

The Safety Characteristics of Transmutation MA in PWR

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

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

Received: Dec. 16th, 2019; accepted: Dec. 30th, 2019; published: Jan. 6th, 2020

Abstract

Pressurized water reactor can transmute long-lived minor actinides. In this paper, the characteristics of transmutation MA on PWR fuel rods are studied via establishing BEAVRS core model, designing MA nuclides coating patterns, making temperature cross section library by NJOY, and adjusting boric acid concentration. We also calculate the reactivity, neutron flux and spectrum, temperature coefficients and other parameters at the critical state. The results show that there are three loading patterns which are more feasible, and none of them have adverse effects on the core safety performance. We list these three patterns as follows. Loading MA nuclides with coating thickness of 0.0025 cm in 3.1% enrichment fuel area; Loading MA nuclides with coating thickness of 0.0015 cm in 2.4% enrichment fuel area; Loading MA nuclides with coating thickness of 0.002 cm in the outermost and the second outermost area. This paper provides reliable data reference for further calculation of transmutation rate and determination of optimal loading pattern.

Keywords

BEAVRS, Transmutation, MA, Safety, Temperature Coefficients

压水堆嬗变MA安全性研究

盛洁, 刘滨, 李志豪, 张新营, 付鹏

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

收稿日期: 2019年12月16日; 录用日期: 2019年12月30日; 发布日期: 2020年1月6日

摘要

压水堆可嬗变长寿命次锕系核素, 本文通过BEAVRS基准堆芯搭建、MA核素装载方案设计、NJOY温度截

面库制作、硼浓度调节各过程,在临界状态下计算堆芯反应性、中子通量及能谱、温度系数等相关参数,展开在压水堆燃料棒上镀层MA核素的嬗变研究。计算结果表明:在3.1%富集度区域全镀层0.0025 cm厚度MA核素;在2.4%富集度区域全镀层0.0015 cm厚度MA核素;在最外围和第二外围区域镀层0.002 cm厚度MA核素,此三种装载方式具有更优的可行性,且均不会对堆芯安全性能产生不利影响。本文为进一步计算嬗变率、确定最优化装载方案提供了可靠的数据支持,具有参考价值。

关键词

BEAVRS堆, 嬗变, MA, 安全性, 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

在核电事业大发展背景下,核电站卸出的大量高放射性乏燃料成为制约核能快速发展的瓶颈,乏燃料后处理迫在眉睫。乏燃料对于环境的放射性危害主要取决于长寿命裂变产物(Long-lived Fission Products, 简称 LLFP)以及 ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm , ^{245}Cm 等次锕系核素(Minor Actinides, 简称 MA) [1]。LLFP 和 MA 核素半衰期非常长,至少经过上万年的衰变其放射性才能降为天然铀的水平。分离嬗变技术(P&T)是将这些放射性核素从乏燃料中分离出来,放入特定装置中,对其进行中子照射,使其转变成低放射性核素或稳定核素,从而减少对环境的危害。

本文致力于 MA 核素的嬗变特性研究,压水堆是技术最为成熟且数量最多的堆型,对其进行装载 MA 镀层研究更具工程实际性。目前已有研究中 4 种将 MA 核素引入堆芯的方式及进展情况如下: 1) MA 核素与燃料均匀混合。经大量计算一致得出的结论为: MA 核素与燃料均匀混合对堆芯初始反应性扰动大、严重影响堆芯寿期,并且较难控制反应性。2) MA 核素镀层在燃料棒上,以此嬗变棒形式加入堆芯。由结果分析可知:添加 MA 前后,热中子减少,快中子在一定程度上增加,中子能谱硬化。MA 核素嬗变棒的空间自屏蔽效应为预防初始反应性的下降过快起了很重要的作用。3) MA 核素镀层取代可燃毒物水隙。由研究可知,MA 核素装载量越多,反应性下降的越多;它可以代替硼酸,提高安全性。4) MA 核素镀层取代可燃毒物。由计算结果可知,此方式对反应性扰动小。

