

## 与加速器驱动的核能系统有关的核化学研究

李文新

(中国科学院上海原子核研究所 上海 201800)

0615.5

**摘要** 提出了与加速器驱动的洁净核能系统有关的核化学研究课题, 研究领域涉及到散裂反应产物与它们的产额分布、长寿命废料的嬗变、中子反应参数测量以及中子的诊断。

**关键词** 洁净核能系统 核化学 散裂反应 中子诊断 高放废料嬗变

**分类号** O615.5

加速器驱动

近年来, 加速器驱动的洁净核能系统引起了世界各国政府和核能科学家们的高度重视。该系统的主要优点是提高了天然铀资源的利用度; 减少了高放废料; 系统运行安全以及有利于防止核扩散。1996年, 在瑞典召开了第二次加速器驱动的嬗变技术及其应用会议。参加会议的有来自24个国家的207名代表, 对涉及到的各个有关领域进行了广泛探讨, 标志着新核能系统已在国际上形成了一个新的研究热点。核能必将在下一世纪成为我国能源构成的重要支柱。从裂变能利用的可持续发展战略考虑, 应高度重视加速器驱动的洁净核能系统的研究。加速器驱动的洁净核能系统是一个庞大的综合科技工程<sup>[1,2]</sup>。该系统可看作加速器和次临界装置的结合, 后者的研制可以大量借鉴现有核能工业已成熟的基础和技术, 但加速器研制离该系统的要求还有不少差距。因此, 中能强流加速器的研制是关键。除此以外, 整个核能系统特别在加速器和次临界装置这两大部分的“结合部”还存在着大量新的课题需要认真研究和探索。例如, 中能质子引起的核反应和反应产物; 中子产额和特征; 中子运输; 有外源中子的次临界装置中的核反应; 放射性核素的嬗变过程和放射化学分离等。这些

问题对于该系统的设计、建造以及运行都是至关重要的。本文试图探讨在加速器驱动的放射性核能系统的研制中与核化学有关的一些基础性研究工作。

### 1 中能质子在重靶核上引起的散裂反应

计划中的加速器驱动的放射性洁净核能系统将用10~100 mA GeV 能量的质子轰击重元素靶, 通过散裂反应产生的大量中子来启动次临界装置。由于束流强和靶子厚, 长期的持续运行将产生放射性活度极高的大量散裂反应产物。众所周知, 自核裂变发现以来, 核化学家曾致力于各种裂变体系中核裂变产物的鉴别、裂变产额的测定以及质量和电荷分布的研究, 这类研究持续了数十年, 构成了裂变化学的主要内容。这类研究之所以受到这样的重视, 是因为这些参数对反应堆的设计与运行、燃耗测定、后处理放化流程及废物处理与环境监察等均有重要意义。对于洁净核能系统, 情况也是相似的, 鉴别散裂反应产物、测定其产额、研究产物的质量和电荷分布均是新一代核能开发和研究中核化学家首先遇到的新的课题。

散裂反应产物与铀系核的中子诱发裂变产物不同, 散裂反应产物种类更多, 组成更

复杂. 这主要反映在: (1) 产物覆盖范围更宽. 例如以铀( $Z=92$ )为靶, 预期散裂反应会产生从氢到镎( $Z=93$ )全部 93 个元素, 能鉴别的放射性核素多达数百; (2) 产物分布在  $\beta$  稳定线两侧. 对于低能裂变, 裂变碎片是非常丰中子的, 经过一系列的  $\beta^-$  衰变终止于一个稳定核或接近稳定线的长寿命核素. 散裂反应则不同, 尤其是以铀为靶子时, 产物既有丰中子的又有缺中子的, 在一个质量链上形成了  $\beta^-$  和  $\beta^+$  (或 EC) 两个衰变链, 并且长寿命核素和稳定核素都有较大截面. 因此, 核化学家们必须测定更多的放射性核素的产额, 通过电荷分布研究来关联这些实验数据, 进而估算核化学技术尚不能测定的长寿命和稳定核素的产额. 根据所有这些核素的产额, 就可能构成完整的散裂反应产物的电荷分布和同位素分布, 进一步积分就可以获得产物的质量产额分布和元素的产额分布.

