

MA 嬗变策略研究

左国平^{1,2}, 柯国土², 龚学余¹

1. 南华大学核科学技术学院, 湖南衡阳 421001

2. 中国原子能科学研究院, 北京 102413

摘要 根据中国核电发展战略, 采用国际原子能机构 (IAEA) 的核燃料循环软件 NFCSS, 对未来中国核电发展情景进行了预测, 分析了 2050 年以前中国乏燃料的产生和累积情况。采用 NJOY 和 ENDF/B-VII 数据库, 计算分析了次锕系核素在热谱、超热谱和快谱中的一群等效截面, 分析了 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{246}Cm 等主要次锕系核素的可能嬗变途径, 提出了两阶段嬗变 MA 策略, 即将从压水堆中分离出来的 MA 首先在充分热化的热中子场中嬗变, 嬗变后余下的核素再在较硬的中子场中进行嬗变, 有望取得较好的嬗变效果。

关键词 次锕系核素; 嬗变策略; 充分热化中子场

中图分类号 O571

文献标识码 A

doi 10.3981/j.issn.1000-7857.2011.07.006

MA Transmutation Strategy

ZUO Guoping^{1,2}, KE Guotu², GONG Xueyu¹

1. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, Hunan Province, China

2. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China

Abstract According to the development plan envisagement for nuclear power plant in China, the development of China's nuclear power in the next decades is predicted with the nuclear fuel cycle software NFCSS provided by IAEA. The amounts of the spent fuel generated and accumulated by the year of 2050 are analyzed. According to the assumption model, the accumulated spent fuel by the year of 2050 will reach at 54791t including 57.89t Minor Actinides (MA) (^{237}Np , 42.91t; Am, 11.17t; Cm, 3.81t) and 2778t FP. One group effective cross section of MA in the thermal, well thermalized, and fast neutron field is calculated based on ENDF/B-VII nuclear evaluation database. The transmutation way for three main MA, i.e. ^{237}Np , ^{241}Am , and ^{246}Cm is also analyzed. It is more suitable for ^{237}Np transmutation in well thermalized neutron field and for ^{241}Am , the high flux thermalized neutron field is better. But it is difficult for ^{246}Cm transmutation in thermal or fast neutron field due to its little fission cross section. Its transmutation ability can be improved if transmutation occurs in a high fluxes resonance energy area. The two-stage transmutation strategy is presented according to their characteristics in the thermal, well thermalized, and fast neutron field. Based on the two stage transmutation concept, the transmutation is performed in a well thermalized neutron field first. Small amount of residual of the first stage transmutation is transmuted in a thermal field with a spectrum. It is expected to achieve a good result.

Keywords MA; transmutation strategy; well thermalized neutron field

0 引言

核能的发展必须考虑核燃料的供应、核电站的建设、乏燃料的处理与处置等整个核燃料循环链。核燃料循环相关问题的研究对中国的核能发展战略、核能的经济性以及核能的安全性有着十分重要的影响。

随着中国核电的积极发展, 待处理的乏燃料总量会有明显的增加, 如何妥善处理这些乏燃料特别是乏燃料中具有很

长半衰期的高放射性毒性废物, 其中包括钚的同位素及 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 、 ^{245}Cm 等称为次锕系 (Minor Actinides, MA) 的核素将关系到中国核能能否大规模进一步发展的重要问题^[1-3]。

国际上, 早在 20 世纪 60 年代就提出分离嬗变 (Partitioning and Transmutation, P&T) 方法, 处理这些长寿命、高放射性的废弃物。

收稿日期: 2010-09-15; 修回日期: 2011-02-16

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (973 计划) 项目 (2007CB209900)

作者简介: 左国平, 博士研究生, 研究方向为核能科学与工程, 电子信箱: zuogp@yahoo.com.cn

对于钚,一般当作燃料处理,这样分离嬗变的主要对象便是 MA。有关 MA 嬗变,已开展了大量研究工作^[4-6],内容涉及轻水堆、重水堆、快堆、专烧堆、混合堆、聚变堆以及加速器驱动次临界系统(Accelerator Driven System, ADS)等多种堆型。

考虑到热中子堆是目前核能发电的主要堆型,具有丰富的设计、运行经验以及较高的公众接受度。在热中子堆上开展嬗变研究具有重要意义,但热堆嬗变的主要问题是嬗变效率较低,如何提高嬗变效率成为热堆嬗变的关键。

