

关于压水堆产武器级钚的模拟计算

徐雪峰 付元光 朱剑钰 李瑞 田东风 伍钧 李凯波

Simulation calculation of weapon-grade plutonium production in pressurized water reactor

Xu Xue-Feng Fu Yuan-Guang Zhu Jian-Yu Li Rui Tian Dong-Feng Wu Jun Li Kai-Bo

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 66, 082801 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.082801

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.082801>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I8>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

反应堆蒙特卡罗临界模拟中均匀裂变源算法的改进

Modified uniform-fission-site algorithm in Monte Carlo simulation of reactor criticality problem

物理学报.2015, 64(5): 052801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.052801>

球床高温气冷堆燃料颗粒中放射性核素的累积释放份额研究

Study on cumulative fractional release of radionuclides in HTGR fuel particles

物理学报.2014, 63(3): 032802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.032802>

分子动力学模拟压水反应堆中氢气对水的影响

Molecular dynamics simulation for the effect of hydrogen on the water of pressurized water reactors

物理学报.2012, 61(6): 062801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.062801>

关于压水堆产武器级钚的模拟计算*

徐雪峰¹⁾³⁾ 付元光⁴⁾ 朱剑钰¹⁾ 李瑞⁴⁾ 田东风²⁾ 伍钧¹⁾ 李凯波^{1)†}

1)(中国工程物理研究院战略研究中心, 北京 100088)

2)(中国工程物理研究院, 绵阳 621900)

3)(中国工程物理研究院北京研究生部, 北京 100088)

4)(中国工程物理研究院高性能数值模拟软件中心, 北京 100083)

(2016年12月19日收到; 2017年2月1日收到修改稿)

防止核扩散是国际社会共同努力的目标, 其中武器级核材料的防扩散是重中之重. 钚是反应堆的副产品, 如果不计较经济效益, 利用铀为核燃料的反应堆都可以生产武器级钚. 本文基于日本 Takahama-3 压水堆建立了五个模型, 并进行中子和燃耗计算, 得到两种燃料棒产武器级钚的条件、燃料棒轴向的燃耗分布、组件内燃料棒燃耗的变化区间和全堆芯燃料棒径向燃耗分布. 基于上述模型和计算数据给出压水堆堆芯内含有武器级钚的准确位置和 UO_2 燃料棒中武器级钚的产量. 这种低燃耗的乏燃料给国际核不扩散带来了巨大风险, 国际社会应该加强对此类乏燃料的监管.

关键词: 核不扩散, 武器级钚, 燃耗, 压水堆

PACS: 28.41.Ak, 28.20.-v

DOI: 10.7498/aps.66.082801

1 引言

防止核扩散是与国际安全与和平利用核能相关的重要议题. 民用核材料的监测和追踪是核材料管理的重要内容, 国际原子能机构 (IAEA) 的保障监督在国际核不扩散领域发挥着重要作用. 美国 20 世纪 60 年代做了一系列核试验, 证明了反应堆级钚可以作为核武器的原料, 由于库存管理等原因, 目前没有核武器国家使用反应堆级钚制造核武器, 但这引起了人们对反应堆核扩散问题的重视. 在反应堆的防扩散领域, 研究人员已经对武器级钚生产堆^[1]、CANDU 堆^[2] 和快中子增殖堆^[3] 武器级钚的生产能力进行了相应的研究, 而针对压水堆的防扩散研究, 普遍认为当前压水堆几乎全部用于商业供电, 卸载自商用压水堆乏燃料的燃耗一般在 30—50 MWd/kgU 之间, 这种燃耗的乏燃料只含有

反应堆级钚. 因此, 不能使用此类商用压水堆生产武器级钚. 相关文献在研究反应堆的产钚能力时, 只是按照压水堆的平均卸载燃耗 33 MWd/kgU 对压水堆的重复栅元模型进行燃耗计算, 基于此分析得到的结论是一般不能使用压水堆生产武器级钚. 而在实际的民用核燃料循环中, 由于商用动力堆堆芯不同位置燃料棒的卸载燃耗不同, 导致钚同位素含量不同. 不同燃耗的乏燃料经过后处理可以得到不同级别的分离钚, 使用武器级分离钚甚至接近武器级的高品质分离钚制造的核武器性能比一般反应堆级分离钚制造的要好得多. 相关文献对反应堆级钚的爆炸特性进行研究^[4], 发现 ^{239}Pu 同位素含量越高、 ^{240}Pu 同位素含量越低的分离钚越适合作为核武器的原料. 因此, 商用压水堆的乏燃料由于卸载燃耗不同, 具有不同级别的核扩散风险. 由于反应堆设计和程序验证的需求, 文献^[5—7] 提出一系列基准题模型, 这对当时的计算

* 能源局 06 专项 (批准号: 2015ZX06002008)、国防科工局国防基础科研计划 (批准号: C1520110002) 和国家磁约束核聚变能源研究专项 (批准号: 2015GB108002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: li_kaibo@iapcm.ac.cn

能力是一个挑战. 近几年, 随着大型并行计算机的发展和推广, 反应堆的建模日益精细, 已经实现全堆芯 pin-by-pin 模拟 [8]. 同时对蒙特卡罗临界模拟算法的改进 [9,10], 使得计算效率越来越高、计算结果越来越精确. 通过使用并行计算对反应堆进行全堆精细模拟, 可以得到更清晰、更精确的结论, 甚至是与之前不同的结论. 本文使用 MCORGS [11] 模拟计算压水堆堆芯的轴向和全堆径向燃耗分布, 分析商用压水堆生产武器级钚的能力, 呼吁国际社会加强对世界上大量商用压水堆乏燃料的监管.

