

压水堆中涂层式轴向非均匀MA/⁶LiD嬗变棒的嬗变性能研究

叶滨¹ 费小丹¹ 姬彦玲¹ 熊思嘉¹ 李波¹ 王小胡²

1(西南科技大学 国防科技学院 绵阳 621010)

2(深圳技术大学 先进材料测试技术研究中心 深圳 518118)

摘要 为提高次锕系核素(Minor Actinides, MA)在压水堆中的嬗变效率,同时利用MA核素展平堆芯轴向功率分布,以华龙一号(HPR1000)177压水堆堆芯结构作为参考,研究利用热-快中子转换材料⁶LiD设计的涂层式轴向非均匀MA/⁶LiD嬗变棒性能。嬗变棒内部为UO₂,外部为MA核素与⁶LiD混合组成的嬗变涂层材料,该涂层材料在嬗变棒上的布局为轴向三、五、七段式结构,涂层厚度由中间向两端依次减小。计算研究嬗变棒在堆芯内照射540 d的嬗变性能发现,当嬗变涂层材料中⁶LiD与MA的质量之比为2:8时,嬗变率达到23.25%的最好效果;涂层式轴向三、五、七段式非均匀嬗变棒中七段式嬗变棒的嬗变率最高,为25.43%,三段式非均匀嬗变棒的裂变效果最好,MA核素裂变率为4.48%;同时该轴向非均匀结构的嬗变棒可将堆芯轴向功率峰因子由1.778降低至1.375。研究结果表明:相较于轴向均匀的嬗变棒,轴向非均匀嬗变棒不仅具有较高的嬗变效率,而且具有良好的轴向功率展平效果。

关键词 压水堆, MA, 嬗变棒, 嬗变率, 展平轴向功率

中图分类号 TL24

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.020604

Transmutation properties of coated axially non-uniform MA/⁶LiD transmutation rods in PWR

YE Bin¹ FEI Xiaodan¹ JI Yanling¹ XIONG Sijia¹ LI Bo¹ WANG Xiaohu²

1(School of National Defense Science and Technology, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

2(Center for Advanced Material Diagnostic Technology, Shenzhen Technology University, Shenzhen 518118, China)

Abstract [Background] The nuclear transmutation is the only way to reduce the radioactive hazard of the high level long-lived radioactive minor actinides (MA). The majority of commercial reactors in operation in the world are pressurized water reactor (PWRs), hence the transmutation efficiency of minor actinide nuclide (MA) in PWR are crucial problem in the area of the nuclear waste disposal. [Purpose] This study aims to improve the transmutation efficiency of MA and flatten the core power distribution by using MA nuclide for PWR. [Methods] First of all, the HPR1000 (Hualong #1) model 177 core structure was taken as reference PWR, thermal-fast neutron convertible material ⁶LiD was introduced to design coated axially non-uniform MA/⁶LiD transmutation rods which structurally applicable to the PWR. The internal component of the transmutation rods was UO₂, and the external component was

国家自然科学基金(No.12005178、No.12075196)、四川省科学基金项目(No.2022NSFSC1242)资助

第一作者: 叶滨, 女, 1981年出生, 2017年于四川大学获博士学位, 研究领域为核反应堆物理及高放废物的嬗变, E-mail: 84370227@qq.com

收稿日期: 2022-07-08, 修回日期: 2022-09-28

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 12005178, No. 12075196), Science Foundation of Sichuan Province (No. 2022NSFSC1242)

First author: YE Bin, female, born in 1981, graduated from Sichuan University with a doctoral degree in 2017, focusing on nuclear reactor physics and transmutation of high level radioactive waste, E-mail: 84370227@qq.com

Received date: 2022-07-08, revised date: 2022-09-28

the transmutation coating material composed of MA and ${}^6\text{LiD}$ nuclides. The layout of the coating material on the transmutation rods was axially three, five and seven segments structure, and the coating thickness gradually decreased from the middle to both ends. Then, the Monte Carlo program RMC2.0 developed by the Reactor Engineering Calculation and Analysis Laboratory of Tsinghua University was employed to establish the core and calculate the effect of transmutation coating material composition on core k_{eff} . **[Results]** The results show the best transmutation effect up to 23.25% is realized when the mass ratio of ${}^6\text{LiD}$ to MA in the transmutation coating material is 2 : 8. Among the coated axially nonuniform transmutation rods, the seven-segment transmutation rod has the best transmutation effect, and the transmutation rate is 25.43%. The best fission effect of three-segment transmutation rod has the fission rate of 4.48% for MA nuclide. At the same time, the transmutation rod with axial non-uniform structure can reduce the axial power peak factor of the core from 1.778 to 1.375. **[Conclusions]** Compared with axially uniform rods, these axially non-uniform MA/ ${}^6\text{LiD}$ transmutation rods have good transmutation efficiency, especially the fission rate, and good performance on flatten axial power distribution is achieved, simultaneously.

