

The Effect of ^{237}Np Partial Substitution for Burnable Poison on Safety of PWR BEAVRS Model

Zhihao Li, Bin Liu, Jie Sheng, Xinying Zhang, Peng Fu

School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing
Email: lizhihao@ncepu.edu.cn

Received: Dec. 13th, 2019; accepted: Dec. 30th, 2019; published: Jan. 6th, 2020

Abstract

Minor actinide is one of the most important radioactive sources of Pressurized Water Reactor (PWR) spent fuel; the mass fraction of ^{237}Np in minor actinide is about 50%. BEAVRS model is a Bench mark for Evaluation And Validation of Reactor Simulations published by MIT Computational Reactor Physics Group. BRAVRS is a full-core PWR benchmark based on a commercial nuclear power plant that provides a detailed description of components in reactor core and measured value of operating parameters. Based on BEAVRS model, we introduce three patterns of $^{237}\text{NpO}_2$ partial substitution for burnable poison B_2O_3 . The simulation results of MCNP5 indicate that $^{237}\text{NpO}_2$ partial substitution for burnable poison B_2O_3 will decrease effective multiplication factor; the trend of decrease will slowdown when the substitution mass increase. All three substitution patterns almost have no effect on fuel temperature coefficient, but will increase the absolute value of moderator temperature coefficient, that will enhance the safety of reactor.

Keywords

^{237}Np , BEAVRS Benchmark, MCNP, Fuel Temperature Coefficient, Moderator Temperature Coefficient

^{237}Np 替换可燃毒物对压水堆 BEAVRS 模型安全性的影响

李志豪, 刘滨, 盛洁, 张新营, 付鹏

华北电力大学核科学与工程学院, 北京
Email: lizhihao@ncepu.edu.cn

收稿日期: 2019年12月13日; 录用日期: 2019年12月30日; 发布日期: 2020年1月6日

摘要

次锕系元素是压水堆乏燃料放射性的重要来源之一， ^{237}Np 在乏燃料次锕系元素中质量占比为50%左右。BEAVRS模型是麻省理工学院计算反应堆物理小组2013年基于商用压水堆建立的全堆芯高精度模型，具有丰富的堆芯细节和实测数据。本文基于BEAVRS模型引入了三种方案，用 $^{237}\text{NpO}_2$ 部分替换原堆芯可燃毒物 B_2O_3 ，使用MCNP5模拟计算得出：同等体积下使用 $^{237}\text{NpO}_2$ 替换可燃毒物 B_2O_3 均会使堆芯有效增殖因数减小，随着替换质量的增加，减小的趋势趋缓。三种方案对堆芯燃料温度系数几乎没有影响，但会使慢化剂温度系数绝对值增大，有利于堆芯安全性。

关键词

^{237}Np ，BEAVRS基准题，MCNP，燃料温度系数，慢化剂温度系数

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

根据 IAEA 核反应堆信息系统，目前世界上在运行的反应堆有 450 台，其中压水堆超过 80%。一台典型的 1000 MW 压水堆每年约卸出 25 吨乏燃料，据统计目前全球累计卸出乏燃料 35 万吨，并以每年 1.05 万吨的数量增加。这些长寿命高放射性乏燃料如果流入环境，会造成大范围的放射性污染的，因此其处置问题亟待解决。嬗变是处理长寿命高放射性乏燃料的重要方法，其原理是长寿命高放射性核素在核装置中通过吸收中子进而转化成稳定核素或短寿命核素，从而从根本上实现长寿命高放射性乏燃料的处理。在乏燃料中虽然长寿命裂变产物和次锕系元素的质量各占 0.1%，但却是乏燃料放射性的主要来源，而在次锕系元素中 ^{237}Np 质量分数为 50% 左右[1]，且半衰期约为 200 万年，是乏燃料危害的重要来源。目前使用压水堆嬗变乏燃料的技术已经有了很多研究， ^{237}Np 可以在压水堆堆芯中吸收中子而嬗变成稳定核素，相对于其他次锕系元素如 ^{241}Am ， ^{243}Am ， ^{244}Cm ， ^{245}Cm 等， ^{237}Np 的热中子裂变截面非常低，热中子俘获截面适中，单独嬗变 ^{237}Np 能一定程度减小对反应堆的影响。因此通过压水堆嬗变 ^{237}Np ，可以大大降低乏燃料的半衰期及放射性。根据以前的研究[2]，次锕系元素对反应堆的影响类似于可燃毒物，因此本文采用 $^{237}\text{NpO}_2$ 替换可燃毒物 B_2O_3 的方案，探究嬗变 ^{237}Np 对压水堆的影响。

