

加速器驱动洁净核能系统中的核素平衡条件

樊胜¹, 赵志祥², 丁大钊²

(1. 北京大学 技术物理系, 北京 100871;

2. 中国原子能科学研究院 核物理研究所, 北京 102413)

摘要:对加速器驱动洁净核能系统(ADS)次临界堆内核素的转换进行了研究。研究表明:ADS具有充分利用核资源的可能性。次临界热堆只能工作在 $< 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 的中子注量率下, 快堆则在 $= 10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 下仍可稳定工作, 且平衡时的易裂变核素(^{233}U 和 ^{239}Pu) 数目与初始装料核素的比值远高于热堆的。ADS中, 外源中子可有效地将可裂变核素转换成易裂变核素。为加速达到平衡, 初始装料中加入少量 ^{233}U 及 ^{239}Pu 是一种可行的选择。

关键词:加速器驱动洁净核能系统; 核素转换; 中子注量率

中图分类号: TL411+.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6931(2000)06-0544-06

加速器驱动洁净核能系统(ADS)是目前国际上的一个研究热点^[1~4]。其研究内容目前主要集中在系统的物理和技术基础、系统的总体概念设计和相关的实验研究基地的建立等方面^[4~6]。这一课题涉及加速器技术、堆物理、核物理、核化学、材料和辐射屏蔽等诸多学科。从核物理角度来看, 主要有以下3个方面的研究内容: 次临界堆内核素的燃耗演化行为的物理研究、满足ADS设计需要的中子数据测量和评价以及多群常数的制作、中能质子和靶的相互作用^[7,8]。

临界堆的中子通量直接关系着ADS中核素的转换。研究系统在稳定的核燃料(^{233}U 和 ^{239}Pu)“贮备”情况下运行的次临界堆内易裂变核素的增殖、平衡条件与堆内中子注量率的关系是重要的。同时, 堆内中子注量率的提高使得放射性核素的“有效”半衰期缩短, 有利于次要锕系核素(MA)和裂变产物(FP)的嬗变。

本工作根据ADS的特点, 以 ^{232}Th 和天然铀为初始装料, 在不考虑装置的具体结构和元件允许的燃耗深度等实际工程物理问题和装置内中子注量率稳定、分布均匀的假定下, 就次临界堆内不同中子能谱对堆内易裂变核素的增殖和平衡条件等系统的物理性质进行分析和比较。

1 ADS 燃耗过程与计算方法

1.1 计算方法

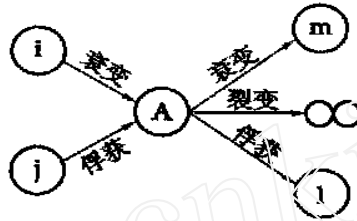
在稳定中子注量率下, 由次临界反应堆内核素的全反应链^[9]可知: 对于核素A, 可能发生

收稿日期: 1999-08-23; 修回日期: 1999-11-08

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19675073)

作者简介: 樊胜(1968—), 男, 湖南常德人, 在读博士后, 核物理专业

如下过程:



A 核的形成有 2 种可能: i 核衰变(和衰变)成 A 核和 j 核俘获中子形成 A 核。A 核的消失有 3 种可能:衰变、俘获中子和裂变。因此,稳定情况下的 A 核损耗方程为:

$$\frac{dN_A(t)}{dt} = N_i(t) \lambda_{i \rightarrow A} + N_j(t) \sigma_{j \rightarrow A} - N_A(t) (\lambda_{A \rightarrow m} + \lambda_{A \rightarrow l} + \lambda_{A \rightarrow f}) \quad (1)$$

式中: $N_A(t)$ 、 $N_i(t)$ 、 $N_j(t)$ 分别为 A、i 和 j 核在 t 时刻的数目; $\lambda_{i \rightarrow A}$ 和 $\lambda_{A \rightarrow m}$ 分别为 i 核衰变到 A 核和 A 核衰变到 m 核的衰变常量; $\sigma_{j \rightarrow A}$ 和 $\sigma_{A \rightarrow l}$ 分别为 j 核俘获中子形成 A 核和 A 核俘获中子形成 l 核的俘获中子截面; $\lambda_{A \rightarrow f}$ 为 A 核的中子裂变截面; λ 为反应堆内的中子注量率。

