

Computational Study of DRAGON for Minor Actinide Transmutation

Xiang Li, Bin Liu, Rendong Jia, Jin Cai

School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing
Email: lx234594@126.com

Received: Jun. 27th, 2015; accepted: Jul. 14th, 2015; published: Jul. 17th, 2015

Copyright © 2015 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

The Minor Actinides (MA), a sort of long-lived and high-level radioactive nuclides is one of the most important part in the nuclear spent fuel. The MA is harmful to the ecological system because of its peculiar physical and chemical property. How to handle the MA in the spent fuel has always been one of the most important issues in nuclear waste management all over the world. The MA can be transmuted into stable or short-lived nuclides by neutron irradiation, and this is the most effective way to manage those high-level wastes. The PWR is the main reactor type at commercial operation in China, and the MA has a larger capture and fission cross section in the thermal reactor, therefore the study on the transmutation of the MA in the PWR has an important significance in China. This paper has used the DRAGON to build a simplified model of the AP1000 PWR fuel assembly and calculated the impacts on the k-effective of the fuel assembly, the fuel burnup, the fuel cycle and core lifetime when the MA uniformly mixed with the burnable poison or cladded on the burnable poison. The results show that: when the MA is added to the burnable poison in the above two methods, burnup level of the fuel assembly decreases and the fuel cycle of the core lengthens. It also has an impact on the k-effective of the fuel assembly, extending the time of the fuel assembly maintaining above the critical and has a favorable impact on core lifetime.

Keywords

The PWR, Minor Actinide Transmutation, Burnup, Fuel-Cycle

DRAGON用于嬗变MA的计算研究

李 想, 刘 滨, 贾仁东, 蔡 进

华北电力大学，核科学与工程学院，北京
Email: lx234594@126.com

收稿日期：2015年6月27日；录用日期：2015年7月14日；发布日期：2015年7月17日

摘要

长寿命高放废物MA作为核电站乏燃料中的重要组成部分，由于其特殊的物理化学性质，对生态有很强的危害性，一直是各国研究的重要课题之一。目前处理MA最安全有效的方法，是中子嬗变技术，而压水堆又是我国目前投入商业运行的主要的堆型，因此开展压水堆嬗变MA的研究在我国具有重要的意义。本文利用DRAGON程序建立了简化的AP1000燃料组件模型，模拟计算了在可燃毒物内均匀混合MA、在可燃毒物外镀层引入MA两种方式对燃料组件有效增殖因子(k_{eff})、堆芯燃耗、燃料周期以及堆芯寿期的影响。结果表明：MA以上述两种方式添加到可燃毒物中后，燃料组件的燃耗深度会减少，从而延长了堆芯的燃料周期，同时也会对燃料组件的 k_{eff} 值产生影响，燃料组件维持在临界以上的时间也会延长，在一定程度上也会对整个堆芯的寿期产生有利影响。

关键词

压水堆，MA嬗变，燃耗，燃料周期

1. 引言

能源是人类社会进步和经济发展的物质基础，随着化石燃料资源的日益枯竭，以及其带来的环境问题，核能作为高效清洁的新能源在近几十年受到人们广泛的关注，在全球能源供应领域发挥越来越重要的作用。但在核电站运行期间会产生大量的次锕系核素(简称MA，如 ^{237}Np ， ^{241}Am ， ^{244}Cm 等)，它们的放射性很高，半衰期很长，要衰变数十万年才能达到天然铀的毒性水平。随着它们的不断积累，会为周围环境的处理带来极大的隐患，是核电站废料处理的长期威胁[1]-[3]。根据核电发展基本方案设想情况，MA的积累量预计在2030年为25.5吨，2040年为65.4吨，到2050年将达到236吨。因此必须尽快找到安全合理处理MA的技术方法和路线，完善保证核电事业在安全稳定的基础上良好发展。

针对MA处理这一问题，目前国际上多采用分离-嬗变技术[4]，即利用反应堆、加速器等核反应装置，先将MA从乏燃料中分离出来，然后将分离出的MA放到反应堆内中子场中经过中子照射，发生裂变、俘获等反应后，使之转变为短寿命放射性核素或稳定核素，或者转变为虽然有长期放射性危害但却非常有利用价值的核素。这样，不仅可大大降低核能生产可能造成的放射性危害程度，通过嬗变还会得到一些衍生出的具有很高经济价值的重要核素，嬗变过程中所释放的能量也可加以利用，从而进一步提高了铀、钍等资源的利用率[5]。