2 MCORGS 程序简介与改进

三维燃耗计算的 MCNP 与 ORIGENS 的耦合程序有很多, 例如 MONTEBURNS, MCBURN 等, 这些耦合程序的共同特点是用 MCNP 得到通量和燃耗计算所需的各种转换截面, 再利用 ORIGEN/ORIGENS 得到核素密度做下一步输运计算. MCORGS 在燃耗链方程求解过程详细考虑了 1697 种核素, 从而减少了累积误差, 并对输入进行了简化, 自动产生输入转换截面、更新数据和燃耗

区代号. MCORGS 使用 MCNP 程序给出的归一化通量乘以绝对中子源强 S_{ext} , 得到绝对中子通量, S_{ext} 由下式算出:

$$S_{\text{ext}} = \frac{P}{D_E}, \quad (1)$$

其中, P 为系统总功率, D_E 为一个源中子在系统中沉积的总能量, 可以通过能量沉积计算得到. 在燃耗计算中等效转化截面的选取问题上, MCORGS 的输运等效转换截面 $\sigma_{\text{eff}}^{k \rightarrow i}$ 通过对应的反应率与通量的比值得出, 即

$$\sigma_{\text{eff}}^{k \rightarrow i} = \frac{\int \sigma^{k \rightarrow i}(E) \Phi(r, E) dE}{\int \Phi(r, E) dE}, \quad (2)$$

其中, r 代表中子与核发生碰撞的空间位置, $\Phi(r, E)$ 为 r 处能量为 E 的中子通量, 上式右边分子项的积分要经过统计得出, 考虑到 $\sigma^{k \rightarrow i}(E)$ 包括多种核反应类型, 当燃耗分区越多时, 统计过程越费时. MCORGS 利用 ORIGENS 数据库中与系统能谱接近的转换截面数据, 来判断哪些反应的反应截面需要更换 [12].

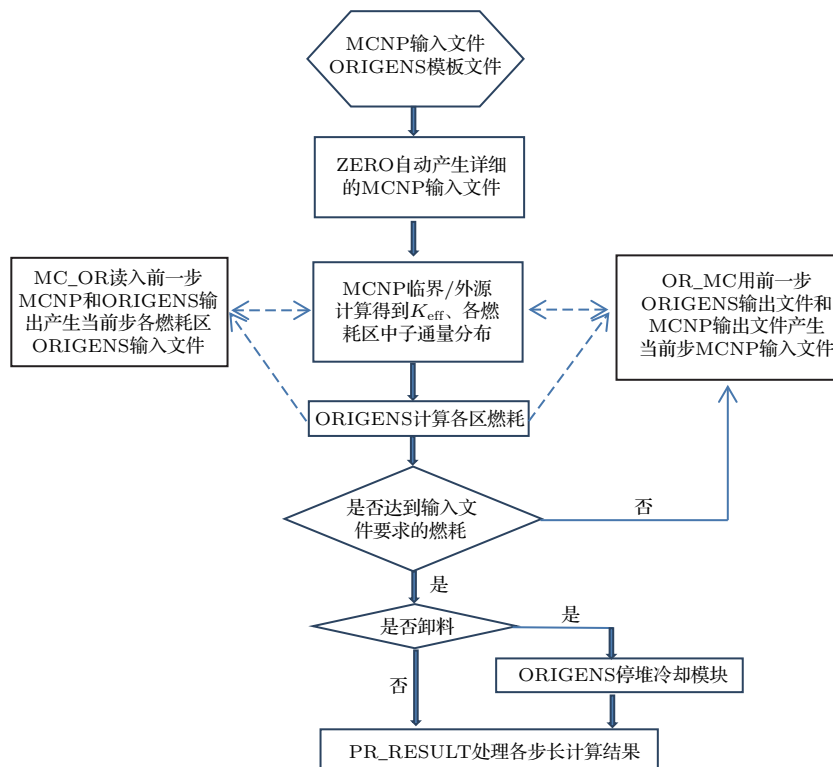


图1 增加功能后的 MCORGS 结构框图

Fig. 1. Flow diagram of MCORGS after being added functionality.

现有的MCORGS程序能够模拟计算核燃料在反应堆中核素成分随时间的变化情况,但不能计算停堆卸料后的核素成分.我们新加入了ORIGENS计算停堆冷却过程和MCNP程序的耦合,对于停堆卸料的乏燃料,调用ORIGENS停堆冷却模块(如图1)进行计算,可以得到乏燃料核素自发裂变和衰变过程中核素的变化.

3 Takahama-3压水堆简介及其产武器级钚条件计算

为了能够比较压水堆中燃料棒燃耗的计算数据与测量数据,本文基于公开测量数据比较齐全的日本Takahama-3压水堆进行建模分析.日本原子能研究所(JAERI)公开了Takahama-3反应堆两个组件中三个乏燃料轴向不同位置的燃耗值和核素测量值^[13-15].Takahama-3压水堆堆芯由157个组件组成,公开文献中只介绍一种组件的结构,这种组件含有1根中心导管、24根导向管和264根燃料棒,其中有248根 UO_2 燃料棒,棒中 ^{235}U 的富集度为4.11%;16根可燃毒物棒($\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$),可燃毒物棒中 ^{235}U 的富集度是2.6%,含有 Gd_2O_3 的质量百分比是6%,燃料棒活化长度为366 cm.Takahama-3压水堆的热功率为2652 MW,在本文的模拟计算中,设定的平均功率均采用此数值.

