

## 核废料核素价值研究(续前)

罗璋琳

(中国原子能科学研究院,北京 102413)

中图分类号:TL32

文献标识码:A

文章编号:1000-6931(2004)04-0334-05

### 3 核素的放射性毒性和嬗变

讨论核废料核素的利用价值,用中子学的观点从核资源充分利用的角度出发,是一种主动行为,而从核素的放射性毒性出发则是一种被动行为。裂变能源是由放射性核素组成的,具有天然的放射性毒性。裂变能的开发过程就是核素嬗变过程,但这种核能开发的核嬗变过程将使放射性毒性增加。核废料核素处置中的嬗变是一反过程,目的是使核废料的毒性减少,最终使自然界中的放射性毒性不因发展裂变核能而增加,使核能在放射性毒性的意义上成为洁净能源。

#### 3.1 放射性毒性的定义和分类

核素的放射性毒性用活性与有效剂量系数  $e$  的乘积表示,即放射性毒性 = 活性  $\times e$ 。活性为该核素的放射性活度(Bq);有效剂量系数  $e$  (Sv/Bq)是核素活性电离辐射损伤的量度,并考虑了生物权重因子。

放射性毒性与核素种类有关。国际辐射防护组织根据不同核素规定不同的年摄取量的限制值,可由此定义潜在毒性指数为每种核素的放射量与核素经口年摄取量限值之比。

从表1可知,核废料核素分为两类:一重一轻,重核又可分为天然核素(以铀核素为代表)和超铀核素(TRU)(以次量铀系核素(MA)为

主),核废料重核素统称为 FWT;轻核系指裂变产物,就核素总数而言,裂变产物有 300 ~ 500 种,对环境构成威胁的是长寿命裂变产物 LLFP。FWT 和 LLFP 对应着两类不同的风险。增加燃耗可使 FWT 减少,也可使 LLFP 减少,但增加燃耗受诸多工程因素限制。目前,标准 PWR 电站的平均燃耗为 33 GW  $\cdot$  d/t,加深燃耗可达 40 ~ 50 GW  $\cdot$  d/t;快堆电站为 100 GW  $\cdot$  d/t,甚至更深。核废料核素的放射性毒性随卸料后的冷却时间不断衰减,衰减规律随各国的核能政策、核电堆型、燃料循环模式而不同,但潜在毒性指数随冷却时间的变化则有大体相同的规律(图2)。

分析图2可得出如下3点结论:1)从放射性毒性的观点,分离与嬗变(P&T)首先涉及的是铀系核素,特别是次量铀系核素(MA)中的镅和镎,裂变产物毒性在  $10^3$  a后至少比铀系核素的毒性小2个数量级;2)从长期地质贮存的观点,较易流动的裂变产物(如  $^{129}\text{I}$ )比铀系核素具有更大风险,裂变产物  $^{135}\text{Cs}$ 、 $^{79}\text{Se}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  和  $^{126}\text{Sn}$ 是玻璃固化废物中放射量的主要贡献者;3)一座标准 100 万千瓦 PWR 核电站每年约消耗 20 t 新燃料元件,消耗天然铀矿石约  $10^3$  t,对应的天然潜在毒性指数约  $10^6$  (每吨新燃料),这表明,在可接受的时间(例如,约

收稿日期:2003-10-08;修回日期:2003-12-17

基金项目:国家“973”项目资助课题(G1999022601)

作者简介:罗璋琳(1933-),男,四川南部人,研究员,反应堆工程专业

$5 \times 10^2$  a)内把乏燃料 (TRU + FP) 的单位毒性指数降到原矿石水平, 必须通过嬗变处理降低 2 个量级 (约 100 倍)。

### 3.2 嬗变目标和策略

嬗变的目的是使核废料核素的放射性毒性指数降到裂变核能开发前的水平。由图 2 可知, 这个过程若靠自然衰变来完成, 则需上百万年。在这样漫长的时间内, 难以避免因地质变迁等因素而致使这些核素进入生物圈, 给人类生存造成危害, 这是裂变核能开发留下的一种潜在风险, 是公众所担心和关注的问题, 是影响裂变核能持续发展的主要因素。

