研究述评

【按语: 本期发表的这篇述评论文, 作者讨论了加速器驱动的次临界系统工作中涉及的诸多物理(科学)问题, 给出了关于选取次临界钍基快中子堆生产 ^{233}U 核燃料的建议. 本刊特此发表, 以引起同行的注意以及对相关问题的全面和进一步的研究.】

加速器驱动的次临界系统生产 ^{233}U 的可行性研究[†]曹须^{①②③}, 何祚庥^④, 庆承瑞^④, 邹冰松^{①②*}

① 中国科学院高能物理研究所, 北京 100049;

② 中国科学院大科学装置理论物理研究中心, 北京 100049;

③ 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;

④ 中国科学院理论物理研究所, 北京 100190

*联系人, E-mail: zoubs@ihep.ac.cn

†何祚庥院士和邹冰松编委供稿

收稿日期: 2012-02-24; 接受日期: 2012-02-29; 网络出版日期: 2012-04-18

中国科学院知识创新工程重要方向项目资助(编号: KJCX2-EW-N01)

摘要 加速器驱动的次临界系统(Accelerator Driven Sub-critical System, ADS)是加速器技术和核反应堆技术的结合, 其主要目的是应对当今快速增长的放射性核废料处理需求. 本文初步探讨了在 ADS 系统中利用 ^{232}Th 生产可裂变核 ^{233}U 的可能性, 估计了所需加速器的性能及其生产 ^{233}U 的产率和效率. 我们建议用 Be 做中子慢化剂和增殖剂, 将反应堆的中子能量大部分控制在 1 keV–1 MeV, 从而最大限度地降低 ^{232}U 的含量. 也可以进一步利用重水做慢化剂提高 ^{233}U 的纯度. 所生产的 ^{233}U 既可以经分离提取后在热堆中燃烧, 也可以直接用于钍基熔盐堆的初始装料, 以发挥 ^{233}U 优异的热中子性能. 我们的结果表明, 在技术上和经济上利用 ADS 生产 ^{233}U 很可能是可行的. 我们的结果还表明, 如果这一 ADS 系统主要目的是生产 ^{233}U , 所选择的次临界堆的最佳是快中子堆, 而不是慢中子堆或快慢结合堆. 最后我们建议对钍基核反应堆、 ^{233}U 的提取分离工艺和辐射防护等方面的课题开展进一步深入研究.

关键词 加速器驱动的次临界系统, ^{233}U , 核能

PACS: 28.41.-i, 28.20.-v, 28.65.+a, 25.40.Sc, 89.30.Gg

doi: 10.1360/132012-205

我国核电站装机容量在未来的 20 年里将迎来一个快速增长的时期. 根据中国工程院主持编写的《中

国能源中长期(2030–2050)发展战略研究》的“电力·油气·核能·环境卷”^[1], 预计 2020 年我国核电装机容

引用格式: 曹须, 何祚庥, 庆承瑞, 等. 加速器驱动的次临界系统生产 ^{233}U 的可行性研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2012, 42: 437–444

Cao X, He Z X, Qing C R, et al. Feasibility study of ^{233}U production with Accelerator Driven Sub-critical System (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2012, 42: 437–444, doi: 10.1360/132012-205

量达到 7000–10000 万千瓦, 则届时乏燃料累积存量将达到 20000–25000 t, 其中含钚约 160–200 t, 次铀系核素(MAs)约 16–20 t, 长寿命裂变产物(LLFPs)约 24–30 t. 为了应对大量核废料的处理需求, 目前, 国内外都在努力实现加速器驱动的次临界系统 (Accelerator Driven Sub-critical System, ADS)的实用化, 使其具备一定规模的放射性核废料嬗变能力, 使长寿命的铀系核素在经 ADS 系统处理后成为可裂变的核资源. ADS 的中子经济性明显好于其他所有已知的临界堆, 他除了可以用于嬗变核废料, 也可以考虑用于生产核燃料. 在此, 我们探讨在快中子条件下的钍基次临界堆中利用 ^{232}Th 生产一种重要的核燃料 ^{233}U 的可行性和经济性.

