation Blanket, DWTB) 的基础上, 对 LLFP 的嬗变处理进行了具体的分析和研究, 在满足该包层系统的主要参数要求的基础上, 通过中子学优化以达到初装 LLFP 尽可能少, 而嬗变率尽可能高的目标。对于长寿命裂变产物的嬗变率  $WTR_{LLFP}$  定义为长寿命裂变产物核<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和<sup>135</sup>Cs 与中子发生除散射反应外其他所有核反应的反应率之和。

DWTB 对于 LLFP 的嬗变处理是由于从重金属区 (包括 U 区和 MA 区) 出来的剩余中

子可以用来引发 LLFP 核素的俘获反应, 使之转换为低寿命产物或稳定核素。三种核素的主要嬗变反应过程及半衰期如下所示, 各链的终止核素都是相对稳定或半衰期很短的核素。



在对 LLFP 进行中子学分析时, 所有重元素和裂变产物的初装料按照典型的 3 000 MW<sub>e</sub> 压水堆燃耗深度为 33 000 MW<sub>e</sub>·d/t 废料冷却 10 a 后的成分比例给出 (定义 1 个此种压水堆年卸料 LLFP 冷却 10 a 的量为 1 个 UPWR<sub>LLFP</sub>, 关于 UPWR 的详细定义见参考文献 [5])。表 1 为 1 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 中 LLFP 元素和同位素成分的含量<sup>[6,7,11]</sup>。LLFP 的化学形式的选择分析在本文第 1 部分讨论, 第 2 部分提出了 LLFP 区中典型的慢化剂材料及选择方案。LLFP 燃料组件的结构形式和方案在第 3 部分进行了分析。一些基于 DWTB 的中子学 LLFP 嬗变优化计算在第四部分讨论, 通过两种不同的装料方式来进行嬗变中子学计算并对两种装料方案的优化进行了分析和比较, 给出了典型的优化方案和结果。文章在第 5 部分是一个简要总结, 同时提出了未来针对 LLFP 嬗变需要开展的关键工作。

表 1 LLFP 的元素和高放核素年产生量  
Table 1 LLFP Isotopic and Elemental contents produced by a UPWR

核素/元素	UPWR/kg
<sup>99</sup> Tc/Tc	25.69/25.69
<sup>129</sup> I/I	5.96/7.81
<sup>135</sup> Cs/Cs	10/79.4

本文所依据的详细中子学计算物理模型见

参考文献。中子学计算的程序和数据是 FDS 课题组开发的多功能中子学(输运/能耗/优化)程序系统 Visual BUS1.0 和混合评价数据库 HENDL 1.0/MG(175 群中子 42 群光子)<sup>[5]</sup>。长寿命裂变产物 LLFP 装入 DWTB 包层的三个 FP 子区,区内由燃料、慢化材料和冷却材料组成。

## 1 LLFP 的化学形式选择

由于 LLFP 中<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和<sup>135</sup>Cs 核素的寿命长、毒性高,所以从废料处理的安全分析角度考虑,<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和<sup>135</sup>Cs 占据着主导作用。同位素的分离技术水平对于核废料进行嬗变处理以及化学贮存发展是相互关联的,同时也制约了嬗变处理的发展。最新的关于核废料产物的分离技术发展表明,对于长寿命裂变产物 LLFP 的同位素分离技术是可行的,但是无论是所谓的“干法”处理(Pyrochemical Reprocessing)还是“湿法”处理(Hydrochemical Reprocessing)技术方案,对于某些核素,如<sup>135</sup>Cs 等,其同位素分离技术发展还处于实验室水平阶段,并没有工业化的制作流程<sup>[6]</sup>。

关于长寿命高放裂变产物<sup>99</sup>Tc 的嬗变化学形式,目前对于该材料研究的初步结果表明,纯金属形式的 Tc 是对<sup>99</sup>Tc 进行嬗变处理的最佳选择,而且其燃料组件的工艺及制作水平已经有了初步的发展,对于 Tc 金属材料的辐照实验结果也表明在中子辐照下 Tc 并没有发生肿胀和裂解,对于它的燃料和工艺发展是可行的<sup>[9]</sup>。

对于<sup>129</sup>I,由于其不混合于玻璃化的高放核废料中,无论是在地质贮藏中还是在水流再处理过程中其放射效应都很强烈。同时,<sup>129</sup>I 的半衰期很长(约达到  $1.6 \times 10^7$  a),具有高迁移率的特点,所以对于<sup>129</sup>I 的嬗变处理非常有价值。I 的单质形式具有高挥发性和熔点较低(113.7 °C)的特点,所以它的单质形式对于废料嬗变是不可行的<sup>[9,10]</sup>,NaI 的熔点较高(660 °C),而且与包覆材料的相容性较好,在<sup>129</sup>I 吸收中子生成 Xe 气体释放后的碘可以作为粘合材料,不会对系统产生负面影响。因此我们选择 NaI 作为燃料化学形式,化合物中的各