此研究采用压水堆嬗变装置,以燃料棒上镀层 MA 核素为基础,将 MA 核素以嬗变棒的形式引入堆芯,通过模拟计算展开 MA 核素嬗变特性的研究。MA 核素不同装载方式设计包括对镀层厚度尺寸的选择及堆芯中嬗变棒组件装载位置的布局设计等。本文设计 9 种布局方案将 MA 嬗变组件引入堆芯,每种布局均对 15 种 MA 镀层厚度尺寸进行模拟计算。对此共计 135 种方案的结果进行数据分析,综合探讨反应性、安全性等因素,得出较优化装载方案。此研究通过深入计算多个相对可行方案,与之前研究中对单一方案的深入探讨相比更加全面,MA 装载设计的选择更趋于精准,对反应堆乏燃料嬗变的工业实际可行性具有重要意义。

2. BEAVRS 介绍

BEAVRS 模型参数来源于西屋公司,它是基于含两个燃料循环的商用核电站构建的一种新型、多燃料循环、能够满功率运行的压水堆基准堆型。BEAVRS 全称为 Benchmark for Evaluation and Validation of

Reactor Simulation, 可用于验证中子耦合输运、热工水力和燃料同位素的燃耗等。

2.1. 堆芯组成

如图 1 所示, 堆芯由 193 个尺寸相同、截面为正方形的燃料组件排列而成。芯部四周由 64 个富集度为 3.1% 的燃料组件组成, 内区则混合交错布置 64 个富集度为 2.4% 和 65 个富集度为 1.6% 的燃料组件。燃料组件均为 17×17 排列, 含 264 根燃料元件棒, 24 根控制棒导向管以及 1 根注量率测量管, 与常见的反应堆组成一致[2]。本文模拟控制棒全部提出堆外的情况, 通过化学补偿控制调节硼浓度, 使之达到临界状态。

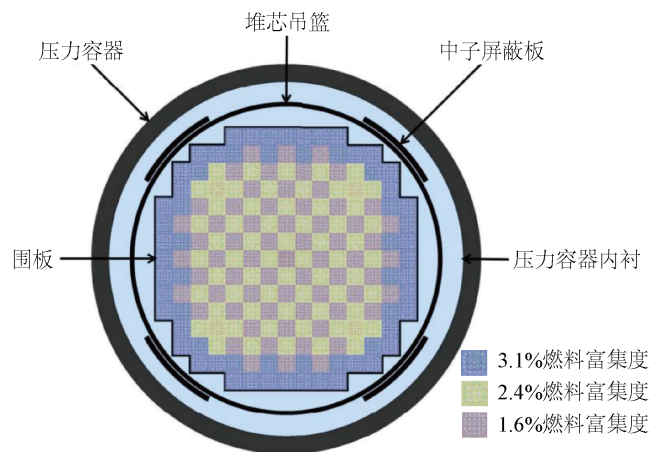


Figure 1. Crosssectional view of BEAVR Score
图 1. BEAVRS 堆芯截面图

2.2. 主要参数介绍

一些较新的和广泛使用的压水堆基准测试套件没有测量数据的支持[3], 比如 C5G7 MOX 基准, Hoogenboom-Martin LWR 蒙特卡洛基准[4], 以及道格拉斯等人的近似压水堆规范。BEAVRS 通过提供高精度精细的压水堆规格的两循环运行测量数据, 解决了许多之前基准压水堆的缺点, 可用于验证高保真堆芯的分析方法。BEAVRS 堆的主要规格参数列于表 1。

Table 1. Main specifications of PWR
表 1. 压水堆的主要规格参数

参数	值
堆芯总功率	3411 MW
堆芯运行压力	2250 Pa
活性区长度	365.76 cm
燃料棒内半径	0.39218 cm
燃料棒外半径	0.45720 cm
硼酸浓度	975 ppm
U-235 富集度	1.6%, 2.4%, 3.1%
堆芯总高度	460 cm

3. 计算程序介绍

3.1. MCNP 程序

MCNP 程序用于计算三维复杂几何结构中的中子、光子、电子或耦合中子/光子/电子输运问题，也用于计算核临界系统本征值问题。此研究使用 MCNP5 构建 BEAVRS 堆芯模型，计算所需各参数。