由于假定堆内中子注量率为稳定、分布均匀,因此,采用变步长龙格-库塔法求解 t 时刻的 A 核数目 $N_A(t)$ (0 ~ t 时间内通过所有途径转化为 A 核的累积量)。积分步幅为 h,积分到 t + h 时刻, A 核数目为 $N_A(t+h)$, $N_A(t)$ 是此步积分的起点。

裂变产物主要考虑长寿命的 ^{99}Tc 、 ^{129}I 等和对堆的反应性影响大的 ^{105}Rh 、 ^{151}Sm 等。

t = 0 时刻的主要易裂变核素 ^{233}U 和 ^{239}Pu 及其它可裂变核素的数目为 $n_i(0)$, 则 t 时刻的裂变产物核素 K 的核数目 $n_K(t)$ 为

$$\frac{dn_K(t)}{dt} = \lambda_{f \rightarrow K}^i n_i(t) Y_K^i - \lambda_K n_K(t) - \lambda_c^K n_K(t) \quad (2)$$

其中: Y_K^i 为中子诱发 i 核裂变的裂变产物核素 K 的产额; λ_K 为核素 K 的衰变常量。式中忽略了由于衰变和中子俘获再次产生核素 K 的可能性。

中子在次临界堆中可被俘获,也可诱发裂变。俘获过程消耗中子,裂变过程通常放出 2 ~ 3 个中子。可诱发裂变中子份额 F 和每次裂变放出的平均中子数 $\bar{\nu}$ 由以下公式给出:

$$F = \frac{n_i \lambda_{f \rightarrow f}^i}{n_i (\lambda_{f \rightarrow f}^i + \lambda_{f \rightarrow c}^i)} \quad (3)$$

$$\bar{\nu} = \frac{n_i \lambda_{f \rightarrow f}^i}{n_i \lambda_{f \rightarrow f}^i} \quad (4)$$

在不考虑中子泄漏等情况下,反应堆的中子倍增系数为

$$k = \bar{\nu} F \quad (5)$$

针对 Th-U 燃料和 U-Pu 燃料循环的全反应链,编制了程序 ADS_P^[9]。

1.2 能谱的选择和计算数据

在热中子裂变堆内,主要是平均能量为 0.025 eV 的中子诱发裂变。钠冷快中子增殖堆内的中子谱一般是平均能量为 0.2 ~ 0.5 MeV 的快中子能谱。中子能谱的硬化可以更有效地嬗变 MA。张玉山等提出的加速器驱动模块式快中子堆利用平均能量为 0.65 MeV 的快中子能谱。

计算中采用热中子能谱、快堆能谱、平均中子能量为 0.7 MeV 的硬化快堆能谱和裂变谱。除快堆能谱是用堆内能谱处理得到的宏观截面外,其余的能谱采用的是单能点截面值。

快堆能谱采用的是标准的快堆能谱。平均中子能量 \bar{E} 和宏观截面 Σ 分别由下式

$$\bar{E} = \frac{\sum_i E_i (E_i) E_i}{\sum_i E_i (E_i) E_i} \quad (6)$$

$$= \frac{\sum_i (E_i) (E_i) E_i}{\sum_i (E_i) E_i} \quad (7)$$

计算。中子截面数据利用 NJOY 处理得到平均中子截面。平均中子能量 $E_n = 0.7$ MeV 的快堆谱和裂变谱的单能点截面数据取自 ENDF/B6、CENDL/2 和 JENDL/3。

对于热堆,裂变产物主要来自易裂变核素 ^{233}U 和 ^{239}Pu 。在快堆系统中,大多数的 Pu 和 MA 具有较大的裂变截面,其裂变对裂变产物的贡献不可忽略,本工作考虑了 ^{233}U 、 ^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 的裂变。 ^{241}Am 和 ^{243}Am 虽有较大的裂变截面,但在次临界堆中,它的产额低,因而不予考虑。热中子和快中子诱发裂变产额数据均取自 ENDF/B6 裂变数据库。

