

电子加速器驱动的次临界 热中子堆中嬗变MA的 模拟研究

王继冰, 刘 滨

华北电力大学核科学与工程学院, 北京

收稿日期: 2022年12月19日; 录用日期: 2023年1月24日; 发布日期: 2023年1月31日

摘 要

要实现以高能质子为驱动的ADS在技术上还面临着较大的困难, 而电子加速器和热中子堆都已经是成熟的技术, 本研究结合两项成熟的技术, 对电子加速器驱动的次临界热中子堆进行模拟。电子加速器驱动的次临界热中子堆既具有技术上的可行性, 安全性, 经济性, 又有优秀的嬗变能力。研究电子加速器驱动的次临界热中子堆为乏燃料的后处理提供了新的思路, 具有重要意义。研究使用MCNP程序在M310堆型的基础之上搭建热中子堆模型, 通过将MA制成管状插入堆芯的方法, 利用自屏蔽效应, 得出的研究表明: 在电子加速器驱动的次临界热中子堆中引入MA进行嬗变, 其对堆芯 k_{eff} 的影响很小, 且MA装载量可观; 对堆芯 k_{eff} 造成的影响可以通过调节硼浓度来补偿, MA嬗变产物的收集也很容易。计算结果表明了在电子加速器驱动的次临界热中子堆中嬗变MA的可行性, 为乏燃料中MA的安全、经济、高效的后处理提供了参考。

关键词

eADS, 电子加速器, MA, 嬗变, 安全性

Simulation of MA Transmutation in Electron Accelerator-Driven Subcritical Thermal Reactor

Jibing Wang, Bin Liu

School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing

Received: Dec. 19th, 2022; accepted: Jan. 24th, 2023; published: Jan. 31st, 2023

文章引用: 王继冰, 刘滨. 电子加速器驱动的次临界热中子堆中嬗变 MA 的模拟研究[J]. 核科学与技术, 2023, 11(1): 75-85. DOI: 10.12677/nst.2023.111009

Abstract

In order to realize ADS driven by high-energy protons, there are still great difficulties in technology. While the technology of electron accelerators and thermal reactors are mature, eADS has the advantages of ADS which has safety, economy, and excellent transmutation ability. The study of electron accelerator-driven subcritical thermal reactor provides new ideas for spent fuel reprocessing. We use MCNP program to construct thermal reactor model on the basis of M310 reactor. The research result is obtained by inserting MA into the core in tubular form and using the self shielding effect. The results show that the introduction of MA into the electron accelerator-driven subcritical thermal reactor has little effect on the core, and the MA loading amount is considerable. The effect can be compensated by adjusting the boric acid concentration, and the collection of MA transmutation products is convenient. This paper illustrates the feasibility of transmutation of MA in an electron accelerator-driven subcritical thermal reactor, and provides a reference for safe, economical and efficient post-processing MA.

Keywords

eADS, Electron Accelerator, MA, Transmutation, Safety

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

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



Open Access

1. 引言

核电是清洁能源供给体系中的重要组成部分, 在实现“双碳”目标的进程中, 积极、安全、有效地发展核电成为了社会绿色低碳发展的重要补充。近年来, 在建、在运、核准的核电机组数量不断增加, 可预见未来乏燃料的产生和积累会越来越多, 将核电站产生的乏燃料大量地进行处置是不合适的。在这种情况下, 探寻乏燃料后处理的方法与发展乏燃料后处理的技术也变得越来越紧迫了。

嬗变是缩短核电站产生的次锕系核素和长寿命裂变产物这些长寿命放射性物质寿命的唯一有效方法。因为加速器驱动的次临界系统(Accelerator Driven Subcritical System, ADS)具有优异的嬗变能力和更高的安全性能, 因此它被认为在处理乏燃料方面极具前景[1], 因此国内外科研人员积极研究 ADS 的应用特性, 希望实现以此来应对乏燃料不断积累、难以处理的问题。对于 ADS 的应用, 目前的主流想法是利用高能质子加速器驱动次临界快堆。不过, 受高能质子加速器的建造、电子散裂靶材料及核燃料材料的选择等诸多问题的限制, 目前国际上尚无建成的 ADS 装置。因此, 本研究选择基于高能电子驱动的次临界系统(Electron Accelerator Driven Subcritical System, eADS), 其实现原理为: 利用经加速器出射的高能电子轰击电子靶, 电子骤然减速后产生韧致辐射[2]放出光子, 光子进一步与光子靶作用发生光核反应[3]产生中子, 并以此作为次临界系统的外源中子输入。

