

驱动堆中长寿命核废料碘的嬗变研究

万俊生¹ R. Brandt²

1(西北核技术研究所 西安 710024)

2(Kernchemie, Philipps-University Marburg, Germany)

摘要 利用理论模拟和实验手段对加速器驱动的快中子堆消除常规反应堆排放的核废料碘进行了研究。实验中,利用加速器加速质子使其能量达到 1.0 GeV,并轰击重金属铅靶,利用靶中产生的次级中子诱发核废料¹²⁹I 的嬗变,使其嬗变为稳定同位素¹³⁰Xe。对实验嬗变效率进行了理论模拟验证,进而拓宽到研究的驱动堆体系中。堆芯区的核燃料为乏燃料铀和钚,靶和初级热交换剂为液态铅。

关键词 加速器驱动的反应堆 ¹²⁹I 嬗变 核废料嬗变

引言

世界上现存有成千上万吨核废料,目前还没有妥善的处理方法,通常都采用地质处理。我们知道,有些核废料的寿命很长(见表 1),达几百万年,如¹²⁹I 的半衰期为 1.57×10^7 年。要在地下保存这些核废料几百万年,安全是问题。90 年代初人们重新提出的加速器驱动的反应堆给解决这个难题带来了一线曙光。

表 1 世界上的核废料(到 2010 年,获得 400GW_e 的核能)^[1]

乏燃料总量	300,000	吨	长寿核裂变产物		
			钨 - 99 ($T_{1/2} = 2.1 \times 10^5$ 年)	250	吨
钚同位素	3000	吨	铯 - 135 ($T_{1/2} = 2 \times 10^6$ 年)	90	吨
镅同位素 (²³⁷ Np, $T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ 年)	140	吨	碘 - 129 ($T_{1/2} = 1.57 \times 10^7$ 年)	60	吨
镅及其超镅元素	120	吨			

加速器驱动的反应堆思想很简单^[1-3]:用一台加速器加速质子到 1 GeV 以上,用此粒子束轰击重金属靶使其发生散裂反应释放出大量的次级中子,利用这些中子可以诱发核材料裂变产生能量发电,也可以用此中子照射长寿命核废料使其嬗变为短寿命的或稳定核素。这种反应堆有以下几个特点:

- 1) 系统工作在次临界条件下,不会发生超临界事故。

2) 比一般反应堆更能有效地消除核废料。

3) 更有效地使 ^{238}U 和 ^{232}Th 转化为 ^{239}Pu 和 ^{233}U ,拓宽了反应堆燃料来源。

加速器驱动的反应堆是一个庞大的系统工程,本文只侧重于讨论该系统中长寿核废料 ^{129}I 的嬗变情况。首先简单介绍了本文所用的理论基础以及我们以前的实验验证情况,接着介绍了在俄罗斯进行的核废料嬗变实验情况并对实验结果进行了理论验证,最后对次临界系统中 ^{129}I 的嬗变情况进行了讨论。

1 理论基础

本文所用的软件是俄罗斯 Dubna 的 DCM-CEM (Dubna Cascade Model-Cascade Evaporation Model) 程序^[2],其计算是基于核内核间级联 (inter-intranuclear cascade) 反应模型、运用蒙特卡罗方法完成的。在这样一个由高能质子轰击重靶的系统中,中子的产生在 DCM-CEM 程序中由多步完成:首先,在高能质子和靶核发生弹性或非弹性作用之前,根据 Sternheimer 的方法模拟高能质子因诱发靶原子电离而本身损失能量使其运动速度放慢的过程。接着质子与靶核发生作用,其中有些作用将会使靶核发生散裂反应 (spallation) 而释放二次粒子如中子、质子等。这些被释放的粒子将继续与其他靶核作用,直到其能量损失到不足与其他核发生作用或被靶核捕获或脱离靶区为止。而那些由于发生过核反应而处于不稳定状态 (激发态) 的剩余核将发生裂变或粒子的蒸发等过程而退激。