2 计算结果

图 1 示出热中子能谱下初始装料为 ^{232}Th 的次临界堆生成易裂变核素 ^{233}U 的数目和 ^{232}Th 初始数目的比值随时间的变化。从图 1 可看出:在中子注量率 $\phi = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,在 12 a 的运行时间内, ^{233}U 的数目稳定增长,但未达到饱和; $\phi = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, ^{233}U 的数目在较短时间内达到了极大值,尔后快速下降, ^{233}U 的数目不可能在一段时间内保持稳定; $\phi = 5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,经约 3 a 运行后, ^{233}U 的数目达到饱和,并在 3~12 a 间保持稳定值,这时,次临界堆通过 ^{233}U 的裂变可稳定输出能量。同样的计算结果表明:初始装料为天然铀的次临界热堆,在堆内中子注量率 $\phi = 3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,通过俘获中子和衰变生成的易裂变核素 ^{239}Pu 的数目与 ^{239}Pu 消失的数目保持平衡。

图 2 示出了在初始装料为 ^{232}Th 的次临界堆内平均中子能量为 $E_n = 0.455$ MeV 时,易裂变核素 ^{233}U 相对初始 ^{232}Th 的比值随时间的变化。从图 2 可看出:在 $\phi = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, ^{233}U 的数目在运行时间内稳定增长,在 12 a 运行时间内达不到饱和; $\phi = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,在运行一段时间后 ^{233}U 的数目达到极大值,随后快速下降; $\phi = 2.5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,通过中子俘获和衰变生成的 ^{233}U 和 ^{233}U 消失的数目达到平衡,次临界堆可稳定输出能量。

从图 1 和 2 可以看出:初始装料为 ^{232}Th 和天然铀的次临界堆和快堆,易裂变核素 ^{233}U 和 ^{239}Pu 在堆启动运行几年后才能达到饱和,这对商业应用是不利的。因此,可在初始装料中适量添加易裂变核素 ^{233}U 和 ^{239}Pu ,使堆内易裂变核素能很快达到平衡,从而可稳定输出能量。

图 3 是次临界热堆在初始装料 ^{232}Th 中适量加入易裂变核素 ^{233}U 后堆内 ^{233}U 加速达到平衡的情况。结果表明:在初始装料 ^{232}Th 的热堆中加入约 1.25% 的 ^{233}U 是合适的。若初始装料为 10 t ^{232}Th ,则需加入约 124 kg ^{233}U ,次临界热堆可很快达到平衡而稳定输出能量。

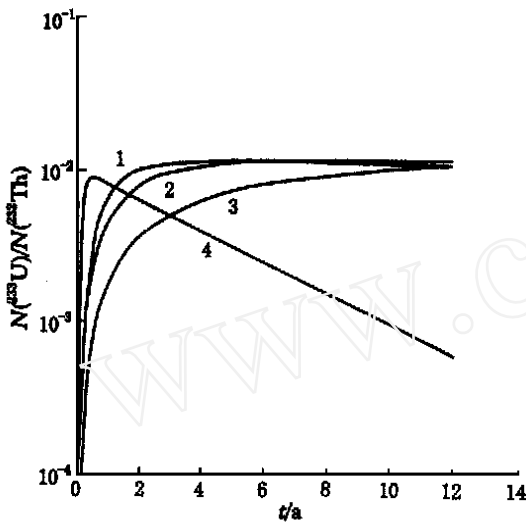


图 1 Th-U 燃料循环的热堆平衡条件

Fig. 1 The saturation condition of Th-U with thermal neutron

$$E_n = 0.0253 \text{ eV}$$

($\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$): 1 — 5×10^{13} ; 2 — 3×10^{13} ;
3 — 1×10^{13} ; 4 — 1×10^{15}