当反应堆的燃耗很低时, ^{239}Pu 的同位素含量很高, ^{240}Pu 的同位素含量很低,钚的其他同位素含量更低,这种类型的钚最适合作为核武器的原料.不同文献钚的级别定义不同,由于 ^{240}Pu 是制造核武器的主要障碍,因此本文钚分类采用根据 ^{240}Pu 同位素含量的定义:钚分为超级钚($\leq 3\%$)、武器级钚($\leq 7\%$)、反应堆级钚($> 7\%$)^[16].商业反应堆需要考虑经济利益,因此它的燃耗比武器级钚生产堆的燃耗高很多.图2是使用日本Takahama-3压水堆的参数建立pin-cell模型,模拟得到钚同位素质量百分比随压水堆平均燃耗变化的关系图.从图中可以看到,反应堆刚开始运行时, ^{238}U 俘获一个中子后经过两次连续的 β 衰变生成 ^{239}Pu ,随着燃耗的增加, ^{239}Pu 的量越来越多,会有 ^{239}Pu 连续俘获中子或者通过 $(n, 2n)$ 反应生成钚的其他同位素,同时 ^{239}Pu 作为易裂变核素也会发生核裂变,从而导致 ^{239}Pu 的同位素百分比下降, ^{240}Pu , ^{241}Pu

和 ^{242}Pu 的同位素百分比相应增加.除了 ^{239}Pu — ^{242}Pu 外,还会生成钚的其他同位素,但是量非常小,其中重要的同位素 ^{238}Pu 在反应堆平均燃耗为30 MWd/kgU时,它的质量分数可以达到1.2%.钚的同位素含量主要由燃耗决定,但也受反应堆的堆型和运行历史影响,当堆型确定时,不同的运行历史会对钚同位素组分有一定影响,这部分内容我们将使用第4部分的模型进行简要的讨论.

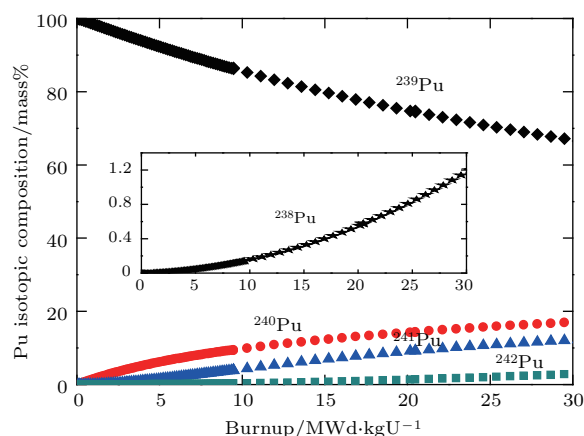


图2 钚同位素组成与燃料燃耗的关系

Fig. 2. Plutonium isotopic composition as a function of fuel burnup.

我们按照公开的Takahama-3压水堆组件中 UO_2 燃料棒、可燃毒物棒和导向管的位置和比例(31:2:3),建造了一个 6×6 无限点阵模型(如图3).使用MCNP5和ORIGENS耦合程序MCORGS对其进行燃耗计算,设置模型计算条件为每代20000个粒子,共模拟1200代,舍弃前200代,计算得到 ^{240}Pu 同位素质量百分比与燃耗的关系(如图4).

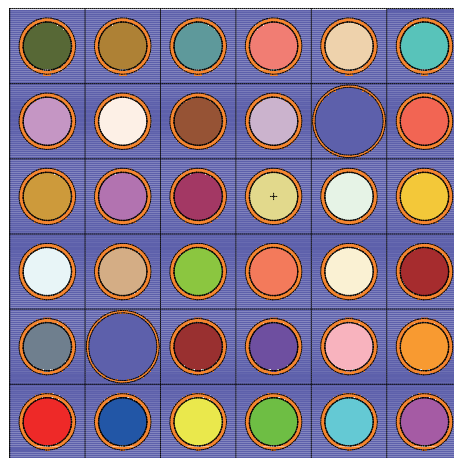


图3 (网刊彩色) 压水堆重复栅元的模型

Fig. 3. (color online) The PWR model of an infinite 6×6 lattice.

图4中正方形和圆点分别代表 UO_2 燃料棒和可燃毒物棒中 ^{240}Pu 的同位素质量分数随燃耗变化的关系,此关系图取自 6×6 模型中两种燃料棒的平均值(31根 UO_2 燃料棒和2根可燃毒物棒的燃耗差值均在其平均值的3%内).根据上文武器级钚的定义,可以从图4得到两种反应棒中含有武器级钚的条件:当 UO_2 燃料棒的燃耗4.7 MWd/kgU时含有武器级钚;当可燃毒物棒的燃耗小于等于2.7 MWd/kgU时含有武器级钚.通过计算可以发现,一根 UO_2 燃料棒在此燃耗下,可以提取出4 g的武器级钚.如果可以任意停堆卸料,全堆芯中有约4万根 UO_2 燃料棒,对此堆的燃耗为4.7 MWd/kgU的乏燃料进行后处理,可提取160 kg武器级钚.计算得到的上述情况可以发生在不受保障监督的状态下.在反应堆实际运行时,由于反应堆活化区的尾部效应^[17]和周边中子泄漏^[18],压水堆堆芯中不同位置燃料棒的燃耗也不同,同一根燃料棒不同活化区域的燃耗也是不同的.下面通过对压水堆堆芯进行轴向和径向的燃耗模拟计算,分析压水堆产武器级钚情况.

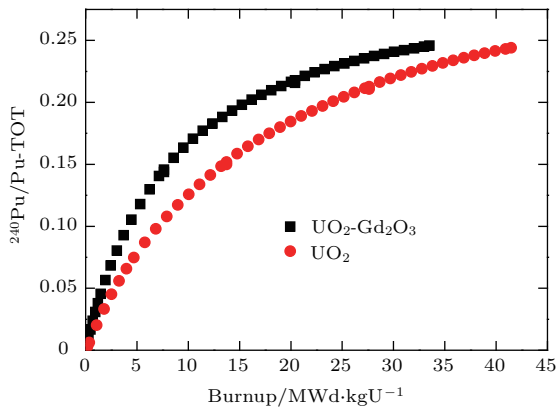


图4 UO_2 和可燃毒物燃料棒中 ^{240}Pu 同位素含量与燃耗的关系

Fig. 4. ^{240}Pu isotopic content as a function of the burnup in UO_2 and burnable poison fuel rods.

