

小型模組化反應器(SMR)的核廢料 (Nuclear waste from small modular reactors)

陳勝朗 譯 2023. 5. 10

Lindsay M. Kralla,^{1,2} Allison M. Macfarlane¹, and Rodney C. Ewing¹
Edited by Eric J. Schelter, University of Pennsylvania, Philadelphia, PA; received June 26,
2021; accepted March 17, 2022 by Editorial Board Member Peter J. Rossky

摘要

小型模塊化反應爐 (SMR；即每座 <300 MWelec 的核反應爐) 因其固有的安全特性和降低的成本而受到關注。

然而，很少有研究分析其核廢料流的管理和處置。我們將三種不同的 SMR 類型設計與 1,100 MWe 壓水反應爐在能量當量體積 (energy-equivalent volume)、放射化學、衰變熱和高、中低水平的裂變同位素組成方面進行了比較其廢物流 (stream)。結果顯示，輕水冷卻、熔鹽冷卻和鈉冷卻方式的 SMR 設計將增加需要管理和處置的核廢料的數量會增加為 2 到 30 的因數。這增加的廢物體積歸因於在 SMR 設計中使用不同的中子反射器和/或燃料化學反應和冷卻劑。

也就是說，數量不是最重要的評估指標；相反，地質處置場的性能是由衰變熱功率和乏核燃料的放射化學驅動的，SMR 對此沒有任何好處。SMR 不會減少地球化學有關 ¹²⁹I、⁹⁹Tc 和 ⁷⁹Se 分裂產物 (FP) 的產生，這些產物是大多數處置場設計的重要劑量貢獻者。此外，SMR 的乏燃料含有相對較高的濃縮度裂變核種 (fissile nuclides)，這將需要新的方法來評估貯存和處置過程中的臨界性 (criticality)。由於 SMR 廢物流特性是會受到中子洩漏的影響，這是小型反應爐堆芯中增強的基本物理過程，因此，SMR 將會加大核廢物管理和處置的挑戰。

意義

小型模塊化反應爐 (SMR) 被考量作為核能的未來，據稱與現有的千兆瓦階輕水反應爐 (LWR) 相比具有成本和安全優勢。然而，很少有研究評估 SMR 對核燃料循環後端的影響。本報告主要介紹關於 SMR 的低階、中階和高階放射性廢物流與輕水堆相比特徵表現，SMR 將產生更多的化學/物理反應性廢物，這將影響管理和處置的選擇這種浪費。

儘管分析僅關注數十種提議的 SMR 設計中的三種，但與 SMR 相關的本質上較高的中子洩漏顯示大多數設計在核廢料中關鍵放射性核種的產生、管理和最終處置方面不如一般的 LWR 核電廠。

一. 前言

近年來，推廣小型模塊化反應堆 (SMR) 的供應商數量設計，每個具有 <300 MWelec 的電力容量，已急劇增加。至於在最近建造中的反應堆的電力容量 >1,000 MWe 且是利用所謂輕水作為冷卻劑。而已知的 70 餘種 SMR 設計中的大約 30 種在國際原子能總署 (IAEA) 先進反應堆信息中被認為是“先進”反應堆中，有少數是使用非輕水冷卻劑 (例如，氬氣、液態金屬或熔鹽)。

本研究，我們是進行評估，相對於傳統設計的大型商業反應堆產生的廢物，在中小型反應堆對核反應堆管理和處置的影響。

核技術開發人員和倡導者通常採用簡單的指標，例如質量或總放射毒性，指稱比當今流行的商業反應堆類型千兆瓦級壓水反應堆 (PWR)，先進的反應堆 SMR 將產生“更少”的用過核燃料 (SNF) 或高階放廢物 (HLW)。例如，維格蘭 (Wigeland et al.) 等。指稱先進反應堆將減少數量和長壽命放射性 HLW 分別減少 94% 和 ~80%。然而，這些批量指標提供的信息很少洞察關於其貯存、包裝和處置 HLW 所需的資源。事實上，反而管理核廢物流的安全性和成本取決於其易裂變物料、放射學、物理和化學特性。關於反應堆類型、大小和核燃料循環都會影響核廢料流的特性，除了 HLW，可以是低放和中放廢物 (LILW) 的形式。儘管許多報告都討論了 SMR 部署的成本和時間線，這些燃料循環將對核廢料管理和處置產生的影響通常被忽視。

在這裡，我們評析了三種 SMR 設計的 SNF 和 LILW 的數量並描述了其性質獨特的。從 NuScale 的 SMR 後端分析的方法規格 (iPWR) 認證申請資料，我

們分析反應堆物理的基本原理與估計 iPWR 廢物的體積和成分有關，然後也進行另外類似的鈉和熔鹽冷卻劑方式。通過這由下而上的框架，我們發現，與現有的 PWRs 相比，SMRs 將增加 LILW 和 SNF 的數量和複雜性。這種體積和化學複雜性的增加將對廢物貯存、包裝、和地質處置。此外，SMR 沒有提供明顯的好處為運作良好的地質機構開發安全案例貯存場。