Key words PWR, Minor actinide nuclide (MA), Transmutation rods, Transmutation rate, Flatten axial power distribution

核能事业迅猛发展的同时,具有放射性的乏燃料也在快速积累,如何安全有效地处理乏燃料已成为影响核能事业发展的重要课题。乏燃料中的次锕系核素(Minor Actinides, MA, 包含 ${}^{237}\text{Np}$ 、 ${}^{241}\text{Am}$ 、 ${}^{243}\text{Am}$ 、 ${}^{244}\text{Cm}$ 等核素)半衰期较长(如 ${}^{237}\text{Np}$: $T_{1/2}=2.14\times 10^6$ a),是高放废物的主要放射性来源。分离-嬗变技术是当前国际上普遍认可的高放废物处理方法,即采用化学分离技术将高放废物中寿命长和强放射性核素分离出来,在反应堆或加速器中使其嬗变为稳定的或短寿命的核素,从而减少放射性的长期危害,并实现高放废物的减容。从现今世界核电发展状况来看,压水堆在运、在建数量均居各种堆型之首,是当今世界发展的主导堆型^[1]。因此,研究利用压水堆嬗变MA核素对于减少高放废物的积累量具有重要意义。美国^[2-5]、日本^[6-7]等、国内的华北电力大学、西安交通大学和中国原子能科学研究院等单位对热中子堆嬗变MA核素进行了比较深入的研究^[8-12]。为提高MA核素的裂变率,通常将MA核素与 UO_2 、MOX、Pu等裂变材料混合之后设计成棒状结构在堆芯内辐照。研究结果表明:热中子堆可以有效嬗变MA核素,但是焚毁率(即裂变率)不够理想,比如MA核素在压水堆内辐照500 d后的裂变率不足1%,主要原因就是热中子堆的中子平均能量较低。

因此,本工作将引入热-快中子转换材料 ${}^6\text{LiD}$ 来提高压水堆中MA的嬗变效率,尤其是裂变率,同时研究利用MA核素展平堆芯轴向功率的可行性。

1 压水堆堆芯结构及参数

采用的堆芯结构及参数主要参考华龙一号(HPR1000)的177堆芯^[13],堆芯活性段高度为

365.76 cm,等效直径为322.8 cm;反应堆输出热功率为3 050 MW。采用2.4%、3.1%、4.4%三种不同富集度的燃料组件^[13],较低富集度的两种组件按不完全棋盘格式排列在堆芯内区,最高富集度的组件装载在堆芯外区。堆芯参数见表1。

表1 压水堆堆芯主要技术参数
Table 1 Parameters of PWR core

堆芯参数 Core parameter	设计值 Data used in simulation
堆芯活性段 Active core height / mm	3 657.6
堆芯等效直径 Equivalent diameter / mm	3 228
燃料富集度/组件数 Enrichment and assemblies number	177 (2.4%/61+3.1%/68+4.4%/48)
燃料密度 Density of UO_2 / $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	10.41
燃料棒排列方式 Fuel assembly pattern	17×17
包壳材料 Cladding material	Zr合金 Zircaloy
包壳厚度 Cladding thickness / mm	0.57
包壳外径 Cladding out radius / mm	9.5
燃料棒间距 Space between fuel rods / mm	13
UO_2 芯块直径 UO_2 fuel diameter / mm	8.192

2 计算方法与手段

利用蒙特卡罗程序RMC2.0^[14]搭建堆芯并开展计算研究,数据库为ENDF/B-VII。RMC2.0是清华大学反应堆工程计算分析实验室开发的适用于多种堆型的蒙特卡罗输运软件。RMC针对包括压水堆

在内的各种堆型的计算,已经开展过系列验证^[14-16]。计算结果的相对误差控制在0.1%以内。堆芯无毒、冷态时有效增殖系数(k_{eff})为1.377(剩余反应性为0.274),堆芯结构满足设计要求。

3 涂层式非均匀MA/⁶LiD嬗变靶的设计方案

MA核素成分为压水堆燃料组件达到卸料燃耗深度33 GWd·t⁻¹卸料后在乏燃料水池中冷却3 a后的摩尔成分,如表2所示^[17]。MA核素在不同能谱下的俘获裂变比列于表3^[18],由表3可以看出,各核素在快谱中的俘获裂变比 α 不足热谱中相应数值的1/10,说明MA核素在快谱中的裂变率远大于热谱。

表2 MA核素的成分
Table 2 Composition and molar fraction of MA

核素 Isotopes	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm
比例 Nuclide ratio / %	56.2	26.4	12	5.4

表3 主要MA核素在不同能谱下的俘获裂变比
Table 3 Capture-to-fission ratio for main nuclides of core fuel

核素 Isotopes	热谱 Thermal	快谱 Fast
²³⁷ Np	63	5.3
²⁴¹ Am	100	7.4
²⁴³ Am	111	8.6
²⁴⁴ Cm	16	1.4

为了提高MA核素的嬗变率,尤其是裂变焚毁的概率,本工作将MA与热-快中子转换材料混合进行嬗变。加拿大、日本以及国内等人研究^[19-22]发现,在LiNO₃-D₂O、LiOD-D₂O和⁶LiD这几种热-快中子转换材料中⁶LiD的转换效率最高,可达10⁻⁴。故而

本工作选择⁶LiD进行热-快中子转换,研究并设计涂层式MA/⁶LiD嬗变棒。⁶LiD材料可以有效提高MA核素所在区域的中子平均能量,进而提高MA核素在压水堆中的裂变率。其原理为:⁶LiD将入射的部分热中子转化为能量为14 MeV左右的快中子,该快中子再去引发临近MA核素发生裂变,进而提高MA核素的裂变率。转换热中子得到14 MeV中子的反应链如图1所示。