I 核素含量为:<sup>129</sup>I 核素同位素浓度为 76.5 %,其余的为<sup>127</sup>I。CaI<sub>2</sub> 与 NaI 的物理化学性质类似,可以作为嬗变处理的候选材料<sup>[11,12]</sup>。

对于 Cs 元素,它从乏燃料中的产物不像<sup>99</sup>Tc 为单个核素,其放射性核素主要由中等寿命裂变产物<sup>137</sup>Cs 和长寿命裂变产物<sup>135</sup>Cs 等混合物组成。尤其是对于长寿命高放射性核素<sup>135</sup>Cs,它的分离技术由于受到<sup>137</sup>Cs 高活性的影响而没有引起足够的重视。在对 LLFP 进行电精炼流程中,化学处理时 Cs 是以盐类氯化物的形式存在的,所以采用 CsCl 作为嬗变处理<sup>135</sup>Cs 的化学形式<sup>[11]</sup>。

综上所述,考虑到同位素分离技术的发展水平和规模,本文对乏燃料中 LLFP 燃料的化学形式是基于元素级分离,而不进行同位素分离,这符合当前分离技术的发展水平,是可行的方案。三种主要的 LLFP 核素<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和<sup>135</sup>Cs 分别以 Tc 金属、NaI 和 CsCl 化学形式装料,以整体嬗变考虑为原则。

## 2 慢化剂的选择方案

LLFP 的最优化中子学环境包括两个条件,高注量率和充分热化。热中子对于 LLFP 的嬗变效率比快中子要高得多,表 2 给出了在快谱能区( $E_n = 0.2 \text{ MeV}$ ,  $\Phi = 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )和热谱能区( $E_n = 1 \text{ eV}$ ,  $\Phi = 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )三种核素的辐射俘获截面,大约相差几十倍<sup>[13]</sup>,所以必须通过优化中子环境来达到提高核素的嬗变效率。我们在多功能次临界双冷核废料嬗变包层(DWTB)的 FP 区加入适当慢化材料以构造适合的中子能谱。通过对典型潜在慢化剂的比较,考虑了一些慢化材料的选择,包括氢化物(ZrH<sub>1.7</sub>, CaH<sub>2</sub>)、石墨、重水(D<sub>2</sub>O)和碳化硅(SiC)等。本文给出了 ZrH<sub>1.7</sub>、CaH<sub>2</sub>、D<sub>2</sub>O 和石墨作为慢化剂对 DWTB 裂变产物嬗变效率的影响比较,同时比较了两种氢化物在相同初装量(LLFP)的情况下的嬗变能力。在对慢化剂的慢化性能进行分析比较中,以 30 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 为初装量,慢化剂的体积占空比为 80 % 不变,LLFP 总体积比约 1.2 % 时,运行 5 a 后对不同慢化剂材料的嬗变率曲线如图 1。计算分析表明两种氢化物 ZrH<sub>1.7</sub> 和 CaH<sub>2</sub> 相比

较,慢化效果相当,而且总体上说氢化物相对于石墨和D<sub>2</sub>O而言,其慢化性能要高得多。石墨和重水相比嬗变能力相当,但是从工程和经济性等方面考虑以及工业规模化程度考虑,石墨作为嬗变处理的慢化剂材料具有很好的吸引力,其他的材料也可以作为慢化剂选择材料,本文下面的计算是基于石墨作为慢化剂为例。

表 2 <sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和 <sup>135</sup>Cs 在快谱和热谱下的辐照俘获截面

Table 2 The capture cross sections of <sup>99</sup>Tc, <sup>129</sup>I and <sup>135</sup>Cs in Fast and Thermal spectra

核素	$\sigma_{n,\gamma}$ (barns)	
	快谱	热谱
<sup>99</sup> Tc	0.2	4.3
<sup>129</sup> I	0.14	4.3
<sup>135</sup> Cs	0.07	1.3