本文拟通过分析主要次锕系核素在各种中子谱的嬗变特性,特别是在热中子谱中的嬗变特性,探索热中子堆中有效嬗变 MA 新策略,为中国核能发展提供有益的帮助。

1 乏燃料的累积量预测

《核电中长期发展规划》提出,到 2020 年,核电运行装机容量争取达到 40GW,在建核电容量约 18GW。为了快速推进核电建设,近来准备把这一目标再次进行调整。本文根据国内核电发展目标,首先初步研究了中国 2050 年前核燃料循环情景。方案假设 2020 年中国的装机容量为 40GW,2050 年为 150GW,并假定核电按如下规律增长:

$$P(t) = P_0(1+r)^t \quad (1)$$

其中, $P(t)$ 为第 t 年核电装机容量, r 为核电增长率, P_0 为 2010 年的核电装机容量,2010 年以前以实际装机量为参数,2010—2050 年按式(1)的指数规律增长,核电装机容量预测如图 1 所示。以此模型为基础,并假定 2050 年前核电装机全部为压水堆;2015 年前的燃料燃耗为 $33\text{GW}\cdot\text{d/t}$,2015 年后燃料燃耗为 $50\text{GW}\cdot\text{d/t}$;2010 年前的装机容量因子为 85%,2010 年后的装机容量因子为 90%。利用 IAEA 提供的核燃料循环模拟系统 NFCSS,对整个燃料循环过程进行了模拟。NFCSS 可以对包括铀资源需求、分离功需求、乏燃料的年卸料量和历年累积量,超铀元素及其同位素的年卸料量和历年累积量,以及裂变产物的累积量等在内的整个燃料循环链进行模拟。根据假定模型,2050 年乏燃料累积量将达到 54791t,其中 MA 为 57.89t (^{237}Np , 42.91t; Am, 11.17t; Cm, 3.81t), FP 为 2778t,如图 2、图 3 所示。

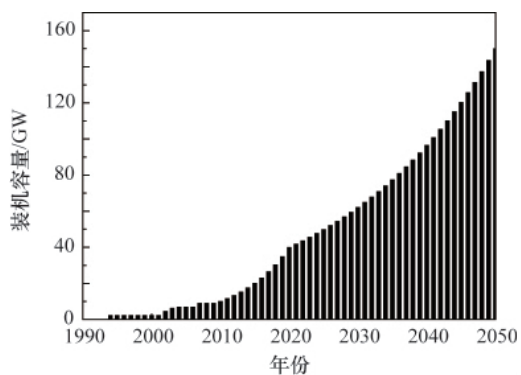


图 1 装机容量预测

Fig. 1 Forecast for envisaged nuclear power capacity

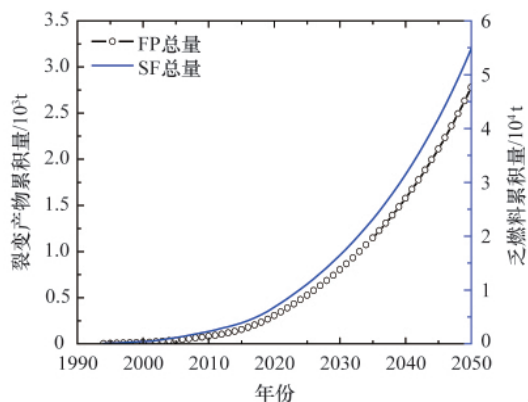


图 2 乏燃料和裂变产物累积量预测

Fig. 2 Forecast for accumulated amounts of spent fuel and fission products

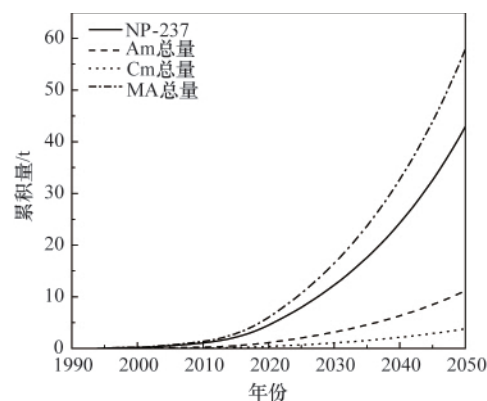


图 3 MA 累积量预测

Fig. 3 Forecast for accumulated amounts of MA

《核电中长期发展规划(2005—2020)》指出,中国坚持走核燃料闭式循环的技术路线,即对乏燃料进行后处理,采取分离-嬗变策略。根据核电的未来发展目标以及核燃料循环链的工业现状,可见未来中国核燃料循环产业将面对前所未有的发展机遇和严峻的挑战^[7]。