二. SMR 中子學與設計

核反應堆旨在維持臨界狀態，即連鎖反應產生能量的裂變事件（每次裂變 ~200 MeV 事件）和額外的中子可能導致附近的裂變裂變核素。反應堆的中子“經濟性”取決於鍊式反應過程的效率；中子的命運被豐富的核素吸收，例如 238U 或 232Th；新產生的易裂變核素的裂變，如 239Pu 和 233U；以及穿過燃料邊界的中子損失。這些“丟失”的中子可以激活周圍的結構材料燃料組件。這些物理過程中的都會產生放射性廢物。因此，SNF 的最終組成和相關的廢物取決於的初始組成燃料、燃料的物理設計、燃耗和燃料的類型反應堆的結構材料。中子洩漏的概率是反應堆的函數尺寸和中子擴散長度，後者是由中子散射特性決定的反應堆中的燃料、冷卻劑、慢化劑和結構材料核心。中子擴散長度將相同使用類似燃料循環和燃料-冷卻劑-慢化劑的反應堆組合；因此，中子洩漏概率將是 SMR 比類似類型的更大反應堆大（SI 附錄，第 1 節）。對於熱譜反應堆，中子經歷彈性用水或石墨慢化劑散射，導致中子擴散長度相對於核心尺寸較短。

在這裡，洩漏隨著核心的減少呈二次方增長半徑和反應器尺寸（SI 附錄，第 1 節）。例如，一座 3,400-MWth PWR 將洩漏 <3% 的自由中子，而 160 MWth iPWR 可能洩漏 >7%。快堆洩漏也很高，至少 4%，最高 25%，具體取決於燃料成分和堆芯設計的其他方面。通常，與千兆瓦級輕水反應堆相比（LWR）水和非水 SMR 都會增加中子洩漏（SI 附錄，第 1 節）。

中子洩漏的小幅增加會產生顯著影響對核心臨界和功率輸出，並會導致減少 SNF 燃耗；例如，每千克兆瓦天數，或 MWd/kg）（SI 附錄，第 1），除非通過設計變更補償反應堆和/或燃料，包括：

- 使用濃縮到 >5 wt% 初始 235U 或 239Pu 的燃料到增加初始裂變載荷和中子概率被裂變元素吸收，
- 引入中子反射器以重定向一部分洩漏的中子回到核心，
- 放棄中子減速劑或使用石墨而不是水。

IAEA Aris 數據庫中列出的大多數 SMR 設計結合一個或所有這些策略來提高核心中子經濟。

在本文中，我們描述了這些變化如何體現在輕水冷卻、鈉冷卻和熔鹽冷卻的 SMR 設計及其對體積、成分和地質處置的影響 SNF/HLW 和 LILW。

三. 廢物比較框架

核廢料的管理和處置受到影響通過放射性核素的形成和分佈一個反應器，它又取決於幾何形狀、組成、反應堆、燃料、減速劑和冷卻劑材料的流動路徑。列出了 16 種 SMR 設計的這些規格（表格 1）。其中，NuScale iPWR、東芝 4S 鈉冷快堆和地球能量積分選擇熔鹽反應器（IMSR）進行深入、定量和定性廢物評估，因為可靠的反應器這些設計的燃料循環規範已經發布在（預）許可和專利申請材料中。在哪裡從這些材料中刪除了專有設計參數，通過以下方式填補了技術數據可用性方面的空白明確的假設，通過參考類似的設計在科學文獻中分析，或通過推導使用已知的設計參數。

3.1. 指標

定量比較旨在確定先進反應堆產生的核廢料是否會比現有的 LWR。計算 SNF 和 LILW 體積三種 SMR 設計中的每一種，結果都經過歸一化處理相應反應器產生的熱能或燃料循環，大致是反應堆上集成的反應堆功率壽命或燃料循環長度（第 3 節和第 4 節）。這個指標，能量當量廢物量（立方米每千兆瓦熱年，或 m³/GWth-y），用於比較 SMR 和 PWR 廢物量與其各自能源效益的關係。

燃料燃耗和堆芯幾何規格用於估算 SNF 體積（第 3.2 和 4 節），而中子通量和主冷卻劑迴路規格被用來估計將成為中子的反應堆材料的體積激活或污染導致長壽命或短壽命 LILW 退役（第 3.3、4.1 和 4.2 節）。

然而，指標“體積”和“能量當量”不反映放射性核素組成和形態，正確評估的更重要的參數對地質處置庫安全的影響。

核反應堆產生幾種不同的廢物流，其中含有不同濃度的放射性核素，具有半衰期範圍從數小時到數百萬年不等具有非常不同的核和化學性質。因此，在除了計算 SMR 廢物體積外，我們還描述了 SNF 和 LILW 流的放射化學成分（第 3 和 4 節），然後討論它們的管理和處置作為地質儲存庫中的 SNF 或 LILW（第 4 節）。

3.2. LILW

退役含有低或非常低的 LILW 低濃度的短壽命或長壽命放射性核素（半衰期分別小於或大於 30 歲）可能有資格在近地表處置中作為“短壽命 LILW”處置設施。然而，包含中間體的“long-lived LILW”長壽命放射性核素和/或短壽命放射性核素的濃度放射性核素濃度高到足以保證防輻射包裝應按地質處置具有多個自然和工程的存儲庫障礙（6）。