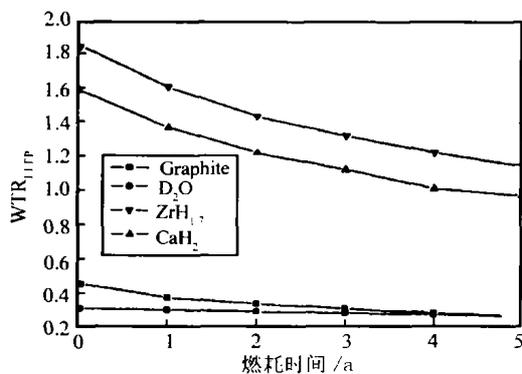


图 1 对不同慢化剂的 LLFP 嬗变率  
Fig. 1 Transmutation ratio of LLFP with different moderators

### 3 LLFP 燃料的结构形式

对于 LLFP 燃料以及慢化剂的结构形式,在快堆处理长寿命裂变产物设计中,一般是将 LLFP 制作成 PIN 燃料棒,再在燃料棒周围包裹慢化材料,或者是将燃料和慢化材料都制作成 PIN 燃料棒作为芯部燃料<sup>[12]</sup>。基于球床气冷技术的成熟以及先期研究的经验,如球床高温气冷堆的成功运行。我们设计的燃料结构形式如图 2 所示,FP 区堆积的是大小不等的 LL-

FP 燃料颗粒和石墨慢化球,燃料球由内部的 LLFP 芯部和外面包覆的石墨层组成,石墨包覆的 LLFP 燃料颗粒被均匀填充到石墨慢化球的缝隙中,氦气在隔板上流动。使用球床颗粒燃料元件,与其他燃料形式相比可以极大地增加传热面积,有效地导出核热;同时,由于球床的可流动性,可以实现不停堆换料。由于 FP 的核反应沉积的部分核热,和重金属区相比其核热功率密度低得多,我们设计用氦气作为冷却剂。这种冷却设计对结构的限制条件不多,实现相对简单一些。关于对 FP 的冷却和传热的详细部分参照文献[14],在此不详述。

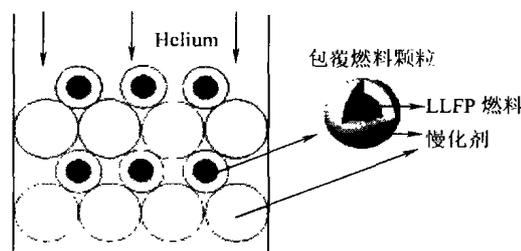


图 2 FP 区燃料颗粒和慢化球的参考结构形式  
Fig. 2 Configurations of LLFP fuel particle and moderator

### 4 LLFP 嬗变包层的中子学分析

FDS-I 的 DWTB 在结构设计上为 LLFP 嬗变提供了三个径向尺寸均为 6 cm 的 FP 区,这样可以充分调节包层径向中子能谱,考虑各 LLFP 燃料的核反应特性以及裂变堆乏燃料中 LLFP 产生量情况来优化装料方案。在 FP 区中对 LLFP 的嬗变是利用从重金属区过来的过剩中子经过与石墨慢化剂的散射反应后,将中子能谱优化到适合裂变产物发生辐射俘获的热中子谱。FP 区增殖中子很少,所以对系统的整体反应性影响不大。下面在不同的 LLFP 装载燃料原则下,通过中子学优化计算来分析比较嬗变能力。

#### 4.1 均匀整体混合物原则装料

将包覆慢化材料的 LLFP 废料按照区均匀整体原则装入 FP 嬗变区,这种把包含 Tc 金属、NaI 和 CsCl 的 LLFP 废料直接装料的形式可以减少材料的非均匀效应。在 DWTB 系统

中分析其对裂变产物的嬗变效率,慢化包覆颗粒份额和石墨慢化球的体积份额保持 80 % 不变,考虑到各 LLFP 废料的初装量不应较大,对于不同的材料,如 Tc 金属,初装量体积比达到 0.09 % 时,大约相当于 30 个 UPWR<sup>99</sup>Tc 的废料量。图 3 给出了在均匀整体原则下 LLFP 装料量(Tc 金属、NaI 和 CsCl)在均匀情况下对 LLFP 以及各单个核素嬗变率的影响曲线。可以看出在 LLFP 装料量提高初期,LLFP 及各单个核素的嬗变率基本呈线性变化,但后期由于中子俘获反应趋于饱和,嬗变率曲线上升趋势缓慢。