1 ADS 生产 ^{233}U 的优势

核电长期可持续发展需解决的两个核心问题是核燃料的长期稳定供应、核废料的最小化和核不扩散. 我国钍资源相对比较丰富, 钍储量在世界排名前列, 大约是铀储存量的 3 倍^[2]. 如果使用 ^{232}Th 来生产 ^{233}U , 其原料供应可以得到长期稳定的保障. 另外, 相比于使用 ^{238}U 生产 ^{239}Pu , 从中子学角度来说, ^{232}Th - ^{233}U 的转化效率较高^[3].

表 1 中给出了 Th, U 和 Pu 的重要同位素的核反应性质. 可以看到, ^{232}Th 的热中子俘获截面(7.4 b)大约为 ^{238}U (2.7 b)的 3 倍, 这意味着在相同的中子通量下 ^{232}Th - ^{233}U 的转化效率高得多. 另一方面, ^{233}U 的热中子俘获截面(45.76 b)比 ^{239}Pu (270.33 b)小约 6 倍, 这使得在热堆中 ^{233}U 的产出率高于 ^{239}Pu , 而其消耗率又低于 ^{239}Pu . 虽然 ^{232}Th 的快中子俘获截面(0.38 b)与 ^{238}U (0.33 b)的差不多, 但是 ^{233}U 的快中子俘获截面(0.27 b)比 ^{239}Pu (0.5 b)小差不多一半. 所以在快中子条件下 ^{233}U 的产出率与 ^{239}Pu 差不多, 但其消耗率低于 ^{239}Pu .

表 1 Th, U 和 Pu 的重要同位素的核反应性质^[3,5]

Table 1 Some properties of Th, U and Pu isotopes [3,5]

重要同位素	俘获截面 (b)		裂变截面 (b)		平均二次中子数		半衰期 (年)
	热中子	快中子	热中子	快中子	热中子	快中子	
可转换核	^{232}Th	7.4	0.38	0	0.01	—	1.4×10^{10}
	^{238}U	2.7	0.33	>0	0.04	—	4.5×10^9
易裂变核	^{233}U	45.76	0.27	528.5	2.73	2.28	1.6×10^5
	^{235}U	98.68	0.56	585.1	1.90	2.07	7.0×10^8
	^{239}Pu	270.33	0.50	747.1	1.80	2.11	2.4×10^4

以上数据似乎表明, 在热中子条件下生产 ^{233}U 更有效率. 但是热中子条件下 ^{135}Xe 和 ^{149}Sm 等毒素的聚集很快, 这些毒素的热中子吸收截面非常大, 将会影响 ^{233}U 的生产效率^[4]. 下面我们也会看到, 快中子条件下生产 ^{233}U 能达到的产率也比热中子条件下大得多.

另外, 相比于 ^{239}Pu , ^{233}U 需要多次吸收中子后才能生成 ^{240}Pu 及其以上的核素, 所以相对于使用 ^{238}U 生产 ^{239}Pu , ^{233}U 的生产只产生很少的钚. 在快中子条件下, ^{233}U 的生产也只会产生少量的长寿命次铀系元素^[5]. 这对于核废料的处理和防止核扩散具有重要意义. 具体计算表明, 装载钍基燃料的 ADS 在燃耗过程中的反应性和质子流强波动较小, 所以能长时间在安全状态下工作^[6].

生产 ^{233}U 的其他优势包括: Th 的氧化物具有较好的物理性质与化学性质, 长期储存的稳定性较好, 也使得钍基燃料在堆内具有较好的运行性能; 乏燃料中的 ^{232}U 具有较强的 γ 辐射, 使得 ^{233}U 的防核扩能力更强. 当然, 这两个性质也会加大分离 ^{233}U 和处理核废料的难度.

鉴于 ^{232}Th 的快中子俘获截面比 ^{238}U 略高, 我们建议在快中子条件下生产 ^{233}U , 然后经过分离处理在热堆中燃烧, 或者用于钍基熔盐堆的初始装料, 以充分发挥其在热中子谱下的优势. 这与文献[7,8]中提出的在 ADS 系统中使用钍铀自持循环不同, 他在快中子条件下生产和燃烧 ^{233}U , 没有充分利用 ^{233}U 优异的热中子性能. 相比于快堆, ADS 系统一直在次临界状态下运行, 比临界运行的快堆具有更高的安全性, 使得在 ADS 系统中生产 ^{233}U 比快堆具有更大的优势.