2 MA 在不同能谱中的特性

长寿命高放废物包括长寿命锕系核素和长寿命裂变产物。根据对核电站废物的潜在生物危害性分析,核电站废物的远期风险取决于长寿命高放废物,其中主要是钚的同位素,以及 Np-237、Am-241、Am-243、Cm-244、Cm-245 等次锕系核素及 Tc-99、I-129 等长寿命裂变产物。分离出的 MA 必须进行嬗变处理,而且效率要尽量高,否则分离过程就失去意义^[8]。原则上热中子场、快中子场都可用于 MA 的嬗变。

快中子可以裂变所有锕系核素,但裂变截面比较小。在快堆中嬗变时,质量数更大的锕系核素的积累比在热堆中嬗变时慢。MA 的裂变与俘获截面比随中子平均能量增加而增加。临界快堆嬗变的主要缺点是由于较小的温度反馈系数,冷却剂的正空泡反应性引入及较小的缓发中子份额导致较

差的安全裕量^[9]。

相对快中子谱而言,在热中子谱中,MA 中的许多核素都具有较大的热裂变截面和有效裂变中子数,这些特征都有利于 MA 的嬗变。

为了方便讨论和比较各核素的可嬗变特性,采用 NJOY 软件和 ENDF/B-VII 评价库,计算了主要 MA 核素在不同中子场中的平均等效截面,如表 1 所示,其中中子能谱模型取自文献[10]。可以看出,对于大部分 MA,其截面在充分热化中子场中最大,所有核素在快中子场中的截面都非常小。例如,²³⁸Np 在充分热化中子场的截面是热中子场的 8 倍,是快中子场的 1800 倍。但另一方面,²⁴⁶Cm 的充分热化中子场截面比热中子场小。在所有 MA 核素中,²⁴⁶Cm 具有最小的截面,这将强烈影响 MA 的嬗变性能。

表 1 主要 MA 核素的有效截面
Table 1 Effective cross section of main MA nuclides

MA 核素	e/f	截面/b		
		充分热化中子场	热中子场	快中子场
Np-237	e	117.191	35.124	1.834
	f	0.021	0.491	0.311
Np-238	e	124.581	16.316	0.112
	f	1243.122	160.035	0.711
Am-241	c(g)	367.051	102.414	1.741
	c(m)	45.311	12.616	0.218
	c(t)	412.313	115.018	1.961
	f	2.214	1.131	0.261
Am-242m	e	966.521	130.118	0.587
	f	4899.023	665.317	3.271
Am-242	e	3400.031	372.814	3.271
	f	1322.033	187.516	0.651
Am-243	c(g)	3.591	2.572	0.091
	c(m)	68.211	48.725	1.682
	c(t)	71.812	51.317	1.771
	f	0.113	0.434	0.189
Am-244m	e	306.214	48.038	0.802
	f	1220.031	191.321	3.381
Am-244	e	394.112	54.715	0.851
	f	1528.043	214.713	3.382
Cm-243	e	79.414	13.722	0.409
	f	405.325	86.411	3.168
Cm-244	e	17.313	16.034	0.771
	f	0.715	0.816	0.408
Cm245	e	181.616	20.115	0.368
	f	1076.021	126.912	2.787
Cm-246	e	2.072	3.093	0.377
	f	0.141	0.534	0.271

3 MA 嬗变途径探讨

从表 1 可以看出,不同 MA 核素在 3 种中子场中表现出不同的特性,所以有关 MA 核素的嬗变需要区别对待,下面就每个核素的特性加以分析,以探讨其嬗变的策略问题。

3.1 ²³⁷Np 的嬗变

²³⁷Np 在充分热化中子场中具有较大的俘获截面和很小的裂变截面,其俘获/裂变比是热中子场的 80 多倍,约为快中子场的 1000 倍,从这一点看,在快中子场中嬗变 ²³⁷Np 是比较有利的。然而,²³⁷Np 在充分热化中子场中通过俘获反应后生成具有大裂变截面(1243b)和较短半衰期(2.1d)的 ²³⁸Np。在低通量水平时,大部分 ²³⁷Np 发生衰变反应;如果能提供一个高通量水平的中子场,则可使得大部分 ²³⁸Np 在发生衰变之前裂变掉,文献[5]指出,当中子通量水平为 10¹⁶n/(cm²·s)时,约 70%的 ²³⁷Np 发生了裂变反应,因此在充分热化的中子场中嬗变 ²³⁷Np 是比较适合的。