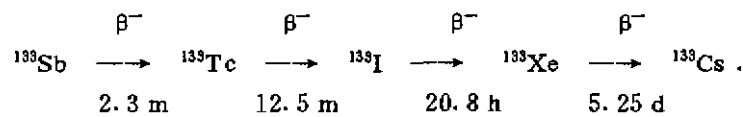
在加速器驱动的洁净核能系统中, 预期强流中能质子束将轰击熔融状态的重金属, 此时, 可能会发生在常规裂变堆中未曾碰到的新问题: (1) 散裂反应产物中存在大量气体元素 (如 H、O、F 等), 这些气体的产生或者它们之间可能的化学反应也许会影响散裂靶系统的安全运行; (2) 散裂反应中预期会生成不少强氧化性和强腐蚀性的元素, (如 F、Cl、Br 等), 在高温条件下它们会对靶系统的管壁材料产生强烈腐蚀作用; (3) 散裂反应中会生成大量剧毒的挥发性重金属元素, 如 Os、Hg、Tl 和 Po 等的放射性同位素, 处理不慎便会对运行人员的健康和环境保护造成

重大影响. 因此, 只有在核化学家研究了散裂反应产物的质量分布和元素分布之后, 放射化学家、材料科学家和工程技术人员才能仔细研究和估计这些危害的严重程度以及应采取的措施.

## 2 高毒锕系元素和长寿命裂变产物的 ( $n, \gamma$ ) 嬗变

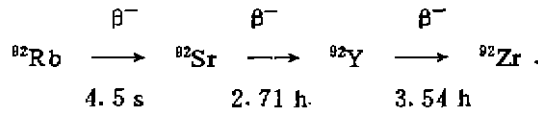
利用次临界装置中“贮备”的中子通过中子俘获反应将自生的或“输入”的高毒锕系元素和长寿命裂变产物嬗变为短寿命核素是洁净核能系统的基本特点之一. 中子嬗变放射性核素的原理已清楚. 对于锕系元素来说, 嬗变过程就如核化学家熟知的超铀元素的生产. 轻锕系元素经过一系列的中子俘获反应和相继的  $\beta^-$  衰变, 极少数锕系核能幸免于裂变, 生成数量很少、寿命不长的超铀核素. 大部分锕系核在此过程的不同阶段消亡于裂变, 成为洁净核能系统的附加能量供应源. 对于长寿命的裂变产物, 如  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2}=2 \times 10^6$  a),  $^{135}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=2 \times 10^6$  a) 和  $^{93}\text{Zr}$  ( $T_{1/2}=1.5 \times 10^6$  a) 在俘获中子, 即 ( $n, \gamma$ ) 反应后分别生成短寿命的  $^{130}\text{I}$  ( $T_{1/2}=12.36$  h)、 $^{136}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=13.2$  d) 以及稳定的  $^{94}\text{Zr}$ . 因此, 经过中子嬗变后, 大大降低了废料的毒性和放射性.

但是, 嬗变裂变产物的情况并非如此简单, 也存在相反的情况. 例如, 与  $A=135$  的衰变链终止在  $^{135}\text{Cs}$  上的情况相似, 高产额的  $A=133$  的衰变链终止在稳定核  $^{133}\text{Cs}$  上, 即



当把含  $^{136}\text{Cs}$  的高放废料在次临界装置中嬗变  $^{136}\text{Cs}$  为短寿命的  $^{130}\text{Cs}$  时, 同时却把共存的稳定核素  $^{133}\text{Cs}$  通过 ( $n, \gamma$ ) 反应嬗变为放射性的

$^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=2.06$  a). 将稳定核素嬗变为长寿命的放射性核素的例子也是有的. 高产额的  $A=92$  衰变链终止在稳定的  $^{92}\text{Zr}$  上.



在把长寿命的<sup>83</sup>Zr衰变为稳定的<sup>84</sup>Zr同时,又把稳定的<sup>92</sup>Zr嬗变为长寿命的<sup>95</sup>Zr( $T_{1/2} = 1.5 \times 10^6 \text{ a}$ ).在裂变产物嬗变中可能发生类似情况的还有<sup>106</sup>Pd、<sup>112</sup>Cd和<sup>152</sup>Eu等核素.当然,这些都是次级嬗变,要根据总体衰变平衡下的量来估计它的重要性.

在散裂反应中,将稳定核素嬗变为长寿命放射性核素的情况更为普遍.这不仅是因为散裂反应产物的种类多、分布范围广,更主要的是与相当多的散裂反应产物是缺中子核素有关.不少缺中子放射性核素在经过一系列 $\beta^+$ 或EC衰变后形成有相当高累积产额的<sup>35</sup>Cl、<sup>58</sup>Ni、<sup>78</sup>Se、<sup>93</sup>Nb、<sup>165</sup>Ho、<sup>175</sup>Ho、<sup>185</sup>Re、<sup>204</sup>Pb和<sup>209</sup>Bi等稳定核素.这些核素在次临界装置中经过(n,  $\gamma$ )反应都能生成半寿命在 $10^4 \sim 10^6$ 年范围内的长寿命放射性核素.