4 Takahama-3压水堆轴向燃耗分布

考虑到Takahama-3压水堆进水口温度为 $321\text{ }^\circ\text{C}$ 、出口温度为 $284\text{ }^\circ\text{C}$ ^[13-15],将长度为366 cm的活性区(含铀燃料的区域)在轴向上分成相等的20段,每段温度均匀变化,同时将冷却剂的密度也做相应调整,模型中考虑了上下管座等实际结构的影响(如图5).

重复栅元压水堆模型的平均燃耗分别

取自Takahama-3压水堆中9个典型的燃耗(在10.28—40.9 MWd/kgU之间),设置模型计算条件为每代20000个粒子,共模拟1000代,舍弃前200代.模拟结果如图6所示,图中横坐标是从燃料棒活化区顶端到底端的20等段的区号,纵坐标是燃耗的归一化系数.模拟结果显示在9个平均燃耗作用下,一根燃料棒从顶端到底端(zone 1—zone 20)20个分区的归一化燃耗系数的变化.从图6中可以看出活化区底部和顶部的燃耗最低,它们燃耗的归一化系数在0.31—0.51之间,且底部的燃耗比顶部大2.6%—6.6%.对于平均燃耗为30 MWd/kgU的栅元来说,活化区底部的燃耗比顶部大6.6%.模拟结果显示中间两段的燃耗最大,燃耗的归一化系数在1.14—1.38之间.总体而言,活化区两端的燃耗约为中间燃耗的1/3,从模拟结果可以看出同一个燃料棒轴向不同区域的燃耗相差巨大,巨大的燃耗差异导致钚的同位素含量变化很大.结合产武器级钚的条件与此计算结果,可知一个燃料棒的平均燃耗在15 MWd/kgU及以下时,其顶端1/20处含有武器级钚,随着平均燃耗的降低,此燃料棒含有的武器级钚的区域增多,量也增大.

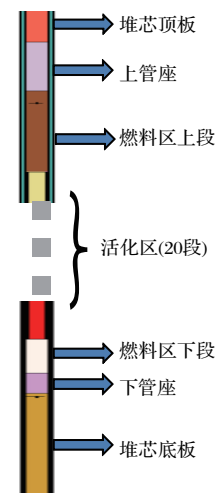


图5 (网刊彩色) 压水堆栅元的侧面示意图

Fig. 5. (color online) The pin-cell's profile of PWR.

我们取平均燃耗为10.28 MWd/kgU的zone 10和14.7 MWd/kgU的zone 4两段活化区,这两个区域属于压水堆的不同区域不同位置上的活化区,尽管它们最终的燃耗均为14.3 MWd/kgU,但 ^{240}Pu 同位素的质量百分比分别为14.48%和14.67%,这是由于这两段活化区经过不同的燃耗历史,每个时刻的中子能谱有细微的差别.事实上,

中子能谱会很大程度地影响铀同位素的组成, 例如不同初始铀的富集度, 或者不同堆型, 都会使不同的反应堆达到相同的燃耗时燃料中铀同位素成分不同.

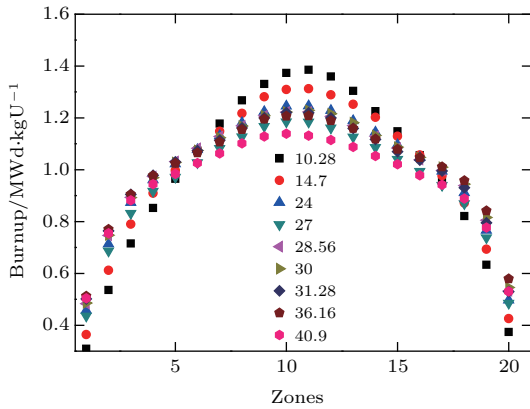


图6 (网刊彩色) 压水堆中乏燃料的轴向燃耗分布
Fig. 6. (color online) The axial burnup distribution of spent nuclear fuel in PWR.

因此靠近压力容器的燃料棒分区越密越接近实际情况.

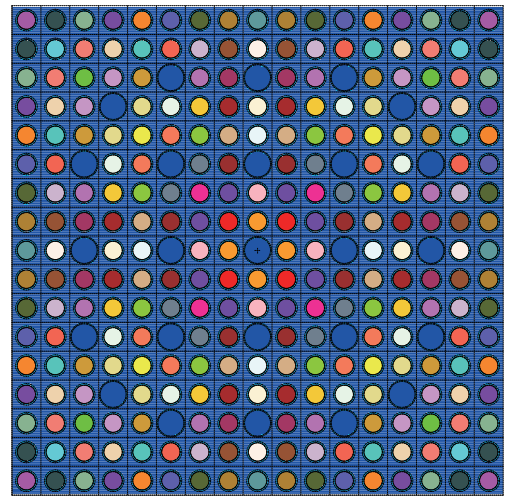


图7 (网刊彩色) 燃料组件水平截面图
Fig. 7. (color online) Horizontal cross section of a fuel assembly.

5 Takahama-3压水堆堆芯径向燃耗分布

5.1 压水堆组件中径向燃耗分布

我们根据文献 [13—15] 的数据, 将压水堆组件中的燃料棒按位置的对称性分为39个不同的活化区. 图7显示的是使用MCNP建立的压水堆组件的模型, 设置模型计算条件为每代30000个粒子, 共模拟1000代, 舍弃前200代. 图8显示的是一个压水堆组件中的39个燃料棒经过3个燃烧循环后燃耗的变化情况, 其中36个正方形表示UO₂燃料棒的燃耗, 3个三角形代表的是三个可燃毒物棒的燃耗. 模拟结果表明在压水堆的一个组件内UO₂燃料棒之间最大的燃耗差为11.3%, 可燃毒物棒的燃耗差为3.4%. 这说明在压水堆的径向上一个组件内的燃料棒存在燃耗差异. 基于对Takanama-3重复栅元的计算结果, UO₂燃料棒在燃耗相差11.3%的情况下, 会导致²⁴⁰Pu的同位素含量变化小于1%, 这个误差值对我们分析压水堆生产武器级钚的可能性并没有本质影响. 因此, 在全堆芯径向燃耗模拟过程中, 将一个组件范围内的UO₂燃料棒作为一个燃耗区计算, 将一个组件范围内的可燃毒物棒作为另一个燃耗区计算. 但考虑到靠近压力容器的几层燃料棒的中子泄漏较堆芯处严重,