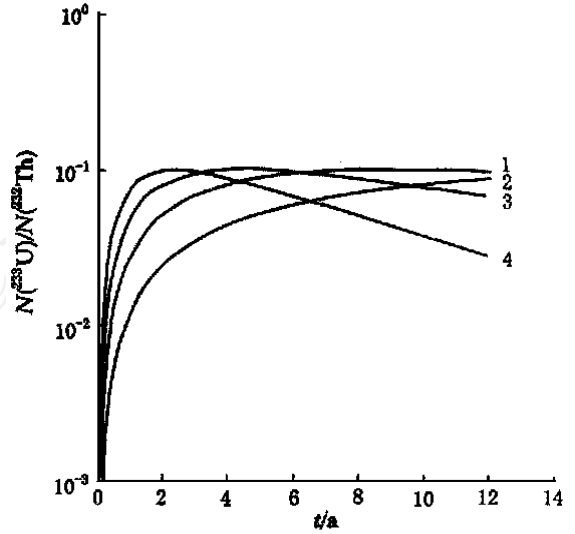


图 2 Th-U 燃料循环快堆平衡条件

Fig. 2 The saturation condition of Th-U with fast neutron

$$E_n = 0.455 \text{ MeV}$$

($\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$): 1 — 2.5×10^{15} ; 2 — 1×10^{14} ;
3 — 5×10^{15} ; 4 — 1×10^{16}

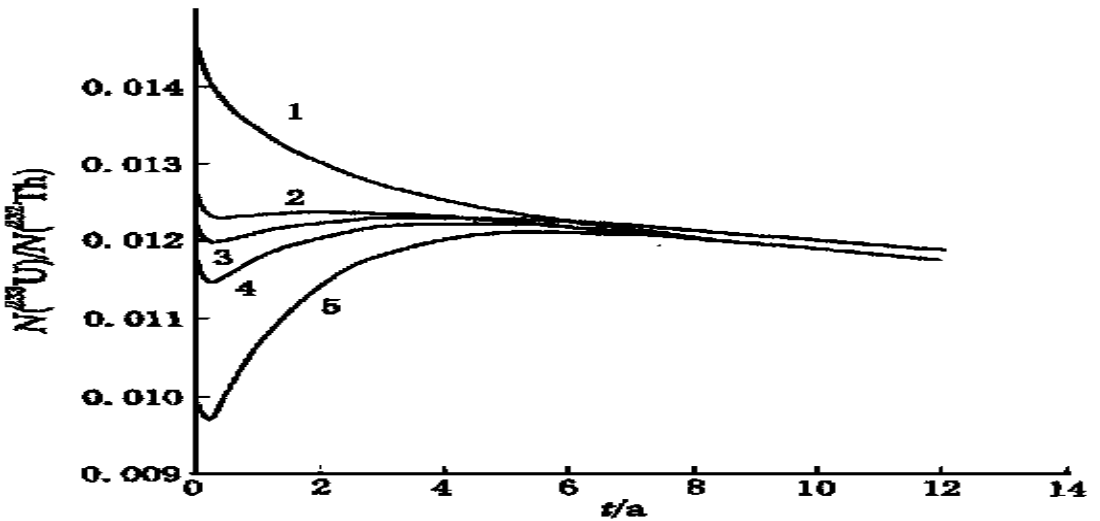


图 3 初始装料²³²Th 中加入²³³U 的 ADS 平衡曲线

Fig. 3 Saturation curves of ADS loaded with ²³²Th added by ²³³U

²³²Th 中加入 ²³³U 的比例: 1 — 1.5%; 2 — 1.3%; 3 — 1.25%; 4 — 1.2%; 5 — 1%

3 结论和讨论

1) 对 Th-U 和 U-Pu 燃料循环次临界热堆的计算结果表明:饱和条件下 ^{233}U 的核数目对 ^{232}Th 的初始核数目之比约为 0.012 8; ^{239}Pu 的核数目对 ^{238}U 的初始核数目之比约为 0.002 6。

2) 在利用 Th-U 和 U-Pu 燃料循环的 ADS 中,不同中子能谱下的易裂变核素的增殖及平衡条件为:次临界热堆稳定工作的中子注量率为 $< 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,当 $> 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,易裂变核素 ^{233}U 和 ^{239}Pu 不可能达到平衡;快堆则不受 $< 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 的限制,它在 $= 10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 下仍可稳定工作。

