

# Transmutation of Np-237 in the First Cycle of AP1000 Core

Rendong Jia, Bin Liu, Jin Cai, Xiang Li

School of Nuclear Science and Engineering of North China Electric Power University, Beijing  
Email: [jiarendong@ncepu.edu.cn](mailto:jiarendong@ncepu.edu.cn)

Received: Jun. 19<sup>th</sup>, 2015; accepted: Jul. 6<sup>th</sup>, 2015; published: Jul. 9<sup>th</sup>, 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 spent fuel generated by nuclear power plants contains large quantities of radionuclides, including long-lived fission products (LLFP) and minor actinides (MA). These nuclides decay to no harm through thousands of years. Partitioning and transmutation technology (P&T) is to separate these nuclides from the spent fuel into specific device for neutron irradiation, making it into a low-level radioactive nuclides or stable nuclides. As a major MA nuclide, neptunium (Np) has a high productivity and long half-time. In this paper, MCNP code is used to build the AP1000 reactor core model, and neptunium dioxide (NpO<sub>2</sub>) transmutation rod is introduced to design 10 schemes where transmutation material is putted into the first cycle core. By calculation and comparing the effective multiplication factor ( $k_{eff}$ ), the added quality of neptunium dioxide and the changing extent to make the core reach the critical again, the result shows that the scheme where neptunium dioxide coating is putted in the fuel enrichment 4.45% of the core has advantages. This paper analyzes the scheme and optimized.

## Keywords

Transmutation, AP1000, Np-237

---

# Np-237在AP1000首循环堆芯中的嬗变研究

贾仁东, 刘 滨, 蔡 进, 李 想

华北电力大学核科学与工程学院, 北京  
Email: [jiarendong@ncepu.edu.cn](mailto:jiarendong@ncepu.edu.cn)

收稿日期：2015年6月19日；录用日期：2015年7月6日；发布日期：2015年7月9日

## 摘要

核电站所产生的乏燃料中含有大量的放射性核素，主要包括长寿命裂变产物(LLFP)和少量锕系元素(MA)，这些核素要通过上万年的衰变才能消除放射性危害。分离嬗变技术(P&T)是将这些放射性核素从乏燃料中分离出来，放入特定装置中，对其进行中子照射，使其转变成低放射性核素或稳定核素。镎(Np)作为一种最主要的MA核素，其含量高，半衰期长。本文利用MCNP程序搭建AP1000反应堆堆芯模型，以二氧化镎(NpO<sub>2</sub>)嬗变棒为引入方式，设计出在首循环堆芯中添加嬗变材料的10种方案。通过计算比较各种方案中有效增殖因子(k<sub>eff</sub>)、二氧化镎的添加质量和使堆芯重新达到临界所需要改变堆芯的程度，结果显示在堆芯燃料富集度为4.45%区域添加二氧化镎涂层的方案具有优势，本文对该方案进行了分析并进行了优化。

## 关键词

嬗变, AP1000, Np-237

## 1. 前言

乏燃料的处置是目前制约核电发展的重要因素，乏燃料中包含大量的高放射性核素，如长寿命裂变产物(LLFP，如 Tc-99 和 I-129)和锕系元素(MA，如 Np-237、Am-241、Am-243、Cm-244、Cm-245 等)，这些核素放射性强，半衰期长，对生态环境构成长期的潜在威胁[1]。目前国际上重点研究分离-嬗变技术(P&T)进行乏燃料后处理，分离-嬗变技术是指分离提取出未烧完的可裂变物质(如 U-235)和易裂变核素(Pu-239 等)，进行循环使用；把产生的高放射性核素(Np、Pu、Am、Cm 和 Tc 等)提取出来，放入专门的嬗变堆中经受中子照射，使其转换成短寿命核素或稳定核素[2]。

就目前核电发展趋势来看，AP1000 将会成为我国未来核电发展的主流堆型，如果在 AP1000 堆芯中放入高放射性的 LLFP 或 MA 进行嬗变，并能大量减少它们的含量，这将极大的减少乏燃料的存储空间，同时也为核电的可持续发展提供强有力的支持。表 1 给出了 MA 核素成分占乏燃料的含量，可见在 MA 核素中，Np-237 的含量远远超过其他四种核素的总含量，而且其半衰期很长，本文研究 MA 中 Np-237 在 AP1000 首循环堆芯中的嬗变特性。