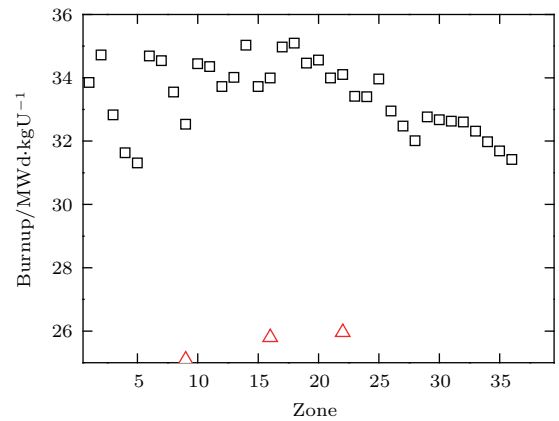


图8 组件内乏燃料的径向燃耗分布
Fig. 8. The radial burnup distribution of spent nuclear fuel in a fuel assembly.

5.2 压水堆堆芯径向燃耗分布

将压水堆的全堆模型简化成类似Kord提出的模型^[5](如图9), 由于公开文献只介绍Takahama-3压水堆的一种类型的组件(如图7), 我们假设全堆的157个组件均为此种类型的组件. 为了使简化模型能够在一个工作站(40个CUP, 64 G内存)上计算, 同时不会影响对压水堆产武器级钚能力的评估, 需要对压水堆模型进行均匀化处理. 根据所计算燃料棒离中心导管和最外层燃料棒的距离将压水堆堆芯分为10个区域. 第1区的圆心是中心导管, 直径为17个栅元长度的圆; 第2区是以第1区的边缘为内环, 向外扩展17个栅元长度的圆环; 第

3区—第8区以此类推. 第9区是4个对角处的长方形区域(41 × 13点阵), 第10区为靠近压力容器的最外侧3层燃料棒(如图10). 这样的区域划分考虑了压水堆堆芯的对称性, 从而使得模拟计算得到的平均燃耗更接近实际燃耗值. 根据上述分区方法和Takahama-3压水堆的公开参数, 我们使用MCNP建立压水堆的1/4模型(如图11), 同一个区内的燃料棒编有两种U卡号, 一种是²³⁵U富集度为4.11%的燃料棒, 另一种是²³⁵U富集度为2.6%的可燃毒物棒. 因此, 全堆的简化模型的燃耗计算区域共20个. 设置模型计算条件为每代500000个粒子, 共模拟1500代, 舍弃前300代. 堆芯运行历史与Takahama-3压水堆运行历史^[13-15]完全一致

(如表1所列).

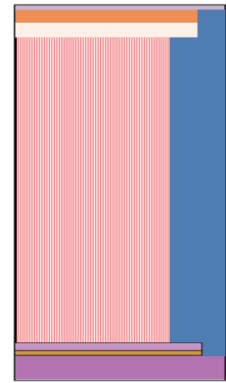


图9 (网刊彩色) 压水堆堆芯侧面

Fig. 9. (color online) PWR's Vertical cross section.

表1 Takahama-3压水堆运行历史数据
Table 1. The operation history of Takahama-3 PWR.

燃料循环编号	开始时间	结束时间	持续时间/d	停堆时间/d
5	1990年1月26日	1991年2月15日	385	88
6	1991年2月15日	1991年5月14日	402	62
7	1991年5月14日	1992年6月19日	406	—

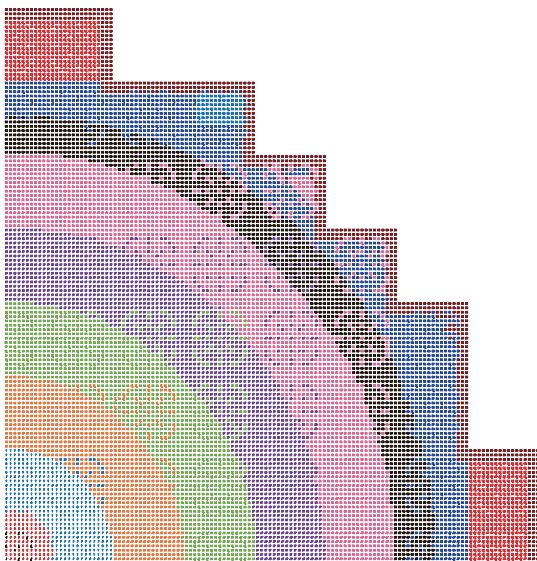


图10 (网刊彩色) 压水堆的10个径向分区

Fig. 10. (color online) The 10 subzones in the radial direction of PWR.

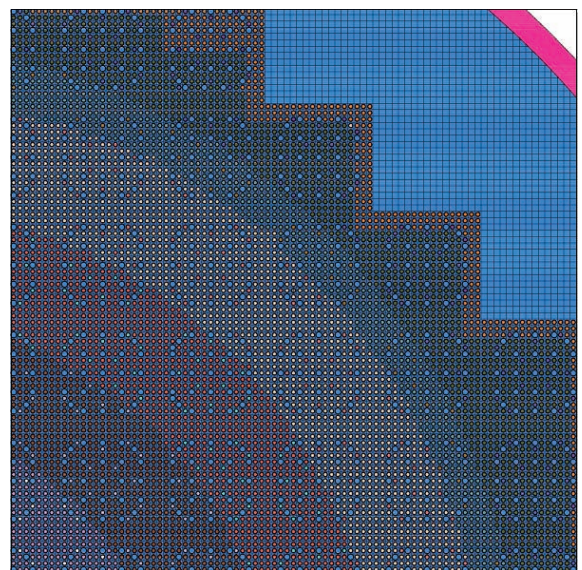


图11 (网刊彩色) 压水堆径向分区MCNP部分模型

Fig. 11. (color online) A partial MCNP model of PWR's radial subzones.