2. 建立模型

2.1. AP1000 模型

热中子堆、快中子堆、加速器驱动的次临界装置(ADS)及其它中子源都可提供中子源的嬗变[6]-[8]，但目前世界上快中子堆的数量非常少，且都是实验堆型，还没有用于商业运营；ADS堆目前也处于试验阶段，它能否进行商业运行还远没有定论，用于嬗变更遥不可及。目前在役与在建核电站中，热中子堆占据绝大多数，而在热堆中压水堆的数量最多，技术也最为成熟。AP1000反应堆由美国西屋公司研发，

作为第三代核电技术的主要代表堆型，更是新型的非能动先进压水堆，在安全性、成熟性、经济性等方面较之二代堆均有很大程度的提高[9]，因此研究 AP1000 对核废物的嬗变工作具有非常重要的现实意义并且切实可行。

AP1000 以水作为冷却剂，二氧化铀作为燃料，包壳材料为 ZIRLO 合金。堆芯内燃料组件按照 2.35%、3.4% 和 4.45% 的富集度由内向外分区布置，控制棒组件和堆芯相关组件均匀的布置在堆芯中。换料时卸出堆芯内部区域中起始富集度为 2.35% 的乏燃料组件，堆芯外围的组件向内部区域倒换，新加入的燃料组件放在最外围。这样的燃料分布可以展平堆芯功率，获得较高的燃耗深度，提高和燃料的利用率。像这样更换一次燃料组件即为一个燃料循环，根据 AP1000 主要技术数据显示，AP1000 燃料循环的长度为 18 个月[10]。

如图 1 所示，AP1000 的堆芯内有 157 组燃料组件，不同富集度的燃料组件采用分区排列，在堆芯内呈 17×17 的分布。

2.2. DRAGON 程序

DRAGON 程序是由加拿大蒙特利尔大学研制的燃料组件计算程序，DRAGON 程序有着较强的适用性与灵活性，并且还提供了各类组件的能谱、组件的等效均匀化少群常数以及燃料中各同位素成分的变化，可用来计算多种几何燃料组件参数问题，且具有良好的计算精度[11]。

本文选取 AP1000 堆芯内 U-235 富集度为 4.45% 的燃料组件为研究对象，根据 AP1000 反应堆燃料组件的内部结构，利用 DRAGON 程序搭建简化的反应堆组件模型，再按一定比例，采用不同的方式向燃料组件中添加 MA，通过计算反应堆运行期间堆内燃料组件的参数，并通过原子核密度的变化计算不同添加方式中 MA 的嬗变率，研究添加 MA 核素对 k_{eff} 值、堆芯燃耗、燃料周期以及堆芯寿期的影响，并进行比较分析。

AP1000 的燃料为 UO_2 燃料，包壳材料为 ZIRLO 合金，水作为冷却剂。每个组件中包含 264 根燃料棒，每根燃料棒直径为 9.5 mm，相邻两根燃料棒之间的距离为 1.3 cm，如图 2 所示。

3. AP1000 嬗变 MA 核素计算

本文选取了两种 MA 添加方式：MA 均匀添加到可燃毒物内，MA 在可燃毒物棒外镀层。利用 DRAGON 程序计算燃料组件在添加 MA 后，随着运行时间天数增加组件内主要核素原子核密度的变化、MA 嬗变率以及燃料组件 k_{eff} 的变化，并与可燃毒物中未添加 MA 的燃料组件进行参照对比，针对 MA 对燃料组件的 k_{eff} 值、堆芯燃料周期以及堆芯寿期的影响进行分析。

本文研究的 MA 核素以 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 、 ^{245}Cm 核素为主，添加的 MA 中各核素比例如表 1 所示。

MA 与可燃毒物均匀混合时，添加的 MA 占可燃毒物的质量分数分别为 30%、60%、90%，MA 在可燃毒物外镀层时，镀层的厚度为 0.005 cm 和 0.025 cm。利用 DRAGON 程序的燃耗模块计算出燃料组件添加 MA 后，燃料中主要易裂变核素(^{235}U 、 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu)和主要 MA 核素(^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 、 ^{245}Cm)的原子核密度随时间变化曲线，如图 3 至图 5 所示。