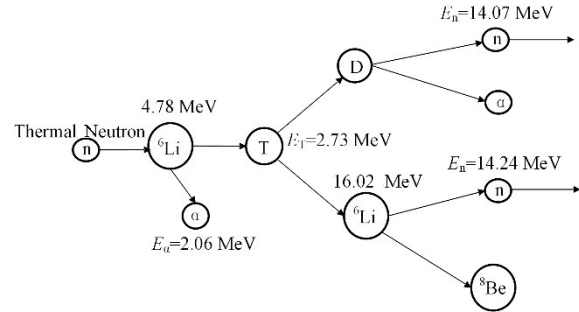


图1 热中子与⁶LiD的核反应链
Fig.1 Nuclear reaction chain of thermal neutron in ⁶LiD

14 MeV中子可由氘-氚反应产生,核反应为:

$$D + T \rightarrow \alpha(3.52 \text{ MeV}) + n(14.07 \text{ MeV}) \quad (1)$$

$$T + {}^6\text{Li} \rightarrow {}^8\text{Be}(1.78 \text{ MeV}) + n(14.24 \text{ MeV}) \quad (2)$$

由于MA核素具有较大的热中子俘获截面,堆芯添加MA核素后 k_{eff} 会下降^[10],于是嬗变棒材料除使用MA核素外同时引入UO₂燃料,即在UO₂(²³⁵U: 2.4wt%)芯块外涂覆由⁶LiD和MA混合组成的嬗变材料,以补偿堆芯添加MA核素导致的 k_{eff} 下降。为了避免嬗变棒对压水堆堆芯中子能谱产生严重影响,对嬗变棒在堆芯内的数量进行控制。在嬗变棒几何结构设计方面,考虑嬗变棒除了具有良好的嬗变效率之外,还能兼具展平堆芯轴向功率分布的作用。因此,嬗变棒的嬗变涂层轴向设计为分段式结构。

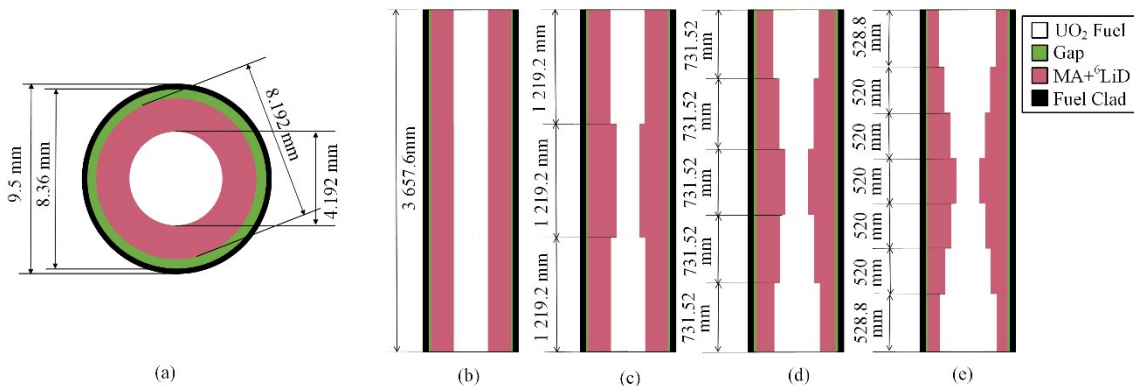


图2 嬗变棒结构示意图

(a) 嬗变棒径向结构, (b) 轴向均匀嬗变棒, (c) 轴向三段式嬗变棒, (d) 轴向五段式嬗变棒, (e) 轴向七段式嬗变棒
Fig.2 Schematic diagram of transmutation rods (a) Radial structure of transmutation rod, (b) Axial uniform transmutation rod, (c) Axial three-segment transmutation rod, (d) Axial five-segment transmutation rod, (e) Axial seven-segment transmutation rod

嬗变棒在几何结构上,嬗变涂层外径与堆芯使用的 UO_2 燃料棒外径相同,研究工作中通过改变嬗变涂层内径尺寸达到改变涂层厚度的目的,总体来讲,嬗变棒涂层厚度为中间高、两端低。这里以轴向三段式嬗变棒为例进行说明,嬗变棒中间段涂层厚度为3 mm,两端厚度为2 mm,内部 UO_2 材料的直径分别为2.192 mm和4.192 mm,即保持嬗变棒外径为定值。除三种轴向非均匀嬗变棒之外,还设计了轴向均匀的嬗变棒以对嬗变效果和轴向功率展平效果进行对比。轴向均匀以及非均匀嬗变棒结构均示于

图2。嬗变棒参数具体可见表4。

考虑到嬗变棒之间的空间自屏效应以及对堆芯 k_{eff} 等安全参数的影响,将嬗变棒布置在富集度为3.1%、2.4%的燃料组件内,每个组件内布置16根嬗变棒,嬗变棒在组件内的布置方案如图3所示,堆芯内共装载1 536根嬗变棒。随后对嬗变棒的结构参数、堆芯装载嬗变棒的 k_{eff} 、中子能谱,以及嬗变棒在堆芯内接受540 d中子照射后的嬗变率和裂变率以及轴向功率展平效果进行计算研究。