2. BEAVRS 模型介绍及 MCNP5 验证

BEAVRS 模型是麻省理工学院计算反应堆物理小组 2013 年基于商用反应堆建立的三维全堆芯高精度压水堆模型，提供了详细的堆芯结构参数和材料信息。其基准题有大量实测数据支撑，也经过众多蒙特卡罗程序验证。使用 BEAVRS 模型进行相关模拟计算可使结果具有可对比性。

2.1. BEAVRS 模型堆芯配置介绍

BEAVRS 堆芯采用标准压水堆设计，堆芯共 193 盒 17×17 的燃料组件，在第一燃料循环中， ^{235}U 燃料分三区布置，富集度分别为 3.1%，2.4% 和 1.6%，其中高富集度的燃料组件位于堆芯外围，中富集度和低富集度的燃料组件在堆芯内部交错布置，燃料装载量共 80.8 吨，全堆共有 1266 根可燃毒物棒，

材料为 12.5%的 B_2O_3 ，堆芯热功率 3411 MW [3]。

2.2. MCNP5 建模及验证

本文基于 BEAVRS 2.0.1 版本，使用 MCNP5 进行精确建模，计算了 BEAVRS 基准题中热态零功率 (HZP) 状态下的堆芯有效增殖因数，控制棒价值以及温度系数，每代中子数为 50000，共计算 800 代，跳过初始不活跃的 200 代，并与 BEAVRS 提供的实测数据以及其他论文中的模拟数据进行对比。从表 1 中可以看出，对于 BEAVRS 给出的不同控制棒插入状态下的实测临界硼浓度值，模拟计算的理论值应该为 1.00000，本文使用 MCNP5 模拟的结果基本符合这个理论值，最大偏差为 0.28%。在控制棒插入较多的情况下，有效增殖因数略低于理论值，在 JMCT [4] 和 SuperMC [5] 这两个程序的模拟结果也可以看出这一趋势。从表 2 中可以看出，对于不同控制棒插入状态下的控制棒价值，本文使用 MCNP5 的模拟结果与实测值以及其他程序的模拟值基本符合，与实测值最大偏差为 129 pcm，最小偏差为 3 pcm。从表 3 中可以看出，对于堆芯温度系数，本文使用 MCNP5 的模拟值接近实测值，优于 JMCT 和 SuperMC 的模拟值。以上可以看出本文使用 MCNP5 对 BRAVRS 模型的建模较为准确，具有一定可信度。

Table 1. The comparison of k_{eff} simulation results with different insertion mode of control rods

表 1. 不同控制棒插入状态下堆芯有效增殖因数模拟值对比

控制棒插入状态	临界硼浓度测量值/ppm	MCNP5	JMCT	SuperMC
ARO	975	1.00003	1.000479	1.00032
D in	902	1.00184	1.002174	1.00204
C、D in	810	1.00094	1.001419	1.00139
A、B、C、D in	686	0.99893	0.999917	0.99995
A、B、C、D、SE、SD、SC in	508	0.99722	0.998381	0.99841

Table 2. The comparison of control rod bank worth simulation results with different insertion mode of control rods

表 2. 不同控制棒插入状态下控制棒价值模拟值对比

控制棒插入状态	控制棒价值测量值/ pcm	MCNP5 控制棒价值/ pcm	JMCT 控制棒价值/ pcm	SuperMC 控制棒价值/ pcm
D in	788	753	770	779
C with D in	1203	1255	1258	1266
B with C、D in	1171	1300	1162	1180
A with D、C、B in	548	462	578	567
SE with D、C、B、A in	461	346	543	532
SD with D、C、B、A、SE in	772	808	781	791