2 ADS 生产 ^{233}U 的过程

ADS 关键技术主要包括强流加速器、高功率散裂靶、次临界反应堆和冷却剂、系统耦合集成等, 我

们设计的生产 ^{233}U 的主要过程如下. 首先高能强流加速器提供的质子束流轰击重靶, 通过散裂反应产生快中子:

$p(1.0\text{ GeV}) + ^{208}\text{Pb} (^{209}\text{Bi}) \rightarrow 25\text{ 个中子} + \text{放射性核},$
或者

$p(1.5\text{ GeV}) + ^{208}\text{Pb} (^{209}\text{Bi}) \rightarrow 35\text{ 个中子} + \text{放射性核},$
末态中子的能量大约在 $10\text{--}30\text{ MeV}$. 这些快中子可以利用慢化剂 Be 慢化和增殖, 使大部分的中子能量慢化到 5 MeV 以下, 主要的反应是:

由图 1 可知, 在中子能量为几十 MeV 时这是主要的反应道, 而 ADS 的散裂中子能量正处于这个能区. 现在市场上的铍粉价格约是 5000 元/千克 , 即约 500 万元/吨 , 相比之下氧化钍的价格大约为 40 万元/吨 . 这个价格是可以承受的. 需要注意的一个问题是 Be 做慢化剂有可能产生对热中子有较大吸收截面的 ^6Li (约 940 b), 其副产物氚有较大的放射性^[7].

^{232}Th 吸收中子后变成易裂变的 ^{233}U , 其反应可由下式表示:

其中反应 I 的截面如图 2 所示, 可见在小于 2 MeV 的中子能量下 ^{232}Th 的 (n, γ) 反应截面大约为 1 b . 反应 II 和 III 分别是 ^{233}Th 和 ^{233}Pa 的 β 衰变, 其中 ^{233}Pa 的半衰期较长, 这使得反应堆停堆很长一段时间由于 ^{233}Pa 继续衰变成 ^{233}U 而导致堆的反应性波动, 对停堆深度提出了较高的要求. 另外, ^{233}Pa 的热中子俘获截面也较大, 这对于热堆中堆芯中子的利用率和反应性以及 ^{232}Th - ^{233}U 的转化率有显著的影响. 不过对于快中子, ^{233}Pa 的中子俘获截面要小得多, 这是在快谱中使用 ^{232}Th 生产 ^{233}U 有利的地方. 具体的数值模拟表明, 反应堆功率水平越高, 运行时积累的 ^{233}Pa 越多, ^{233}Pa 导致的中子损失越大, 从而降低了 ^{232}Th - ^{233}U 的转化率^[9].

在这个生产过程中, ^{232}Th , ^{233}Pa 和 ^{233}U 均可通过 $(n, 2n)$ 等反应/衰变链产生 ^{232}U , ^{232}U 经 α 衰变生成 ^{228}Th , ^{228}Th 的短寿命衰变产物 ^{212}Pb , ^{212}Bi 和 ^{208}Tl 等具有较强的 γ 辐射, 其中 ^{208}Tl 的 γ 辐射能量高达 2.6 MeV . 这虽然可以有效地防止核扩散, 但是也给核燃料的分离和处理带来很高的要求(对于 ^{232}U 辐射剂量的详细研究可以参考文献[10]). 这个过程中, 以下

图 1 ^9Be 的反应截面

取自国际原子能机构评价核数据库 ENDF VII.1 (<http://www-nds.iaea.org/>)

Figure 1 Reaction cross sections of ^9Be , from ENDF Database, Experimental Nuclear Reaction Data, IAEA, ENDF VII.1 (<http://www-nds.iaea.org/>).

图 2 $^{232}\text{Th} (n, \gamma) ^{233}\text{Th}$ 的反应截面

取自 ENDF VII.1

Figure 2 $^{232}\text{Th} (n, \gamma) ^{233}\text{Th}$ cross section from ENDF VII.1.

反应链的反应截面最高:

如图 3 所示. 其次是

它的反应截面如图 4 所示. 再其次是

它的反应截面如图 5 所示. 注意到这些反应的中子阈值能量都在 5 MeV 以上, 如果利用慢化剂 Be 将反应堆中的大部分中子的能量慢化到 5 MeV 以下, 那么就可以有效地控制最终产物中的 ^{232}U 含量达到合理

图 3 $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ 的反应截面
取自 ENDF VII.1

Figure 3 $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ cross section from ENDF VII.1.