在本文中，我們對可能成為中子通過活性堆芯的中子洩漏激活長期退役 LILW（第 3.3.1 和 4.2 節），而可能因接觸而被污染的材料與主反應堆冷卻劑一起被歸類為短壽命 LILW（第 3.3.2 和 4 節）。

在可能的情況下，我們指的是中子通量模型或以前的廢物特徵研究來證明這些 SMR LILW 分類的合理性。然而，在實踐中，這些分類應該通過迭代來驗證安全評估過程。這涉及採樣和分析反應器材料以限制源項和特定地點考慮到的放射性核素傳輸模擬擬議存儲庫的時間演變，包括其自然水文地球化學，加上工程屏障系統（第 4 節）。

3.3. HLW 或 SNF

類似於 LILW，安全管理和 SNF 或 HLW 的處置必須考慮指標超越質量、體積或放射性。因此，我們比較由 SMR 和由 LWRs 產生的 SNF 而言

- SNF 基質的化學性質及其放射性核素含量，影響放射性核素的環境流動性以及由此產生的輻射潛力在生物圈中對人類的劑量；
- 放射性衰變產生的熱量會損壞 SNF 矩陣，以及障礙的其他組成部分系統（例如，用於抑制回填料粘土的穩定性放射性核素運輸）；
- SNF 中易裂變同位素的濃度，這會影響維持發熱關鍵鏈的潛力可能會損壞燃料和屏障系統的反應地質資源庫。

這些變量取決於 SNF 放射化學成分（即放射性核素的數量和類型，包括它們的化學性質、半衰期、衰變模式和子產物），這反過來又取決於初始燃料成分，其最終燃耗，以及從反應堆燃耗後經過的時間。此外，堆芯中子能譜影響放射性核素的種類和數量燃料和反應堆材料，例如來自快反應堆產生的 SNF 的成分由慢化熱譜反應堆產生的會有所不同。

3.4. 廢物化學

特定核材料是否可以在特定設施中貯存或處置，部分受到監管通過其放射化學和散裝化學成分。

LWR 在名義上產生退役 LILW 和 SNF 混凝土、鋼、鋁包層和 UO₂ 的形式。由於這些材料在以下情況下不會快速或劇烈地反應環境條件下，它們可以適當地貯存或處置設計的設施。另一方面，非 LWR SMR 使用化學特別的燃料和冷卻劑（例如，金屬鈉、金屬鈾和四氟化鈾）與水和/或大氣中的氧氣迅速反應。從處理和處置這些化學物質的經驗不穩定的廢物流是有限的，我們指的是退役從以前的實驗反應堆的報告中推斷出影響新型 SMR 材料可直接處置他們的廢物。在處置之前，異國情況的用過燃料、冷卻劑和/或減速劑材料需要處理和調理。但是，副產品的特性與這些過程相關的基礎設施是不確定的，此處理產生的額外廢物流和調節過程在本研究中沒有量化。本項研究也未考慮再加工、回收、和稀釋，因為這些處理不會消除貯存、運輸、處理和處置的需要放射性物質。

四. SMR 廢物流：體積和特徵

4.1. 新穎的 SMR 設計特點。

許多 SMR 採用“積分”設計，其中反應堆堆芯和某些輔助系統（例如，蒸汽發生器、穩壓器和/或熱交換器）都包含在內在反應器容器內（SI 附錄，圖 S2 和 S3）。一些 SMR 可能位於單個發電站。為了例如，一個 NuScale iPWR 站最多可承載 12160-MWth iPWR，每個淹沒在共享的公共反應堆池中 SNF 冷卻池（15, 16）的水。

初級冷卻劑（例如，以水、熔鹽或鈉）將在核心被加熱並向上循環通過反應堆容器的中心。在上部在反應堆容器中，一次冷卻劑被重新定向向下流過熱交換器，加熱二次最終支持動力傳動系的冷卻劑。首要的冷卻劑直接接觸活動堆芯，因此代表一個重要的管道，在正常操作條件下，會污染反應堆容器及其內容物與放射性核素。

在鈉鹽和熔鹽冷卻 SMR 的情況下，主冷卻劑具有化學反應性（第 3.4.3 節），加熱到 $>500\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的溫度，並且具有高放射性（2）。在這些極端條件下，反應堆組件可能具有壽命比標準 PWR（60 y）短，這將增加 LILW 的退役量。此外，非光水 SMR 將引入不常見類型的 LILW 中子反射器和化學反應冷卻劑的形式或調節劑材料。