通过图 3 至图 5 可知，燃料组件在添加 MA 核素后， ^{235}U 的原子核密度虽无明显变化，但 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的原子核密度却明显增加。通过 ^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 三种主要易裂变核素的原子核密度，计算燃料组件内易裂变同位素燃耗掉的质量和易裂变同位素初始装载质量的比值，得到燃料组件的燃耗深度。当运行时间为 18 个月(540 天)时，燃料组件的燃耗深度如表 2 所示。

通过表 2 可知，在不添加 MA 的情况下，当燃料组件经过一个燃料循环，也就是一个燃料周期后，

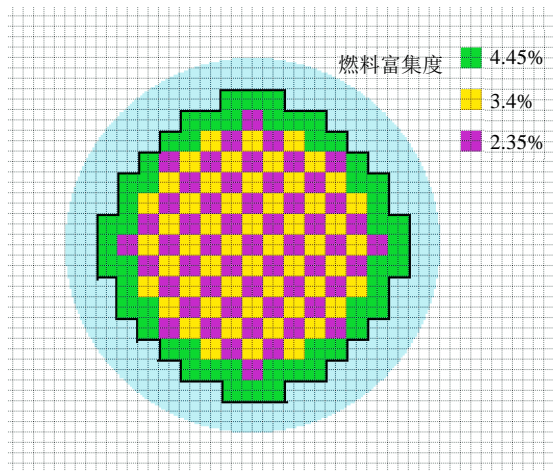


Figure 1. The fuel assembly arrangement
图 1. 堆芯燃料组件布置

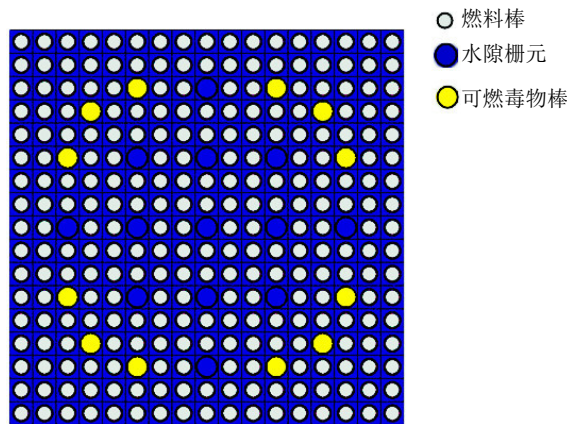


Figure 2. The fuel assembly constructure
图 2. 燃料组件示意图

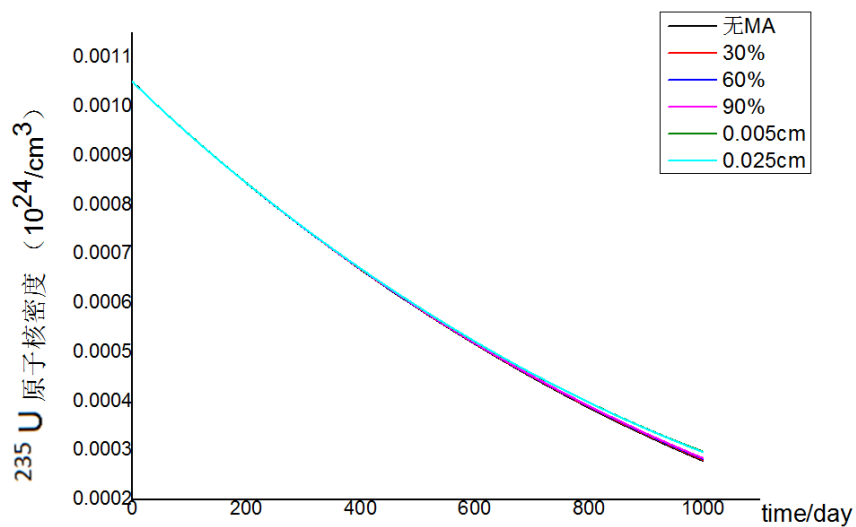


Figure 3. ^{235}U nuclear density of different fuel assembly
图 3. 燃料组件内 ^{235}U 的原子核密度变化