图 4 $^{233}\text{Pa}(n,2n)^{232}\text{Pa}$ 的反应截面
取自 ENDF VII.1

Figure 4 $^{233}\text{Pa}(n,2n)^{232}\text{Pa}$ cross section from ENDF VII.1.

水平. 我们使用简单的相空间分布估算了中子入射能量在 15 MeV 下 $^9\text{Be}(n,2n)2\alpha$ 的微分截面, 如图 6 所示, 可以看到快中子经过一次与慢化剂 Be 的碰撞之后, 能量即可有效地降低到 5 MeV 以下. 我们估计经过 2 或 3 次与慢化剂 Be 的碰撞之后, 绝大部分快中子的能量都可以降低到 5 MeV 以下. 另外, 在中子的这个能区, 另一个有利的反应 $^{232}\text{U}(n,\gamma)^{233}\text{U}$ 和 $^{228}\text{Th}(n,\gamma)^{229}\text{Th}$ 具有较大的反应截面(分别约为 0.5 和 1 b). 这也有利于最终产出的 ^{233}U 中 ^{232}U 的含量降低到可以接受的水平.

研究表明, 如果最终生产的 ^{233}U 中 ^{232}U 的含量在 10 ppm (原子数目之比)以下, 则其放射性较弱, 分

图 5 $^{233}\text{U}(n,2n)^{232}\text{U}$ 的反应截面
取自 ENDF VII.1

Figure 5 $^{233}\text{U}(n,2n)^{232}\text{U}$ cross section from ENDF VII.1.

图 6 中子入射能量在 15 MeV 下 $^9\text{Be}(n,2n)2\alpha$ 的微分截面
(a) 末态中子角分布; (b) 末态中子动能分布; (c) α 粒子动能分布
Figure 6 Differential cross sections of $^9\text{Be}(n,2n)2\alpha$ for neutron beam energy of 15 MeV. (a) Angular distribution of neutrons in the final state; (b) kinetic energy distribution of neutrons in the final state; (c) kinetic energy distribution of α particles.

离和提取比较容易^[10]. 为了达到这个水平, 可以考虑在重水堆中生产 ^{233}U . 重水对快中子的慢化能力较强, 中子吸收截面不到轻水的 1/650. 另外, 对于 6 MeV 以上的中子谱, 重水堆的燃料孔道比例比其他反应堆低, 也有利于抑制 ^{232}U 的产生^[10].

3 ADS 生产 ^{233}U 的产率估算

我们简单的估算一下 ADS 系统中生产 ^{233}U 的产率. 假设在式(1)所示的反应中, 各个反应的反应率如下, 其中 IV 是 ^{233}U 的裂变反应:

若反应堆中的中子通量是 Φ , 那么 $\lambda_1 = \sigma_i^1 \Phi$, $\lambda_2 = 1/\tau_2$, $\lambda_3 = (\sigma_f^3 + \sigma_i^3) \Phi$, 其中 σ_i 为俘获截面, σ_f 是裂变截面. 假设 n_1 , n_2 和 n_3 分别为反应堆中 ^{232}Th , ^{233}Pa 和 ^{233}U 的数量, 那么在反应堆达到平衡时, ^{233}U 与 ^{232}Th 的比例为^[7]

$$\frac{n_3}{n_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_3} = \frac{\sigma_i^1}{\sigma_i^3 + \sigma_f^3}. \quad (2)$$

将表 1 中的截面数据带入(2)式可以得到, 在热中子条件下 $n_3/n_1=0.0135$, 在快中子条件下 $n_3/n_1=0.13$. 这个比例随中子能量的变化如图 7 所示, 可见最佳的中子能量范围在 1 keV–1 MeV 之间. 如上所述, 这个能量范围也有利于控制 ^{232}U 的产量. 在 ^{238}U – ^{239}Pu 转换中:

可以类似地得到 ^{239}Pu 与 ^{238}U 的比例在热中子条件下最大可以达到 0.0027, 在快中子条件下可以达到 0.144. 即在热堆中 ^{239}Pu – ^{238}U 的转化率非常低. 为了求得所需要的时间和中子通量, 我们列出如下的方程^[7]:

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} &= -\lambda_1 n_1, \\ \frac{dn_2}{dt} &= \lambda_1 n_1 - \lambda_2 n_2, \\ \frac{dn_3}{dt} &= \lambda_2 n_2 - \lambda_3 n_3, \end{aligned} \quad (3)$$