图12—图14是压水堆堆芯燃料棒分别经过一个、二个和三个燃料循环后径向的燃耗分布, 三幅图的横坐标中1—10分别代表图10中从里向外的10个分区, 同一个区号有两种燃料棒, 一种是UO₂燃料棒, 一种是可燃毒物棒. 图12—图14中

正方形代表UO₂燃料棒的燃耗值, 三角形代表可燃毒物棒的燃耗值. 压水堆的测量值显示其中一个命名为SF97的乏燃料棒经过了5, 6和7三个燃料循环, 乏燃料SF97的中间段达到了最高燃耗47.3 MWd/kgU^[13-15], 是在堆中经历最长燃烧时

间的燃料棒. 在本文的简化模型中, SF97在前两次燃料循环中的位置处于第6区, 在第三次燃料循环时处于第5区. 如图12所示, 在第5区和第6区经过三个燃料循环的 UO_2 燃料棒的平均燃耗分别为41.83和39.54 MWd/kgU. 结合图6中平均燃耗为40.9 MWd/kgU的燃料棒中最大的燃耗是平均燃耗的1.14倍, 基于本文建立的模型, SF97乏燃料最高的燃耗在45.1—47.7 MWd/kgU之间, 这与实际的测量结果47.3 MWd/kgU是一致的, 这佐证了本文建立的压水堆模型和模拟计算过程是正确的.

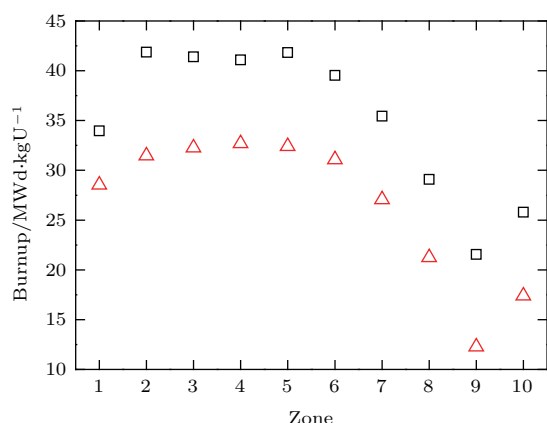


图12 乏燃料经过三个燃料循环后燃耗分布
Fig. 12. The burnup distribution of spent nuclear fuel after three fuel cycles.

从图13的计算结果和分区可以得到在压水堆中经过两次燃料循环含有武器级钚的区域是第9区的全部45根可燃毒物棒和847根 UO_2 燃料棒、第10区全部30根可燃毒物棒和439根 UO_2 燃料棒. 图14显示全堆燃料棒经过一个燃料循环后径向燃耗的变化情况, 可以看出堆芯中心一个组件内燃料棒的平均燃耗是堆芯最外部三圈燃料棒平均燃耗的5倍, 而可燃毒物棒达到了12倍. 全堆芯的可燃毒物棒内均含有武器级钚, 第6—10区内的全部燃料棒均含有武器级钚. 由于可燃毒物棒数量少(与Takahama-3压水反应堆结构相同的大亚湾反应堆公开的资料指出整堆共含有847根可燃毒物棒^[19]), 后处理难度大, 所以 UO_2 燃料棒中武器级钚的含量可以代表从中得到的武器级钚的产量. 经过第二个燃料循环后, 第9区的燃耗为11.85 MWd/kgU, 两端各1/20段含有武器级钚, 第10区的燃耗为13.16 MWd/kgU, 只有 UO_2 燃料棒的顶端1/20段含有武器级钚. 经过第一个燃料循环后, 第9区

和第10区的全部燃料棒的全部区域均含有武器级钚. 每个燃料棒的1/20段武器级钚产量与其燃耗的关系如图15所示, 经计算压水堆中武器级钚的生产率为0.54 g/MWd. 目前世界范围内的

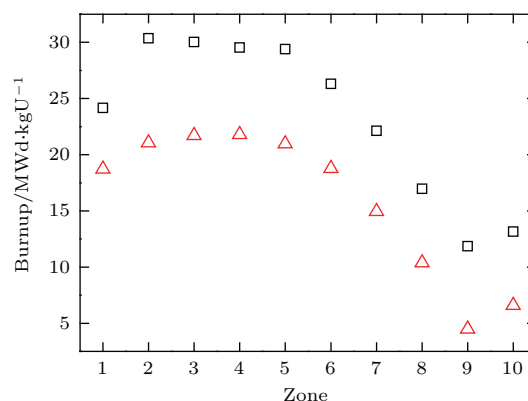


图13 乏燃料经过两个燃料循环后燃耗分布
Fig. 13. The burnup distribution of spent nuclear fuel after a fuel cycle.

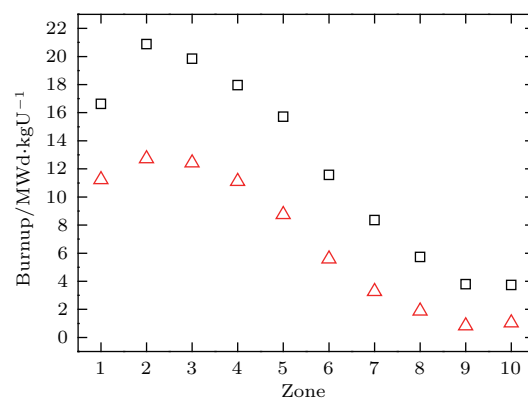


图14 乏燃料经过一个燃料循环后燃耗分布
Fig. 14. The burnup distribution of spent nuclear fuel after two fuel cycles.