研究证明: 到目前为止, 降低这一风险的惟一途径是采用人工嬗变方法, 以中子轰击核废料核素, 将它们转变为稳定核素或短寿命核素, 然后送去进行地质贮存。以下分别就 MA 嬗变和 LLEP 嬗变从宏观上作一简单说明。

#### 1) MA 嬗变

MA 嬗变的目的是, 通过某种嬗变策略, 使

单位电功率 PWR 核电站产生的 MA 核素毒性  $TOX_{Ac}$  不大于所消耗的铀资源核素毒性  $TOX_U$ , 即  $TOX_{Ac} < TOX_U$ 。

由图 2 可知, 若在可接受的冷却时间后实现这一目标, 需成百倍减少 MA 贮量。例如, 设定把高放废物 (HLW) 中的 MA 含量降低 100 倍作为目标。显然, 将 MA 在反应堆中单次通过不可能实现这一目标, 多次循环是必不可少的。因此, 必须构造一理想分离嬗变 (P&T) 系统, 把乏燃料中的 MA 分离出来, 再送到燃料循环的起始端, 与易裂变材料混合制成燃料元件, 并送到反应堆中进行再次辐照 (焚烧)。实际上, 在分离过程中, MA 不可能完全回收, 将有部分残留在废料中。设留在废料中的锕系核素质量为  $m_w$ , 则有:

$$m_w = L m_F \quad (8)$$

其中:  $m_F$  为锕系可裂变材料的总质量;  $L$  为在再处理和燃料制造过程中锕系核素的损失份额; 为燃料因子, 可通过可裂变重金属核燃料

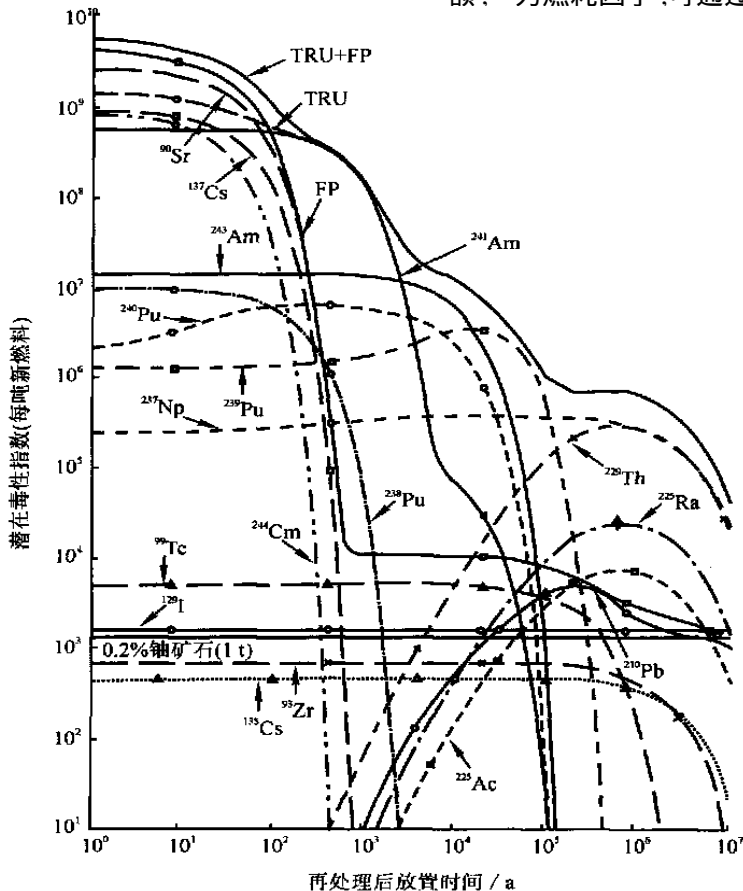


图 2 PWR 产生的高放废物的潜在毒性指数变化<sup>[5]</sup>  
乏燃料燃耗深度为 33 GW·d/t; 经 3 a 冷却; 后处理 U 和 Pu 回收率为 99.5 %