表4 MA 嬗变棒的主要参数
Table 4 Parameters of MA transmutation rod

参数 Parameters	设计值 Data used in simulation
包壳材料 Cladding material	锆合金 Zircaloy
包壳厚度 Cladding thickness / mm	0.57
包壳外径 Cladding out radius / mm	9.5
轴向均匀嬗变棒 MA 涂层厚度 MA coating thickness of axial-uniform transmutation rods / mm	2
轴向三段式嬗变棒 MA 涂层厚度 MA coating thickness of axial-three-segment transmutation rods / mm	2, 3, 2
轴向五段式嬗变棒 MA 涂层厚度 MA coating thickness of axial-five-segment transmutation rods / mm	1, 2, 3, 2, 1
轴向七段式嬗变棒 MA 涂层厚度 MA coating thickness of axial-seven-segment transmutation rods / mm	0.5, 1, 2, 3, 2, 1, 0.5
嬗变棒高度 Height of transmutation rods / mm	3 657.6

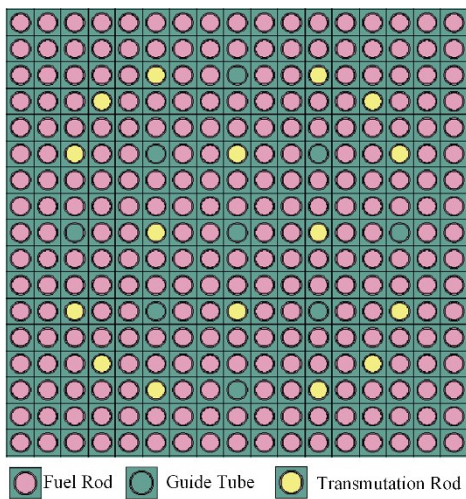


图3 MA 嬗变棒在燃料组件中的位置分布(彩图见网络版)

Fig.3 Position distribution of transmutation rods in fuel assembly (color online)

4 嬗变棒对堆芯 k_{eff} 及中子能谱的影响

在研究嬗变涂层材料成分对堆芯 k_{eff} 的影响时,设置嬗变涂层厚度为2.0 mm,调整材料的质量比例(${}^6\text{LiD}:\text{MA}=1:9,2:8,3:7,4:6,5:5,6:4,7:3,8:2,9:1$),分析研究 ${}^6\text{LiD}$ 与MA的比例对堆芯 k_{eff} 的影响,结果如图4所示。由图4可见,堆芯载嬗变材料后 k_{eff} 首先整体有所降低,随后随 ${}^6\text{LiD}:\text{MA}$

比例的增大呈现先增大后减小的趋势,当 ${}^6\text{LiD}$ 与MA的比例为2:8时,系统 k_{eff} 达到最大,为1.276。同时我们研究了当嬗变棒的涂层材料 ${}^6\text{LiD}:\text{MA}=2:8$ 、厚度为2 mm时对堆芯中子能谱的影响。此部分研究工作中,调整涂层厚度的同时,将嬗变棒内部 UO_2 芯块直径随之减小或增加同样尺寸,即控制 UO_2 与涂层厚度外径与原燃料芯块外径保持一致。

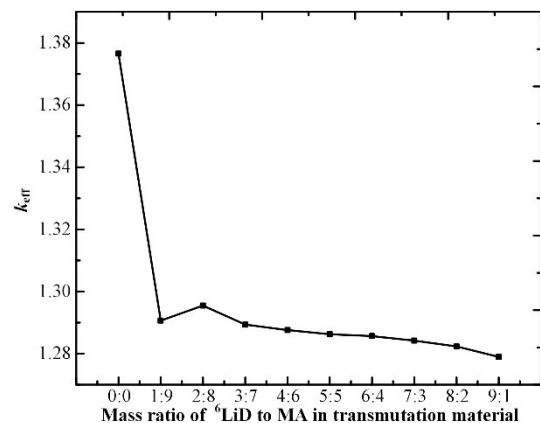


图4 嬗变棒中 ${}^6\text{LiD}/\text{MA}$ 比例对 k_{eff} 的影响
Fig.4 Effect on k_{eff} under different ${}^6\text{LiD}/\text{MA}$ ratio in transmutation cladding material

图5给出了嬗变棒对堆芯中子能谱的影响情况。由图5可以看出,装载嬗变棒后中子能谱在低能区存在较小程度的下降,且对高能区中子能谱影

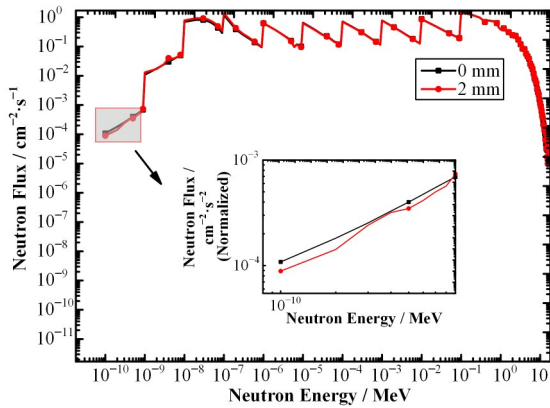


图5 嬗变材料⁶LiD:MA=2:8,厚度为2 mm时对堆芯中子能谱的影响

Fig.5 The effect on neutron spectrum while transmutation mass ratio of⁶LiD to MA is 2:8 and thickness is 2 mm