eADS 由电子加速器、靶与次临界堆芯构成。其中电子加速器作为一种科学研究装置, 其技术十分成熟, 成本较低, 已经广泛应用于物理研究、灭菌消毒、辐射保鲜, 储存工艺研究、X 射线安全检查、工业 CT 检查、海关口岸的辐射检疫、空间环境测试等领域。热中子堆是在世界范围内目前技术最为成熟且数量最多的堆型, 因此研究对其进行装载 MA, 进行其嬗变研究更具工程实际性。本文致力于 MA 在

电子加速器驱动的次临界热中子堆中的嬗变影响研究, 将电子加速器与热中子堆两种成熟的技术相结合, 为实现乏燃料中 MA 安全、经济、高效的后续处理提供参考。

2. 计算方法和程序介绍

2.1. 蒙特卡罗方法

蒙特卡罗(Monte Carlo, 简称 MC)方法的基础是概率统计数学理论, 特别的是可以把确定性的问题转换成随机概率问题。再通过计算机程序随机抽样, 可以产生足够多的概率统计模型的样本。最后可以利用这些得到的样本计算出参数的估计值, 也就是对于实际问题的模拟值, 达到用随机试验处理确定性问题的效果。

2.2. MCNP 程序

MCNP 程序是美国 Los Alamos 国家实验室开发的大型多功能通用蒙特卡罗程序。MCNP 模拟的几何模型可以由任意三维空间构成, 而且其几何区除了可由一维或者二维曲面组成, 甚至可以由特殊的四维椭环面构成。它的输运模式有唯中子、唯光子、唯电子、中子 - 由中子产生的光子、中子 - 光子 - 电子或者电子 - 光子输运。由 MCNP 程序说明书可知, MCNP 所能计算的中子的能量范围为 0~60 MeV (普通的数据库上限是 20 MeV), 电子和光子则在 1 keV~1 GeV 内可用, 且程序可以计算临界系统(包括临界和次临界)下的有效增殖因数(k_{eff}) [4]。

2.3. NJOY 程序

NJOY 程序[5]可将原始的 ENDF/B 格式数据进行加工制作成点状或多群形式的截面, 为蒙特卡罗输运计算软件, 如 MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport Code System)等系列栅元程序制作格式化数据库, 补充 MCNP 程序材料数据库中缺失的元素数据。

3. 电子加速器驱动的次临界系统(eADS)设计

有研究证明, 目前技术条件下的电子加速器的电子流强足够满足 eADS 的需求[6]。电子加速器驱动次临界系统的原理是: 经加速器出射的高能电子轰击电子靶, 电子骤然减速后产生韧致辐射放出光子, 再由光子与光子靶作用发生光核反应产生中子, 产生的中子进入堆芯与核燃料发生链式反应, 驱动反应堆的不断运行, 原理结构图见图 1。在整个次临界系统运行的模拟计算中, 将 k_{eff} 控制在 0.95~0.98 内, 其中可以通过调节堆芯中的硼浓度来进行 k_{eff} 的调整, 既保证反应堆的运行, 又将反应堆维持在次临界的状态。有效增殖因数的定义是系统内中子的产生率与系统内中子的总消失(吸收 + 泄漏)率之比, k_{eff} 小于 1 则意味着系统内的中子数目随时间不断地衰减, 链式裂变反应是非自持的, 需要持续不断的外源中子来维持裂变反应。而一旦停止供应外源中子, 裂变反应将停止, 反应堆将停止运行, 这极大地提高了反应堆的安全性。