由此可见,嬗变长寿命放射性裂变产物必须同时防止再次活化稳定裂变产物才能真正有效地降低高放废物的活性.核化学家们除了研究洁净核能系统发生的核反应和反应产物外,还要测量不少重要核素的(n,  $\gamma$ )反应截面.只有在分析了所有这些数据的基础上才能制定相适应的放射化学分离程序以及考虑这些高放废物进行嬗变的具体细节.需要指出的是,这些重要核素大多是长寿命的放射性核素,在目前条件下,要生成足够的量、并通过纯化制备成靶子,再研究不同能量中子与它们相作用的反应参数还有一定难度.这本身就构成了与洁净核能系统有关的另一个重要的核化学研究课题.

### 3 用(n, xn)反应嬗变输入的长寿命裂变产物

在次临界装置中用热中子的(n,  $\gamma$ )反应嬗变输入的外源长寿命裂变产物时存在着激

活稳定核素的可能.另一种或许更可取的办法是直接利用中能质子引起的散裂反应产生的高能中子通过(n, xn)反应来嬗变裂变产物.因为(n,  $\gamma$ )反应只能使核素增加1个质量数,生成的较丰中子核素仍处于 $\beta$ 稳定线附近,它可能使稳定核素嬗变为长寿命的放射性核素.当使用(n, xn)反应时,核素会失去多个中子而处于离 $\beta$ 稳定线稍远的半寿命较短的缺中子区,再也不存在把稳定核素嬗变为长寿命放射性核素的可能.图1给出了作者用核化学方法测定的次级中子在Nb、Ta和Au靶上引起的(n, xn)反应产物的相对产额和质量损失 $\Delta A (= A_t - A_p$ ,即靶核质量数和产物质量数之差)的依赖关系<sup>[9]</sup>.实验是在日本理化研究所(RIKEN)的Ring Cyclotron上,用1.6 GeV的<sup>40</sup>Ar离子轰击厚的不锈钢靶完成的.尽管中子起源不同,但是

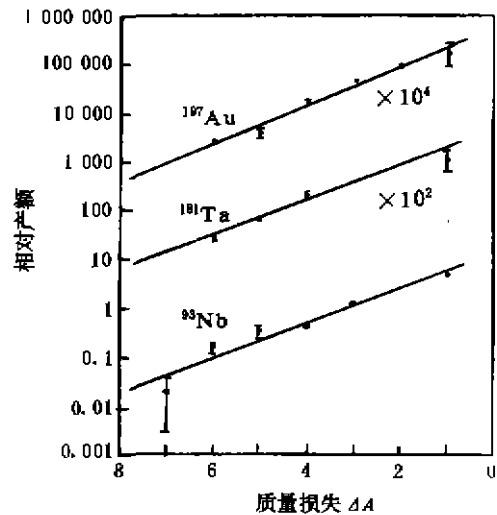


图1 次级中子与<sup>93</sup>Nb、<sup>181</sup>Ta和<sup>197</sup>Au反应中相对产额随质量损失 $\Delta A$ 的变化

实验结果仍能说明问题.从图1可以看到,随着 $\Delta A$ 的增加,反应产物的相对产额下降,

下降速率与靶元素种类无关. 在该实验条件下,  $(n, 7n)$ 反应仍有相当截面. 现仍以 $^{135}\text{Cs}$ 和 $^{133}\text{Cs}$ 为例,  $^{135}\text{Cs}(n, xn)$ 反应中若 $x$ 为10, 则生成 $^{129}\text{Cs}$ 到 $^{134}\text{Cs}$  9个铯同位素, 最长寿命的是2.06年的 $^{134}\text{Cs}$ . 同样情况下, 稳定的 $^{133}\text{Cs}$ 生成最长寿命的铯同位素是 $^{132}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 6.47\text{ d}$ ), 如果考虑到铯缺中子同位素的衰变子体, 则最长寿命的是36.4天的 $^{127}\text{Xe}$ . 由此可见, 使用 $(n, xn)$ 反应既可将长寿命裂变产物嬗变为短寿命核素, 又有效避免了把稳定核素嬗变为长寿命核素, 嬗变后的废物经适当贮藏冷却就能很方便地处理.

当然, 与 $(n, \gamma)$ 反应相比,  $(n, xn)$ 反应截面较低. 但是截面大小只影响嬗变时间, 不会成为不能使用 $(n, xn)$ 反应的足够理由. 相反,  $(n, xn)$ 反应使中子增殖, 中子利用度更高、更经济. 这会成为使用 $(n, xn)$ 反应嬗变长寿命裂变产物的另一个理由.