#### 4.2 非均匀混合物原则装料

考虑到 LLFP 中各核素的热中子反应性能,可以将包覆慢化材料的 CsCl、NaI 和 Tc 金属颗粒燃料混合慢化剂石墨球分别装入 FP- I 区、FP- II 区和 FP- III 区,通过 LLFP 中核素的核特性以及裂变堆乏燃料中 LLFP 产生量情况来优化考虑装料方案。根据 LLFP 核素的俘获截面大小  $\sigma_{99Tc} > \sigma_{129I} > \sigma_{135Cs}$ , FP 子区按照如下方案装料,在 FP- I 区放 CsCl,FP- II 区放 NaI,FP- III 区放 Tc 金属。理论上,根据中子注量率大小和各区慢化效果,FP- I 区的中子是直接从重金属区出来,注量率相对较高,把俘获截面相对较小的 CsCl 放入该区,可以最大限度地提高<sup>135</sup>Cs 的嬗变能力。由于核素<sup>99</sup>Tc 的热中子辐射俘获截面较高(一般为<sup>129</sup>I 或者<sup>135</sup>Cs 的几倍),可以将其放入中子注量率较小的 FP- III 区,NaI 放入 FP- II 区。图 3 也列出了非均匀装料情况下嬗变率随初装量的变化情况。从图中可以看到非均匀装料方案的 LLFP 及各单核素的基本反应特性和规律与均匀装料方案一致,但是由于把相对热中子俘获截面较小的<sup>135</sup>Cs 放入了通量较高的 FP- I 区,使得其嬗变率较均匀装料方案而有很大提高。图 4 给出了每种裂变产物核素在两种装料方案下运行 5 a 后的年平均燃耗深度 BUDA(BurnUp Depth Annually,年平均燃耗深度定义为燃耗质量与初装量比值的年平均大小)。与均匀整体装料方案相比,BUDA 在装载 60 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 情况下<sup>135</sup>Cs 提高了约 32 %, <sup>129</sup>I 提高了约 14 %,非均匀装料方案中由于将<sup>99</sup>Tc 核素放入了注量

率相对较小的 FP- III 区,所以<sup>99</sup>Tc 的 BUDA 会有所下降,降低了约 44 %。

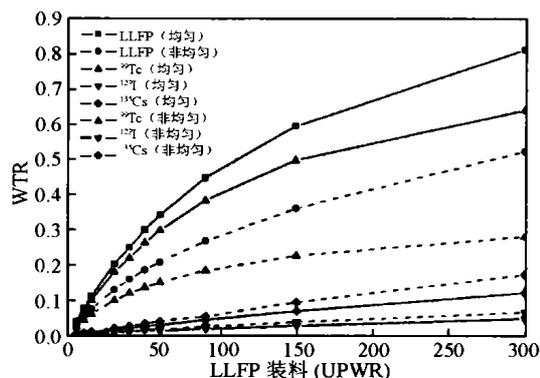


图 3 两种装料原则 WTR 随初装量的变化  
Fig. 3 WTR as the function of LLFP loading fractions

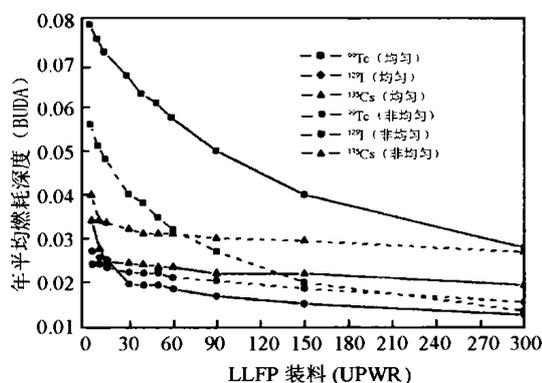


图 4 两种装料原则各 LLFP 核素年平均燃耗深度  
Fig. 4 Annual average burnup depth

#### 4.3 两种方案计算分析比较

由于 FP 区对系统的反应性影响很小,LLFP 的嬗变率初期呈线性变化,随着初装量的增加曲线趋于平缓。保持各废料核素的成分比例不变,适当的初装量限制为前提,表 3 列出了初装量在 60 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 装载情况下满功率运行 5 a 后均匀与非均匀装料计算结果的主要参数。对于均匀装料方案,当 60 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 为初装量时,LLFP 总体积比约 2.2 %,该方案时系统在满功率运行 5 a 后的主要参数见表 3。对于非均匀装料方案同样以 60 个 UPWR<sub>LLFP</sub> 作为初装量分析,Tc 金属、NaI

和 CsCl 的初装体积份额分别为 0.50 %、0.58 % 和 5.76 %。实际上,在详细设计时还可以进一步优化子区域大小,使得几个 UPWR<sub>LLFP</sub> 中的 <sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I 和 <sup>135</sup>Cs 同步被嬗变掉。非均匀装料方案与均匀装料方案比较,可以有效地统一整体考虑各 LLFP 核素的嬗变效果,使得系统在运行若干年后整体嬗变掉裂变废料中的三种长寿命裂变产物,而无需分开考虑,这样可以简化装卸料流程,更有利于工程上的实施和运行。