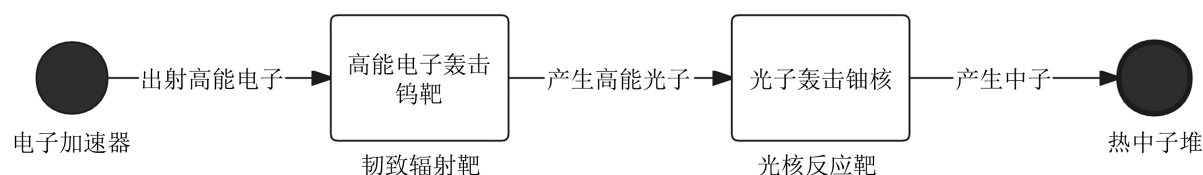


Figure 1. Schematic diagram

图 1. 原理结构图

整个系统由电子加速器、靶(包含韧致辐射靶、光核反应靶)与热中子堆芯构成, 现介绍如下。

3.1. 靶介绍

在仿真模拟中, 靶的部分由韧致辐射靶和光核反应靶共同组成。其中韧致辐射靶的材料选择的是天然钨[7], 光核反应靶的材料选择为 ^{238}U [8]。韧致辐射靶半径为 5 cm, 厚度为 0.5 cm; 光核反应靶半径为 8 cm, 厚度为 2.5 cm。靶结构绘制如图 2 所示, 韧致辐射靶与光核反应靶上下叠放。

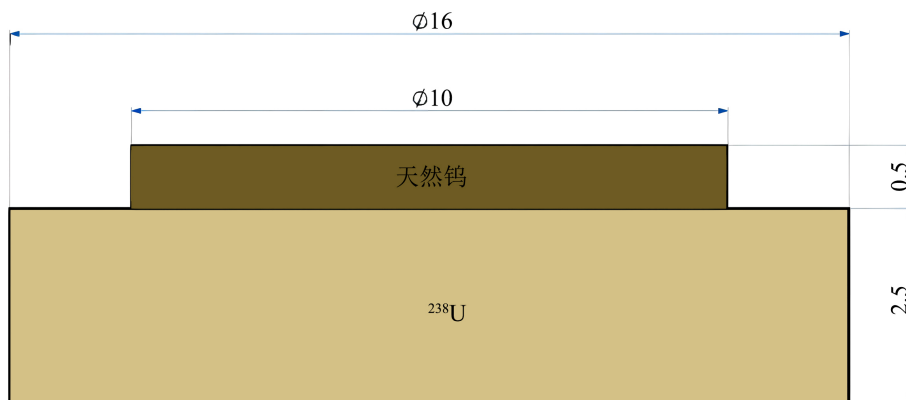


Figure 2. Target structure

图 2. 靶结构图

3.2. 热中子堆芯

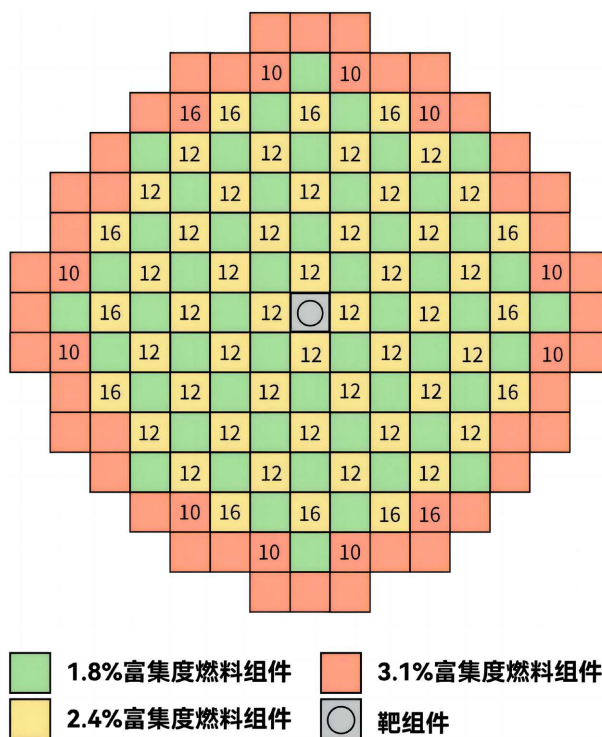


Figure 3. Burnable poison assembly distribution in core

图 3. 堆芯可燃毒物组件分布

次临界系统的热中子堆芯物理结构的设计参考 M310 堆型。堆芯由 3 种富集度的燃料组件组成：共 157 个组件按 15×15 排列，其中 52 组 3.1% 富集度燃料组件分布在芯部外围，52 组 2.4% 富集度燃料组件和 52 组 1.8% 富集度燃料组件交叉分布在芯部内部，中心位置安置靶组件。每个组件以 17×17 的形式，共 289 个棒位构成：其中由 264 个燃料棒位，24 根导向管和 1 根中子注量率测量导管。导向管插入可燃毒物棒或阻力塞棒。