3.2. NJOY 程序

NJOY [5]是美国 LANL 发布的一个核数据处理软件，可为 MCNP、ANISN (一维中子 - 光子输运程序)、WIMS (栅元计算程序)等程序准备格式化数据库。为使 MCNP 数据库中的光核数据更加完善，在原有温度库基础上，利用 NJOY 程序制作核素不同温度点下可供 MCNP 调用的 ACE (A Compact ENDF)格式光核数据。

4. MA 嬗变棒设计

本文选取 MA 核素以嬗变棒的形式加入堆芯，即燃料棒上镀层 MA 核素的镀层方式，对其进行嬗变特性的研究，现介绍如下。

4.1. 嬗变棒结构介绍

燃料棒由内到外分别为 UO_2 燃料、氦气以及锆合金燃料包壳，它们的半径依次是 0.39218 cm, 0.40005 cm, 0.45720 cm。本文设计嬗变棒的方式为：保持燃料棒内径 0.39218 cm 不变，在 0.39218 cm 内部进行不同厚度下的 MA 核素镀层，即镀层外半径不变。其结构如图 2 所示，由内到外，黄色区域代表燃料、黑色代表 MA 核素、蓝色区域代表氦气、洋红色区域代表锆合金燃料包壳。



Figure 2. MA transmutation target configuration
图 2. 嬗变棒结构图

由调研我们得到典型轻水堆在 33000 MWd/t 的卸料深度下堆芯卸料中 MA 各核素比例[6]，见表 2。

Table 2. The ratio of MA in discharge LWR
表 2. 轻水堆卸料中 MA 各核素的比例

核素	质量比(%)
^{237}Np	56.20
^{241}Am	26.40
^{243}Am	12.00
^{244}Cm	5.12
^{245}Cm	0.28

4.2. 嬗变棒尺寸设计

MA 核素的镀层厚度决定 MA 嬗变材料的装载质量，是影响嬗变表现的一个重要因素。过多的 MA 添加会大量吸收反应堆裂变反应产生的中子，链式裂变反应将无法持续；而较少的 MA 将达不到预期嬗变效果。故此设计 15 种不同厚度方案，研究以确定合理镀层厚度。镀层设计尺寸由表 3 列出。

Table 3. MA coating thicknesses on fuel pellets
表 3. 燃料芯块上 MA 镀层厚度

镀层厚度(cm)	镀层内半径(cm)	镀层外半径(cm)
0.00002	0.39216	0.39218
0.00004	0.39214	0.39218
0.00006	0.39212	0.39218
0.00008	0.39210	0.39218
0.0002	0.39198	0.39218
0.0004	0.39178	0.39218
0.0006	0.39158	0.39218
0.0008	0.39138	0.39218
0.001	0.39118	0.39218
0.0015	0.39068	0.39218
0.002	0.39018	0.39218
0.0025	0.38968	0.39218
0.003	0.38918	0.39218
0.0035	0.38868	0.39218
0.004	0.38818	0.39218

4.3. 嬗变棒布局设计

为降低实际制造难度并使中子通量与功率分布更均匀，将单个燃料组件中 264 个燃料棒全部替换为嬗变棒引入堆芯，形成嬗变棒组件。根据图 3 所示堆芯的燃料富集度分区和可燃毒物组件分布，设计嬗变棒组件的 9 种排布方案，列于表 4。

5. MA 的引入对堆芯特性的影响

5.1. MA 对有效增殖因子的影响

首先选取相对合理的布局方案。较优化方案的选取原则为：在尽可能多地添加 MA 核素的情况下对堆芯性能影响最小，即选取相同 MA 添加质量情况下堆芯有效增殖因子最大的方案[7]。已知 MA 核素氧化物的密度为 11.2 g/cm^3 ，设每根嬗变棒的内半径为 R ，外半径始终不变，为 0.39218 cm ，活性区高度为 365.76 cm ，则每根燃料棒中 MA 核素氧化物的质量(kg)为：

$$M_1 = \pi \times (0.39218^2 - R^2) \times 365.76 \times 11.2 \times 10^{-3} \quad (1)$$