Table 3. The comparison of temperature coefficient simulation results with different insertion mode of control rods

表 3. 不同控制棒插入状态下堆芯温度系数模拟值对比

控制棒插入状态	温度系数测量值/ $\text{pcm}^\circ\text{C}^{-1}$	MCNP5 温度系数/ $\text{pcm}^\circ\text{C}^{-1}$	JMCT 温度系数/ $\text{pcm}^\circ\text{C}^{-1}$	SuperMC 温度系数/ $\text{pcm}^\circ\text{C}^{-1}$
ARO	-1.75	-2.10	-2.21	-2.58

3. ^{237}Np 替换可燃毒物

本文设计了三种 $^{237}\text{NpO}_2$ 替换可燃毒物 B_2O_3 的方式, 如图 1 所示, 分别为均匀替换, 外部替换和内部替换。均匀替换是将所需添加的 $^{237}\text{NpO}_2$ 和原可燃毒物 B_2O_3 均匀混合后共同作为可燃毒物, 同时计算混合可燃毒物中 $^{237}\text{NpO}_2$ 和 B_2O_3 的比例, 以保持混合后的总体积与混合前保持不变。外部替换是保持原可燃毒物截面内径不变, 通过减小其外径, 为所需添加的 $^{237}\text{NpO}_2$ 提供空间, 使添加的 $^{237}\text{NpO}_2$ 在剩余可燃毒物外侧。内部替换与外部替换相反, 即添加的 $^{237}\text{NpO}_2$ 在剩余可燃毒物内侧。三种方式均采用同等体积的 $^{237}\text{NpO}_2$ 替换同等体积的可燃毒物 B_2O_3 , 以保证可燃毒物棒替换后与替换前外形尺寸保持不变, 三种方式均对全堆 1266 根可燃毒物棒全部进行替换。

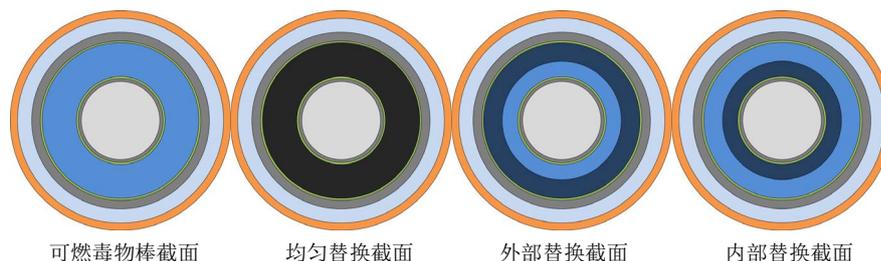


Figure 1. The cutaway view of ^{237}Np partial substitution for burnable poison (Orange: Zirconium alloy cladding; Light Blue: Water; Grey: 304 stainless steel; Green: Helium; Blue: B_2O_3 ; Dark Blue: $^{237}\text{NpO}_2$; Black: Mixture of $^{237}\text{NpO}_2$ and B_2O_3)

图 1. ^{237}Np 替换可燃毒物方式的截面(橙色: 锆合金包壳; 浅蓝色: 水; 灰色: 304 不锈钢; 绿色: 氦气; 蓝色: 硼玻璃 B_2O_3 ; 深蓝色: $^{237}\text{NpO}_2$; 黑色: $^{237}\text{NpO}_2$ 和 B_2O_3 均匀混合物)

4. ^{237}Np 替换可燃毒物对堆芯有效增殖因数的影响

本文使用 MCNP5 分别计算了三种方式下, 从 ^{237}Np 替换质量为 100 公斤开始, 以 100 公斤为间隔, 直至 1739 公斤时的堆芯有效增殖因数。当替换质量为 1739 公斤时即为全部的可燃毒物 B_2O_3 完全被替换为 $^{237}\text{NpO}_2$, 三种方式变为同一状态。MCNP5 计算时每代中子数为 50000, 共计算 800 代, 跳过初始不活跃的 200 代, 模拟结果如图 2 所示。