由于是次临界系统，反应堆的堆芯中的 k_{eff} 主要靠电子加速器产生的电子流强控制，再由反应堆中的硼酸浓度调节。因此堆芯中去除了控制棒和控制棒组件，简化堆芯设计，空出的棒位全部由阻力塞棒替代。去除控制棒组件和控制棒驱动机构可以减少压力容器的贯穿件，提高了堆芯的安全性。堆芯第一循环组件布置如图 3 所示。

3.3. 堆芯基准硼浓度及其 k_{eff} 选择

由于我们研究的是次临界系统，因此在整个次临界系统运行情况的模拟计算中，始终把 k_{eff} 控制在 0.95~0.98 之内，并通过调节堆芯中的硼浓度来进行 k_{eff} 的调整，既保证反应堆的安全运行，又将反应堆维持在次临界的状态。

首先在无 MA 核素添加的情况下，改变硼浓度进行模拟，得到的 k_{eff} 见表 1。图 4 为 k_{eff} 随硼浓度的变化图。

Table 1. k_{eff} at different boric acid concentrations
表 1. 不同硼浓度下的有效增值因数

硼浓度/ppm	k_{eff} (无控制棒)
800	1.04061
850	1.03310
900	1.02573
950	1.01789
1000	1.00924
1050	1.00392
1100	0.99558
1150	0.99046
1200	0.98251
1250	0.97768
1300	0.96931
1350	0.96484
1400	0.95675

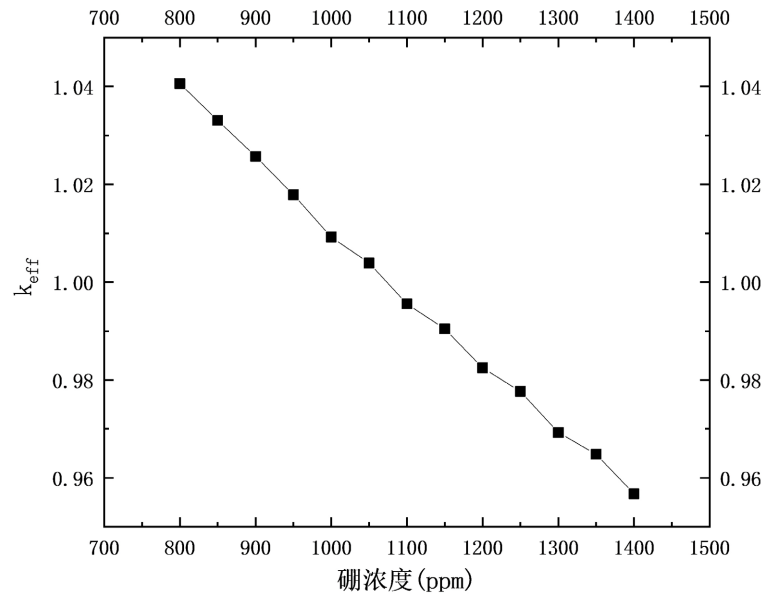


Figure 4. k_{eff} at different boric acid concentrations
图 4. 不同硼浓度下的有效增值因数

根据 MCNP 程序模拟的结果, 在范围内, 我们选择 1300 ppm/0.96931 作为基准硼浓度和 k_{eff} 。

4. MA 添加方式的选择与引入 MA 嬗变对堆芯的影响研究

模拟计算中添加的 MA 的组成及其质量百分数[9], 如表 2 所示。

Table 2. The ratio of MA
表 2. MA 各核素的比例

核素	^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{243}Cm	^{244}Cm	^{243}Cm
质量百分数(%)	56.18	26.40	12.00	0.03	5.11	0.28