以下部分顯示了兩者之間的區別 SMR 和全尺寸反應堆堆芯幾何形狀，主冷卻劑流動路徑和加油程序將影響發電 LILW 的短期和長期退役。

4.2. SNF：燃耗、質量和體積

對於 PWR 和 iPWR 每個設計都使用濃縮至 $\sim 5\text{ wt}\%$ 235U 的 UO₂ 燃料，以前的調查人員報告說，中子洩漏（第 2 節）將燃料燃耗從 $\sim 55\text{ MWd/kg}$ 降低，正如通過 PWR，iPWR 為 26 至 34 MWd/kg（9, 15）。自燃耗詳細信息已從公開可用的許可證中刪除 NuScale 反應堆的應用，燃耗為 $\sim 34\text{ MWd/kg}$ 此處使用燃料棒尺寸、線性功率計算為此提供的密度和反應堆運行參數 iPWR（SI 附錄，表 S2）（17）。按建議操作 NuScale，一個 12 模塊 iPWR 站（1,900 MWth）會排放 $\sim 21\text{ MT SNF/y}$ ，這類似於電源承載單個 3,400 MWth PWR（燃耗為 57 MWd/kg）的電站（SI 附錄，表 S2）。每能量當量，iPWR 排放的 SNF 質量為比千兆瓦級 PWR 放電量大 1.7 倍（SI 附錄，表 S2）。

與 NuScale iPWR 一樣，熔鹽和鈉冷卻 SMR 將經歷增強的中子洩漏（第 2 節和 SI 附錄，第 1 節）。儘管這些 SMR 設計可能尋求通過使用中子反射器和/或燃料來抵消洩漏濃縮至 $>5\text{ wt}\%$ 初始裂變濃度，燃料燃耗將低於較大的熔鹽和鈉冷卻反應器（表 1）。例如，使用 19 wt% 的初始裂變 2、30 或 135 MWth 鈉 SMR 中的燃料將實現燃耗分別為 <10 、34 或 90 MWd/kg（表 1）。

ThorCon 的 560 MWth 熔鹽 SMR 也需要燃料濃縮至 $\sim 20\text{ wt}\%$ 的易裂變同位素，據稱可實現燃耗為 250 MWd/kg。然而，3% 濃縮 235U 燃料 Terrestrial Energy 的 400 MWth 熔鹽 SMR 將實現燃耗僅為 14 MWd/kg（表 1）。這些產生的 SNF 的能量當量質量 SMR 可以從各自的倒數計算燒掉。而燃耗為 55 MWd/kg 的 PWR $\sim 6.5\text{ MT SNF/GWth-y}$ ，非水冷 SMR 可能排放 1.5 至 $>36\text{ MT SNF/GWth-y}$ 。然而，這些數字，僅反映鈾、鈾系元素和裂變的質量 SNF 中的產品而忽略了鹽或燃料基質中或周圍的鈉成分。如此低密度材料對基於質量的 SNF 估計貢獻很小但儘管如此，仍將有助於基於數量的估計。

為了 160 MWth NuScale，400 MWth 陸地能源，和 30-MWth Toshiba SMR 設計，體積放電分別為 5.1、11 和 2.0 m³ SNF/GWth-y 與 PWR 的 2.0 m³ SNF/GWth-y 相比計算得出（圖 1 和 SI 附錄，第 2 節）。管理與處置對低燃耗 SMR 燃料的影響在第 4 節

4.3. 長壽命 LILW：

來自反應堆容器的活性鋼和中子反射器。一般來說，長壽命的 LILW 包括具有放射性的近堆芯組件或在吸收從核心洩漏的中子後“激活”。這種活性鋼含有放射性同位素半衰期超過幾千年的（例如，⁵⁹Ni，¹⁴C、⁹⁴Nb、⁹⁹Tc、⁹³Zr、⁹³Mo 和 ³⁶Cl）等等，應該是在將限制和延遲的地質處置庫中處置將放射性核素引入地表生態系統（表 2）。

4.3.1. 近核心 iPWR 組件

激活程度近堆芯反應堆鋼與時間成正比中子暴露通量或中子“注量” 儘管 NuScale iPWR 產生的熱量比滿刻度 PWR，外圍的總中子通量有源 iPWR 內核將類似於 AP1000 的內核(>10¹⁴ 中子/cm²-s)。

考慮幾何和組成的激活模型壓水堆堆芯表明暴露於熱中子注量 >10²¹ 中子/cm² (即中子通量 >10¹² 70% 容量因數下 60 y 的中子/cm²-s) 將符合 a 作為長壽命 LILW 或大於 C 類廢物的成分，根據美國核管理委員會。

NuScale 表示 iPWR 壓力容器位於距活性核心約 35 厘米，暴露於熱中子 2.4 10¹¹ 中子/cm²-s 的通量。這超過 PWR 壓力容器的熱通量 (5.3 10¹⁰ 中子/cm²-s) 4.5 (23) 倍。如果 iPWR 以 95% 的容量運行 60 年 (18)，中子注量在 iPWR 壓力容器中，~4.3 10²⁰ 中子/cm²，將接近 10²¹ 個中子的長壽命 LILW 激活極限/平方厘米。因此，NuScale iPWR 組件位於岩心和壓力容器，包括岩心筒和中子反射器 (SI 附錄，圖 S1)，可能保證地質在退役時作為長壽命 LILW 處置。