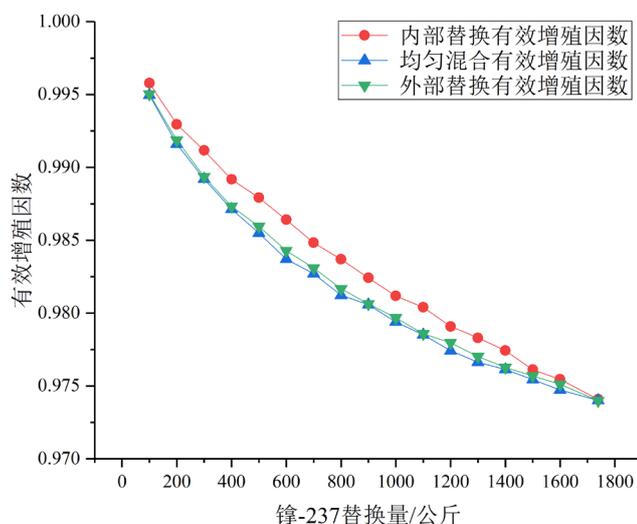


Figure 2. The effect of ^{237}Np partial substitution for burnable poison on k_{eff}

图 2. 三种方式 ^{237}Np 替换质量对有效增殖因数的影响

从图 2 可以看出, 首先, 三种方式随着 ^{237}Np 替换质量的增加, 堆芯有效增殖因数均下降, 也就是说, 同等体积二氧化铪的热中子吸收能力要强于原可燃毒物 B_2O_3 。其次, 三种方式的有效增殖因数曲线的下降趋势均随着替换质量的增加而减缓, 这是由于二氧化铪的自屏效应导致的, 可见过多的替换质量所获得的嬗变收益可能会大大减少, 反而会更多的影响堆芯特性, 因此本文后续所选用的替换质量为 300 公斤, 约相当于一台 1000 MW 标准压水堆 ^{237}Np 年产质量的 22 倍。此外, 在三种替换方式中, 均匀替换和外部替换的曲线区别不大, 外部替换对有效增殖因数的影响略小于均匀替换。而内部替换时同等添加质量下明显对有效增殖因数的影响更小, 这可能是由内部替换时外围可燃毒物的屏蔽效应导致的, 因为外围可燃毒物 B_2O_3 具有较大的热中子吸收截面, 当热中子通过时发生吸收反应, 导致到达内部的热中子通量密度降低, 从而降低了 ^{237}Np 对有效增殖因数的影响。

调节硼酸浓度使堆芯返回临界

对于三种方式导致的有效增殖因数的下降, 可以通过降低反应堆的初始硼浓度, 来使堆芯重返临界。经过 MCNP5 的计算, 堆芯在运行状态下, 燃料平均温度为 900°C 时, 临界硼浓度为 859 ppm。当替换质量为 300 公斤时, 各方案的临界硼浓度以及该硼浓度下有效增殖因数如表 4 所示。本文后续对于三种方式的模拟计算均是基于调节临界后的硼浓度进行。

Table 4. The critical boron concentration of different pattern on 300 kg substitution

表 4. 三种替换方式替换量为 300 公斤时的临界硼浓度

替换方式	临界硼浓度/ppm	临界有效增殖因数
均匀替换	772	1.00001
外部替换	775	0.99991
内部替换	788	0.99993

5. ^{237}Np 替换可燃毒物对温度系数的影响

温度系数是堆芯安全性能的重要指标, 是指堆芯每变化单位温度所导致堆芯反应性的变化量, 分为燃料温度系数和慢化剂温度系数。反应堆设计中, 这两个温度系数必须为负值, 以保证堆芯具有负反馈效应, 形成堆芯固有安全性。

本文使三种替换方式的替换质量均保持 300 公斤, 使用 NJOY 程序基于 ENDF/B VII.1 生成所需核素对应温度下的核数据, 使用 MCNP5 分别计算了各方案相应温度范围内的燃料温度系数和慢化剂温度系数, 每代中子数 100000, 共计算 800 代, 跳过初始的 200 代。温度系数计算方法如公式(1):

$$\alpha_T = \frac{(k_{eff}^{T_1} - k_{eff}^{T_2})}{(T_1 - T_2)} \quad (1)$$

式中: α_T ——温度系数;