4.1. 将 MA 直接与燃料均匀混合

首先选择将 MA 直接与燃料均匀混合, 然后将 MCNP 程序计算出的堆芯 k_{eff} 与我们选择的基准 k_{eff} 进行对比, 探究以此种方法将 MA 引入堆芯嬗变对堆芯的影响大小。

Table 3. k_{eff} after mixing different concentrations of MA in fuel
表 3. 燃料中混合不同浓度 MA 后堆芯的有效增值因数

MA 含量(%)	k_{eff}
0	0.96931
1	0.82424
2	0.73318
3	0.66489

由表 3 中数据可知, 将 MA 与燃料直接混合时, 即使只添加 1% 的 MA, 堆芯的 k_{eff} 也会大大降低。可知由于 MA 在热中子区的吸收截面过大, 直接混合引入 MA 的方法对反应性影响太大, 所以我们认为此种引入方法不可行。根据 MA 在热中子区的吸收截面过大的特性, 其他引入方法我们参考可燃毒物, 将 MA 制成棒状或管状等非均匀结构后再引入堆芯。这样利用非均匀结构的空间自屏蔽效应, 来将引入 MA 对堆芯反应性的影响降到最低。

4.2. MA 替换可燃毒物棒外层的部分水层

可燃毒物棒由内到外分别为不锈钢内衬、可燃毒物、不锈钢内衬、水层以及锆合金包壳, 其余部分用空气填充, 可燃毒物的内外半径分别是 0.2413 cm, 0.4267 cm; 水层的内外半径分别为 0.485 cm, 0.5625 cm。添加 MA 后的可燃毒物棒保持水层外半径 0.5625 cm 不变, 在不锈钢内衬外添加不同厚度的 MA 镀层, 即镀层内半径为 0.485 cm, 改变外半径。添加 MA 前后的可燃毒物棒结构如图 5 所示。

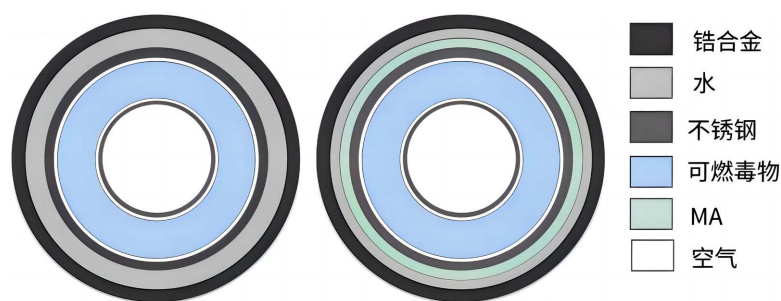


Figure 5. Burnable poison rod structure before and after MA replacing part of water layer
图 5. MA 替换部分水层前后的可燃毒物棒结构

用 MA 替换可燃毒物棒外层的部分水层后, 用 MCNP 程序模拟计算不同 MA 外半径下堆芯的 k_{eff} , 结果列于表 4, MA 外半径与堆芯 k_{eff} 的关系见图 6。

Table 4. The calculation results after coating MA transmutation materials in water gap of burnable poison rods
表 4. 可燃毒物棒水层中添加 MA 嬗变材料后的计算结果

MA 内半径 (cm)	MA 外半径 (cm)	总 MA 装载量 (kg)	相当于压水堆 MA 年产量(座)	k_{eff}	标准偏差
0.485	0.485	0	0	0.96931	0.00024
	0.49	63.72	1.8	0.96469	0.00024
	0.495	128.10	3.7	0.96175	0.00023
	0.50	193.12	5.5	0.95929	0.00023
	0.505	258.80	7.4	0.95760	0.00024
	0.51	325.14	9.3	0.95598	0.00024
	0.515	392.13	11.2	0.95439	0.00023
	0.52	459.77	13.1	0.95319	0.00024