其初始条件为 $n_1(t=0)=n_0$, $n_2(t=0)=n_3(t=0)=0$. 作为粗略的估算, 在此我们忽略了 ^{233}Pa 的中子俘获, 也忽略了 ^{232}Th , ^{233}Pa 和 ^{233}U 等转换为 ^{232}U 的过程. 注意到 $\lambda_1 \ll \lambda_2$ 和 $\lambda_1 \ll \lambda_3$, 上述方程的解为

$$n_1(t) = n_0 e^{-\lambda_1 t}, \quad (4)$$

$$n_2(t) = n_1(t) \frac{\lambda_1}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t}), \quad (5)$$

$$n_3(t) = n_1(t) \frac{\lambda_1}{\lambda_3} \left(1 - \frac{\lambda_3 e^{-\lambda_2 t} - \lambda_2 e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_3 - \lambda_2} \right). \quad (6)$$

在 $t \rightarrow +\infty$ 时, (6)式即是(2)式. 在快中子条件下, 中子通量如果能达到 $\Phi=1.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, (6)式所示的 n_3/n_1 就会在合理的时间内达到最大值, 如图 8 所示. 这表明, 要利用 ADS 生产 ^{233}U , 核反应堆的中子通量水平最好能达到 $10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, 作为参考, 一般热堆中的中子通量在 10^{13} – $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. 考虑到反应堆运行后期 ^{233}U 的增殖速度较慢, 我们建议反应堆运行 1.5 年之后即提取 ^{233}U , 这样能达到的 ^{233}U 富集度大约为 9%. 当然, 较小的中子通量虽然会降低 ^{232}Th – ^{233}U 的转化效率, 但只要在合理的范围还是可以接受的. 图 8

图 7 反应堆达到平衡时 ^{233}U 与 ^{232}Th 的比例^[7]

Figure 7 $^{233}\text{U}/^{232}\text{Th}$ equilibrium ratio as a function of the neutron energy [7].

图 8 反应堆中 ^{233}U 与 ^{232}Th 的比例随时间的变化

其中实线是快中子条件下中子通量为 $10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 的结果, 点线是快中子条件下中子通量为 $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 的结果, 虚线是热中子条件下中子通量为 $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 的结果

Figure 8 $^{233}\text{U}/^{232}\text{Th}$ equilibrium ration as a function of time. The solid and dotted lines are for fast neutrons with flux of 10^{16} and $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, respectively; the dashed line is for thermal neutrons with flux of $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

中我们也给出了中子通量为 $\Phi=5\times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 时, 快中子条件下 n_3/n_1 随时间的变化, 从图中可见 1.5 年后 ^{233}U 的能达到约 6.2%. 如果中子通量为 $\Phi=10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, ^{233}U 增长非常缓慢, 10 年能达到的值约为 7.7%.

考虑到停堆后 ^{233}Pa 继续衰变成 ^{233}U , 最终的 ^{233}U 数量可以达到 n_2+n_3 . 为了防止停堆后反应堆达到临界, 比例 n_2/n_3 不能太大^[7]:

$$\frac{n_2}{n_3} = (\sigma_i^3 + \sigma_f^3) \Phi \tau_2. \quad (7)$$

另外为了保证 ^{233}Pa 大部分都能衰变成 ^{233}U , 而不是发生 $^{233}\text{Pa}(n,2n)^{232}\text{Pa}$ 反应生成 ^{232}U , 应保证

$$\sigma_i^2 \Phi \tau_2 \ll 1. \quad (8)$$

(7)和(8)式给出了对中子通量的限制, 对于快中子反应堆, 中子通量不能超过 $10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. 基于蒙特卡罗方法的 MCNP 程序计算结果表明^[11], 在中子源强为 $3.76\times 10^{18} \text{ s}^{-1}$ 时, ADS 堆芯 100 cm 以内的中子通量能达到 $0.5\times 10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以上. 用能量为 600 MeV, 流强为 2–3 mA 的质子束流轰击 Pb-Bi 靶, 产生的中子源强即可达到 10^{17} s^{-1} 量级^[12]. 一个能量为 1 GeV, 流强为 10 mA 的质子加速器能够达到的中子源强为

$$10\times 10^{-3}\times 6.24\times 10^{18}\times 30\approx 2\times 10^{18} \text{ s}^{-1}.$$

要使反应堆内更大范围的中子通量达到 $10^{16} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, 一方面必须提高中子的利用率, 另一方面如上文所述, 有必要采用 Be 作为慢化剂, 他同时也可以增殖中子, 从而使反应堆的中子通量可以满足生产 ^{233}U 的要求.