T ——温度;

k_{eff} ——有效增殖因数。

5.1. ^{237}Np 替换可燃毒物对燃料温度系数的影响

燃料温度系数所导致的温度效应是瞬发的, 对反应堆的安全运行有着最直接的影响, 典型的压水堆燃料温度系数应为 $-4 \sim -1 \text{ pcm}^\circ\text{C}^{-1}$ [6]。本文以 200°C 为步长, 使用 MCNP5 计算了三种替换方式下替换质量为 300 公斤时, 200°C 到 1200°C 范围内的燃料温度系数, 如图 3 所示。

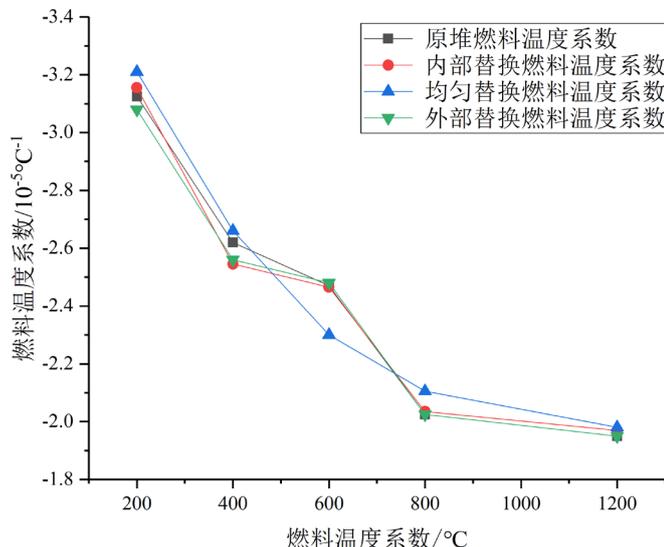


Figure 3. The effect of ²³⁷Np partial substitution for burnable poison on fuel temperature coefficient

图 3. 三种替换方式对燃料温度系数的影响

从图 3 可以看出，三种替换方式在所有计算温度范围内，燃料温度系数均为负值，且绝对值在典型压水堆燃料温度系数范围内。

其中外部替换和内部替换这两种方式燃料温度系数随温度的曲线走势基本符合原堆曲线，在燃料温度为 200°C 至 400°C 的低温段，这两种替换方式的燃料温度系数绝对值略小于原堆，这一定程度降低了堆芯安全性，但是在堆芯正常运行状态下，燃料温度为 600°C 至 1200°C 时，这两种替换方式的燃料温度系数曲线几乎与原堆完全重合。

对于均匀混合替换方式，其燃料温度系数绝对值在大部分温度范围均大于原堆，这增加了堆芯安全性，但是在 600°C 左右，其燃料温度系数绝对值明显小于原堆，对堆芯安全性有相对大的不利影响。

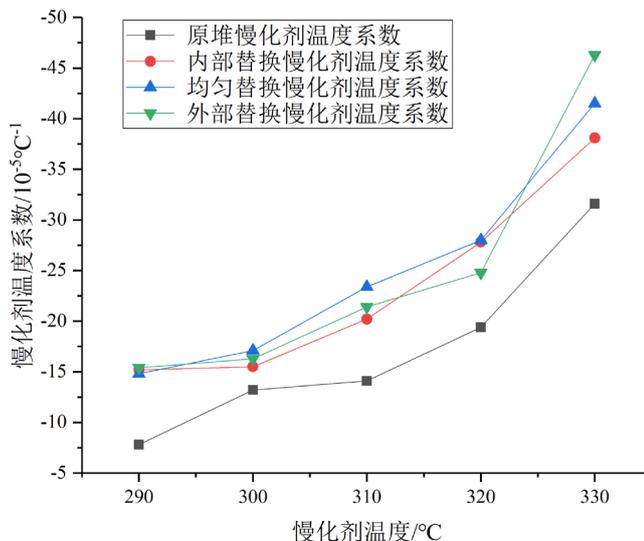


Figure 4. The effect of ²³⁷Np partial substitution for burnable poison on moderator temperature coefficient