表 3 均匀和非均匀装料方案的参数计算结果比较(60 UPWR<sub>LLFP</sub>)

Table 3 The parameters by the different loading cases (homogeneous and heterogeneous, 60 UPWR<sub>LLFP</sub>)

参数	均匀装料			非均匀装料		
	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I	<sup>135</sup> Cs	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I	<sup>135</sup> Cs
WTR	0.29	0.014	0.03	0.15	0.017	0.04
BUDA/%	5.8	1.8	2.3	3.2	2.1	3.1
年嬗变质量 UPWR	3.5	1	1.5	2	1.5	2

## 5 结论

通过全面考虑乏燃料中的裂变产物的核物理性能,给出了三种高放长寿命裂变产物作为反应堆嬗变处理的可行的燃料化学形式。同时通过比较不同慢化剂嬗变效率的能力和经济学,提出了用石墨作为裂变产物嬗变处理的慢化剂。基于球床燃料的优点和经验,提出了对 FP 区放入包覆慢化剂的燃料颗粒和石墨慢化球的装料形式。并对特定系统 FDS 多功能嬗变包层的中子物理计算结果和分析表明,在满足条件,如氚自持、最大功率密度约束和 MA 嬗变效率高的前提下,可以通过将压水堆乏燃料中 LLFP 进行简单的元素级分离,在包层的 FP 嬗变区中以一定的优化比例装料,使得 LLFP 达到比较高的嬗变率。在其他中子物理参数都满足要求的情况下,LLFP 的嬗变量可以达到每年嬗变几个 UPWR<sub>LLFP</sub> 的水平。初步研究表明,基于 DWTB 的设计,对于裂变产物的嬗变是可行的。

关于基于同位素分离的优化分析研究及对

裂变产物的其他核素放射性毒性的定量分析以及采用何种方式嬗变或者贮存、各种方式对自然环境的毒性影响正在研究中。

## 参考文献:

- [1] Yican Wu. Progress in fusion-driven hybrid system studies in China[J]. Fusion Eng Design, 2003, 63~64.
- [2] Wu Y C, Qian J P, Yu J N. The fusion-driven hybrid system and its material selection[J]. Journal of Nuclear Materials, 2002, 307~311: 1629~1636.
- [3] 吴宜灿,等. 聚变驱动次临界堆概念设计研究[J]. 核科学与工程, 2004, 24(1): 72~80.
- [4] Wu Y C, et al. Neutronics analysis of the dual-cooled waste transmutation blanket for the FDS[J]. Fusion Eng Des, 2002, 63~64: 133~138.
- [5] 郑善良,等. 聚变驱动次临界堆双冷嬗变包层中子学参数设计与分析[J]. 核科学与工程, 2004, 24(2): 165.
- [6] Conde H. Introduction to ADS for Waste Incineration and Energy Production[R]. NuPECC Report "Nuclear Science in Europe: Impact, Applications, Interactions" (June 2002).
- [7] Davidson J, et al. Neutronics-processing interface analyses for the accelerator transmutation of waste (ATW) aqueous-based blanket system[R]. Transmutation of Radioactive Waste, Partial proceedings of the Global '93 conference (Seattle, 1993), NEA report.
- [8] Setiawan M, et al. Study on multi-recycle transmutation of LLFP in light water reactor[J]. Annals of Nuclear Energy, 2001, 28: 1789~1797.
- [9] Won S, et al. A preliminary design study for the HYPER system[J]. Nucl Eng Des, 2002, 219: 207~223.
- [10] Ingelbrecht C, et al. <sup>129</sup>I targets for studies of nuclear waste transmutation[J]. Nucl Instrum Methods Physics Research, 2002, A 480: 204~208.
- [11] Fujita R, et al. An Application of Metal Fuel Cycle Technology toward Self-consistent Nuclear Energy System(SCNES) concept[J]. Progress in Nuclear Energy, 2000, 37 (1~4): 169~175.
- [12] Wakabayashi T. Status of Transmutation Studies in a Fast Reactor at JNC[C]. The fifth OECD/NEA information Exchange Meeting on Actinides and Fission Products Partitioning and Transmutation, SCK-CEN, Mol, Belgium, 25-27 November 1998.
- [13] Salvatores M. et al. The Transmutation of Long-Lived Fission Products by Neutron Irradiation[J]. Nuclear Science & Engineering 130 (1998) 309~319.
- [14] 柯严,等. 聚变驱动次临界堆双冷嬗变包层结构设计与分析[J]. 核科学与工程, 2004, 24(1): 87~92.