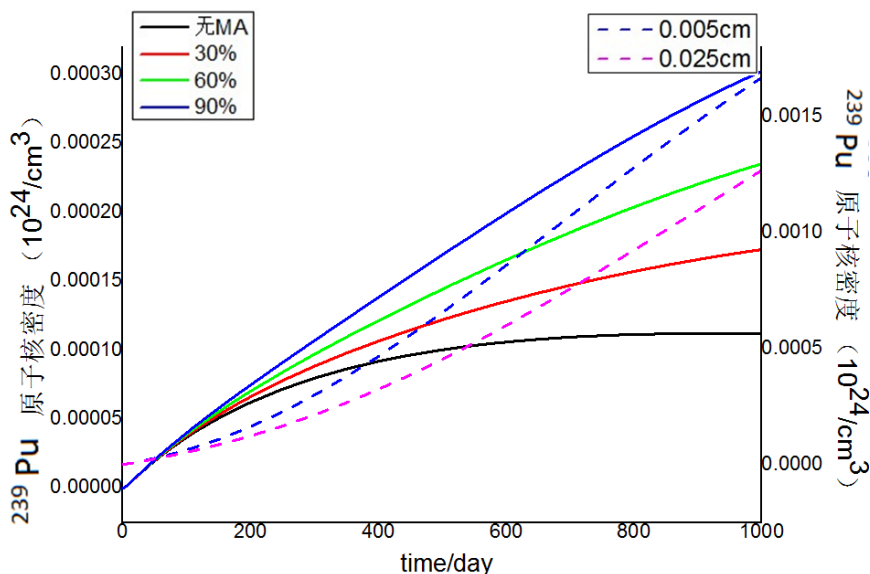


Figure 4. ²³⁹Pu nuclear density of different fuel assembly
图 4. 燃料组件内 ²³⁹Pu 的原子核密度变化

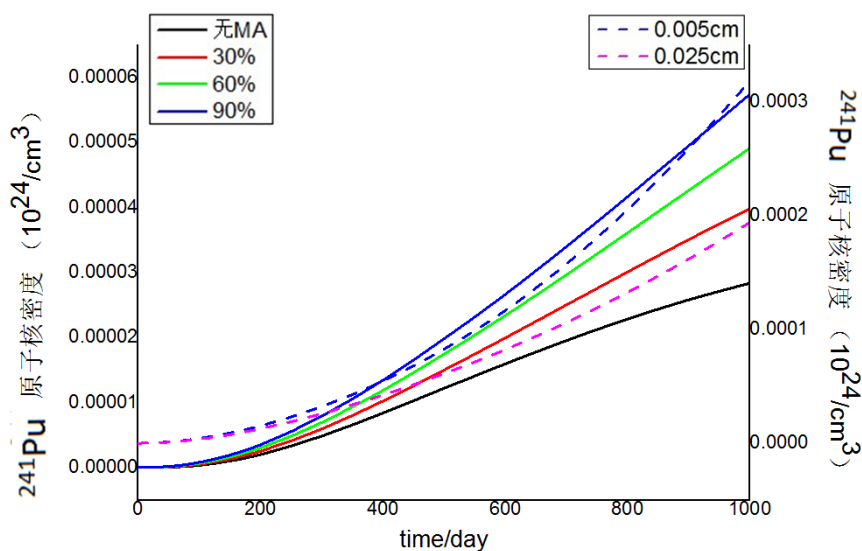


Figure 5. ²⁴¹Pu nuclear density of different fuel assembly
图 5. 燃料组件内 ²⁴¹Pu 的原子核密度变化

Table 1. Mass ratio of MA nuclide
表 1. MA 中各核素的质量比

核素	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm	²⁴⁵ Cm
比例(%)	56.4	26.2	11.9	5.1	0.4

Table 2. Burnup of different fuel assembly after 540 days operation
表 2. 运行 540 天后各燃料组件的燃耗深度