燃耗份额  $B$  进行估算,  $\beta = (1 - B) / B$ 。

在平衡条件下,  $m_F$  等于顶端燃料质量  $m_T$ , 它通常被分成用于焚烧的 TRU (或 MA) 质量  $m_B$  和稀释剂 (可增殖的铀) 质量两部分, 用  $\beta$  表示 TRU (或 MA) 在顶端投料中的份额,  $\beta = m_B / m_T = m_B / m_F$ , 用  $R_m$  表示废料质量减少因子,  $R_m = m_B / m_W$ 。将  $\beta$  和  $R_m$  代入式 (8), 得到如下表示式:

$$L = \beta / R_m \quad (9)$$

可见:  $L$  是废料减少因子  $R_m$  的函数, 当  $R_m$  一定时, 燃耗愈深,  $R_m$  愈小,  $L$  愈大。当希望放射性毒性指数降低 100 倍、假设顶端投料无稀释剂 ( $\beta = 1$ )、燃料平均燃耗为 15 % 时, 则要求  $L = 0.18 \%$ , 即要求后处理流程中的钢系核素回收率  $> 99.8 \%$ 。但在现代燃料工艺条件下, 平均燃耗份额  $B$  目前尚不能超过 15 %, 所以, 提高钢系回收率 (达到 99.99 % 以上) 仍是理所当然的追求目标<sup>[13]</sup>。

从中子学的观点, 没有一种反应堆能实现全封闭的燃料循环。为比较各种反应堆用于嬗变 MA 的合适程度, 借助于表 4 中所列出的各核素中子消耗, 计算出使用各种燃料核素的中子产生参数 -  $D$  值。计算结果列于表 5。

表 5 Pu、MA 和 TRU 焚烧炉的中子学特性<sup>[3]</sup>

投料 <sup>1)</sup>	次临界		临界		次临界	
	热中子 ADS		快中子堆		快中子 ADS	
	$\beta$	- $D$	$\beta$	- $D$	$\beta$	- $D$
Pu	1.15	0.40 <sup>2)</sup>	1.64	1.18	1.80	1.34
MA	0.89	- 0.37	1.28	0.71	1.33	0.79
TRU	1.11	0.30	2.00	1.52	1.75	1.29

注: 1) Pu 从燃耗 50 GW d/t 的 PWR 乏燃料中提取, MA 由 70 % PWR-UOX、10 % PWR-MOX 和 20 % CAPRA 型快中子堆组成的反应堆工业园中提取

表 5 中的  $\beta$  定义为钢系在平衡态堆芯中的中子产生-吸收比。  $\beta < 1$ , 意味着不能维持平衡堆芯的链式反应, -  $D$  值为负, 意味着无富裕中子, 钢系核素及其混合物不能完全裂变。

表 5 涉及所有用于嬗变 MA 的现实反应堆概念, 包括次临界热中子 ADS、快中子临界 (Pu 和 MA) 堆、次临界 (钠冷) 快中子 ADS 等。表

中数据表明, 热中子系统不能完全焚烧 MA。对 3 种投料方式, 快中子系统对嬗变核废料核素均有较多的中子裕量优势。仅从中子学考虑, 临界快中子堆和次临界快中子 ADS 将有大体相同的功效, 后者比前者略有优势。

E. V. Gai 等<sup>[14]</sup> 针对正在运行的压水堆 VVER-1000 和快中子反应堆 BN-800 的中子场计算了 1 kg 钢系核素辐照 1 000 d 后的残存量, 计算结果中的一例示于图 3。从图 3 可看出: 同等质量的钢系核素的残存量有成倍的差别, <sup>237</sup>Np 的效果最明显, 快堆 BN-800 中的残存量仅为压水堆 VVER-100 的 1/16。这说明, 发展快中子反应堆有利于减少 MA 的存量。