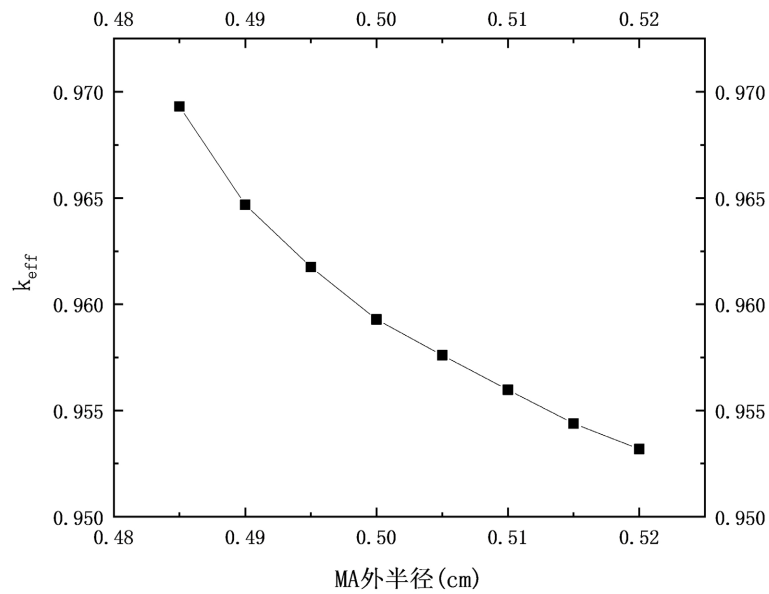


Figure 6. k_{eff} at different MA outer radius
图 6. 不同 MA 外半径下的堆芯 k_{eff}

表 4 中除了不同 MA 外半径下的 k_{eff} 外, 还列出了在此外半径下 MA 的装载量及其相当于多少座压水堆的 MA 年产量(压水堆 MA 年产量基于一座典型的 1000 MW 压水堆年产 25 至 30 吨乏燃料)。结合表 4 与图 5, 可以看到即使在堆芯中装载约 459.77 kg 的 MA。反应堆的 k_{eff} 也控制在 0.95~0.98 之内。在每次改变的装载量接近的情况下, 第一次加入 MA 时的 k_{eff} 变化量最大, 之后每次变化影响逐渐平缓。可以看出, 将 MA 制成管状加入堆芯, 可以利用空间自屏蔽效应减少 MA 对堆芯 k_{eff} 的影响, 此种方法引入 MA 嬗变应略优于将 MA 直接与燃料混合。

分别将不同 MA 外半径下计算出的 k_{eff} 通过调节硼浓度调整到基准 k_{eff} , 硼浓度减少量如表 5 所示, 通过减少堆芯中硼浓度我们可以补偿引入 MA 带来的反应性变化, 还能使反应堆的负温度系数提高。

Table 5. Partial Substitution of MA for Boric Acid
表 5. MA 替代部分硼酸

MA 内半径(cm)	MA 外半径(cm)	MA 替换可燃毒物棒中部分水层后的 k_{eff}	调整到基准 k_{eff} 时的硼浓度	硼浓度减少量
0.485	0.49	1300 ppm/0.96469	1269 ppm/0.96923	31
	0.495	1300 ppm/0.96175	1247 ppm/0.96922	53
	0.50	1300 ppm/0.95929	1229 ppm/0.96954	71
	0.505	1300 ppm/0.95760	1215 ppm/0.96950	85
	0.51	1300 ppm/0.95598	1198 ppm/0.96952	102
	0.515	1300 ppm/0.95439	1187 ppm/0.96921	113
	0.52	1300 ppm/0.95319	1172 ppm/0.96961	128

4.3. MA 替代可燃毒物

第三种引入方法为用 MA 替代可燃毒物, 目的是直观对比一下 MA 与可燃毒物吸收中子的能力大小。图 7 为替代前后棒的结构, 可燃毒物与 MA 的内半径保持在 0.2413 cm, 改变它们的外半径, 空出的地方由空气填充。

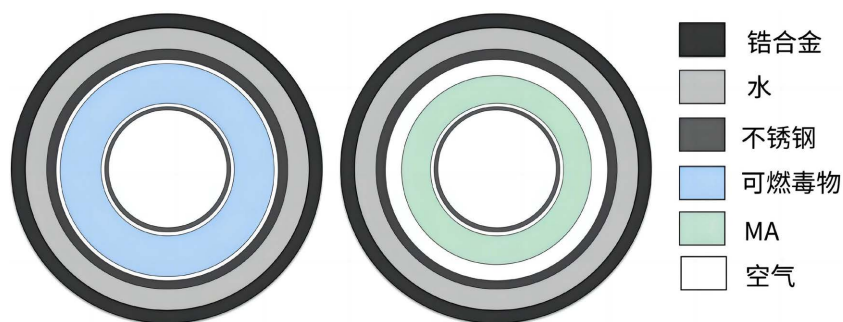


Figure 7. Structure of rods before and after MA replacing burnable poison
图 7. MA 替代可燃毒物前后棒的结构