响较小。这是由于MA核素在中低能区具有较大俘获截面,导致堆芯装载嬗变棒后低能区出现能谱下降的现象。

5 嬗变涂层材料及厚度的优化设计

5.1 嬗变涂层材料⁶LiD/MA比例的选择

此部分工作研究了嬗变率随嬗变涂层材料⁶LiD与MA质量比例的变化情况(图6)。由图6可以明确看出,⁶LiD的比例并非越高越好,这是因为⁶LiD在进行热-快中子转换时存在一定的中子损耗,当⁶LiD在嬗变材料中所占比例越来越高时,中子损耗随之增加,这种损耗对嬗变产生不利影响,因为嬗变MA核素需要大量中子,当损耗程度不足以抵消其提高的嬗变率时,即出现⁶LiD含量越大,嬗变率越低的现象。但当⁶LiD含量过低时,又会出现快中子不足的情况,从而影响MA核素的裂变率,因此,出现当⁶LiD:MA=2:8时,MA核素的嬗变率达到最高的现象(图6),为22.43%。此处嬗变率的定义为:

$$\text{Transmutation rate} = \frac{M(\text{MA, BOL}) - M(\text{MA, EOL})}{M(\text{MA, BOL})} \quad (3)$$

式中: M (Mass)为核素总质量;BOL(Beginning of Cycle)为平衡态初期;EOL(Ending of Cycle)为平衡态末期。

5.2 嬗变涂层厚度的选择

在嬗变涂层厚度的选取方面,首先计算研究了热中子在嬗变涂层材料内的平均吸收自由程,结果为5 mm。为了尽可能减小空间自屏效应,选择5 mm以下尺寸作为嬗变涂层厚度,即0.1 mm、0.5 mm、1.0 mm、1.5 mm、2.0 mm。在调整增减嬗变

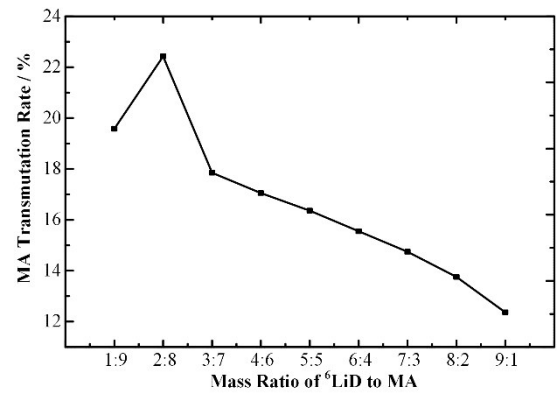


图6 嬗变涂层材料⁶LiD:MA质量比例对嬗变率的影响
Fig.6 Effect on transmutation rate of mass ratio of⁶LiD to MA in transmutation material

涂层厚度时,嬗变棒内部的UO₂芯块半径随之减少或增加同样尺寸。表5给出了⁶LiD:MA=2:8的条件下嬗变涂层厚度不同时MA核素在堆芯内接受辐照540 d后的嬗变情况。由表5可明确看出,随着嬗变涂层厚度的增加,MA核素的嬗变率逐渐减小,而裂变率随之上升,即当嬗变层厚度为0.1 mm时嬗变率最高,当嬗变层厚度为2 mm时裂变率最高。造成这种结果的原因主要有:1)嬗变层越薄,中子越容易进入嬗变层与MA核素发生俘获或者裂变反应,所以0.1 mm嬗变率最高;2)2 mm裂变率最高是因为此时由⁶LiD转换生成的高能中子较多,MA核素发生裂变的概率提高。这里的裂变包括了MA核素的直接裂变以及MA核素俘获中子后生成的子核的裂变。总的裂变率统计方法^[24]为:

$$\text{Fission rate} = \frac{M(\text{MA, BOL}) - M(\text{HN, EOL})}{M(\text{MA, BOL})} \quad (4)$$

式中:HN为重核核素(Heavy Nuclide),总质量 M 选取重核核素为原子序数高于²³⁷Np的核素。

6 轴向非均匀MA嬗变棒的嬗变效果分析

6.1 轴向非均匀MA嬗变棒的嬗变率研究

将4种不同结构的轴向非均匀MA嬗变棒装入堆芯,计算研究反应堆满功率运行540 d内MA核素的嬗变情况。540 d内MA核素的原子核密度变化情况如图7所示,由图7可以看出,对于4种不同结构的轴向非均匀MA嬗变棒来讲,首先分段式嬗变棒嬗变效果优于均匀棒;其次,在三种分段式嬗变棒结构中,七段式嬗变棒的嬗变效果最好。说明轴向分段结构的嬗变棒能够更为充分地利用堆芯中心区域较高的中子通量密度。

在嬗变量方面,由表6可以看出,堆芯满功率运

表5 轴向均匀嬗变棒的嬗变层厚度不同时MA核素在堆芯内接受辐照540 d后的嬗变情况(${}^6\text{LiD:MA}=2:8$)
Table 5 Transmutation condition based on different transmutation coating thickness after 540-day-exposure (${}^6\text{LiD:MA}=2:8$)