NuScale iPWR 壓力容器是否也將達到長壽命的 LILW 激活水平不確定並且可能會有所不同根據國家具體規定。

由於所討論的 NuScale iPWR 組件將包括由成分類似於壓水堆的不銹鋼製成 (即 304/304L 型不銹鋼)，這些壽命長 LILW 估計對鋼的差異不敏感成分和相關的中子吸收截面。可能產生的長壽命 LILW 的體積對 160 MWth iPWR 的退役進行了估算和比較與 3,400 MWth PWR 的相應數字(19)(SI 附錄，表 S3)。一個 iPWR 將產生 0.29 或 0.53 m³/GWth-y 取決於壓力容器是否會被激活到長期的 LILW 水平。與 PWR 相比(3.1 10² m³/GWth-y)，NuScale iPWR 會增加長壽命退役的能量當量需要地質處置的 LILW 廢物是 9 到 17 倍。

4.3.2. 來自熔鹽反應堆的腐蝕容器。

熔鹽反應堆容器的壽命將受到腐蝕性、高溫、和放射性堆芯環境。在特別是 316 型不銹鋼的鉻含量構成 PWR 壓力容器易受腐蝕鹵化物鹽。儘管如此，一些開發人員，例如 Thor-反對，計劃採用這種不銹鋼而不是合格的更耐腐蝕的材料用於反應器容器。

Terrestrial Energy 可能會建造他們的 400 MWth IMSR 船來自 Hastelloy N，一種鎳基合金，尚未經過美國認證的商業核應用代碼機械工程師學會。從此鎳基合金發生氬脆化 (27)，地球 Energy 設想其反應堆容器的使用壽命為 7 年。熔鹽反應器容器將被污染鹽不溶性裂變產物 (28) 也將成為通過暴露於熱中子通量而激活中子大於 10¹² 中子/cm²-s (29)。因此，不太可能商業上可行的去污過程將使回收其合金成分。

陸地能源的 400-MWth SMR 可能產生多達 1.0 m³/GWth-y 的鋼材或需要長期管理和處置的鎳合金 LILW。

4.3.3. 損壞的反射器和屏蔽快頻譜 SMR。

由於快譜 SMR——由氣體或熔融鈉冷卻，鉛或鹽——放棄中子減速劑，這些設計採用中子反射器和屏蔽來減輕對反應堆的損害由快中子轟擊引起的容器(表 1)。儘管中子吸收截面通常較低對於快於熱中子，鈉冷中的快中子通量 SMR 將超過 10¹⁵ n/cm²-s (32)。因此，需要管理和處置激活的反射器和屏蔽子組件因為可以預期壽命長的 LILW。例如，之後運行 20 年，750-MWth BN-350 鈉冷快反應堆 (哈薩克斯坦：1973 年至 1993 年) 產生了約 13 立方米的活化含有長壽命 ⁵⁹Ni 和 ⁹⁴Nb 放射性核素的鋼濃度足以保證對其進行地質處置反射器和屏蔽作為長壽命 LILW。

常見的反射器和屏蔽材料包括鋼和分別為碳化硼，但鈹、鎂、鉛和還考慮了其他材料 (31)。雖然有些這些材料很少成長壽命的活化產物，它們將由確實形成長壽命激活的鋼包覆層包覆產品，並將受到快中子損傷的限制(表 2)。給定 30 年的核心壽命和尺寸東芝表示，一個 30 MWth 的鈉冷 SMR 將產生高達 25 m³/GWth-y 的激活反射器和屏蔽層可歸類為長壽命 LILW 的組件(表 1 和 SI 附錄，圖 S3 和第 2 節；見圖 1)。

4.4. 短暫的 LILW。

4.4.1. 受污染的 iPWR 組件

短暫的 LILW 主要是由結構材料的表面污染產生與反應堆冷卻劑接觸的攜帶放射性同位素，這些同位素來源於破裂的燃料棒並被激活腐蝕產物。庫存報告表明瑞典的 3,400 MWth PWR 將產生 ~600 立方米(3.3 立方米/GWth-y) 的短期退役 LILW 的形式受污染的鋼材和活性混凝土 (SI 附錄，表 S3)。

來自 NuScale iPWR 的短壽命 LILW 將占主導地位由來自壓力容器和安全殼的鋼材製成會被水中攜帶的放射性核素污染一次冷卻劑和反應堆水池。最終，iPWR 壓力和安全殼將產生 17 和分別為 43 立方米的短期退役 LILW，相當於 6.9 m³/GWth-y (SI 附錄，表 S3)。這忽略 iPWR 內部組件 (例如，蒸汽發生器) 以及結構材料的貢獻 reactor-SNF pool 等代表下限估計。