图 4. 三种替换方式对慢化剂温度系数的影响

5.2. ^{237}Np 替换可燃毒物对慢化剂温度系数的影响

慢化剂温度系数所导致的温度效应是缓发的,对反应堆正常运行时功率自动调节有重要影响,典型的压水堆慢化剂温度系数应为 $-50\sim-8\text{ pcm}^\circ\text{C}^{-1}$ [6]。

需要注意的是,与计算燃料温度系数不同,燃料为固体,温度变化时其密度可认为不变,而计算慢化剂温度系数时,慢化剂为含硼水,其密度会随着慢化剂温度的变化而变化,因此本文基于美国国家标准与技术研究院 NIST 提供的所需温度下水的密度,按照 BEAVRS 文档所提供的计算方法,精确计算了各温度下含硼水的密度。据此,本文以 10°C 为步长,使用 MCNP5 计算了三种替换方式下替换质量为 300 公斤时, 290°C 到 330°C 范围内的慢化剂温度系数,如图 4 所示。

从图 4 中可以看出,三种替换方式在 290°C 到 330°C 范围内的慢化剂温度系数均为负值,且绝对值均符合典型压水堆慢化剂温度系数范围。在所计算温度范围内,三种替换方式的慢化剂温度系数的绝对值均大于原堆,增强了堆芯的安全性。这说明使用 $^{237}\text{NpO}_2$ 等体积替换原堆可燃毒物 B_2O_3 ,可以加强慢化剂温度的负反馈效应,有利于堆芯安全。

6. 结论

本文基于 BEAVRS 模型,首先使用 MCNP5 对 BEAVRS 部分基准题进行了计算,经过与 BEAVRS 实测值以及其他蒙特卡罗程序模拟值对比,验证了本文模拟的准确性。其次,对三种使用 $^{237}\text{NpO}_2$ 等体积部分替换原堆可燃毒物 B_2O_3 的情况进行了模拟。得出如下结论:

三种 $^{237}\text{NpO}_2$ 等体积部分替换原堆可燃毒物 B_2O_3 的方案,均会使堆芯的有效增殖因数下降,采用内部替换的方案可以缓解这种下降。三种方案可以通过降低初始硼浓度使反应堆重返临界。

$^{237}\text{NpO}_2$ 部分替换可燃毒物 B_2O_3 后,不会降低堆芯的安全性能。在运行温度范围内,燃料温度系数几乎与原堆保持不变。而慢化剂温度系数绝对值变大,这在一定程度上增加了堆芯的慢化剂温度负反馈效应,从而增加了堆芯的安全性能。

参考文献

- [1] Liu, B., Wang, K., Tu, J., Liu, F., Huang, L.M. and Hu, W.C. (2014) Transmutation of Minor Actinides in the Pressurized Water Reactors. *Annals of Nuclear Energy*, **64**, 86-92. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2013.09.042>
- [2] Liu, B., Jia, R.D., Han, R., Lyu, X.F., Han, J.S. and Li, W.Q. (2018) Minor Actinide Transmutation Characteristics in AP1000. *Annals of Nuclear Energy*, **115**, 116-125. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.01.031>
- [3] Horelik, N., Herman, B., Forget, B., et al. (2013) Benchmark for Evaluation and Validation of Reactor Simulations (BEAVRS).
- [4] 李刚, 邓力, 张宝印, 等. BEAVRS 基准模型热零功率状态的 JMCT 分析[J]. 物理学报, 2016, 65(5): 052801.
- [5] Wang, Z.Y., Wu, B., Hao, L.J., Liu, H.F. and Song, J. (2018) Validation of SuperMC with BEAVRS Benchmark at Hot Zero Power Condition. *Annals of Nuclear Energy*, **111**, 709-714. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2017.09.045>
- [6] 谢仲生. 核反应堆物理分析[M]. 北京: 原子能出版社, 1981.