核素 Isotopes	涂层厚度 Cladding thickness / mm				
	0.1	0.5	1.0	1.5	2.0
${}^{237}\text{Np}$ 嬗变率 ${}^{237}\text{Np}$ Transmutation rate / %	25.82	21.83	21.04	20.59	20.38
${}^{241}\text{Am}$ 嬗变率 ${}^{241}\text{Am}$ Transmutation rate / %	60.16	45.98	42.22	40.09	38.99
${}^{243}\text{Am}$ 嬗变率 ${}^{243}\text{Am}$ Transmutation rate / %	25.96	21.86	21.80	21.80	21.94
${}^{244}\text{Cm}$ 嬗变率 ${}^{244}\text{Cm}$ Transmutation rate / %	-45.33	-36.56	-34.54	-33.55	-33.02
MA 嬗变率 MA transmutation rate / %	31.22	25.56	24.31	23.59	23.25
MA 裂变率 MA fission rate / %	3.67	3.83	3.88	3.92	3.94
MA 嬗变量 MA transmutation amount / kg	46.3	180.3	320.7	434.5	528.1

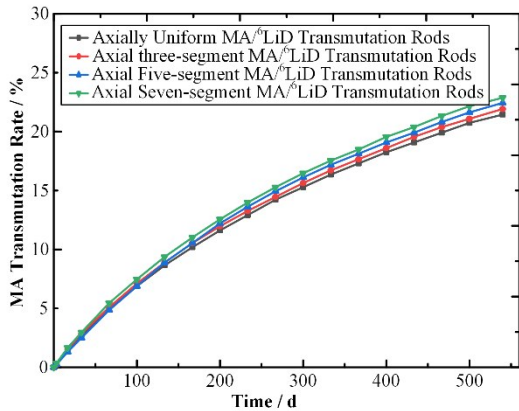


图7 嬗变棒轴向结构不同时MA核素嬗变率在540 d内的变化情况

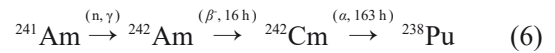
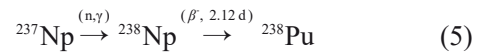
Fig.7 Variation of MA transmutation rate within 540 d with different axial structure of transmutation rods

行540 d后,三种非均匀嬗变棒均可嬗变数量可观的MA核素,百万千瓦级压水堆每年产生MA核素25.166 kg^[17],三段式嬗变棒可焚烧MA核素491.762 kg,在堆芯内运行540 d嬗变掉的MA核素相当于19.54座压水堆MA核素年产量,对于五段七

段式嬗变棒而言该数值分别为13.98座和11.95座。

6.2 轴向非均匀MA嬗变棒的裂变率研究

MA核素只有发生裂变(包括直接裂变和吸收中子生成新的核素发生裂变反应的间接裂变)才能达到焚烧的目的。这几种核素的裂变阈能均很高,在0.1~1 MeV之间,但它们在热能区的中子俘获截面很大。因此,在压水堆这样的热中子反应堆中这些核素的嬗变方式以俘获中子为主。通常首先通过俘获反应生成更高原子序数的重核素,这些重核素通常为易裂变核素或者其裂变俘获比大于初始MA核素,从而达到嬗变的目的。主要反应链见式(5~7):



由上述简化的反应链可以看出,MA中主要的核素均是通过发生中子俘获反应,并且主要的俘获产物均为 ${}^{238}\text{Pu}$,尤其是在中子平均能量较低区域,它

表6 堆芯运行540 d MA嬗变棒的嬗变率、裂变率及嬗变量
Table 6 Transmutation rate, fission rate and transmutation amount after 540-d-exposure

嬗变棒设计方案 Transmutation rods design scheme	单根嬗变棒中 MA的质量 MA mass of one transmutation rod / kg	MA总装载 质量 MA mass loaded in total / kg	MA总 嬗变率 MA transmutation rate in total / %	MA总 嬗变量 MA transmutation mass in total / %	MA总 裂变率 MA fission rate in total / %	等效MA年产 量·每堆 (PWR) Equivalence to the annual MA yield of a PWR
轴向均匀嬗变棒 Axial uniform transmutation rods	1.724	2 648.67	23.25	548.26	3.94	21.79
轴向三段式嬗变棒 Axial three-segment transmutation rods	1.489	2 287.27	24.05	491.76	4.48	19.54
轴向五段式嬗变棒 Axial five-segment transmutation rods	1.046	1 607.21	24.44	351.84	4.46	13.98
轴向七段式嬗变棒 Axial seven-segment transmutation rods	0.856	1 314.15	25.43	300.81	4.43	11.95

们的俘获截面更大,而²³⁸Pu的裂变能力远高于这几种MA核素,通过²³⁸Pu的裂变来焚毁MA核素是MA在热中子堆中嬗变的主要焚毁途径之一。嬗变率、裂变率、嬗变量均是衡量嬗变性能的重要指标。

经统计,堆芯运行540 d后分段式嬗变棒中MA核素的裂变率均高于轴向均匀的嬗变棒,三种分段式嬗变棒方案下,三段式嬗变棒方案下MA核素总裂变率最高,为4.48%(表6),远高于MA核素在压水堆中的裂变率(不足1%)。