每个燃料组件中嬗变材料的质量(kg)为：

$$M_2 = 264M_1 = 264 \times \pi \times (0.39218^2 - R^2) \times 365.76 \times 11.2 \times 10^{-3} \quad (2)$$

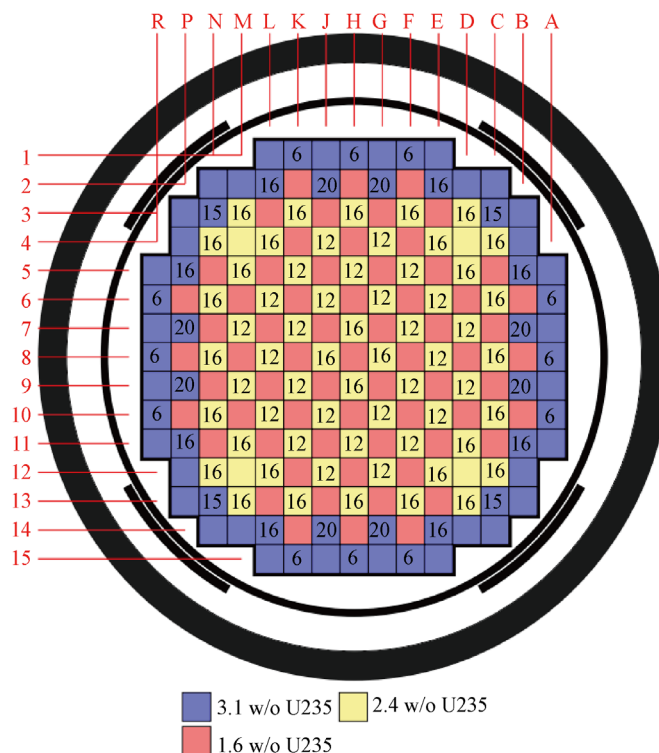


Figure 3. Burnable poison assembly distribution in BEAVRS core
图 3. BEAVRS 堆芯中可燃毒物组件分布图

Table 4. Distribution schemes of MA transmutation targets
表 4. MA 嬗变靶布局方案

方案	布局设计
1	3.1%富集度区域燃料棒镀层
2	2.4%富集度区域燃料棒镀层
3	1.6%富集度区域燃料棒镀层
4	1.6%和3.1%富集度区域燃料棒镀层
5	1.6%和2.4%富集度区域燃料棒镀层
6	2.4%和3.1%富集度区域燃料棒镀层
7	整个堆芯区域燃料棒镀层
8	最外围和第二外围区域燃料棒镀层
9	所有可燃毒物组件中的燃料棒镀层

对各方案需替换的嬗变棒组件数，列举如下：3.1%富集度的燃料组件 64 个；2.4%富集度的燃料组件 64 个；1.6%富集度的燃料组件 65 个；可燃毒物棒组件 92 个；最外围和第二外围区域燃料组件 72 个。根据不同排布方案的嬗变棒组件数，即可分别求出装载 MA 核素的总质量。

基于 9 种布局方案，将 9 种排布分别在上述 15 种 MA 镀层厚度设计尺寸下进行模拟，共计 135 种设计方案。堆芯有效增殖因数与 MA 添加量的关系见图 4。

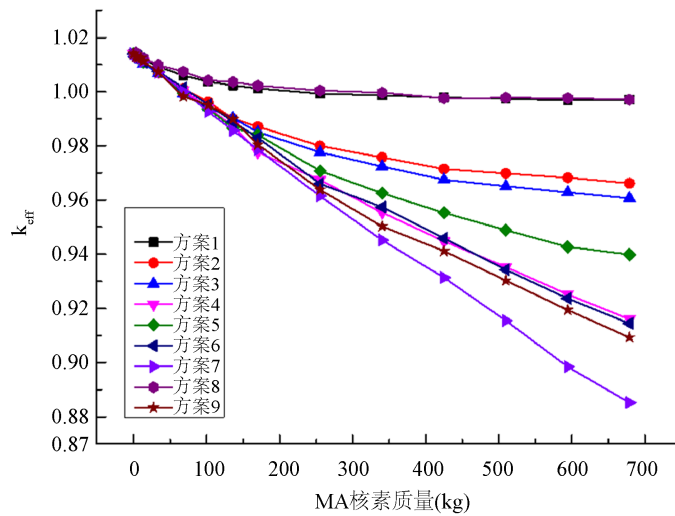


Figure 4. The relationship between MA loading amount and k_{eff}
图 4. MA 装载量与有效增殖因数的关系