因此，每個能量當量，一個 160 MWth iPWR 將產生至少兩倍的短期退役量 LILW 低於 3,400 MWth PWR。

4.4.2. 來自熔鹽反應堆的石墨慢化劑。

熱譜熔鹽反應堆設計傾向於使用石墨作為既是中子減速劑又是反射器 (表 2)。這種石墨可能佔核心體積的 60% 到 80%，其餘其中將被液體燃料-冷卻劑鹽佔據流過石墨基體中的空心管，攜帶用它溶解燃料同位素和裂變產物。石墨在橡樹嶺熔鹽反應堆實驗 (MSRE) 通過 Mo、Te、Ru 和 Nb 分裂產物獲得表面污染產物，而氬、Cs 和 Sr 放射性同位素 (生成通過 Xe 和 Kr 分裂產物的衰變) 擴散到多孔石墨結構。這種石墨是否以及在哪裡已被核退役處置尚不清楚，雖然管理層和處置從 Magnox 中回收的石墨減速劑和 Reaktor Bolsjoj Mosjnosti Kanalnyj (RBMK) 反應堆由於存在短壽命和長壽命的同位素而變得複雜——包括氬、¹⁴C、腐蝕/活化產物、分裂產品和鈾系元素 (表 2)。

由於石墨在長時間內容易膨脹和開裂輻照，其在 SMR 中的壽命將受到限制。根據其中子通量暴露的大小，所追求的熔鹽 SMR 設計的石墨壽命今天的範圍從 2.5 到 30 歲 (表 1)。一座 400-MWth IMSR (陸地能源) 將排放約 13 m³/GWth-y 的放射性石墨需要地質處置 (圖 1、表 1)。

4.4.3. 液態金屬和鹽冷卻劑。

當 LWR 退役時，其冷卻水中的許多放射性核素可通過過濾器和離子交換樹脂去除。然而，儲存、淨化和處置放射性鈉和熔鹽基冷卻劑將需要考慮到它們的化學複雜性和生成傾向與空氣接觸後產生爆炸性或腐蝕性副產物或濕氣。

在運行的實驗性鈉冷快堆中在二十世紀後期，退役很複雜大量的金屬鈉冷卻劑被 ²²Na 活化產物和 Cs 污染從破裂的燃料元件中浸出的同位素。這個自燃的鈉通過中試水基失活在惰氣氣氛下進行的過程防止氫氣副產品的爆炸。最終，鈉冷卻劑產生了數百立方米的低放射性廢物。30 兆瓦的東芝 4S 反應堆可能產生 115 m³/GWth-y 受污染的自然需要處理、調節和處理的鈉冷卻劑處置 (圖 1、表 1)。

可以預期類似的退役挑戰使用液態氟化物燃料的熔鹽反應堆——可裂變同位素直接溶解於其中的冷卻劑鹽。這種氟化物鹽很容易與水反應形成腐蝕性氫氟酸並變得高度放射性為分裂和活化產物在。在 8 MWth MSRE 於 1969 年橡樹嶺國家實驗室 (ORNL) 現場儲存的固化燃料鹽關閉後，通過輻射分解形成的揮發性 UF₆ 化合物。這帶來了臨界風險促使從凝固的鹽中去除易裂變材料質量，但持續存在高放射性鹽溶性裂變產物阻礙了進一步退役。

作者通過 Freedom 恢復的報告信息法表明，美國部門能源，而不是退役和異地處置鹽和反應器組件，可能會掩埋這些遺留廢物現場。

五. SMR 廢物的管理和處置

超量的 SMR 廢物將承載化學和與 PWR 廢物的物理差異，將影響它們管理和最終處置。儘管 SMR 開發人員傾向於用 HLW 或 SNF 質量和總放射毒性、儲存庫設計和封閉後安全性分析更多地取決於溶解度、環境特定放射性核素的遷移率和吸附特性以及衰減功率或發熱率包裝廢物以及裂變物質的再臨界潛力它們包含的材料。這些參數相關到廢物流放射化學和大宗化學品成分，這又取決於初始燃料成分和濃縮、放電燃耗和堆芯中子能譜，SMR 與壓水堆。

5.1. SNF 管理和處置。

5.1.1. 燃料成分和耐久性。

PWRs 使用 ~5 wt% - 富集的 ²³⁵U 燃料結合在持久的 (還原條件下) 鋳包

層燃料棒中包含的 UO₂ 基質並由鋼裝配結構支撐。在整個過程中輻射，鈾原子裂變成雙峰分佈較輕的裂變產物並轉化為較重的超鈾鈾等元素。LWR 燃料輻照到 ~50 MWd/kg 的燃耗包含 ~4 wt% 的裂變產物和 ~1 wt% 鈾，儘管這些濃度隨著燃料的燃耗增加。此外，燃料包殼組裝結構材料含有活化產物通過中子吸收反應形成。

分裂產物主導放射性、劑量風險和新排放的 SNF 的衰變熱產生，最初是儲存在主動冷卻的水池中以抑制物理化學燃料和包殼的降解，否則由熱量驅動和輻射（圖 3）。儘管大約 95% 的這種放射性會衰變在幾十年內，分裂產物部分由許多同位素在半衰期和化學，因此與儲存庫設計相關和長期劑量風險以及 SNF 存儲和處理。儲存庫性能模型表明長壽命的地球化學移動分裂產物，雖然長期 SNF 放射性的一小部分，可以在幾個下提供遠場劑量的很大一部分儲存庫故障場景。