这里用一个例子来证实该软件的模拟能力:模拟中子在一体系中空间分布的能力。为此我们进行过一次实验^[4]:7.4 GeV 的质子轰击一个直径为 8 cm, 长为 20 cm 的铅靶,该铅靶用 6 cm 厚的石蜡包裹,靶中产生的中子用 LR 115 (IIB) 固体径迹探测器记录低能中子,用 CR39 固体径迹探测器记录快中子,研究中子在体系表面的分布。理论与实验结果如图 1 所示,两者吻合很好,说明理论计算能较好地模拟实验结果。

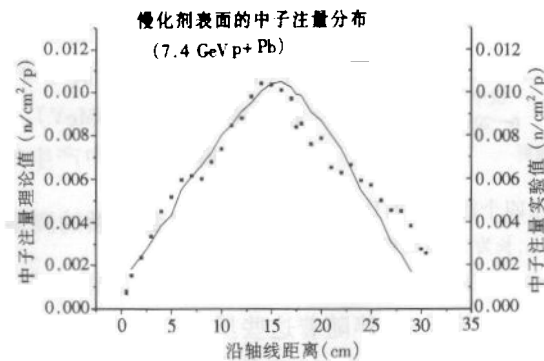


图1 实验与理论的中子注量在靶表面的分布比较

■ 实验结果, — 理论计算结果。

2 实验安排

我们所用靶材料是纯铅,它由 20 块直径为 8cm,厚为 1cm 的铅圆片组成(见图 2),铅靶外置长寿命的核废料样品.如图 2 所示, ^{129}I 置于铅靶前端,核废料样品含 0.5 克碘,以碘化钠的形式存在,其中含 15% 的 ^{127}I 和 85% 的 ^{129}I ,用 0.5mm 厚的铝包裹密封.

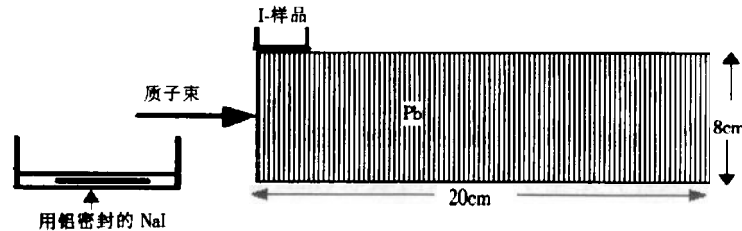


图 2 实验装置

3 实验结果与讨论

3.1 散裂反应中子产额

实验在俄罗斯核联合研究所的重离子加速器上完成.铅靶产生的中子用活化法、

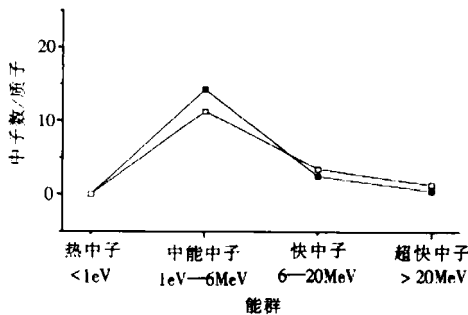


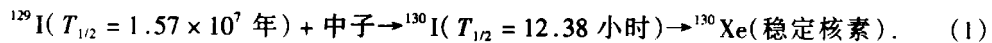
图 3 模拟值与实验值在四个能区内的比较
(1GeV 质子轰击直径为 8cm,长为 20cm 的铅靶)

—■— 实验结果, —○— 理论结果.

SSNTD 等中子探测技术探测其产额^[2].实验测量值为 17.6,DCM-CEM 模拟值为 16.2,两者在实验误差内吻合很好.模拟与实验测得的中子能谱在四个能区内的分布比较见图 3.图 3 中的中子分为四群:热中子群 (<1eV);中能中子群 (1eV—6MeV);快中子群 (6MeV—20MeV) 和超快中子群 (>20MeV).图 3 显示 CEM 软件能较好地模拟实验中产生的中子能谱.