假设散裂源中子的能量为 35 MeV, 反应堆中有 40%的中子被有效的利用来生产 ^{233}U , 而每个 ^{233}U 的裂变大约可以释放出 190 MeV ($3.2\times 10^{-11} \text{ J}$)的能量 (具体如表 2 所示, 与 ^{235}U 差不多, 比 ^{239}Pu 小约 10 MeV), 那么能量放大系数为

$$G = \frac{190 \text{ MeV}}{35 \text{ MeV}} \times \frac{0.4}{1-k_{\text{eff}}} \approx \frac{2.2}{1-k_{\text{eff}}}. \quad (9)$$

显然入射质子的功率和流强为

$$P_{\text{beam}} = \frac{P_{\text{reactor}}}{G}, \quad I_{\text{beam}} = \frac{P_{\text{beam}}}{GT}, \quad (10)$$

其中 T 为入射质子的动量. 一般来说有效增殖系数 $k_{\text{eff}} = 0.94\text{--}0.98$, 则能量放大系数 $G=55\text{--}110$. 对于一个几百 MW 的反应堆, 需要的质子加速器的功率为 10 MW 量级. 如果质子能量在 1 GeV 左右, 那么质子的流强应达到 mA 量级, 这与前述的估算是一致的. 这对于现在的加速器技术来说是一个不小的挑战.

以上的估算与 ADS 基准题的数值模拟结果是一致的^[13]. 在 $k_{\text{eff}} = 0.94\text{--}0.98$ 范围内, ^{233}U 的富集度大约在 10%左右, 各个国家的计算结果的精度在 5%–10%. 模拟计算的精度的进一步提高需要核数据库的进一步发展, 特别是 20 MeV 以上的核反应数据需要得到补充.

在图 8 中, 我们也给出了热中子条件下 n_3/n_1 随时间的变化, 中子通量为 $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, 类似的, (7)和(8)式给出的中子通量上限为 $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. 这表明在热堆中即能实现 ^{233}U 的生产. 在反应堆运行一年左右 ^{233}U 的富集度大约可以达到 1%的水平.

如果 ADS 生产的 ^{233}U 分离后在热堆中燃烧, 对于一个 1 GW, 年负荷因子为 0.85 的热核反应堆, 一年释放的能量为

$$E = 1000\times 10^6 \times 0.85 \times (365 \times 24 \times 3600) = 2.681\times 10^{16} \text{ J},$$

则需要消耗 ^{233}U 的核数目为

$$N = \frac{E}{3.2\times 10^{-11}} = 8.378\times 10^{26}.$$

从表 1 可知, ^{233}U 在热中子条件下有效裂变中子数 $\eta=2.28$, 俘获裂变比 $\alpha=\sigma_f/\sigma_t=0.0866$, 相当于每次裂变的中子产额 $\nu=\eta(1+\alpha)=2.477$, 可以得到消耗的 ^{233}U 质量为

$$M = \frac{233(1+\alpha)N}{1000N_0} \sim 350 \text{ kg}$$

即需要大约 350 kg 的 ^{233}U , 这只比同等条件下的 ^{235}U 的量略少(约 380 kg). 也即 ADS 提供的高能强流质子

表 2 ^{233}U , ^{235}U 和 ^{239}Pu 热裂变中能量的释放(单位 MeV)

Table 2 Released energy from thermal fission of ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu (in unit of MeV)

释放能量	轻碎片 动能	重碎片 动能	裂变中子 动能	裂变产物 的 β 衰变	裂变产物 的 γ 衰变	瞬发 γ 射线 能量
^{233}U	99.9	67.9	~5.0	~8	~4.2	~7
^{235}U	99.8	68.4	4.8	7.5	6.8	7.8
^{239}Pu	101.8	73.2	5.8	~7	~6.2	~8

束需要每年处理 5 吨左右的 Th. 如果考虑到后处理的效率, 假设 80% 的 ^{233}U 能被有效地提取出来, 则需要每年处理 6 吨左右的 Th. 这个重量的钍球半径不到 0.5 米, 使用功率为 10 MW 量级的加速器即可以达到对 neutron 通量的要求^[11].