7 嬗变棒的功率展平效果分析

功率峰因子是反应堆安全运行的重要参数,它的定义为:

$$K_H = \frac{q_{\max}}{\frac{1}{V} \int_V q(r) dV} \quad (8)$$

q_{\max} 是堆芯内的最大功率密度。堆芯内任意位置处的功率密度定义为:

$$q(r) = E_f \Sigma_f \Phi(r) \quad (9)$$

式中: E_f 裂变反应释放出的能量; Σ_f 核反应堆堆芯宏观反应截面; $\Phi(r)$ 堆芯内中子通量密度。

从式(9)可以看出,堆芯功率正比于堆芯中子通量密度分布,中子通量密度的空间分布决定了功率分布的非均匀程度。本工作中我们通过RMC2.0的TYPE1卡统计每个组件的中子通量密度。TYPE1直接输出的并非中子通量密度,要想得到真正的中子通量密度计数需要一个归一化因子进行转换^[17]。

计算公式如式(10)所示:

$$f = \frac{1}{1.602 \times 10^{-13}} \times \frac{1}{200} \times n \times P \quad (10)$$

其中:额定功率 $P=3\ 050$ MW, $n=2.46$,所以 $f=2.3 \times 10^{20} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ 。结合TYPE1卡输出数据以及转换因子可以得到不同嬗变棒方案下堆芯轴向中子通量密度分布情况(图8)。结合式(8~10),可以统计得到各种嬗变方案下堆芯轴向功率峰因子,结果列于表7。研究结果显示:相较于无嬗变棒的堆芯,插入轴向三段、五段、七段式嬗变棒后堆芯轴向中子通量密度均有不同程度地降低。轴向均匀嬗变棒在降低轴向功率峰因子方面优势较弱,分段式嬗变棒方案的轴向功率展平效果较为显著,其中轴向三段式嬗变棒的展平效果最优,可将堆芯轴向功率峰因子由初始的1.778降低至1.375。

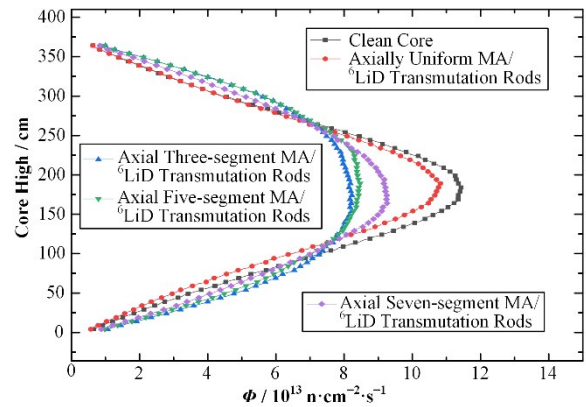


图8 不同嬗变棒方案下堆芯轴向中子通量密度分布情况
Fig.8 Axial neutron flux distribution in core when axial structure of transmutation rods is different

表7 轴向功率峰因子
Table 7 Axial power peak factor

嬗变棒结构 Transmutation rod structure	轴向功率峰因子 Axial power peak factor
干净堆芯 Clean core	1.778
轴向均匀嬗变棒 Axial-uniform transmutation rods	1.737
轴向三段式嬗变棒 Axial-three-segment transmutation rods	1.375
轴向五段式嬗变棒 Axial-five-segment transmutation rods	1.408
轴向七段式嬗变棒 Axial-seven-segment transmutation rods	1.546

8 结语

本文利用RMC研究了MA核素在⁶LiD的作用下的嬗变特性,设计了涂层式轴向三、五、七段式轴向非均匀MA/⁶LiD嬗变棒,并计算研究了该嬗变棒在堆芯内接受照射540 d内的嬗变性能及其轴向功率展平效果。主要结论如下:1)涂层式轴向非均匀嬗变棒的MA核素嬗变率和裂变率均高于均匀嬗变棒,涂层式轴向三、五、七段式非均匀嬗变棒中七段

式嬗变棒嬗变效果最好,嬗变率为25.43%;三段式嬗变棒的裂变效果最好,MA核素裂变率为4.48%;2)三种涂层式轴向非均匀嬗变棒设计方案均可有效降低堆芯轴向功率峰因子,其中三段式嬗变棒展平效果最好,可将堆芯轴向功率峰因子由1.778降低至1.375,表现出良好的轴向功率展平效果。本文的研究结果可以为我国利用压水堆嬗变MA核素提供重要的思路参考,为推动我国高放废物的嬗变方面提供理论依据。

作者贡献声明 叶滨:负责文章数据的模拟计算,起草撰写以及最终版本的修订;费小丹:负责文章数据的统计分析;姬彦玲:负责文章资料的查阅及整理;熊思嘉:负责文章资料的查阅及整理;李波:负责文章的修改;王小胡:负责文章的修改。