3.2 ^{129}I 嬗变产额的测量及理论模拟

实验装置如图 2 所示,用 1.0GeV 能量的质子轰击铅靶使其发生散裂等反应,伴随着这些反应有许多中子产生,用这些中子照射核废料碘样品使其嬗变.碘样品中含有 0.425 克的 ^{129}I .在中子的照射下样品中发生下列反应:



核废料样品在辐照后马上用高纯锗探测器测量其 γ 谱.在 γ 谱中核废料嬗变产物 ^{130}I 的 γ 谱线清晰可辨.每个样品测量 5 次以上,每次测量最少 50 分钟. γ 谱的解谱工作由 GAMMAW^[5] 程序完成.谱中 γ 谱线的归属由该谱线的衰变曲线确定的半衰期 $T_{1/2}$ 来确定.

536keV 谱线确定的半衰期为 11.95 小时,而¹³⁰I 的半衰期为 12.38 小时,因此我们认为它属于¹³⁰I。辐照后的核废料 γ 谱中已确定归属的 γ 谱线有:¹²⁹I 样品中 418keV,536.1keV,668.5keV,739.5keV 和 1157.5keV 属嬗变产物¹³⁰I;谱中的 1368.5keV 谱线属于²⁴Na,它是²⁷Al(n, α)²⁴Na反应产物。

同我们以前的研究一样^[6-9],实验结果用 B 值表示,其定义为:每一个入射粒子在每克样品中引起反应而产生的某一核素的数目。实验结果列入表 2。表 2 中还列出了理论模拟结果。理论嬗变 B 值的模拟用 DCM-CEM 计算。表 2 显示理论模拟的 B 值与实验值在 2σ 的误差范围内吻合较好。

表 2 核废料¹²⁹I 的嬗变结果,1.0GeV 的质子轰击 $\Phi 6 \times L20\text{cm}$ 的铅靶

	B 值	误差(%)
实验值	3.2×10^{-6}	17
理论值	3.9×10^{-6}	12

4 碘在铅冷快中子堆中嬗变率的模拟计算

下文长寿命核废料碘的嬗变研究将基于我们以前研究的加速器驱动的反应堆^[2,3],反应堆堆芯部分示意图如图 4,主要参数见表 3。表 3 中的核燃料为压水堆卸出的乏燃料,其同位素组成见表 4。在这种加速器驱动的快中子堆中,中子的能量一般为几百个 keV 到几个 MeV,中子能谱在系统中的分布见图 5。中子注量率在靶区与活性区交界处 ($R = 30\text{cm}$) 最高为 $5.81 \times 10^{15} \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2$ 。在反应堆堆芯内随着偏离靶的距离增大,中子注量率递减,到反应堆堆芯边缘 ($R = 100\text{cm}$) 时降到了 $1.89 \times 10^{15} \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2$ 。在反射层中,中子注量率由与活性区交界处的 $1.89 \times 10^{15} \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2$ 剧减到在 $R = 140\text{cm}$ 时的 $1.0 \times 10^{14} \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2$ 。这么高的中子注量率完全可以用来诱发长寿命核废料的嬗变。因此,核废料的嬗变既可以在活性区,也可以在反射层进行。由此,核废料碘的装料可有两种形式:固态和液态。

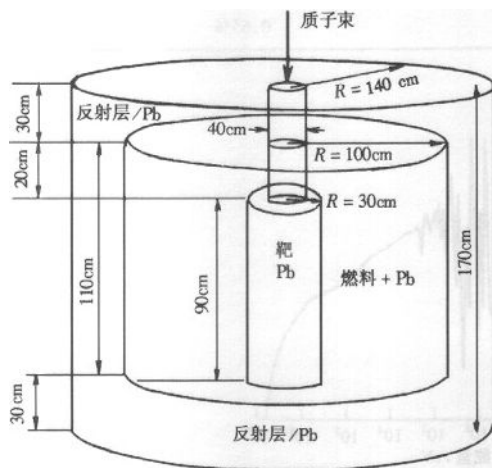


图 4 反应堆堆芯部分示意图^[2]