无 MA	30%	60%	90%	0.005	0.025
35.63%	34.89%	32.97%	30.66%	34.72%	30.69%

此时组件的燃耗深度为 35.63%，之后再将这些组件向堆芯内部区域倒换，在最外围加入新的燃料组件，进入下一个燃料周期。而当燃料组件添加 MA 后，堆芯燃耗深度会减少。当均匀添加 MA 到可燃毒物中时，随着 MA 添加比例的提高，燃耗深度也越来越低；当 MA 镀层添加到可燃毒物中时，随着镀层厚度的增加，组件的燃耗深度也会降低。比较之前在无 MA 的情况下，燃耗深度达到 35.63% 可知，此时燃料的燃耗并不充分，燃料组件内还有可继续利用的易裂变核素，仍可继续在堆内反应。若以燃耗深度达到 35.63% 时作为燃料周期的终止点，当添加 MA 后，燃料组件的燃耗深度达到 35.63% 时，组件在满功率下运行的时间，即燃料组件的燃料周期如表 3 所示。

通过表 3 可知，不论是向可燃毒物内均匀混合添加 MA，还是在可燃毒物外部镀层加入 MA，燃料组件的循环长度即燃料周期都会有所延长，并且随着 MA 添加量的增加，燃料周期延长的时间会随之增多。

通过图 6 至图 10 可知，MA 在堆内经照射后， ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 的数量都明显减少， ^{244}Cm 、 ^{245}Cm 的数量不但没有减少，反而大量增加。燃料组件在各自的燃料周期内 MA 核素的消失率如表 4 所示。

利用 DRAGON 程序的燃耗模块计算出燃料组件添加 MA 后，不同时间点上燃料组件的 k_{eff} 值，如图 11 和图 12 所示。MA 与可燃毒物均匀混合和 MA 在可燃毒物外部镀层时，燃料组件维持在临界以上的运行时间，如表 5 所示。

从图 11、图 12 中和表 5 中可看出：MA 均匀添加到可燃毒物中的燃料组件与无 MA 的燃料组件相比，在燃料组件运行的初始阶段时， k_{eff} 的计算结果相差并不明显，且都是随着时间逐渐增大。随着燃料组件运行时间推移， k_{eff} 值会逐渐下降，但添加 MA 的燃料组件相比于无 MA 的燃料组件，相同时间点的 k_{eff} 值要下降幅度要小些，燃料组件维持在临界以上的时间要更长，堆芯寿期也相对得到延长，并且随着 MA 添加比例的增大，维持在临界以上的运行时间也越来越长，越有利于延长堆芯寿期。

MA 作为镀层添加到可燃毒物中时，运行相同时间的 k_{eff} 值会比无 MA 时的 k_{eff} 值有所下降，并且随着 MA 添加量的逐渐增加，燃料组件维持在临界以上的时间会有所缩短，堆芯寿期也会相应缩短，当镀层厚度为 0.005 cm 时，维持在临界以上的时间与无 MA 时几乎相同，对堆芯寿期的影响几乎不大。

Table 3. The fuel cycle of different fuel assembly when burnup is 35.63%

表 3. 燃耗深度为 35.63% 时燃料组件的燃料周期

	30%	60%	90%	0.005	0.025
	550	560	580	550	590

Table 4. Disappearance rate of MA nuclides in the fuel cycle

表 4. 在燃料周期内各 MA 核素的消失率

	^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{244}Cm	^{245}Cm
30%	25.82%	59.98%	32.84%	-52.38%	-198.83%
60%	25.52%	58.77%	29.22%	-44.99%	-170.70%
90%	26.04%	59.39%	27.53%	-41.35%	-147.13%
0.005	26.36%	60.04%	32.78%	-52.35%	-190.32%
0.025	21.44%	48.11%	23.62%	-32.86%	-163.90%