3.2 ²⁴¹Am 的嬗变

²⁴¹Am 在热中子场中辐照时的反应路径如图 4 所示。不论是热中子场还是快中子场中,²⁴¹Am 的主要反应均为 (n,γ) 反应。在快中子场中的俘获/裂变比仅为 8,而在热中子场中为 101,在充分热化的热中子场中达 187,所以在快中子场中裂变和俘获过程竞争的更为激烈。

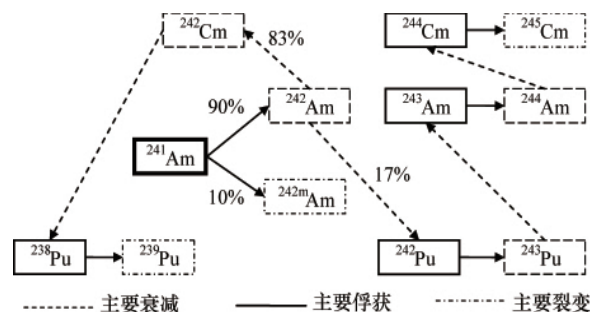


图 4 ²⁴¹Am 在热中子谱中辐照时的反应路径
Fig 4 ²⁴¹Am reaction path in the thermal neutron spectrum

从图 4 可以看出,在热中子场中 ²⁴¹Am 通过俘获反应生成 ^{242m}Am, ²⁴²Am 的分支比分别为 10%、90%;而在快中子场中,它们的分支比分别为 15%、85%。在热中子谱和快中子谱中,^{242m}Am 主要是通过裂变反应嬗变的。²⁴²Am 半衰期为 16h,可以发生 β 衰变生成 ²⁴²Cm(分支比 83%);也可以发生 β 衰变变成 ²⁴²Pu(分支比 17%)。²⁴²Cm(半衰期为 160d)通过 α 衰变生成 ²³⁸Pu,然后通过辐射俘获反应生成 ²³⁹Pu, ²³⁹Pu 最终通过裂变反应而嬗变。²⁴²Pu 通过辐射俘获生成 ²⁴³Pu(半衰期 5h),然后衰变为 ²⁴³Am,再通过衰变和俘获反应生成 ²⁴⁴Am、²⁴⁴Cm 和 ²⁴⁵Cm。²⁴⁵Cm 最终通过裂变反应而嬗变。

所以,通过增加 ²⁴¹Am 的俘获反应,使之沿着具有大裂变截面和高裂变俘获比的高铀系核素路径发展,将有利于 ²⁴¹Am 的嬗变。这样,在一个高通量的充分热化的中子场中辐照

^{241}Am 将是有利的(例如中子通量水平为 $10^{14}\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 时的俘获概率为 4%, 在 $10^{16}\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 时的俘获概率为 53%), 其嬗变效果要比快中子场好得多^[11]。

3.3 ^{246}Cm 的嬗变

不论在热中子场, 还是快中子场以及充分热化中子场, 所有 MA 中 ^{246}Cm 的反应截面最小, 所以不论是在热中子场及快中子场, ^{246}Cm 的嬗变效率都不会很高。从表 1 比较可以发现, ^{246}Cm 在快中子场中的俘获/裂变比比其他两个中子场都要小, 所以快中子场更适合于 ^{246}Cm 的嬗变。另外, ^{246}Cm 在 1~100eV 能量范围内有几个较小的共振峰存在, 且共振峰截面较大(5.5b), 所以这一区域的平均截面比热区的平均截面要大, 如果能在这一区域提供高通量的中子, 则可以提高 ^{246}Cm 的嬗变效率。

3.4 MA 的嬗变

从上面的分析看, 在高通量的充分热化中子场中辐照 MA 是一种可行的方法, 但 ^{237}Np 、 ^{241}Am 与 ^{246}Cm 的嬗变需要区别对待, 前两者在一个较软的能谱中嬗变效果较好, 而后者则在一个较硬的能谱(1~100eV)中嬗变较好。综合上面的结果, 对 MA 可以采取两阶段的嬗变策略, 即: Np 、 Am 先在高通量充分热化的热中子场中辐照, 如压水堆的反射层, 或特制的慢化靶件中; 然后把分离出来的 Cm 在稍硬中子场中辐照, 如热堆中心区域或者快中子堆边缘等, 则可以获得较好的嬗变效果。