图 1 给出了 Np-237 的嬗变反应链[4]，可见通过吸收中子发生的(n,γ)以及 β 衰变反应，Np-237 最终会嬗变成 Pu 的同位素，这些同位素可用来生产 MOX 燃料，这样就可以将高放射性废物 Np-237 变为有用的核素。

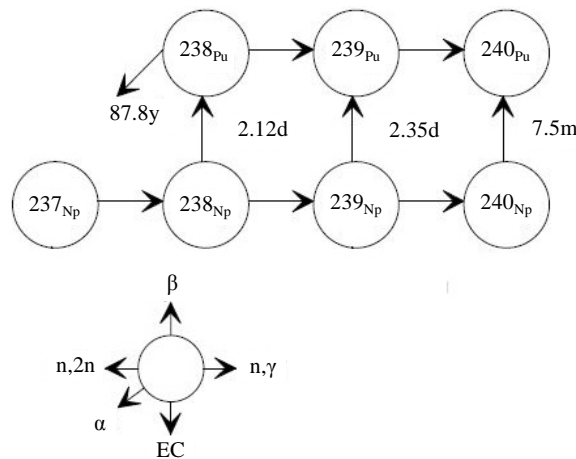
## 2. MCNP 和堆芯结构

MCNP [5]是用蒙特卡洛方法模拟解决中子和光子输运问题以及计算临界系统的 k<sub>eff</sub> [6]。蒙特卡洛方法，又称为随机抽样方法，它主要是运用统计规律将大量试验数据统计之后得到我们所需要的数据。随着现代计算科学的持续发展，蒙特卡洛方法在许多方面都发挥着不可替代的作用，其中主要包括原子弹技术，并且在物理的各个领域应用广泛。

AP1000 核电技术是从美国西屋公司引进，并通过了美国核管理委员会最终设计批准的“第三代+”核电技术。它是一种先进的非能动型压水堆核电技术[7]。AP1000 堆芯由 157 个几何形状和机械结构完全相同的 Robust 燃料组件组成，燃料组件又由圆柱状燃料芯块组成。AP1000 堆芯首循环按燃料富集度分

**Table 1.** The content of MA nuclides in spent fuel  
**表 1.** MA 核素成分在乏燃料中的含量[3]

核素	$T_{1/2}/a$	$m/(kg \cdot Gwe^{-1} \cdot a^{-1})$	乏燃料中的含量(%)
Np-237	$2.14 \times 10^6$	13.0	0.052
Am-241	433	1.6	0.0064
Am-243	7370	3.3	0.0132
Cm-244	18.11	1.01	0.00404
Cm-245	8.53	0.04	0.00016



**Figure 1.** Np-237 transmutation chain  
**图 1.** Np-237 嬗变链

为三个区域，如图 2 所示。最外围区域富集度最高为 4.45%，内部区域 1 和 2 富集度为 2.35% 和 3.40% 交替布置，形成棋盘状[8]。

通过调研堆芯参数，主要参数如表 2 所示，写入到 MCNP 程序中，调节反射层参数和可燃毒物棒数量使堆芯达到临界。为了验证所设计的程序是否符合要求，得到此程序的堆芯中子能谱，如图 3 所示，符合压水堆堆芯能谱要求。

### 3. Np-237 核素添加方式

目前压水堆积累了几十年的运行经验，中子学和热工水力设计得到不断优化，其技术现已非常成熟，因此我们的设计方案要求 Np-237 的引入对燃料组件和堆芯设计的影响尽可能小。

#### 3.1. 二氧化铪嬗变棒的设计

由于 Np 具有很强的中子吸收能力，在热中子区其微观吸收截面可达 169 b [10]，若以纯二氧化铪嬗变棒的方式引入堆芯，必将对周围燃料棒产生较大影响，增加堆芯中子通量分布的不均匀性。为了避免这种影响，本文选取燃料芯块外部添加二氧化铪(NpO<sub>2</sub>)涂层的形式引入嬗变材料，如图 4 所示[11]。

二氧化铪涂层的厚度是影响嬗变表现的一个重要因素。如果涂层过厚，二氧化铪将大量吸收燃料棒中裂变反应产生的中子，反应堆内的链式反应将无法持续；如果涂层过薄，堆芯引入的 Np-237 质量将会很少，达不到预期的嬗变量。