通过 MCNP 程序将这些方案写入已经搭建好的 BEAVRS 模型中, 计算上述所有方案的堆芯有效增殖因子 k_{eff} , 选取同一装载质量下对堆芯性能影响最小(即有效增殖因数最接近于 1)的几种布局方案, 展开更进一步的研究。

由图可知, 方案 1 和 8 对 k_{eff} 影响效果最小且几乎重合, 方案 2、3 趋于平缓一致, 方案 7 对 k_{eff} 影响最大, 其他方案没有特别突出的影响。为更加全面精准地确定最优化装载方案, 选取方案 1、2、7、8 进一步研究。其中, 方案 1 指 3.1% 富集度区域燃料棒镀层的布局设计; 方案 2 指 2.4% 富集度区域燃料棒镀层的布局设计; 方案 7 指整个堆芯区域燃料棒镀层的布局设计; 方案 8 为最外围和第二外围区域燃料棒镀层的布局设计。由于各方案均对应 15 种厚度尺寸, 接下来要确定方案 1、2、7、8 下的最优化厚度。

5.2. MA 替代化学补偿毒物

由图 4 可知, 随着 MA 核素装载量的增加, 有效增殖因子降低, 这说明 MA 核素在一定程度上起到了反应堆毒物的作用。通过降低 4 种方案不同厚度尺寸下的冷却剂中硼浓度, 使 k_{eff} 重新回到未添加 MA 核素前的值。最优厚度尺寸选取原则为: 在 MA 核素添加质量不太多的情况下尽量多地降低冷却剂中硼浓度, 即选取冷却剂中硼浓度尽量小的方案。方案 1、方案 2、方案 7、方案 8 中 MA 核素替代堆芯化学毒物的关系分别示于图 5、图 6、图 7 和图 8。

可以得出, 方案 1 选取 MA 添加质量为 425.027 kg, 即厚度为 0.0025 cm 的设计。在此点之后, 随着 MA 添加质量的增加, MA 核素所能替代的冷却剂中硼酸的浓度趋于平衡, 即所替代的硼酸浓度达到最大值。在选取时需保证 MA 添加质量不要过多, 所以质量为 425.027 kg 的点符合选取原则。同理可得, 方案 2 选取 MA 添加质量为 255.347 kg, 即厚度为 0.0015 cm 的设计; 方案 8 选取 MA 添加质量为 382.752 kg, 即厚度为 0.002 cm 的设计。方案 7 堆芯全镀层对 k_{eff} 影响太大, 不符合工程实际, 舍弃此方案。

5.3. 小结

经数据处理与分析, 确定三种 MA 装载方案, 分别为: 在 3.1% 区域燃料棒上镀层厚度为 0.0025 cm 的 MA 核素; 在 2.4% 区域燃料棒上镀层厚度为 0.0015 cm 的 MA 核素以及在最外围和第二外围区域燃料棒上镀层厚度为 0.002 cm 的 MA 核素。接下来分别对三种装载情况进行安全性研究。

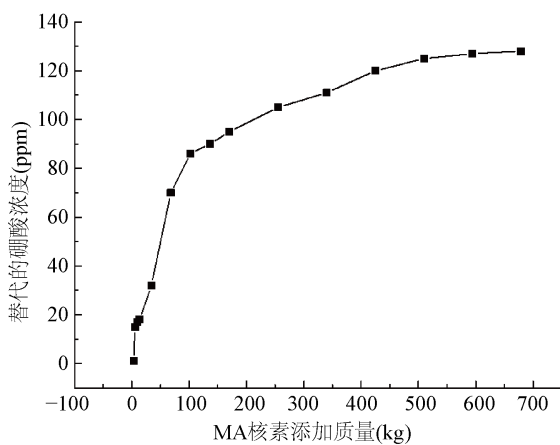


Figure 5. The relationship between MA loading amount and replaced boric acid concentration in scheme 1