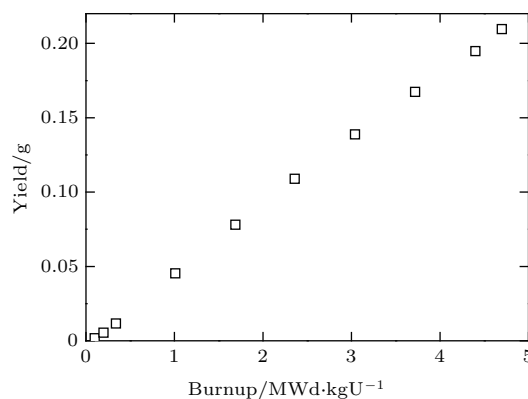


图15 燃料棒的燃耗与武器级钚产量的关系
Fig. 15. The yield of weapon grade Pu depended on the burnup of nuclear fuel rod.

压水堆燃料棒年破损率为 10^{-5} ，一般一座压水堆一年有2.9个燃料棒破损，并且一般是初始堆芯装料的燃料棒破损^[19]，也就是说堆内大概率会有3个堆芯最外侧的组件经过一个燃料循环就会被卸载下来，如果燃料棒破损情况严重会导致马上停堆卸料。通过模拟计算，我们知道经过第一和第二燃料循环卸载的乏燃料中含有武器级钚。

5.3 压水堆燃料卸载后钚同位素含量的变化

含有武器级钚的乏燃料卸料后钚的同位素含量随冷却时间变化如图16所示，由于 ^{241}Pu 的 β -衰变的半衰期只有14.4 a，因此随着卸载燃料存放时间的增长，越来越多的 ^{241}Pu 衰变成了 ^{241}Am ，使得钚的总质量略有减少。从图16可以看出，随着冷却时间的增加， ^{239}Pu 的同位素含量增大，能够提取出更高品质的武器级钚。

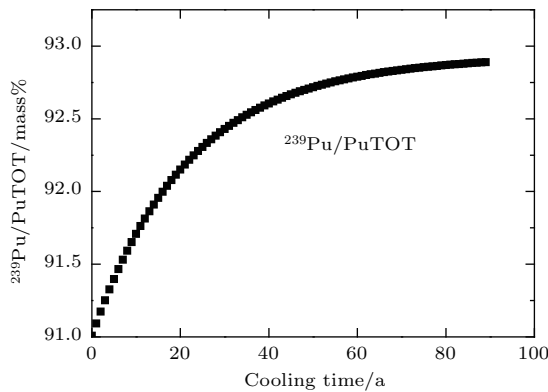


图16 燃料卸料后 ^{239}Pu 的同位素含量随冷却时间的变化

Fig. 16. Isotopic composition of ^{239}Pu and ^{240}Pu in discharged fuel vs. cooling time.

6 结 论

本文首先对压水堆的 6×6 模型进行中子和燃料计算，得到堆芯内两种燃料棒含有武器级钚的条件。然后模拟了轴向均匀分成20段的压水堆重复栅元的燃耗，发现燃料棒顶部1/20段的燃耗是其中间段最高燃耗的1/3。模拟组件得到组件内燃料棒燃耗的变化区间，结合此结论与堆内中子泄漏的规律，将压水堆堆芯划分为10个区，通过模拟计算得到全堆芯燃料棒经过一次、两次和三次燃料循环后径向燃耗的变化，结合之前得到的压水堆生产武

器级钚的条件，可以得到燃料棒中含有武器级钚的准确位置和产量。

假如一个拥有大量商业压水堆的核能国家，收集含有武器级钚的乏燃料，再对它们进行集中的后处理，便可以提取出大量的武器级钚，这会产生巨大的核扩散风险。一个国家也可以利用不受国际监管的轻水堆生产武器级钚。在上述两种情况中，商用压水堆存在武器级钚生产堆同样的核扩散风险。因此，国际组织特别是IAEA应该加强对商业动力反应堆特别是压水堆(事实上，也应该对沸水堆)卸载乏燃料的监管程度，防止拥有大量压水堆的核门槛国家妄图囤积武器级钚，从而减少武器级核材料的扩散风险。我们建议在核保障监督框架内，发展核材料分级管理制度，细化对不同燃耗的乏燃料的管理，特别是对低燃耗区乏燃料施行更为严格的监管制度。此外，各个国家的燃料棒制造公司应该逐步提高燃料元件的安全性和可靠性，降低燃料棒的破损率，使燃料棒能够经过三个燃料循环而不破损，提高乏燃料的燃耗，使之不再含有武器级钚，从而降低压水堆的扩散风险。

参考文献

- [1] Glaser A 2009 *Nucl. Sci. Eng.* **163** 26
- [2] Gasner A, Glaser A 2011 *Sci. Global Security* **19** 223
- [3] Takeda S 1978 *J. Nucl. Sci. Technol.* **15** 502
- [4] Mark J C, Hippel F V, Lyman E 2009 *Sci. Global Security* **17** 170
- [5] Kord S 2003 *M&C+SNA* Gatlinburg, Tennessee, USA, April 6–11, 2003
- [6] Horelik N, Herman B, Forget B, Smith K 2013 *Proceedings of M&C 2013 Sun Valley* Idaho, USA, May 5–9, 2013 p2986
- [7] Smith K, Benoit F 2013 *M&C 2013 Sun Valley* Idaho, USA, May 5–9, 2013 p1809
- [8] Li G, Deng L, Zhang B Y, Li R, Shi D F, Shangguan D H, Hu Z H, Fu Y G, Ma Y 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 052801 (in Chinese) [李刚, 邓力, 张宝印, 李瑞, 史敦福, 上官丹骅, 胡泽华, 付元光, 马彦 2016 物理学报 **65** 052801]
- [9] Shangguan D H, Li G, Deng L, Zhang B Y, Li R, Fu Y G 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 052801 (in Chinese) [上官丹骅, 李刚, 邓力, 张宝印, 李瑞, 付元光 2015 物理学报 **64** 052801]
- [10] Shangguan D H, Deng L, Li G, Zhang B Y, Ma Y, Fu Y G, Li R, Hu X L 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 062801 (in Chinese) [上官丹骅, 邓力, 李刚, 张宝印, 马彦, 付元光, 李瑞, 胡小利 2016 物理学报 **65** 062801]
- [11] Shi X M, Zhang B A 2010 *Nucl. Power Eng.* **3** 1 (in Chinese) [师学明, 张本爱 2010 核动力工程 **3** 1]