为了确定二氧化铪涂层的合适厚度，先求出堆芯中热中子在嬗变材料中的平均吸收自由程。

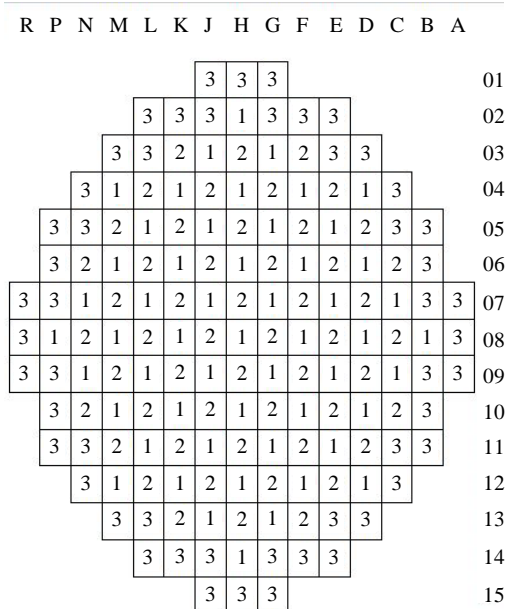


Figure 2. The first cycle of AP1000 core  
图 2. AP1000 首循环堆芯

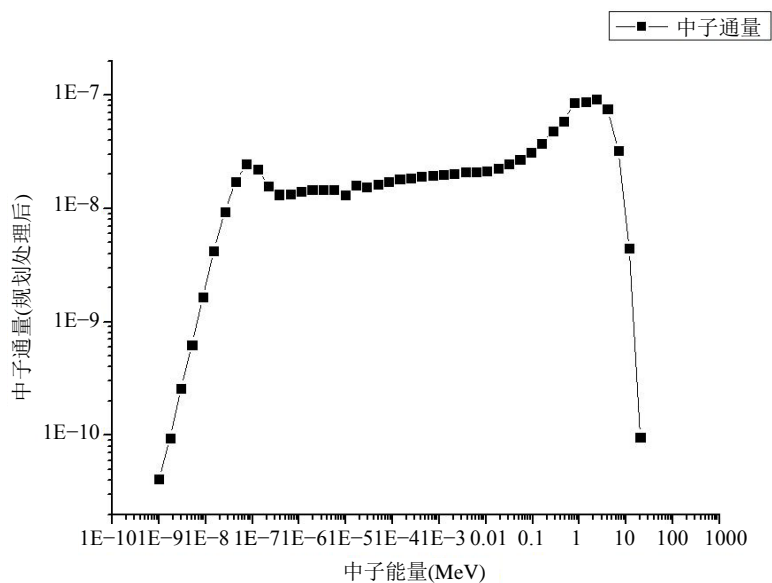


Figure 3. The neutron spectrum of AP1000 core  
图 3. AP1000 堆芯中子能谱

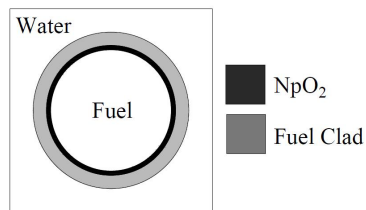


Figure 4. Section of neptunium dioxide transmutation rod  
图 4. 二氧化铈嬗变棒

**Table 2.** The main parameters of AP1000 core  
**表 2.** AP1000 堆芯主要参数[9]

参数	设计值
堆芯热功率(MW)	3000
活性区高度(cm)	426
燃料组件数	157
U-235 富集度(%)	2.35, 3.40, 4.45
硼浓度(ppm)	1000
包壳外径(mm)	9.5
包壳厚度(mm)	0.57
棒距(mm)	12
UO <sub>2</sub> 密度(g/cm <sup>3</sup> )	10.4
燃料总质量(吨)	96.084
导向管材料	ZIRLO™

查相关数据得二氧化铪的密度为 11.11 g/cm<sup>3</sup>，元素 Np 热中子微观吸收截面为 169 b，元素 O 的热中子微观吸收截面为 0.00027 b [11]，则计算的二氧化铪的平均吸收自由程为 2.38 mm。

平均自由程表示中子在介质中运动时，与原子核连续两次相互作用之间穿行的平均距离[11]。为了有效嬗变 Np，同时减少对堆芯自持链式反应的影响，二氧化铪涂层的厚度必须小于二氧化铪平均吸收自由程。综合考虑燃料棒尺寸以及平均吸收自由程，选取的尺寸如表 3 所示。