图 5. 方案 1 中 MA 装载量与替代的硼浓度之间的关系

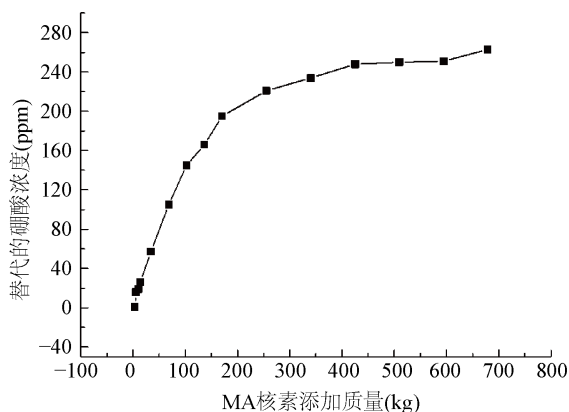


Figure 6. The relationship between MA loading amount and replaced boric acid concentration in scheme 2

图 6. 方案 2 中 MA 装载量与替代的硼浓度之间的关系

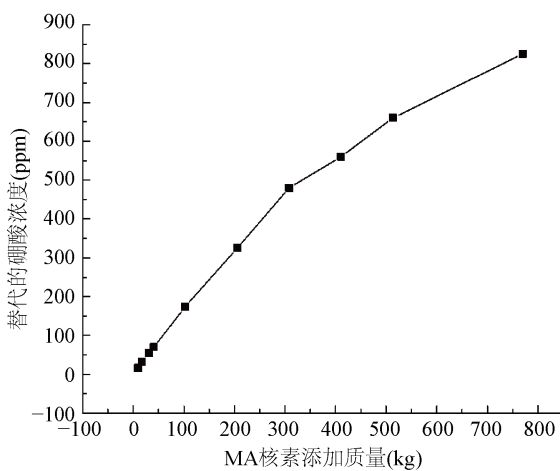


Figure 7. The relationship between MA loading amount and replaced boric acid concentration in scheme 7

图 7. 方案 7 中 MA 装载量与替代的硼浓度之间的关系

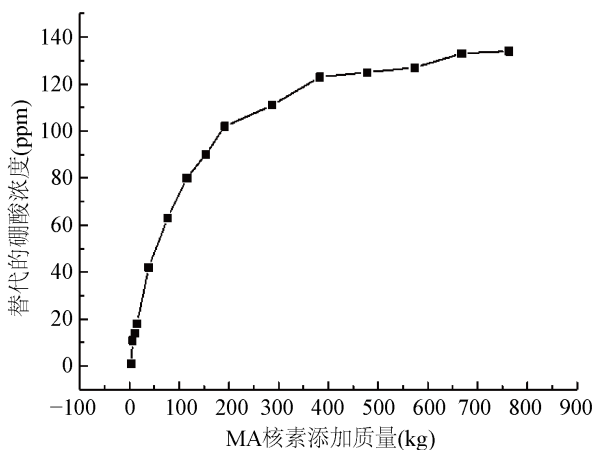


Figure 8. The relationship between MA loading amount and replaced boric acid concentration in scheme 8

图 8. 方案 8 中 MA 装载量与替代的硼浓度之间的关系

6. MA 的引入对堆芯安全性能的影响

堆芯中子通量能谱、堆芯功率峰因子、温度系数等是评估堆芯安全性的主要参数。

6.1. 堆芯能谱

通过使用 MCNP 程序中的 F4 卡，我们可以计算未添加 MA 核素以及另 3 种镀层方案下的堆芯中子通量密度，从而得到堆芯中子能谱。由图 9 可知几种情况下的能谱趋于重合，在添加前后以及各不同方案对中子能谱的影响均可以忽略不计。这从某种程度上说明，MA 核素的引入不影响堆芯的安全性能。