- [12] Shi X M 2010 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: China Academy of Engineering Physics) (in Chinese) [师学明 2010 博士学位论文 (北京: 中国工程物理研究院)]
- [13] Isotopic Analysis of High-Burnup PWR Spent Fuel Samples From the Takahama-3 Reactor, Sanders C E, Gauld I C <http://www.nrc.gov/readinc-rm.html> [2003-01]
- [14] Dalle H M 2009 *International Nuclear Atlantic Conference* Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27–October 2, 2009
- [15] Analysis of Experimental Data for High Burnup PWR Spent Fuel Isotopic Validation-Calvert Cliffs, Takahama, and Three Mile Island Reactors, Ilas G, Gauld I C, Difilippo F, Emmett M B <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/nuregs/contract/cr6968/> [2010-02]
- [16] Albright D, Berkhout F, Walker W 1997 *Plutonium and Highly Enriched Uranium 1996* (New York: SIPRI) p19
- [17] Park C J, Park H G, Shon H D, Hong S G, Lee Y 2015 *Ann. Nucl. Energy* **81** 174
- [18] Pirouzmand A, Roosta F 2016 *Progress in Nucl. Energy* **88** 321
- [19] Chen B S, Liu C X 2007 *Fuel Pin of LWR* (Beijing: Chemistry Industry Press) p341 (in Chinese) [陈宝山, 刘承新 2007 轻水堆燃料元件 (北京: 化学工业出版社) 第 341 页]

Simulation calculation of weapon-grade plutonium production in pressurized water reactor*

Xu Xue-Feng¹⁾³⁾ Fu Yuan-Guang⁴⁾ Zhu Jian-Yu¹⁾ Li Rui⁴⁾ Tian Dong-Feng²⁾
Wu Jun¹⁾ Li Kai-Bo^{1)†}

1) (Center for Strategic Studies of China Academy of Engineering Physics, Beijing 100088, China)

2) (China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

3) (Graduate School of China Academy of Engineering Physics, Beijing 100088, China)

4) (Software Center for High Performance Numerical Simulation, China Academy of Engineering Physics, Beijing 100083, China)

(Received 19 December 2016; revised manuscript received 1 February 2017)

Abstract

The nuclear nonproliferation is a common objective for the international society, of which one of the most important issues is the nonproliferation of weapon-grade nuclear material. Plutonium is a by-product when nuclear reactors are operated. If a commercial power nuclear reactor operates without counting its economic benefits, it is possible that weapon-grade plutonium (WGPu) would be produced in the nuclear reactor with using uranium as nuclear fuel. In the paper, we quantitatively study the plutonium isotopic composition and yield of the WGPu produced in a pressurized water reactor (PWR), and thereby investigate the proliferation risk of commercial nuclear reactors. The properties of plutonium produced in the PWR are calculated by MCORGS, which is developed by us to link MCNP and ORIGENS for calculating the transport-burnup. For evaluating the changing behavior of plutonium isotopic ratio dependent on the cooling time after being discharged from a PWR, we add the model of calculating the depletion and decay properties of nuclear fuel into the MCORGS code system. In order to calculate the yield of WGPu produced in the PWR, we carry out the neutron and burnup calculations by using five reactor models. The simulation models and operation history are based on the configuration and parameters of Japanese Takahama-3 unit. According to the positions and proportions of UO₂ fuel rods, burnable poison rods and guide tubes in Takahama-3 PWR, we build a PWR model of an infinite heterogeneous 6 × 6 pin cell lattice, carry out simulation calculation and explore the condition for WGPu existing in the two kinds of fuel rods. When the burnup of a UO₂ fuel rod is no more than 4.7 MWd/kgU, it contains WGPu. When the burnup of a burnable poison rod is no more than 2.7 MWd/kgU, it contains WGPu. Therefore, the issue of WGPu production in PWR is transformed into the research of the spatial distribution of PWR burnup. In order to obtain the axial PWR burnup, we build an infinite fuel pin cell model in which the PWR is divided into 20 equal zones in the axial direction, and calculate PWR axial burnup distribution when it is operated at 9 typical powers of Takahama-3 PWR. It is found that the burnup value of the two ends of 1/20 section is worth 1/3 of the two middle ones. Based on the principle of neutron leakage in a PWR and the simulation results of a fuel assembly, we build a special PWR mode, in which the PWR is divided into 10 zones in radial direction, and obtain the radial distribution of PWR burnup after the first, the second and the third fuel cycle. Based on the WGPu existing condition and the spatial distribution of a PWR burnup, in this paper we present the exact position of WGPu contained in PWR core and the yield of WGPu in UO₂ fuel rods. The calculation results indicate that the spent nuclear fuel with low burnup brings huge proliferation risk, of which the supervision should be strengthened.

Keywords: nuclear nonproliferation, weapon-grade plutonium, burnup, pressurized water reactor

PACS: 28.41.Ak, 28.20.-v

DOI: 10.7498/aps.66.082801

* Project supported by the Sub-item of Special Project, National Energy Bureau, China (Grant No. 2015ZX06002008), the National Defence Basic Scientific Research Program of State Administration of Science, Technology and Industry for National Defence, China (Grant No. C1520110002), and the National Magnetic Confinement Fusion Energy Research Project, China (Grant No. 2015GB108002).

† Corresponding author. E-mail: li_kaibo@iapcm.ac.cn