4 讨论与结论

近来, 由于中国经济的快速发展, 能源供需矛盾日益突出, 再加上国际社会和中国对低碳经济的要求, 国家能源局正计划对原核电发展规划进行调整, 建议将 2020 年中国核电运行装机容量调整为 70~80GW, 核电在发电总量中占比达 5%~6%。随着核能的快速发展, 就目前看, 中国核燃料产业未来将面对严重挑战。

闭式燃料循环路线必然要对乏燃料进行后处理, 而 MA 的嬗变是乏燃料后处理中的一个重要问题, 对中国核能的未来发展有着重要的影响。不同的次锕系核素有有着不同的嬗变特性, 在充分热化中子场及热中子场中 ^{237}Np 的嬗变效率会随着中子通量水平的提高而提高; 相反 ^{241}Am 在较低通量的热中子场中有利于嬗变; ^{246}Cm 的嬗变要特别考虑, 可在一个高

通量的较硬(1~100eV)的能谱区域进行嬗变, 效果会更好。

基于以上分析, 一种可能的 MA 嬗变策略是: MA 的嬗变分两步进行, 首先把 MA 放在高通量的充分热化的中子场中进行辐照, 然后从中分离出 Cm 在较硬的中子场进行辐照。采取这种嬗变策略有望达到较好的嬗变效率。

参考文献 (References)

- [1] 周培德. 我国核电发展中少数锕系核素积累量预测[J]. 核科学与工程, 2000, 20(1): 11-17.
Zhou Peide. *Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering*, 2000, 20(1): 11-17.
- [2] 徐晓勤. 加速器驱动次临界系统嬗变少锕系核素 [J]. 核动力工程, 1998, 19(2): 188-192.
Xu Xiaoqin. *Nuclear Power Engineering*, 1998, 19(2): 188-192.
- [3] 杨永伟, 古玉祥. 次锕系元素在加速器驱动的次临界堆中嬗变的研究[J]. 高技术通讯, 2001, 11(2): 103-106.
Yang Yongwei, Gu Yuxiang. *Journal of High Technology Letters*, 2001, 11(2): 103-106.
- [4] Salvatore M, Slessarev I, Umatsu M. A global physics approach to Transmutation of Radioactive Nuclei [J]. *Nuclear Science and Engineering*, 1994, 116(1): 1-18.
- [5] Takeda T, Yokoyama K. Study on neutron spectrum for effective transmutation of minor actinides in thermal reactors [J]. *Annals of Nuclear Energy*, 1997, 24(9): 705-719.
- [6] Masumi R, Aoyama M. Minor actinide transmutation in BWR cores for multi-recycle operation with less minor actinide-to-fissile plutonium amount ratio [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 1995, 32(10): 13-18.
- [7] 李冠兴. 中国核燃料循环产业面临的挑战和机遇 [J]. 铀矿地质, 2008, 24(5): 257-267.
Li Guanxing. *Uranium Geology*, 2008, 24(5): 257-267.
- [8] 罗璋琳. 核废料核素价值研究[J]. 原子能科学技术, 2004, 38(3): 283-288.
Luo Zhanglin. *Atomic Energy Science and Technology*, 2004, 38(3): 283-288.
- [9] Chang Y I. The integral fast reactor[J]. *Nuclear Technology*, 1989, 88(2): 129-138.
- [10] Tomohiko I. Nuclide characteristics of actinide for rapid and perfect transmutation of minor-actinide by using thermal neutron field [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2002(S2): 1089-1092.
- [11] Berthou V, Degueldre C, Magill J. Transmutation characteristics in thermal and fast neutron spectra: Application to americium [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2003, 320(1-2): 156-162.

(责任编辑 朱宇)



《科技导报》“封面文章”栏目征稿

为快速反映我国最新科技研究成果,《科技导报》开设“封面文章”栏目, 将最新科研成果第一时间在我刊最显著位置——封面上突出报道。来稿要求: 研究成果具创新性或新颖性; 反映该领域我国乃至世界前沿研究水平; 可以图片形式予以反映, 图片美观、清晰、分辨率超过 300dpi; 文章篇幅不限, 要说明研究的背景、方法、取得的结果, 以及结论。在线投稿: www.kjdb.org。