基于得到的二氧化铪涂层的厚度和半径，可以算出每根燃料棒上二氧化铪的质量。涂层的内径和外径分别为 0.3995 cm 和 0.4095 cm，则计算得每根燃料棒二氧化铪涂层的质量为 120.288 g。

### 3.2. MA 核素在堆芯中的添加方式

前文讨论了二氧化铪嬗变棒的设计，下面考虑这种嬗变棒在 AP1000 堆芯中的布置。对于反应堆堆芯，内部燃料组件的中子通量较高。在燃料组件中，内部燃料棒的中子通量高，有利于二氧化铪的嬗变。本文设计出 10 种嬗变棒添加方式，如表 4 所示，部分方案嬗变棒布置见图 2、图 5~8 所示，其中区域 1、2、3 分别代表首循环堆芯燃料富集度为 2.35%、3.40%、4.45% 区域。此外，导向管中没有燃料棒，不添加嬗变材料。

## 4. 结果分析

利用 MCNP 程序计算每种方案的有效增殖因子。前面已经得出每根嬗变棒中二氧化铪的质量是 120.288 g。堆芯总共有 157 个燃料组件，其中区域 1 有 53 个燃料组件，区域 2 有 52 个燃料组件，区域 3 有 52 个燃料组件。每个燃料组件中有 264 根燃料棒。通过计算可得到每种方案中二氧化铪质量。整合后得到表 5。

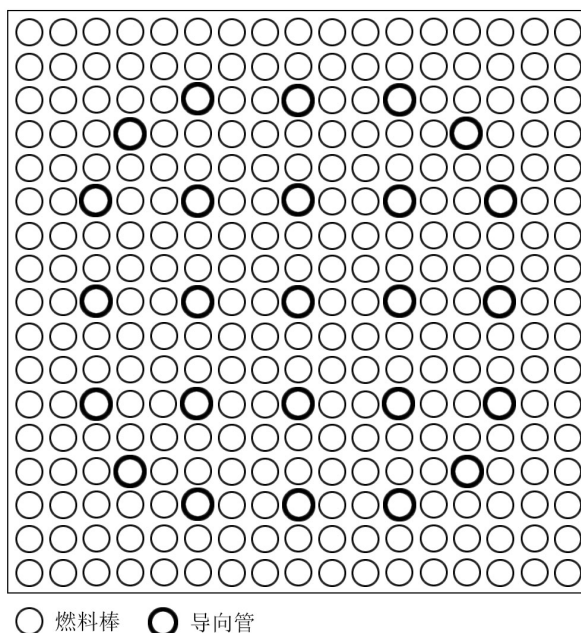
嬗变的首要目的是对堆芯改变程度最小，其次是二氧化铪的嬗变量。即在  $k_{\text{eff}}$  符合条件的情况下选择二氧化铪质量更大的方案。从表 5 可见方案 1 的二氧化铪质量虽高，但其  $k_{\text{eff}}$  很低，对堆芯影响很大，不能作为最佳方案；当二氧化铪质量在 2.039 吨到 3.334 吨范围内，可以看出最大的  $k_{\text{eff}}$  为 0.87861，最大质量为 3.334 吨，均属于方案 5；而当二氧化铪质量在 1.607 吨到 1.683 吨范围内，此质量范围相差很小，因此选取  $k_{\text{eff}}$  最大的方案，即方案 4 的  $k_{\text{eff}}$  为 0.98517。接下来要针对这两种方案对堆芯进行改进，使得

**Table 3. The size of neptunium dioxide coating**  
**表 3. 二氧化铈涂层尺寸**

	改进前	改进后
燃料芯块半径(mm)	4.095	3.995
燃料包壳内径(mm)	4.18	4.18
燃料包壳外径(mm)	4.75	4.75
涂层厚度(mm)	0.1	