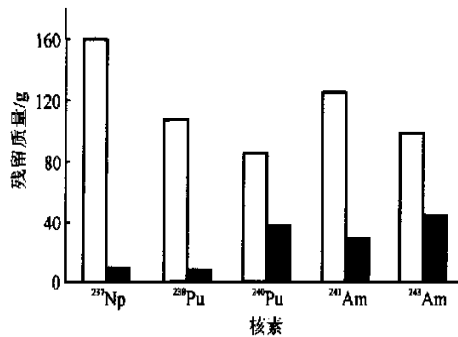


图 3 1 kg 不同钢系核素投料辐照 1 000 d 后在不同中子场中的残存量<sup>[14]</sup>  
□——热中子场; ■——快中子场

不同国家和地区因核能开发战略和政策不同有着不同的 P & T 发展计划和 MA 嬗变策略。以表 6 对此作一比较, 并简要说明其主要政策驱动因素。

作为一例, 引用 OECD/NEA 核能开发委员会制订和建议的钢系焚烧和嬗变研究策略, 其组成为: a) Pu 在 LWR 和 CAPRA 型快堆中焚烧; b) 两层次嬗变策略——第一层次为 LWR + CAPRA 型快堆, 第二层次为 ADS MA 焚烧炉; c) TRU 在临界快堆 (IFR 概念) 中焚烧; d) TRU 在次临界快 ADS 中焚烧; e) 非均匀策略, Am 和 Cm 在靶件中多次循环。这些研究策略的输入参数主要假设值列于表 7。

图 4 为各种策略对降低放射性毒性与开式燃料循环比较的初步结果。这一结果表明: b、c、d 3 种嬗变策略均可达到将放射性毒性降低 100 倍的目标。

表 6 MA 嬗变策略

编号	嬗变策略名称	策略要点
策略 1	TRU 焚烧	1) 从 LWR 乏燃料分离 U 和 TRU, TRU 一块保留,作为整体焚烧 2) 热中子或快中子焚烧(纯焚烧策略), 临界堆 + ADS 或纯 ADS 3) 驱动因素为防核扩散
策略 2	Pu 再循环	1) 从 LWR 乏燃料中分离出 Pu(工业钚),用于热中子堆中再循环,或以后作为快堆投料 2) MA 和 LLEP 在快中子谱 ADS 中焚烧,专用 MA 焚烧炉 3) 驱动因素为资源利用

表 7 OECD/ NEA MA 嬗变研究策略的主要假设<sup>[4]</sup>

策略	堆/ ADS	燃料	平均燃料耗/ (GW · d · t <sup>-1</sup> )	再处 理法	回收 率/ %
全部	LWR(NU)	UOX/ MOX	50	湿	99.9
a,b	FR(CAPRA)	MOX	185	湿	99.9
b	MA 焚烧炉 ADS	AcN-ZrN	140	干	99.9
c	TRU 焚烧炉 IFR	Ac-Zr	140	干	99.9
d	TRU 焚烧炉 ADS	Ac-Zr	14	干	99.9

2) LLFP 嬗变

裂变产物的种类和产额分布基本上取决于裂变反应过程。裂变产物的总数虽有几百种,但大多都可在可接受的时间段(如 300 ~ 500 a)内衰变掉,因此,仅需考虑那些份额约占 3% 的长寿命裂变产物 LLFP。