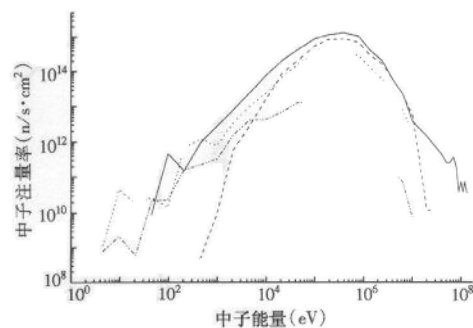


图 5 中子注量率在系统中的分布

— $R = 30\text{cm}$, - - - $R = 75\text{cm}$, ···· $R = 100\text{cm}$, - · - · $R = 140\text{cm}$ 。

表 3 加速器驱动反应堆的主要参数^[3]

质子能量	1GeV	活性区高	110cm
质子束强度	20mA	活性区半径	100cm
反应堆的热功率	920MW	中子增殖系数	0.944
活性区的平均热功率密度	293W/cm ³	铅	127T
液态铅的温度(入/出)	550℃/650℃	液态铅的流速(平均)	2.7m/s
核燃料(U/Pu)		9.6TU/1.44T Pu	

表 4 加速器驱动反应堆中核燃料中同位素的份额

铀中同位素组成(%)	²³⁸ U = 99.1		²³⁵ U = 0.9		
钚中同位素组成(%)	²³⁸ Pu = 1.6	²³⁹ Pu = 59.4	²⁴⁰ Pu = 24.7	²⁴¹ Pu = 9.1	²⁴² Pu = 5.2

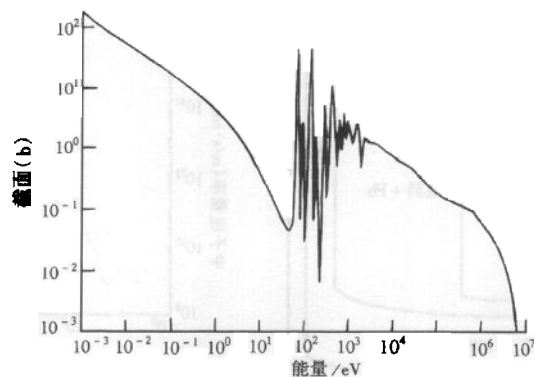
(核燃料来自常规反应堆 PWR 卸出的乏燃料, 燃耗 35GWd/t 并冷却 10 年)

对于固态装料,核废料置于中子反射层($R = 100-140\text{cm}$). 此区中子注量率为 $1.89 \times 10^{15} - 1.0 \times 10^{14} \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2$, 在此中子的辐照下, 一年中¹²⁹I 能嬗变 0.65%.

对于液态装料(PbI_2),核废料则随液态铅在整个反应堆堆区、一回路及热交换器中分布,活性区的中子注量率较反射层的中子注量率高得多,因此,活性区的核废料嬗变效率远大于中子反射层,而一回路及热交换器在堆外,因此流经此处的核废料嬗变效率接近于零. 由于冷却剂在堆区、一回路及热交换器之间流动,核废料间歇性地流经活性区、反射区、一回路和交换器,因此研究核废料的嬗变效率应同时综合考虑上述各情况,假设热交换剂在堆内停留 2/3 时间,1/3 的时间用于堆外进行热交换和通过一回路,则在同样的条件下,¹²⁹I 的嬗变率可达 1.1%(见表 5).

表 5 在加速器驱动的反应堆中,经过一年的辐照,核废料¹²⁹I 的嬗变率

核废料装料形式	嬗变率
液态	1.1%
固态(反射区)	0.65%

图 6 ¹²⁹I(n, γ)反应截面^[10]

由图5可见,活性区的中子谱很硬,中子的能量一般为几百个keV到几个MeV,而 ^{129}I 的嬗变以吸收热中子和超热中子为主(见图6),因此,虽然活化区的中子注量率很高,但 ^{129}I 在快驱动堆中的嬗变效率(对上述两种情况)都不是特别高.如果是加速器驱动的热堆并考虑理想情况:中子完全慢化为热中子而保持中子注量率不变,则在热驱动堆中 ^{129}I 的嬗变效率比快驱动堆中高170倍,但这在现实中是难以达到的,因为:1)热驱动堆活化区的中子不可能完全慢化;2)为保持次临界条件,热驱动堆的中子注量率将会远低于快驱动堆的中子注量率(约1—2个数量级).所以热驱动堆能改善 ^{129}I 的嬗变效率,但改善不会太大.