Table 5. The time of the fuel assembly maintaining above the critical

表 5. 燃料组件维持在临界以上的运行时间

	无 MA	30%	60%	90%	0.005	0.025
	780	800	830	850	775	710

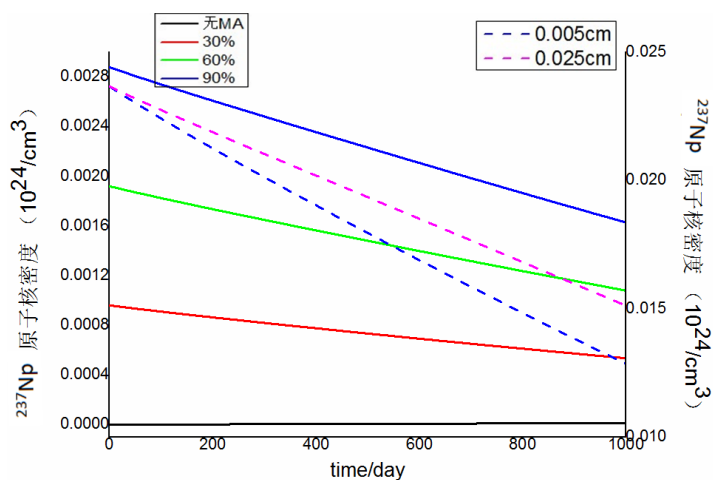


Figure 6. ²³⁷Np nuclear density of different fuel assembly

图 6. 燃料组件内 ²³⁷Np 的原子核密度变化

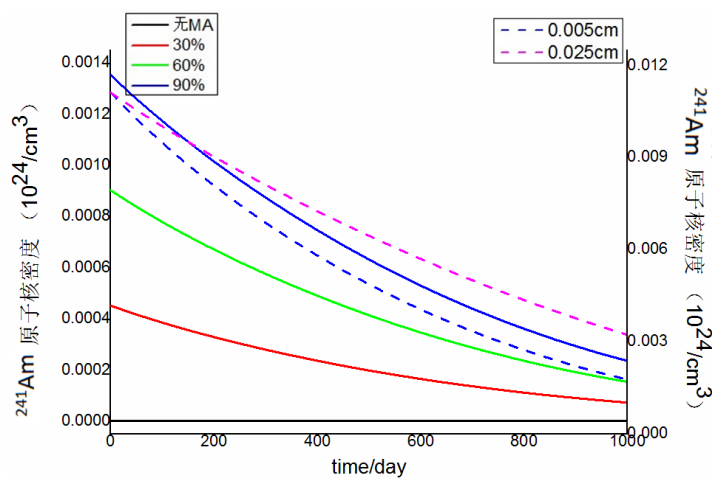


Figure 7. ²⁴¹Am nuclear density of different fuel assembly

图 7. 燃料组件内 ²⁴¹Am 的原子核密度变化

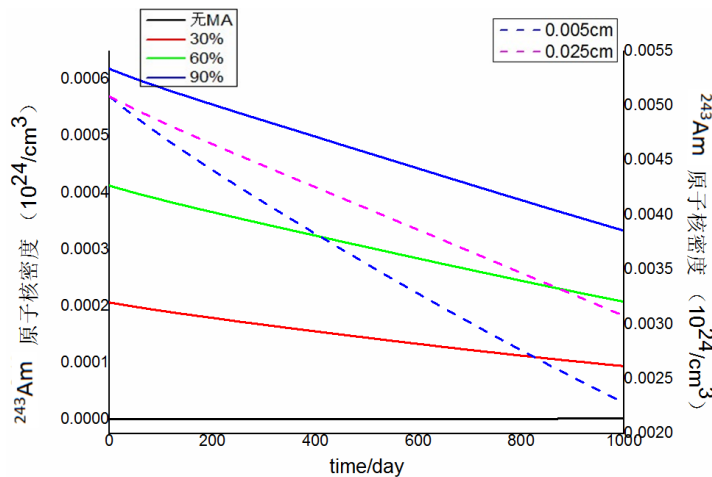


Figure 8. ²⁴³Am nuclear density of different fuel assembly

图 8. 燃料组件内 ²⁴³Am 的原子核密度变化

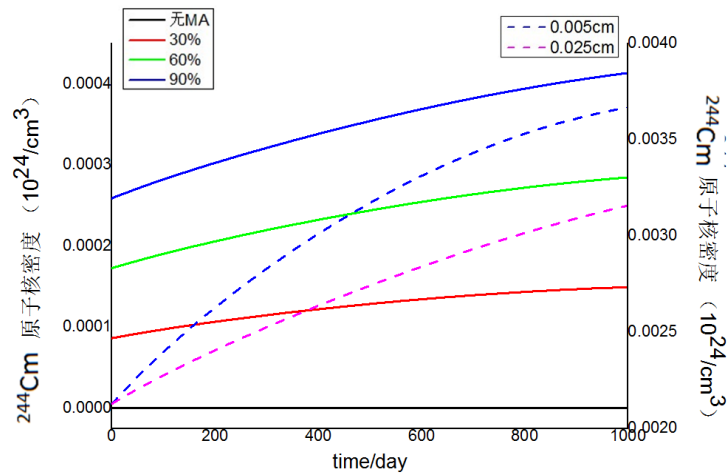


Figure 9. ^{244}Cm nuclear density of different fuel assembly

图 9. 燃料组件内 ^{244}Cm 的原子核密度变化

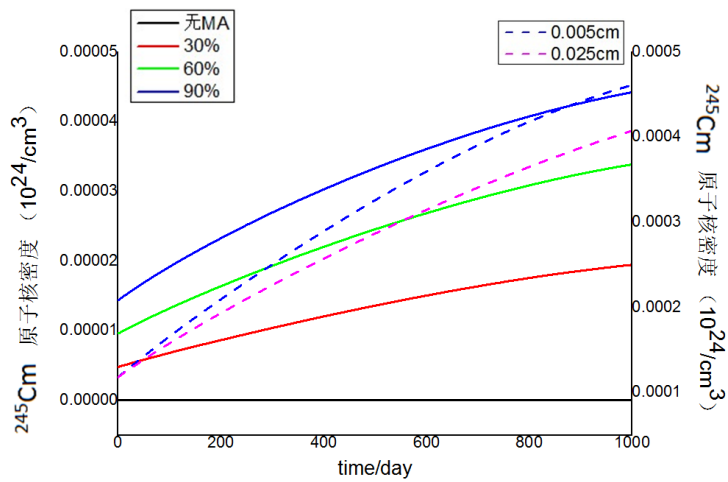


Figure 10. ^{245}Cm nuclear density of different fuel assembly

图 10. 燃料组件内 ^{245}Cm 的原子核密度变化

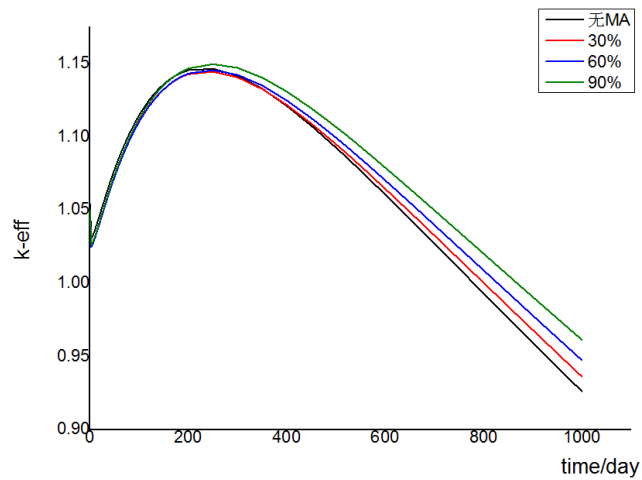


Figure 11. K_{eff} of different fuel assembly

图 11. 燃料组件的 k_{eff} 值变化

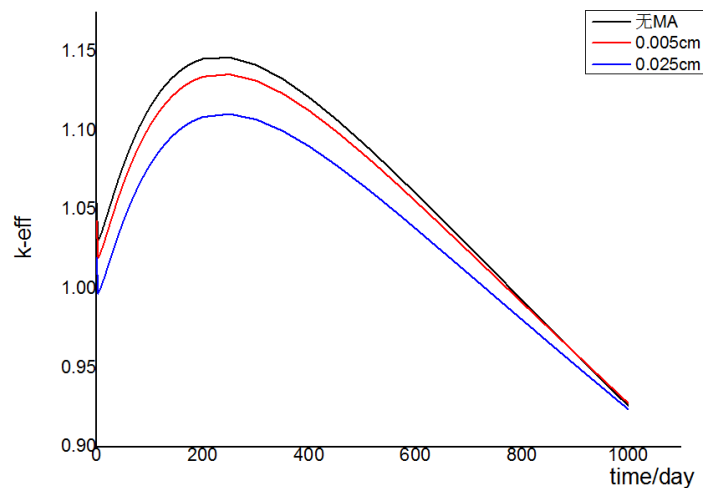


Figure 12. K_{eff} of different fuel assembly
图 12. 燃料组件的 k_{eff} 值变化

4. 结论与分析