LLFP 嬗变是一完全的中子俘获反应过程。从中子经济学的观点,中子裕量愈大的核能系统必然具有更大的 LLFP 嬗变潜力。可以定义裂变产物核素 J 在反应堆烧掉一半的时间  $T_{J,tr}$  作为量度嬗变能力的时间参数,由嬗变率

$$\frac{dN_J}{dt} = N_a \quad \text{可导出:}$$

$$T_{J,tr}(a) = \frac{\ln 2}{3.16 \times 10^7 J_{,(n,\gamma)}}$$

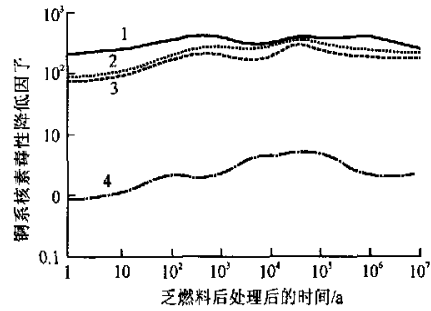


图 4 钢系废物核素毒性相对开式燃料循环降低倍数<sup>[4]</sup>

1——TRU FR 焚烧(策略 c); 2——双层次焚烧(策略 b); 3——TRU ADS 焚烧(策略 d); 4——钚焚烧

其中:  $J_{,(n,\gamma)}$  为  $(n,\gamma)$  俘获截面,是中子能量的函数;  $\phi$  是中子通量密度,在作估算时,通常对热中子反应堆(PWR 等)取  $\phi = 10^{14}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ ,对快中子反应堆取  $\phi = 10^{15}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ 。

表 8 列出了 5 个典型 LLFP 在快中子场 ( $E_n = 0.2 \text{ MeV}$ ) 和热中子场 ( $\bar{E}_n = 1 \text{ eV}$ ) 中嬗变的相关参数。

$T_{J,tr}$  与吸收截面  $J_{,(n,\gamma)}$  和中子通量密度的乘积成反比。提高热中子谱的中子通量密度将更利于提高 LLFP 的嬗变效率。

C. Rubbia<sup>[16]</sup> 建议了一个可行的办法:在 MA 嬗变堆芯周围布置有慢化功能(例如,用  $\text{CaH}_2$  或  $\text{B}_4\text{C}$ )的组件中放置  $^{99}\text{Tc}$  靶以提高嬗变能力<sup>[16]</sup>(图 5 和 6)。该方法利用从堆芯泄漏出的快中子(通量密度  $> 10^{15}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ )经慢化而产生的共振中子,该方法称为 LSD 技术。由图 6 可知,采用 LSD 技术可使 Tc 反应率成 10 倍的增加。

在一些 ADS 概念设计研究中,嬗变 MA 的同时,考虑嬗变 LLFP。例如,研究把 MA 嬗变和  $^{129}\text{I}$  嬗变统一考虑<sup>[17]</sup>,充分利用以嬗变 MA 为目的 ADS-MA 泄漏中子,在焚烧 MA 的堆芯外围中装入  $^{129}\text{I}$  的 ADS-MA & I 系统,每年在烧掉 250 kg MA 的同时,焚烧掉 56 kg 碘,它们分别相当于 10 座 PWR 的年产生量(对 PWR 的支持比,二者均达到 10)。文献[18]研究了比较接近工程的同时嬗变 MA 和 LLFP 的 ADS 系统,称为 HYPER 系统的概念设计,支持比达到 4 ~ 5。

表 8 5 个典型 LLFP 在快/热中子场中嬗变相关参数<sup>[15]</sup>

LLFP	$J_{f,(n, \gamma)}/b$		$T_{1/2}/a$	$T_{J, \text{tr}}/a$		$t = T_{J, \text{tr}}$ 时的放射性 毒性/(Sv g <sup>-1</sup> )
	快谱	热谱		快谱	热谱	
<sup>129</sup> I	0.14	4.3	$1.6 \times 10^7$	160	51	0.5
<sup>99</sup> Tc	0.2	4.3	$2.1 \times 10^5$	110	51	0.2
<sup>135</sup> Cs	0.07	1.3	$2.3 \times 10^6$	310	170	0.08
<sup>93</sup> Zr	0.03	0.28	$1.5 \times 10^6$	730	790	0.04
<sup>126</sup> Sn	0.005	0.05	$1 \times 10^5$	$4.4 \times 10^3$	$4.4 \times 10^3$	4.0