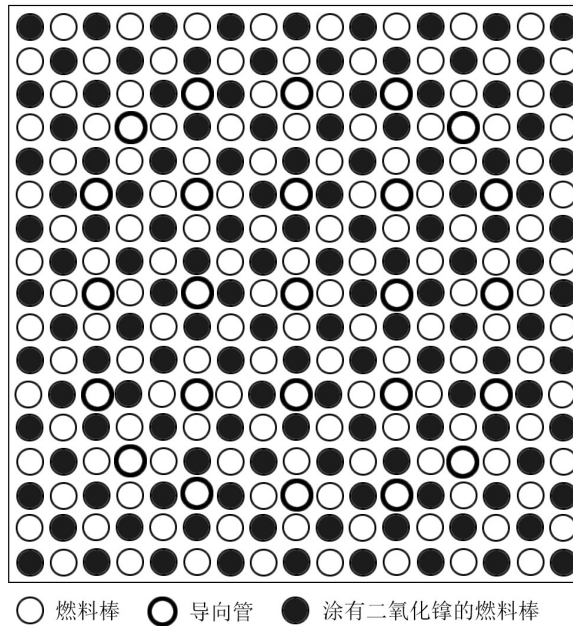
**Table 4. Distribution patterns of neptunium dioxide transmutation rods**  
**表 4. 二氧化铈嬗变棒布置方式**

方案	内容
1	所有燃料棒都是嬗变棒
2	区域 1 组件所有燃料棒都是嬗变棒
3	区域 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒
4	区域 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒
5	区域 1 和 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒
6	区域 1 和 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒
7	区域 2 和 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒
8	所有组件燃料棒和嬗变棒交叉布置
9	所有组件内部 11 × 11 燃料棒是嬗变棒
10	所有组件外部燃料棒是嬗变棒

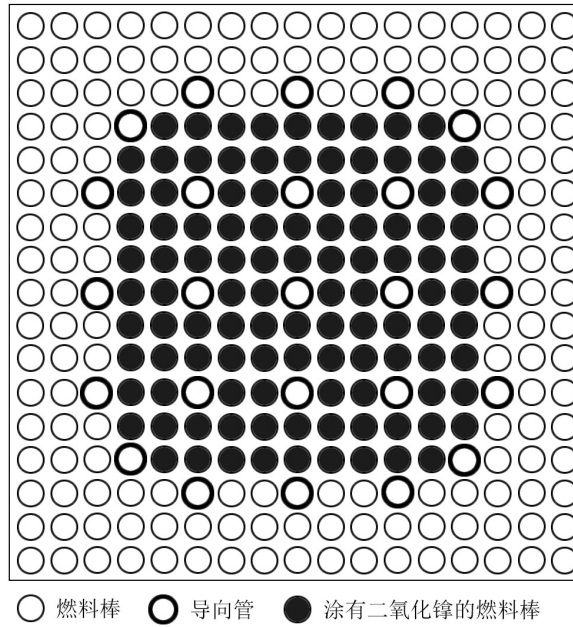


**Figure 5. Fuel assembly**  
**图 5. 燃料组件**





**Figure 6.** Transmutation rods distribution patterns in fuel assemblies of scheme 8  
**图 6.** 方案 8 组件中嬗变棒布置



**Figure 7.** Transmutation rods distribution patterns in fuel assemblies of scheme 9  
**图 7.** 方案 9 组件中嬗变棒布置

堆芯重新达到临界，即  $k_{\text{eff}}$  重新回到 1，从而使其正常运行。对堆芯的改变方法有很多，包括改变燃料富集度，改变燃料棒尺寸，改变硼浓度以及改变反射层厚度等等。鉴于目前 AP1000 堆芯布置已经非常优化，所以改变堆芯布置的方案不可取。本文采用改变燃料富集度的方法，使用 MCNP 程序使得堆芯重新达到临界。结果显示在表 6。

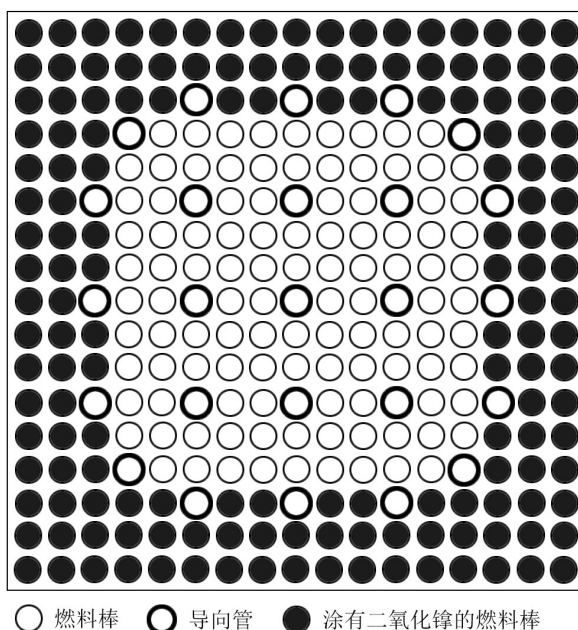


Figure 8. Transmutation rods distribution patterns in fuel assemblies of scheme 10