超鈾同位素包含大部分長期 SNF 放射性（圖 3）但數量相對較少鈾系元素，其中許多化學結合在 UO₂+X 燃料矩陣。因此，長期 SNF 在地質處置庫中的化學行為將是大致類似於結晶 UO₂。溶解度純鈾相對於結晶 UO₂ pH 中性水非常低， $<10^{-9}$ M，儘管這會增加在溶解氧存在下至 $\sim 10^{-7}$ M。

非 LWR SMR 將產生類似的放射性同位素陣列用於處置，但將使用具有明顯不同的燃料散裝化學品。缺乏燃料包殼，設想的液體燃料因為熔鹽反應堆會釋放氣態分裂產物——包括 Xe 的同位素衰變為高活性或 Cs 的長壽命同位——進入廢氣系統，形成 HLW 流。

另一方面貴金屬分裂產物，會沉澱在整個反應器結構中。然而，熔化的燃料鹽將保留鹽溶性裂變產物和鈾系元素，最終將凝固成大量標稱四氟化鈾。在純水中呈結晶狀 UF₄ 很容易水合為 UF₄·2.5H₂O 相，相比之下與氧化鈾相比，溶解度提高幾個數量級（ 10^{-4} M）。在含有溶解氧的水中，結晶 UF₄ 的反應產生腐蝕性、氫氟酸。這種不利的化學反應構成了美國的基礎能源部（DOE）決定轉換耗盡鈾，以六氟化鈾的形式儲存，變成更穩定的氧化鈾而不是將材料作為結晶 UF₄（56）處理。

鈉冷 SMR 設計採用固體燃料，儘管對於表 1 中列出的許多設計，這被設想為由不銹鋼包覆的鈾金屬和元素組成鈉，兩者都歸類為自燃的。這種類型的燃料滿足廢物驗收標準地質資源庫，美國能源部已決定轉換 SNF 由以前的實驗鈉反應堆排放到更穩定的化學形式。由於它們的高化學反應性，這些 SMR 燃料將需要處理成適合的廢物形式地質處置，美國能源部建議的一個目標可以使用高溫處理技術來滿足。國家石油公司後處理設施產生額外的長壽命和短壽命技術、結構、工藝和退役廢物。此外，在地質處置庫中處置之前，分離的放射性核素流應固化在耐用的基質，例如耐輻射的陶瓷廢料表格。儘管可用於量化的數據有限與後處理和調節相關的廢物後果設施，以下部分描述了影響用於處理含鈾系元素和裂變產物 SMR 燃料。

5.1.2. 攝入放射毒性與儲存庫遠場劑量。

反應堆開發商有時會比較不同的廢物負擔反應堆和燃料循環對總的“攝入放射毒性”他們的 SNF 或 HLW。該指標計算於 Sievert 單位，反映攝入的理論劑量後果 SNF 或 HLW 顆粒，包括所有存在的放射性核素在特定時間點的廢物中（59）。在第一~100 y postirradiation, LWR 燃料的總放射毒性是以短壽命裂變產物為主，而 ²³⁹Pu 和 ²⁴⁰Pu 主導長期 SNF 放射毒性（1,000 之間和放電後 100,000 y）（SI 附錄，第 2 節）。

由於 SNF 中裂變產物的分數是線性比例的對於燃料燃耗，能量當量裂變低燃耗和高燃耗的產品放射毒性相似 SNF。然而，低燃耗 SNF 包含更高的能量當量 ²³⁹Pu 和 ²⁴⁰Pu 的濃度，所以放射毒性 iPWR SNF（33 MWd/kg 的燃耗）高出約 50% 放電後 10,000 年比 PWR（50 MWd/kg 的燃耗）（圖 4）。類似的逆長期鈾系元素放射毒性與反應堆的關係尺寸/燃耗將在小型非 LWR SMR 中占主導地位，包括熱譜熔鹽反應堆和鈉快堆。快堆比熱譜反應堆產生更多的鈾，因此快譜 SMR 排放的 SNF 將具有比熱譜更高的能量當量長期放射毒性反應堆。總體而言，SMR 將導致長期 SNF 攝入放射毒性增加。

然而，該指標對未來劑量提供的信息很少來自地質儲存庫，那裡有各種地球

化學過程，輔以多個工程屏障，可以限制放射性核素從儲存庫運輸到地表生態系統。由於許多鈾系元素是化學結合物的進入不溶性 UO_2+x 燃料矩陣，未來的版本大多數長壽命和放射毒性的 SNF 成分會很低在位於有利的水文地球化學地點的儲存庫中處置環境。低氧化還原條件對抑制至關重要 SNF 溶解，如 pH 值、鹽度和碳酸氫鹽濃度。水文學，包括水頭，斷裂頻率和基質滲透性對限制放射性核素平流速率和時間變化地球化學。