5 结论

从以上的实验与理论模拟结果的讨论可得出以下的结论:

1) 加速器驱动的次临界快中子堆中可以消除常规反应堆排放的长寿核废料 ^{129}I ,使其嬗变为稳定核素,但嬗变效率不是很高.如20mA,1.0GeV的质子束驱动的反应堆中 ^{129}I 嬗变效率为每年1.1%.如液态铅中加入1%的核废料碘,每年每台加速器驱动的反应堆可嬗变约22kg的核废料碘.如果是热堆, ^{129}I 的热中子反应截面会增大,但中子注量率会降低,因此嬗变效率只会略有增大.

2) 用理论模拟手段对实验结果进行了较满意的解析,理论模拟结果与实验结果吻合较好.

3) 比较核废料碘与超铀元素(核燃料:乏燃料中的铀和钚)在加速器驱动的反应堆中的嬗变率可见,该反应堆更能有效地消除超铀元素,且能利用超铀元素发电.

本工作实验期间得到了俄罗斯Dubna核技术联合研究所专家同行的大力协助,德国同行的大力帮助,丁大钊院士在本文成文期间提出了许多宝贵意见,作者在此深表谢意!

参考文献(References)

- 1 Rubbia C et al. A Realistic Plutonium Elimination Scheme with Fast Energy Amplifiers and Thorium-Plutonium Fuel, 1995, CERN/AT/95-53(ET)
- 2 WAN Jun-Sheng. Studies on Spallation in Massive Targets and the Transmutation of ^{129}I and ^{237}Np in a Subcritical System, Germany: Goerich & Weiershaeuser, 1999, ISBN3-89703-310-0
- 3 WAN Jun-Sheng. Journal of Tsinghua University (Sci & Tech), 2000, 40(S3):121—127(in Chinese)
(万俊生. 清华大学学报(自然科学版), 2000, 40(S3):121—127)
- 4 Hashemi-Nezhad R S, Brandt R, WAN Jun-Sheng et al. Radiation Measurements, 1999, 31:537—541
- 5 Westmeier W. GAMMA-Handbuch, 1991
- 6 Krivopustov M, Brandt R, WAN Jun-Sheng et al. J. Radioanal. and Nuclear Chem. Letters, 1997, 222:267—269
- 7 WAN Jun-Sheng, Sosnin N A Brandt R et al. Kerntechnik 1998, 63:167—177
- 8 Ochs M, WAN Jun-Sheng, Brandt R et al. Transmutation of ^{129}I and ^{237}Np Using Spallation Neutrons Produced by 1.5, 3.7 and 7.4 GeV Protons, JINR-preprint E1-99-1(1999)
- 9 Brandt R, Ochs M, WAN Jun-Sheng et al. Radiation Measurements, 1999, 31:497—506
- 10 JEF-PC Nuclear Data Bank, 1985

Studies on Transmutation of Long-Lived Nuclear Waste Iodine in the Accelerator-Driven Reactor

WAN Jun-Sheng¹ R. Brandt²

1(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

2(Kernchemie, Philipps-University Marburg, Germany)

Abstract The transmutation of nuclear waste ^{129}I in the subcritical system was studied in the present work using both theoretical and experimental methods. In the experiment, the energetic proton beam (1.0 GeV) from accelerator was used to bombard a thick lead target. And the long-lived nuclear waste ^{129}I was transmuted to ^{130}Xe by the spallation neutrons generated in the target. The transmutation efficiency of ^{129}I was compared with theoretical simulation. And the transmutation in an Accelerator-Driven Subcritical Fast Reactor (ADSFR) was explored with the experimental results. The spent fuel of PWR (Pressured Water Reactor) is assumed to be used as the fuel in ADSFR. The liquid lead was chosen as target and coolant in the ADS.

Key words Accelerator-driven reactor, ^{129}I transmutation, Nuclear waste transmutation