#### 4 用活化法研究中子的输运和诊断

洁净核能系统的开发和研究中, 中子起着关键的作用. 中能质子轰击重元素靶时, 产生大量能量分布很宽的高能中子. 这些中子经减速慢化, 然后注入次临界装置. 次临界装置要完成裂变核的裂变而输出能量、核燃料的增殖以及有毒高放废料的嬗变三个目标. 要使次临界装置保持持久稳定的运行, 注入次临界装置的中子特性, 即能谱、强度和空间分布都有特定要求, 也就是说在加速器和次临界装置这两大设施之间要有良好的匹配. 但迄今为止, 中能质子和重元素靶碰撞产生的次级中子的能谱、强度和空间分布的理论模拟已经起步, 但是实验资料甚少. 由于中子参与了整个核能系统的所有核过程, 因此, 在每一环节都必须了解和研究中子的输运, 对中子进行特性测定和诊断.

在中子特性的各种测量方法中, 基于吸收箔活化的核化学技术是一种重要的测量手段. 根据中子活化反应不同的阈能可以估计

中子的大致能谱, 虽然能谱的分辨相当差, 但往往还是有实用价值的. 当知道活化截面后, 核化学方法能给出足够精度的中子平均强度. 至于空间分布, 用活化方法得到的结果也是足够好的. 核化学测量方法简单易行, 能完成中子能谱、强度和空间分布的测量和诊断, 可作为在线的物理测量方法的一个重要补充, 为核能系统研究、设计和运行提供大量重要数据. 在某些特定场合, 当物理方法中探测器不可能设置到位时, 核化学方法将成为唯一的不可取代的诊断技术. 只要知道在核武器试验中, 基于活化技术的经典核化学诊断方法所具有的不可比拟的优点, 而得到科学家们的高度重视, 就不难明白, 在未来的加速器驱动的洁净核能系统中, 中子的核化学诊断技术将会发挥多大的作用.

#### 5 结束语

加速器驱动的洁净核能系统已引起了世界许多国家, 特别是先进核大国的高度兴趣, 我们应当重视和跟踪国际核能科技研究的发展动向, 结合国内实际情况部署我国的洁净核能系统的发展战略. 目前尽可能利用现在的设施和条件, 开展与洁净核能有关的各类核科学和核技术的前期基础研究, 为下一世纪开发新一代核能打下人材、知识和技术的基础.

核化学是核物理和放射化学的交叉学科, 也是沟通组成核科学的这两门基础学科的桥梁. 核化学方法的实验基础是核素的放射性测量, 这种经典的核技术有着一系列的特点, 例如方法简便、应用灵活、适应性强和耗资较少等. 由于这些特点, 使核化学与加速器驱动的洁净核能系统有密切联系, 实际上也能渗透到该系统的几乎所有的主要方面. 也正是由于这些特点, 可以预期, 在与洁净核能有关的前期基础性研究中, 核化学将成为最早启动的少数研究领域之一. 这也是新一代核能开发给核化学提供的一次机会

和挑战。

### 参 考 文 献

1 中国原子能科学研究院、核工业研究生部. 放射性洁净核能系统研讨会报告文集, 北京, 1996

2 中国高等科学技术中心. Nuclear Energy System Driven by High Intensity Proton Accelerator. Proceedings of CCAST Workshop. Beijing, September, 1996

3 Li Wenxin, Onkuba Y *et al.* Study on the Nuclear Reactions of  $^{93}\text{Nb}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ , and  $^{197}\text{Au}$  Induced by Secondary Neutron in 40 MeV/nucleon  $^{40}\text{Ar}$  Ions Collision. Chemistry Letter, 1994, 277~280

## Study of Nuclear Chemistry Related to Nuclear Power System Driven by Accelerator

Li Wenxin

(*Shanghai Institute of Nuclear Research, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800*)

**Abstract** Some of research scopes on nuclear chemistry, concerning development of clean nuclear power system driven by accelerator have been proposed. The research fields proposed include spallation products and their yield distributions, transmutation of long-lived radiowaste, neutron measurement and diagnosis by activation techniques. Advantages of (n, xn) reactions used for transmutation of radiowaste have been discussed.

**Key words** clean nuclear power system nuclear chemistry spallation reaction neutron diagnosis transmutation

(上接第 169 页)

## Study of Quantum Optoelectronic Material Prepared by Ion Implantation

Xie Erqing<sup>1,2</sup> Wang Zhiguang<sup>1</sup> Jin Yunfan<sup>1</sup>

1) (*Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000*)

2) (*Department of Physics, Lanzhou University, Lanzhou 730000*)

**Abstract** The strong photoluminescence (PL) of Si nanocrystals originated from the quantum-confined effect, the preparation of quantum optoelectronic material by ion implantation as well as the advantages if its application to optoelectronic devices are reviewed and discussed.

**Key words** ion implantation Si nanocrystals quantum dot film