由图 8 可知, MA 的中子吸收能力略大于可燃毒物, 对堆芯 k_{eff} 的影响也类似于可燃毒物, 如果 MA 的消耗不会显著改变堆芯的各项特性, 那么 MA 在堆芯中嬗变的同时, 也可起到可燃毒物的作用。用 MA 替代可燃毒物能降低堆芯中硼浓度, 也有利于堆芯的安全性。

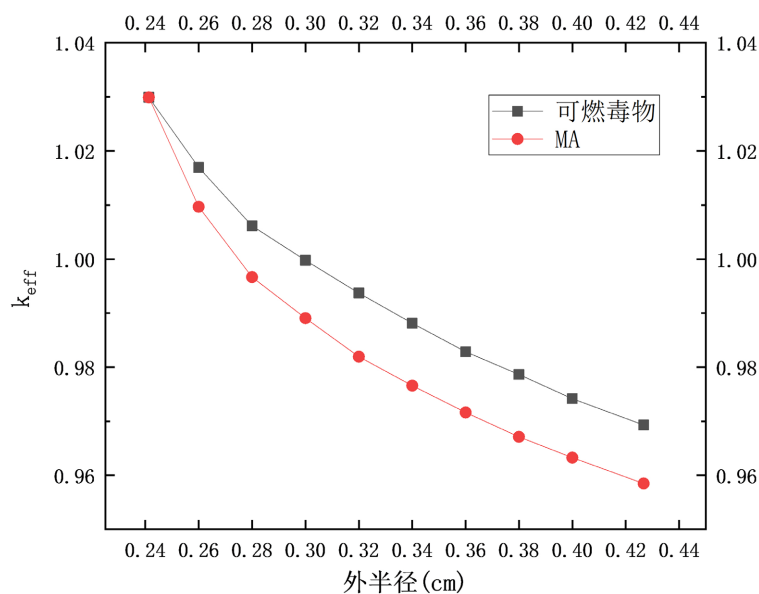


Figure 8. k_{eff} at different burnable poison outer radius and MA outer radius
图 8. 不同可燃毒物与 MA 外半径下的 k_{eff} 变化对比

4.4. MA 替换部分可燃毒物

在前一种引入方法中, 我们研究了在可燃毒物棒中直接替代可燃毒物的影响, 但这种方法要求 MA 完美起到可燃毒物的作用。因此第四种方法我们选择用 MA 替换部分可燃毒物, 通过这种方式, 我们可以最大限度地减少对反应堆堆芯的修改。我们保持 MA 和可燃毒物的总体积不变, 减少可燃毒物的外半

径(也是 MA 的内半径), 可燃毒物内半径 0.2413 cm 和 MA 外半径 0.4267 cm 保持不变, 参见图 9。我们计算了逐步增加 MA 装载量后的堆芯 k_{eff} , MCNP 程序模拟计算结果如表 6 所示。从表 6 中的数据中, 可以看出这种方法对 k_{eff} 的影响小于用 MA 替换水层的影响, 同时 MA 装载量也较大。

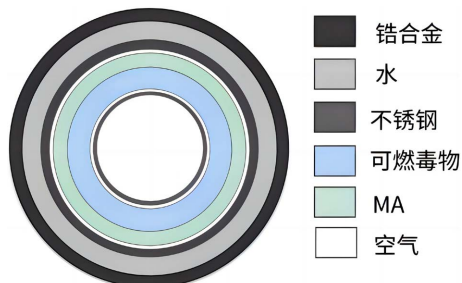


Figure 9. Structure of rods after MA direct substitution for the burnable poison
图 9. MA 直接替换部分可燃毒物后的棒结构