图 8. 方案 10 组件中嬗变棒布置

Table 5. Effects after adding transmutation rods to the core

表 5. 加入嬗变棒后对堆芯影响

方案	二氧化铪质量(吨)	$k_{eff}$	方差/ $10^{-5}$
所有燃料棒都是嬗变棒	4.985	0.69114	1.0563
区域 1 组件所有燃料棒都是嬗变棒	1.683	0.91307	1.4516
区域 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒	1.607	0.92336	1.4213
区域 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒	1.607	0.98517	1.0563
区域 1 和 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒	3.334	0.87861	1.6403
区域 1 和 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒	3.334	0.82208	1.0241
区域 2 和 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒	3.302	0.82213	0.9610
所有组件燃料棒和嬗变棒交叉布置	2.492	0.81177	1.1022
所有组件内部 $11 \times 11$ 根燃料棒是嬗变棒	2.039	0.85032	0.9000
所有组件外部燃料棒是嬗变棒	2.945	0.81209	1.2250

Table 6. Fuel enrichment to make core return to the criticality

表 6. 堆芯重回临界的燃料富集度

方案	改进后燃料富集度(%) (括号为改进前)		
	区域 1	区域 2	区域 3
区域 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒	2.35 (2.35)	3.40 (3.40)	4.55 (4.45)
区域 1 和 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒	4.2 (2.35)	4.8 (3.40)	5 (4.45)



从表 6 可以看出，对于区域 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒方案，只需将区域 3 的富集度从 4.45 提高到 4.55，改变 0.1，改变量为原始量的 2%。对于区域 1 和 2 组件所有燃料棒都是嬗变棒，每个区域改变量分别为原始量的 78%，41%和 12%。改变率非常大，按照我们尽可能减少改变原有设计的要求，此方案不可取。

综上所述，最佳方案为区域 3 组件所有燃料棒都是嬗变棒。AP1000 堆芯燃料总质量为 96.084 吨，这种方案中二氧化铪的质量占燃料总质量的 1.672%。

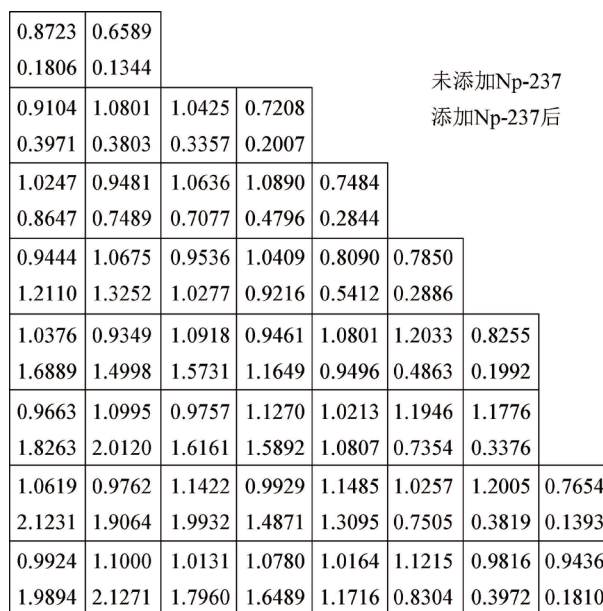
考虑到这种方案中二氧化铪质量所占比例偏高，会对堆芯的安全性能产生较高的影响，因此对原优化方案进行改进，设计出另外三种方案，如表 7 所示。通过 MCNP 程序计算得出每种方案的有效增殖因子，并计算出每种方案的二氧化铪质量，如表 7 所示。

由表 7 可以看出，三种方案有效增殖因子与区域 3 所有组件所有燃料棒都添加涂层无较大差别，为了使嬗变材料质量占燃料总质量的比例小于 1%且又能达到嬗变量的目的，所以选取区域 3 所有组件燃料棒和嬗变棒交叉布置这种方案为最优化方案，这种方案中二氧化铪质量占燃料总质量的 0.869%。

图 9 给出了上文提到的最优化方案以及基准方案堆芯燃料组件的径向功率分布，通过比较发现未添加 Np-237 时功率峰因子为 1.2033，添加 Np-237 后功率峰因子为 2.1271，最优化方案的功率峰因子比基准方案高，可见 Np-237 的添加对功率产生了不利的影响[12]。为了解决这个问题，可以通过在堆芯组件中交叉添加嬗变材料的方法来缓解，这也是后续要研究的内容。