另外, ADS 生产的 ^{233}U 也可用于钍堆的初始装料, 以使其核素快速达到平衡稳定输出能量, 这对正在研发的钍基熔盐堆的商业应用和快速发展具有重大意义. 并且在这个过程中, 我们很可能并不需要提纯 ^{233}U , 而是直接将 ADS 生产的含 ^{233}U 的钍基核燃料制成所需要的燃料棒作为钍基熔盐堆的核燃料. 如果按照一个 1 GW 的钍基熔盐堆初始装料 30 吨, 其中 ^{233}U 的质量百分比为 1% 计算, 上述 ADS 生产的 ^{233}U 刚好能满足其需要^[14].

4 ADS 生产 ^{233}U 的可行性

综上所述, 使用能量在 1 GeV 以上, 流强在 10 mA (即功率为 10 MW 量级) 以上的质子束流轰击钍靶, 产生的中子经过慢化剂 Be 的慢化和增殖后, 通量能够达到 $10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 量级, 从而驱动一个 5 吨左右的钍基核反应堆生产 ^{233}U . 经过大约 1.5 年的运行, 其中 ^{233}U 的份额能达到 9% 左右, 可以用于一个 GW 的钍基熔盐堆的初始装料, 或者经过提纯后供应一个 1 GW、年负荷因子为 0.85 的热核反应堆一年所

需的 ^{233}U 核燃料.

我们将其中需要解决的几个主要问题总结如下:

(1) 需要一个功率为 10 MW 量级的高能强流质子加速器持续提供 mA 流强的质子束流.

(2) 为了提高 ^{232}Th - ^{233}U 的转换效率, 需要将 ADS 驱动的反应堆中中子的能谱控制在 1 keV–1 MeV, 中子通量在 $10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 量级. 需要对慢化剂 Be 和重水的性能进行深入研究.

(3) ^{233}Pa 的半衰期为 27 d, 这个时间在反应堆停堆很长一段时间由于 ^{233}U 的生成而导致堆的反应性波动. 堆中 ^{233}Pa 对中子的俘获也会降低 ^{232}Th - ^{233}U 的转换效率. 对反应堆具体情况的精确数值模拟有赖于核数据库, 特别是中子能量 20 MeV 以上核反应数据的评价和补充.

(4) 核燃料的分离和后处理工艺迫切需要发展. ^{232}Th 的同位素以及和 ^{233}U 伴生的 ^{232}U 会造成很强的 γ 辐射场, 使得后处理难度加大. 另外, 由于 ThO_2 化学性质非常稳定, 在后处理过程的首端, 为了溶解乏燃料必须在 HNO_3 中加入少量 HF, 对设备和管线的腐蚀加剧. 迄今少数国家开展过这种 THOREX 流程的实验或中试规模研发.

只要解决了这些关键性的问题, 利用 ADS 来生产可裂变核 ^{233}U 在技术和效率上是可行的. 我们建议尽快开展对这些问题的深入研究.