本文采用 DRAGON 程序，建立了简化的 AP1000 燃料组件模型，模拟计算了 MA 均匀添加到可燃毒物内和 MA 在可燃毒物外部镀层这两种方式，对燃料组件主要核素原子核密度，堆芯燃料周期以及燃料组件 k_{eff} 值的影响。结果表明：1) 燃料组件中以上述两种方式添加 MA 后，堆芯内 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 会明显增加，燃料组件的燃耗深度会减少，堆芯的燃料周期会延长，并且燃料周期的延长时间，会随着 MA 添加量的增加而逐渐增多；2) MA 核素通过照射发生嬗变，其中 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 的数量都明显减少， ^{244}Cm 、 ^{245}Cm 的数量大量增加；3) MA 均匀添加到可燃毒物中后，随着反应堆运行时间的增加，MA 会对燃料组件的 k_{eff} 值产生影响，后期 k_{eff} 的值相比于无 MA 时会略有升高，燃料组件维持在临界以上的时间，会出现一定的延长，进而对堆芯寿期产生积极的影响，并且随着 MA 的添加比例的增大，燃料组件维持在临界以上的时间也会延长，堆芯寿期也越来越大；4) 当 MA 作为镀层添加到可燃毒物中后，镀层厚度为 0.005 cm 时，燃料组件维持在临界以上的时间与无 MA 时几乎相同，但 k_{eff} 会略有下降，对堆芯寿期的影响不大，但随着 MA 镀层厚度的逐渐增加，堆芯寿期会相应随之缩短。

结合上述结论可知，MA 以同可燃毒物均匀混合和在可燃毒物外镀层两种方式添加到可燃毒物中后，由于堆芯易裂变核素的增加，会使燃料组件的燃耗深度减少，从而延长了堆芯的燃料周期。并且随着 MA 添加量的增加，燃料周期的延长幅度也会逐渐增大。MA 以两种方式添加到可燃毒物中后，随着反应堆运行时间的增加，会对燃料组件的 k_{eff} 值产生影响，当 MA 与可燃毒物均匀混合时，燃料组件维持在临界以上的时间也会延长，在一定程度上也会对整个堆芯的寿期产生有利影响。并且燃料组件内添加 MA 后，还会得到一些重要的核素，如 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{244}Cm 和 ^{245}Cm 等。由此可见，AP1000 反应堆嬗变 MA 有一定的研究意义，为我国长寿命高放废物的处置，提供了一定的参考价值。

参考文献 (References)

- [1] 顾忠茂, 叶国安 (2002) 先进核燃料循环体系研究进展. *原子能科学技术*, **2**, 160-167.