**Table 7. Effects to core of the improved schemes**  
**表 7. 改进后方案对堆芯影响**

方案	二氧化铪质量(吨)	有效增殖因子
区域 3 所有组件燃料棒和嬗变棒交叉布置	0.835	0.98527
区域 3 所有组件内部 11 × 11 根燃料棒是嬗变棒	0.675	0.98615
区域 3 所有组件外部燃料棒是嬗变棒	0.975	0.98431



**Figure 9. Power peak factor distribution of assemblies**  
**图 9. 组件的功率峰因子分布**

## 5. 结论

本文利用 MCNP 程序搭建 AP1000 堆芯模型，采用二氧化铪涂层的设计方法，设计多种添加方案，通过分析计算不同方案下二氧化铪的引入对堆芯  $k_{eff}$  的影响，得出结论如下：

1) 对于二氧化铪嬗变棒的设计，经过计算得出，堆芯中热中子在二氧化铪的平均吸收自由程是 2.38 mm，为了不至于大幅度影响堆芯物理性能，选择在燃料芯块周围添加 0.1 mm 的二氧化铪涂层作为嬗变棒。

2) 对于嬗变棒在堆芯中的布置，本文设计出 10 种不同的方案，经过计算每种方案中二氧化铪的质量和有效增殖因子，以及使其重回临界所要改变堆芯的程度，选取在 AP1000 首循环堆芯燃料富集度为 4.45% 区域所有燃料棒添加二氧化铪涂层的方案作为优化嬗变方案，这种方案中二氧化铪的质量占 AP1000 堆芯燃料总质量的 1.672%。

3) 通过对优化方案的改进，降低嬗变材料对堆芯安全性能的影响，选取 AP1000 首循环堆芯燃料富集度为 4.45% 区域所有燃料组件中燃料棒和嬗变棒交叉布置这种方案作为优化嬗变方案，这种方案中二氧化铪的质量占 AP1000 堆芯燃料总质量的 0.869%。

4) 通过比较最优化方案和基准方案的功率分布，发现添加 Np-237 后堆芯的功率峰因子比基准方案高，会对堆芯功率分布产生不利影响。

## 参考文献 (References)

- [1] Liu, B., Hu, W., Wang, K., et al. (2011) Transmutation of MA in the high flux thermal reactor. *Journal of Nuclear Materials*, **66**, 144-166.
- [2] Gonzalez-Romero, E.M. (2011) Impact of partitioning and transmutation on high level waste management. *Nuclear Engineering and Design*, **241**, 3436-3444. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2011.03.030>
- [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] Salvatores, M. and Palmiotti, G. (2013) Radioactive waste partitioning and transmutation within advanced fuel cycles: Achievements and challenges. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, **473**, 95-101.
- [5] Briesmeister, J.F. (2000) MCNP-A general monte carlo N-particle transport code. Version 4C. Los Alamos National Laboratory: Report LA-13709-M, April 2000, 2.1-2.197.
- [6] Liu, B., Lv, X.F., Zhao, W., et al. (2010) The comparison of MCNP perturbation technique with MCNP difference method in critical calculation. *Nuclear Engineering and Design*, **240**, 2005-2010. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2010.04.022>
- [7] Schulz, T.L. (2006) Westinghouse AP1000 advanced passive plant. *Nuclear Engineering and Design*, **236**, 1547-1557. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2006.03.049>
- [8] Fetterman, R.J. (2009) AP1000 core design with 50% MOX loading. *Annals of Nuclear Energy*, **36**, 324-330. <http://dx.doi.org/10.1016/j.anucene.2008.11.022>
- [9] 林诚格 (2008) 非能动安全先进核电厂 AP1000. 原子能出版社, 北京, 28-42.
- [10] Yang, W.S., Kim, Y., Hill, R.N., et al. (2004) Long-lived fission product transmutation studies. *Nuclear Science and Engineering*, **146**, 291-318.
- [11] Stacey, W.M. (2007) Nuclear reactor physics. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, New York, 425-426.
- [12] 杨莹, 王三丙, 贺朝会 (2013) 压水堆嬗变  $^{99}\text{Tc}$  和  $^{129}\text{I}$  的计算研究. *原子能科学技术*, **11**, 2077-2084.