3) 平衡条件下,Th-U 热堆的主要易裂变核素 ^{233}U 对初始装料 ^{232}Th 的比值约为 0.012,快堆约为 0.1,硬化快堆谱约为 0.064;U-Pu 热堆的 ^{239}Pu 对 ^{238}U 的比值约为 0.002 6,快堆约为 0.1,硬化快堆谱约为 0.057。快堆中易裂变核素和初始装料核素比值高于热堆,U-Pu 快堆约是热堆的 20 倍。燃料 ^{233}U 和 ^{239}Pu 大约在次临界热堆启动 1~3 a 中达到饱和,饱和时间可通过在初始装料时适量加入 ^{233}U 和 ^{239}Pu 来缩短。

通过本工作的分析可知:ADS 的核燃料增殖能力有可能使该系统具有自持稳定供应易裂变核的能力,或自持供应系统稳定运行外,仍有增殖核燃料的可能性。因此,从原理上讲,ADS 具有更有效的利用核资源的可能性。

参考文献:

- [1] Carminati F, Klapisch R, Revol JP, et al. An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by Particle Beam Accelerator: CERN/ AT/ 93-47(ET) [R]. Switzerland: European Laboratory for Particle Physics, 1993.
- [2] 赵志祥,丁大钊,刘桂生,等.加速器驱动的次临界堆的物理性质研究[J].原子能科学技术,1999,33(2):147~155.
- [3] 丁大钊.加速器驱动洁净核能系统[A].香山科学会议第79次学术讨论会会议文集[C].北京:[s.n.],1997.1~10.
- [4] Bowman CD, Arthur ED, Lisowski PW, et al. Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation Using an Accelerator-driven Intense Thermal Neutron Source[J]. Nucl Instrum Methods, 1992, A320:336~367.
- [5] Rubbia C, Rubio JA, Carminati F, et al. Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier: CERN/ AT/ 95-45(ET) [R]. Switzerland: European Laboratory for Particle Physics, 1995.
- [6] Revol JP. Status Report of SPS and PS Experiments Committee: CERN[R]. Switzerland: European Laboratory for Particle Physics, 1997.
- [7] 丁大钊,赵志祥,罗璋琳,等.放射性洁净核能系统研讨会报告文集[R].北京:中国原子能科学研究院,1996.
- [8] 樊胜.加速器驱动洁净核能系统中的两个核物理问题研究[D].北京:中国原子能科学研究院核物理研究所,1998.
- [9] Salvatores M, Slessarev I, Uematsu M. A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei [J]. Nucl Sci Eng, 1994, 116:1~22.

Saturation Condition of the Fissile Nuclides of Sub-critical System Driven by Accelerator

FAN Sheng¹, ZHANG Zhi-xiang², DING Da-zhao²

(1. Department of Technical Physics, Peking University, Beijing 100871, China;

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

Abstract: This work concerns the nuclide transformation in the sub-critical reactor of accelerator-driven system (ADS), the results indicate the ADS has probability to sufficiently use nuclear resource. The best neutron flux rate is $10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ for thermal sub-critical system and $10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ for the fast one. Under the same inventory, the number of fissile nuclei in saturation condition for the fast system is larger than those for the thermal one.

Key words: accelerator-driven system; nuclide transformation; neutron flux rate

IAEA 制定 2001 ~ 2005 年的中期战略

最近,国际原子能机构(IAEA)发表了 2001 ~ 2005 年中期战略。该战略是指导 IAEA 在 21 世纪第一个五年期间活动的文件。与以往相比,最引人注目的是,在这个新战略中提出了 IAEA 今后活动的“三大支柱”:

- 1) 技术:加强核技术为持续满足成员国的需求和利益所作的贡献;
- 2) 安全:建立世界范围内全面而有效的核安全文化;
- 3) 核查:向国际社会承诺和平利用核材料。

在 IAEA 过去的活动中,技术与核查是其两大支柱,这次明确地把核安全作为今后活动的支柱之一。

IAEA 中期战略目标可归纳为三个实质目标和两个职能目标:

- 1) 加强核技术为持续满足成员国需求和利益作贡献;
- 2) 形成一种全面和有效的全球性核安全文化;
- 3) 向国际社会承诺核材料只用于和平目的;
- 4) 成员国与公众之间的有效沟通;
- 5) 建立新的项目管理方法。

引自《中国核工业》2000 年第 2 期,作者王志远