Table 6. MA direct substitution for the burnable poison
表 6. MA 直接替换部分可燃毒物

可燃毒物内半径 (cm)	可燃毒物外半径 (MA 内半径) (cm)	MA 外半径 (cm)	k_{eff}	总 MA 装载量 (kg)	相当于压水堆 MA 年产量(座)
0.2413	0.4267	0.4267	0.96931	0	0
	0.40		0.96351	288.51	8.2
	0.38		0.96198	492.42	14.1
	0.36		0.96109	685.87	19.6
	0.34		0.95983	868.86	24.8
	0.32		0.95950	1041.40	29.8
	0.30		0.95921	1203.48	34.4
	0.28		0.95908	1355.10	38.7
	0.26		0.95873	1496.27	42.8
	0.2413		0.95848	1618.80	46.3

4.5. 对几种引入方法的讨论

对比几种方法, 可以发现 MA 的吸收截面比可燃毒物略大, 若与燃料直接混合对堆芯影响极大, 燃料仅混合 1% MA 也会使 k_{eff} 大大降低, 同时这种方法也要改变燃料的组成, 这种方法不符合要求; 若将 MA 制成管状插入堆芯, 利用自屏蔽效应, 不管是添加在可燃毒物之外的水层, 还是替换部分可燃毒物或者将一个可燃毒物组件中的几根可燃毒物棒换成 MA 棒, 这些方法对堆芯的影响都是相似的, 都具有可行性。后几种方法 MA 装填量可观, 不需要改变堆芯燃料的组成, 不需要改变反应堆的构造, 只需要稍微改变可燃毒物棒的结构即可, 对堆芯 k_{eff} 的影响也可以通过改变硼浓度调节, 而且 MA 添加在可燃毒物组件中, 在可燃毒物燃尽之后, MA 嬗变产物的收集也很容易。

5. 结论

MCNP 程序仿真得到的数据是国际核工程领域完全认可的, 本文使用 MCNP 程序在 M310 堆型的基础之上搭建热中子堆模型, 由 NJOY 程序制作所需截面库, 利用几种引入方法探究了在电子加速器驱动的次临界热中子堆中嬗变 MA 的可行性和堆芯引入 MA 嬗变对 k_{eff} 的影响。研究利用的都是成熟的热中子堆和电子加速器的技术, 同时对比常见的临界压水堆, 通过电子加速器驱动产生外源中子维持次临界状态的次临界堆芯的系统安全性更高, eADS 还具有嬗变能力优秀、中子经济性良好的优点, 因此本文为乏燃料中 MA 安全、经济、高效的后处理提供了参考, 后续应继续计算装载的 MA 在堆芯寿期末的具体消耗量, 进一步探讨 eADS 的嬗变能力。

参考文献

- [1] Agency, D. (2005) Accelerator and Spallation Target Technology for ADS Applications. *OECD Papers*, **5**, 24-24. https://doi.org/10.1787/oecd_papers-v5-art24-en
- [2] 杨朝文. 电离辐射防护与安全基础[M]. 北京: 原子能出版社, 2009: 31-34.
- [3] 张高维. 基于光核反应和汇聚等离子体碰撞的激光中子源模拟研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 中国工程物理研究院, 2016.
- [4] Liu, B., Lv, X.F., Zhao, W., Wang, K., Tu, J. and Ouyang, X.P. (2010) The Comparison of MCNP Perturbation Technique with MCNP Difference Method in Critical Calculation. *Nuclear Engineering and Design*, **240**, 2005-2010. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2010.04.022>
- [5] MacFarlane, R.E. (1994) The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91. Los Alamos National Laboratory, New Mexico. <https://doi.org/10.2172/10115999>
- [6] 张新营. 电子加速器驱动次临界系统的堆芯设计[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2021.
- [7] 张新营, 刘滨, 付鹏, 盛洁. 电子加速器驱动次临界系统的靶物理设计及耦合计算[J]. *核科学与工程*, 2021, 41(5): 1047-1054.
- [8] 李文强. 低能电子加速器驱动次临界反应堆研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2019.
- [9] Sasa, T., Tsujimoto, K., Takizuka, T. and Takana, H. (2001) Code Development for the Design Study of the OMEGA Program Accelerator-Driven Transmutation Systems. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, **463**, 495-504. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)00166-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)00166-8)