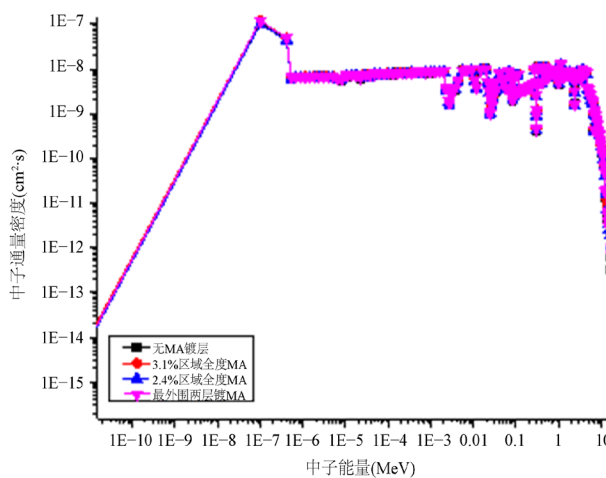


Figure 9. The effects on core neutron spectrum after loading MA

图 9. MA 的引入对堆芯中子能谱的影响

6.2. 温度系数

堆芯内温度变化时，中子能谱、微观截面等都将相应地发生变化。因而，当反应堆中各种成分的温度发生变化时，将引起反应性的变化。单位温度变化所引起的反应性的变化称为反应性温度系数，简称温度系数。保证温度系数必须为负值[8]是压水堆物理设计的基本准则之一，负温度系数对反应堆的调节和运行安全都具有重要的意义。

6.2.1. 燃料温度系数

由单位燃料温度变化所引起的反应性变化称为燃料温度系数，主要是由燃料核共振吸收的多普勒效应所引起，燃料温度系数 α_T^F 可以写成：

$$\alpha_T^F = \frac{1}{k} \frac{\partial k}{\partial T_F} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T_F} \quad (3)$$

式中： T_F ——燃料温度；

α_T^F ——燃料温度系数；

k ——有效增殖因数。

本文由 NJOY 程序制作供 MCNP 使用的各核素所需温度下的截面库，由 MCNP 得出各情况下的有效增殖因数。设置燃料温度变化范围为 100℃~1000℃，计算温度步长为 200℃，未添加 MA 核素的正常堆芯与另三种较优化方案下的燃料温度系数具体情况如图 10 所示。由大致趋势可以看出，随着温度的升高，燃料温度系数绝对值在降低。所有情况下燃料温度系数均为负值，可形成负反馈效应，不会对安全性产生不利影响。但是相较于堆芯中未添加 MA 核素的方案，另 3 种方案温度系数的绝对值偏小，即负反馈能力低一些。