注:  $b = 1 \times 10^{-28} \text{ m}^2$

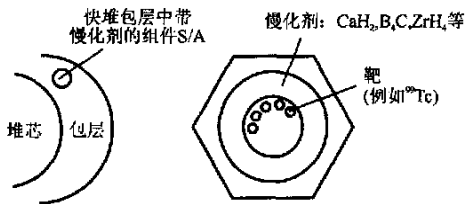


图 5 LLFP 嬗变的 LSD 概念<sup>[16]</sup>

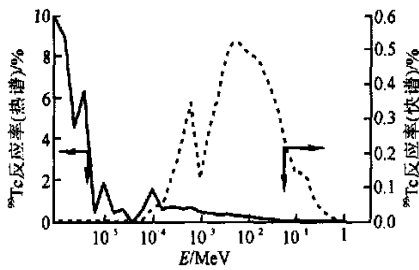


图 6 LSD 概念在<sup>99</sup>Tc 反应率中的应用<sup>[16]</sup>  
反应率的积分值,快谱为 4.9,热谱为 41.3

研究证明:与 MA 相比,LLFP 更具有流动性,稳定化合物形态又多样化,因此,在贮存方法和靶件制作上也较多样化,需根据各 LLFP 单独应对。以下分别说明表 8 所列 5 种 LLFP 的嬗变问题<sup>[4, 15~17]</sup>。

在乏燃料直接贮存概念中,<sup>129</sup>I ( $T_{1/2} = 1.6 \times 10^7 \text{ a}$ ) 有高度活性,不易被水泥与土壤吸收,地质沉积贮存困难较大,被认为是第 1 个

进入生物圈的核素。在湿法后处理中,从溶解液中提取的碘仅为碘产额的 95%~98%。为改进提取率,需用高温过程。<sup>129</sup>I 的半衰期太长,避免最终迁移到环境中是件很难的事情。由于<sup>129</sup>I 的放射性毒性在裂变产物中最高,可与铀系核素相比,所以,提高<sup>129</sup>I 的分离嬗变效率是 LLFP 嬗变中需首要考虑的问题。

在湿法后处理的现有流程中,<sup>99</sup>Tc ( $T_{1/2} = 2.1 \times 10^5 \text{ a}$ ) 的回收率仅为其产额的 80%,欲提高<sup>99</sup>Tc 回收率,必须改进现有后处理工艺。如能将<sup>99</sup>Tc 直接以金属形式分离提取出来,嬗变可能是较容易的,因为它较为稳定,又有较高的中子吸收截面。

Cs 有 3 个同位素,<sup>133</sup>Cs (稳定)、<sup>135</sup>Cs 和 <sup>137</sup>Cs,<sup>135</sup>Cs ( $T_{1/2} = 2.3 \times 10^6 \text{ a}$ ) 是高放废物的主要成分。Cs 以气体形式释放,极具活动性。<sup>135</sup>Cs 可嬗变成稳定的<sup>136</sup>Ba,但应关注稳定<sup>133</sup>Cs 转换为新的<sup>135</sup>Cs 的趋势。

<sup>93</sup>Zr ( $T_{1/2} = 1.5 \times 10^6 \text{ a}$ ) 与<sup>135</sup>Cs 有些类似,半衰期长、丰度低(仅占全部 Zr 的 14%),可能需进行同位素分离。<sup>93</sup>Zr 的吸收截面很低,热中子截面仅为<sup>135</sup>Cs 的 1/5,嬗变<sup>93</sup>Zr 的速度很慢。

在湿法后处理中,<sup>126</sup>Sn ( $T_{1/2} = 1.0 \times 10^5 \text{ a}$ ) 只有一部分溶解在高放废物中,与<sup>99</sup>Tc 类似,需单独处理。<sup>126</sup>Sn 中子截面小,嬗变速度慢。

(待续)