参考文献

- 1 中国能源中长期发展战略研究项目组. 中国能源中长期(2030–2050)发展战略研究: 电力·油气·核能·环境卷. 北京: 科学出版社, 2011
- 2 He G Z, Yi Y L, Kong X Z. Study of using ThO_2 - UO_2 as fuel in nuclear power (in Chinese). Nucl Phys Rev, 2006, 23(2): 101–104 [贺国珠, 易艳玲, 孔祥忠. 钍铀混合燃料反应堆的可行性分析. 原子核物理评论, 2006, 23(2): 101–104]
- 3 Gu Z M. Probing the problems of thorium utilization as a nuclear energy resource (in Chinese). Chin J Nucl Sci Eng, 2007, 27(2): 97–105 [顾忠茂. 钍资源的核能利用问题探讨. 核科学与工程, 2007, 27(2): 97–105]
- 4 谢仲生. 核反应堆物理分析. 西安: 西安交通大学出版社, 2004
- 5 Fan S, Zhao Z X, Ding D Z. Analysis of evolution of the nuclides of ADS (in Chinese). Atom Energy Sci Technol, 2001, 35(1): 73–78 [樊胜, 赵志祥, 丁大钊. 加速器驱动洁净核能系统中的燃料行为分析. 原子能科学技术, 2001, 35(1): 73–78]
- 6 Yang Y W, Li H Q, Jing X Q. Fuel choice of accelerator driven systems (in Chinese). Atom Energy Sci Technol, 2005, 39(2): 149–153 [杨永伟, 李浩泉, 经荣清. 加速器驱动系统的燃料选择. 原子能科学技术, 2005, 39(2): 149–153]
- 7 Carminati F, Klapisch R, Revol J P, et al. An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a Particle Beam Accelerator. Switzerland: European Laboratory for Particle Physic, 1993. CERN/AT/93-47 (ET)
- 8 Rubbia C, Rubio J A, Buono S, et al. Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier. Switzerland: European Laboratory for Particle Physic, 1995. CERN/AT/95-44 (ET)
- 9 Yu G L, Wang K. Characteristics of Pa^{233} in the Th-U fuel fast spectra system (in Chinese). J Tsinghua Univ (Sci Technol), 2008, 48(3): 374–377 [余纲林, 王侃. 钍铀燃料快谱系统中 Pa^{233} 的特性. 清华大学学报(自然科学版), 2008, 48(3): 374–377]
- 10 Kang J, von Hippel F N. U-232 and the proliferation-resistance of U-233 in spent fuel. Sci Global Secur, 2001, 9: 1–32

- 11 Liao Y X, Zhang W X, Gong X Y. Application of MCNP code in the shielding calculation of ADS (in Chinese). *Atom Energy Sci Technol*, 2004, 38(6): 526–529 [廖义香, 张文星, 龚学余. MCNP 程序在 ADS 屏蔽计算中的应用. *原子能科学技术*, 2004, 38(6): 526–529]
- 12 Pelloni S. Sensitivities of the proton beam current resulting from variations in the source term for a Pb-Bi cooled accelerator driven system with a Pb-Bi target. *Ann Nucl Energy*, 2003, 30: 983–1000
- 13 Jiang X F, Xie Z S. Transport-burnup code system and its application for IAEA ADS benchmark (in Chinese). *Nucl Power Eng*, 2004, 25(5): 390–394 [蒋校丰, 谢仲生. 输运-燃耗程序系统及 ADS 基准题的计算. *核动力工程*, 2004, 25(5): 390–394]
- 14 Zhao Z X, Ding D Z, Liu G S. Conceptual research on reactor core physics for accelerator driven sub-critical reactor (in Chinese). *Atom Energy Sci Technol*, 1999, 33(3): 147–155 [赵志祥, 丁大钊, 刘桂生. 加速器驱动次临界堆堆芯物理概念研究. *原子能科学技术*, 1999, 33(3): 147–155]

Feasibility study of ^{233}U production with Accelerator Driven Sub-critical System

CAO Xu^{1,2,3}, HE ZuoXiu⁴, QING ChengRui⁴ & ZOU BingSong^{1,2*}

¹ *Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

² *Theoretical Physics Center for Sciences Facilities, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

³ *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 710000, China;*

⁴ *Institute of Theoretical Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*

Accelerator Driven Sub-critical System (ADS) is a technological integration of accelerator and nuclear reactor, and aims to cope with the increasing demand of radioactive nuclear waste disposal. In this paper we discuss the possibility to produce the fissile ^{233}U with ADS and estimate the required performance of accelerator and the efficiency of ^{233}U production. We propose that one should use Be as the moderator and breeder to control the neutron energy in the range of 1 keV–1 MeV in order to depress the production of ^{232}U , and may further use heavy water as the moderator to improve the purity of ^{233}U . The yield ^{233}U could be burned in the thermal reactors after purification or used to be the initial loading of Thorium molten salt reactor so that the excellent properties of ^{233}U in thermal neutron environment could be properly exploited. We show that it is probable to produce the ^{233}U with ADS in view of the technological and economical aspects. Our results indicate that the fast reactor rather than slow reactor should be used if one of the main goals of ADS is to produce ^{233}U . We suggest to further study the Thorium-based reactor, the technology of ^{233}U purification and radiation-protection, etc.

Accelerator Driven Sub-critical System, ^{233}U , nuclear energy

PACS: 28.41.-i, 28.20.-v, 28.65.+a, 25.40.Sc, 89.30.Gg

doi: 10.1360/132012-205