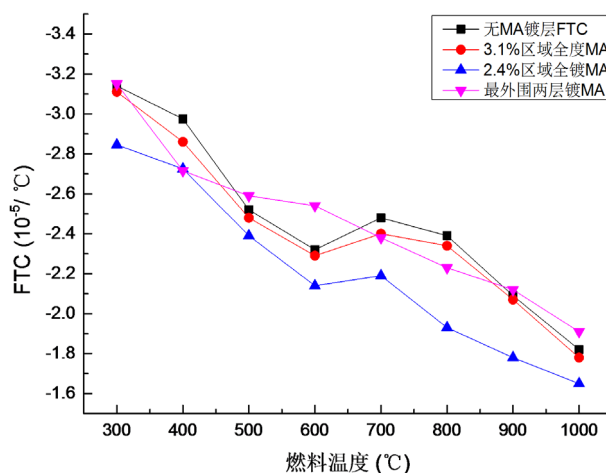


Figure 10. The effects on core fuel temperature coefficients after loading MA

图 10. MA 的引入对堆芯燃料温度系数的影响

6.2.2. 慢化剂温度系数

慢化剂温度系数 α_T^M 属于缓发温度系数，根据它的定义可以由公式表示成：

$$\alpha_T^M = \frac{1}{k} \frac{\partial k}{\partial T_M} \quad (4)$$

式中： α_T^M ——慢化剂温度系数；

T_M ——慢化剂温度。

设置慢化剂温度在 280~340℃ 范围内变化，使用 MCNP 计算未添加 MA 核素的正常堆芯与另三种较优化装载方案不同温度下的 k_{eff} 。为得出更加平稳的曲线，计算步长选取 20℃，MA 核素引入对堆芯慢化剂温度系数的具体影响如下图 11 所示。可以看出，随着温度的增加，慢化剂温度系数的负值增大。这不仅添加了负反应性，而且负反应的添加率也随着温度的增加而增加。与燃料温度系数类似，各镀层方案下的绝对值要小一些，负反馈能力相较于未添加 MA 核素时降低。

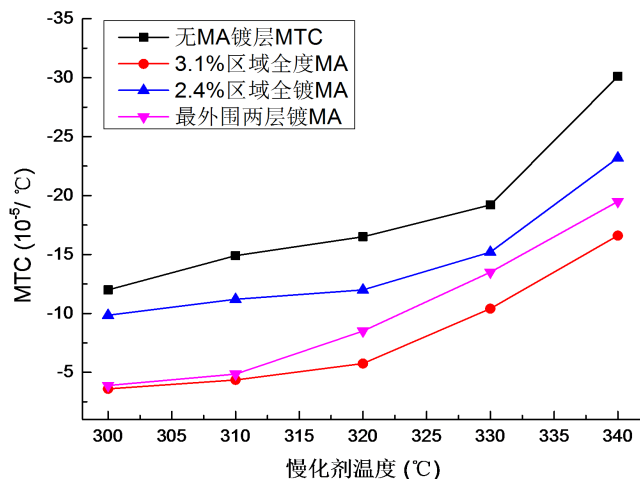


Figure 11. The effects on core moderator temperature coefficients after loading MA

图 11. MA 的引入对堆芯慢化剂温度系数的影响

7. 结论

本文使用 MCNP 程序搭建 BEAVRS 压水堆模型, 由 NJOY 程序制作所需温度截面库, 设计燃料棒上不同镀层厚度及堆芯中不同布局方式。经大量计算, 分析研究 MA 核素不同装载方案下的嬗变特性, 由特定选取原则确定了 3 种较优化装载方案。其中, 3.1% 区域燃料棒上镀层厚度为 0.0025 cm 的 MA 核素对反应性的影响最小; 从中子能谱的角度可知 3 种方案与未添加 MA 核素之前的能谱重合, 在一定程度上说明对安全性几乎无影响; 从温度系数的角度, 3 种较优化方案温度系数的绝对值几乎均小于 MA 核素引入堆芯前的值。但比较可观的是, 3 种 MA 核素添加方案仍使反应堆形成负反馈效应, 不会对反应堆产生不利的影响。

参考文献

- [1] 史永谦. 核电站乏燃料对生物圈的影响及 ADS 对策[J]. 原子核物理评论, 2007, 24(2): 151-155.
- [2] 于浩洋. 压水堆嬗变 Tc-99 对反应性控制的影响[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2018.
- [3] Horelik, N., Herman, B.R., Forget, B., *et al.* (2017) Benchmark for Evaluation and Validation of Reactor Simulations (BEAVRS). *M and C 2013: 2013 International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering*, Sun Valley, ID, USA, 5-9 May 2013.
- [4] Smith, K. (2012) Personal Communication on Control Rod Sequence.
- [5] Macfarlane, R.E., Muir, D.W. and Boicourt, R.M. (1994) The NJOY Nuclear Data Processing System: Version 91, LA-12740-M. Los Alamos National Laboratory, New Mexico.
- [6] Sasa, T., Tsujimoto K., Takizuka, T. and Takana, H. (2001) Code Development for the Design Study of the OMEGA Program Accelerator-Driven Transmutation Systems. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, **463**, 495-504. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)00166-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)00166-8)
- [7] 贾仁东. AP1000 嬗变 MA 对安全性影响的研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 华北电力大学, 2018.
- [8] 谢仲生. 核反应堆物理分析[M]. 西安: 西安交通大学出版社, 2004.