- [2] 袁涛, 王晓宇, 栗再新, 等 (2004) 核废物处理途径的探讨. *科学技术与工程*, **10**, 861-867.
- [3] 史永谦 (2007) 核电站乏燃料对生物圈的影响及 ADS 对策. *原子核物理评论*, **2**, 151-155.
- [4] 刘学刚, 徐景明, 梁俊福, 等 (2006) 乏燃料后处理和高放废液分离一体化流程研究进展. *科技导报*, **7**, 77-81.
- [5] 左国平, 柯国土, 龚学余, 等 (2011) MA 嬗变策略研究. *科技导报*, **7**, 42-45.

- [6] Iwasaki, T. (2002) A study of transmutation of minor-actinide in a thermal neutron field of the advanced neutron source. *Progress in Nuclear Energy*, **40**, 481-488. [http://dx.doi.org/10.1016/S0149-1970\(02\)00041-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0149-1970(02)00041-0)
- [7] Wakabayashi, T. (2002) Transmutation characteristics of MA and LLFP in a fast reactor. *Progress in Nuclear Energy*, **40**, 457-463. [http://dx.doi.org/10.1016/S0149-1970\(02\)00038-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0149-1970(02)00038-0)
- [8] 张玉山 (2001) 从广义自持链式反应观点看加速器驱动系统. *核科学与工程*, **4**, 375-380.
- [9] 西屋电气公司 (2006) 西屋公司的 AP1000 先进非能动型核电厂. *现代电力*, **5**, 55-65.
- [10] 林诚格, 郁祖盛 (1995) 非能动安全先进核电厂 AP1000. 原子能出版社, 北京.
- [11] 毕光文, 司胜义 (2010) DRAGON 程序用于压水堆燃料组件计算的有效性验证与分析. *第十三届反应堆数值计算与粒子输运学术会议暨 2010 年反应堆物理会议论文集*, 1-8.