参考文献

- International Atomic Energy Agency. Nuclear power reactors in the world[R]. IAEA-RDS-2/42, Vienna: IAEA, 2022.
- Kazansky Y A, Romanov M I. Transmuting minor actinides with thermal reactor neutrons[J]. Nuclear Energy and Technology, 2015, **1**(3): 208 - 212. DOI: 10.1016/j.nucet.2016.02.002.
- Washington J, King J, Shayer Z. Target fuels for plutonium and minor actinide transmutation in pressurized water reactors[J]. Nuclear Engineering and Design, 2017, **313**: 53 - 72. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2016.11.033.
- Tincher D, Knight T W. Feasibility study of minor actinide transmutation in light water reactors with various Am/Cm separation efficiencies[J]. Nuclear Engineering and Design, 2011, **241**(12): 5295 - 5307. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2011.08.080.
- Iwasaki T. A study of transmutation of minor-actinide in a thermal neutron field of the advanced neutron source[J]. Progress in Nuclear Energy, 2002, **40**(3 - 4): 481 - 488. DOI: 10.1016/S0149-1970(02)00041-0.
- Galahom A A, Sharaf I M. Finding a suitable fuel type for the disposal of the accumulated minor actinides in the spent nuclear fuel in PWR[J]. Progress in Nuclear Energy, 2021, **136**: 103749. DOI: 10.1016/j.pnucene.2021.103749.
- Liu B, Wang K, Tu J, *et al.* Transmutation of minor actinides in the pressurized water reactors[J]. Annals of Nuclear Energy, 2014, **64**: 86 - 92. DOI: 10.1016/j.anucene.2013.09.042.
- Liu B, Hu W C, Wang K, *et al.* Transmutation of MA in the high flux thermal reactor[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, **437**(1 - 3): 95 - 101. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.01.348.
- Liu B, Jia R D, Han R, *et al.* Minor actinide transmutation characteristics in AP1000[J]. Annals of Nuclear Energy, 2018, **115**: 116 - 125. DOI: 10.1016/j.anucene.2018.01.031.
- 吴宏春, 谢仲生, 竹田敏一. 利用超长寿命快堆嬗变亚铀元素的特性研究[J]. 核动力工程, 2000, **21**(4): 381 - 384. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0926.2000.04.020.
- WU Hongchun, XIE Zhongsheng, Toshikazu Takeda. Study of minor actinides transmutation by ultra long life fast breeding reactor[J]. Nuclear Power Engineering, 2000, **21**(4): 381 - 384. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0926.2000.04.020.
- Morrison S L, Parks G T. The effect of ²⁴¹Am on UK plutonium recycle options in thorium-plutonium fuelled LWRs - Part I: PWRs[J]. Annals of Nuclear Energy, 2020, **135**: 106952. DOI: 10.1016/j.anucene.2019.106952.
- Washington J, King J. Optimization of plutonium and minor actinide transmutation in an AP1000 fuel assembly via a genetic search algorithm[J]. Nuclear Engineering and Design, 2017, **311**: 199 - 212. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2016.11.030.
- 李向阳, 刘启伟, 李庆, 等. 华龙一号反应堆177堆芯核设计[J]. 核动力工程, 2019, **40**(S1): 8 - 12. DOI: 10.13832/j.jnpe.2019.S1.0008.
- LI Xiangyang, LIU Qiwei, LI Qing, *et al.* 177 core nuclear design for HPR1000[J]. Nuclear Power Engineering, 2019, **40**(S1): 8 - 12. DOI: 10.13832/j.jnpe.2019.S1.0008.
- Wang K, Li Z G, She D, *et al.* RMC - a Monte Carlo code for reactor core analysis[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, **82**: 121 - 129. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.08.048.
- Guo X Y, Shang X T, Song J, *et al.* Kinetic methods in Monte Carlo code RMC and its implementation to C5G7-TD benchmark[J]. Annals of Nuclear Energy, 2021, **151**: 107864. DOI: 10.1016/j.anucene.2020.107864.
- Gao B, Ma X B, Chen Y X, *et al.* Validation the Monte Carlo code RMC with C5G7 benchmark[J]. Nuclear Engineering and Design, 2013, **265**: 64 - 68. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.08.054.
- Moyer B A. Ion exchange and solvent extraction: a series of advances[M]. CRC Press, Taylor & Francis Group, Vol.19, 2010.
- Iwasaki T. A study of transmutation of minor-actinide in a thermal neutron field of the advanced neutron source[J]. Progress in Nuclear Energy, 2002, **40**(3 - 4): 481 - 488. DOI: 10.1016/S0149-1970(02)00041-0.
- Lone M A, Santry D C, Inglis W M. MeV neutron production from thermal neutron capture in Li and B compounds[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1980, **174**(3): 521 - 529. DOI: 10.1016/0029-554X(80)91105-2.
- Kimura I, Kobayashi K. Calibrated fission and fusion

- neutron fields at the Kyoto university reactor[J]. Nuclear Science and Engineering, 1990, **106**(3): 332 - 344. DOI: 10.13182/NSE90-A29061.
- 21 叶滨, 罗勇, 李全伟, 等. HFETR ⁶LiD 中子转换器芯体厚度优化研究 [J]. 原子能科学技术, 2011, **45**(10): 1160 - 1164.
- YE Bin, LUO Yong, LI Quanwei, *et al.* Thickness optimization study of ⁶LiD neutron converter for HFETR [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2011, **45** (10): 1160 - 1164.
- 22 Xu T Z, Xiang Y X, Li J, *et al.* Study on local construction of the 14 MeV neutron field by ⁶LiD converter in HFETR[J]. Fusion Engineering and Design, 2017, **121**: 288 - 295. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2017.05.088.
- 23 Broeders C H M, Kiefhaber E, Wiese H W. Burning transuranium isotopes in thermal and fast reactors[J]. Nuclear Engineering and Design, 2000, **202**(2 - 3): 157 - 172. DOI: 10.1016/S0029-5493(00)00341-1.
- 24 王凯. 热堆中添加MA核素的嬗变研究[D]. 北京: 华北电力大学, 2012.
- WANG Kai. Research on transmutation of MA in the thermal reactor[D]. Beijing: North China Electric Power University, 2012.