考慮各種放射性核素的地球化學流動性在 SNF 中，儲存庫演化模型通常歸因於失效的 SNF 罐的大部分劑量後果是長壽和地球化學活動的裂變和活化產物，即 ^{59}Ni 、 ^{129}I 、 ^{79}Se 、 ^{36}Cl 和 ^{14}C (圖 3)。一般來說，這些以帶負電荷的化學物質形式傳播吸附到帶正電的礦物表面，一個過程否則會減慢他們的運輸速度。此外， ^{226}Ra SNF 中 ^{238}U 的後代可能存在遠場暴露風險用於在低氧化還原、斷裂的結晶基岩中建造的儲存庫環境，儘管暴露會低於那些與這些環境中的天然 ^{226}Ra 有關。由於裂變和活化的能量當量活動低燃耗和高燃耗 SNF、SMR 燃料的產品相似可能不會顯著增加未來的暴露風險，除非 SNF 包裝和選址計劃忽略鈾系元素含量的差異。例如，對擬議的儲存庫進行性能評估地震活躍和地球化學氧化環境(尤卡山，內華達州)確實在很大程度上歸因於長期 ^{239}Pu 、 ^{242}Pu 和 ^{237}Np 。在尤卡山位點， UO_2+x 及其鈾系元素相對易溶，所以 SMR 燃料處置的劑量後果會更高由於相對較高的 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu ，比 LWR 燃料低燃耗燃料中的含量。

5.1.3. SNF/HLW 熱負荷和儲存庫大小。

SNF 後從反應堆中排出，燃料中的衰變放射性核素發出被吸收到附近的材料並轉化為熱量。為了保持熱處置庫的水力、機械和化學完整性系統中，SNF 處理罐的容量和間距將配置為散發衰變熱。大多數儲存庫是設計用於在工程設計中保持低於 $100^\circ C$ 的溫度屏障系統。絲蘭山，然而，被設計作為“熱”儲存庫，其中地下水的溫度在關閉後數百年內會超過沸點。

因此，儲存庫維度——連同相關的包裝和挖掘成本——一部分是，受衰變熱而不是廢物量控制。臨時存儲的持續時間被計入儲存庫尺寸計算，因為 SNF 衰減功率降低隨著時間的推移。衰變熱的主要來源是從裂變產物 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 及其 ^{137m}Ba 和 ^{90}Y 出院後 10 至 100 歲的女兒使用 ^{241}Am 和 ^{238}Pu 出院後 100 至 1,000 年。在將接受的儲存庫中 SNF/HLW 老化 20 至 60 歲，近場溫度將達到峰值 ~ 10 y。因此，裂變產物衰變熱施加對儲存庫維度的重大限制。

在熱譜反應器中，能量當量濃度 ^{238}Pu 的含量隨燃料燃耗增加而增加。因此，最多放電 100 y 後，能量等效衰減功率為 50-MWd/kg 的燃耗比 33-MWd/kg 高 $\sim 30\%$ SNF 燃耗 (圖 4)。熱量低燃耗 SNF 的特性意味著，儘管與 SMR 相關的體積增加，它們對 SNF 儲存庫的維度可能很小。模型表明，在放電後 100 年，熱輸出由以鈾為燃料的快速 SMR (類似於東芝 4S 設計) 將比能量當量高出約 50% PWR 燃料 (圖 4)。熱的以鈾為燃料的快速 SMR 的數據很少，儘管數據量很大據說鈉冷快堆 (表 1) 發生小裂變鈾系元素，如 ^{241}Am 和 ^{238}Pu ，比熱譜更有效 LWR 和熔鹽反應堆。

一般來說，對於給定的 SNF 成分，每個罐應該含有亞臨界質量的 SNF。然而，臨界質量是對於含有超過幾個重量百分比的材料來說非常小裂變同位素。而 PWR SNF 的臨界質量是 $>1,000$ kg，iPWR 和鈉冷 SMR 的臨界質量 SNF 分別僅為 ~ 200 和 <10 kg (圖 5)。反臨界性邊界和管理流程很少被評估裂變同位素濃度升高的非常規 SNF 類型。然而，Hicks 和 Baldwin 表明 SNF 來自英國原型快堆將構成再臨界風險即使處理罐容量僅限於單個 SNF 組裝 (燃耗為 190 MWd/kg，初始/最終 ^{239}Pu 濃度 30/15 重量%)。因此，新的罐裝方法需要為 SMR 開發設計和裝載此處分析並列於表 1 中的設計。

設計用於容納現有 PWR SNF 的罐庫每個罐可容納四個或更多組件，而用於 iPWR 和鈉冷 SMR SNF 的罐可能只容納一個組件或部分組件。

熔鹽反應堆 SNF 包裝同樣會偏離現有的概念。供應商通常建議花費液體燃料鹽在凝固時保留在反應堆容器內。然而，幾乎發生在由於 MSRE 的形成和遷移而關閉揮發性鈾系元素-氟化物絡合物說明需要處理這種鹽塊中的鈾系元素，包括裂變 ^{235}U 、 ^{239}Pu 和/或 ^{233}U ，變成更穩定的陶瓷廢物形式。儘管 DOE 最

終完成了這是通過中試規模的氟化物揮發性處理，沒有方法來分割和包裝裂變的剩餘部分已經開發出含有 MSRE 鹽塊的產品，正如 DOE 偏好埋葬 MSRE 所說明的那樣在橡樹嶺國家實驗室現場。

需要 SNF 分割和/或大量的處理罐和相關包裝操作支持如前所述，SMR 燃料循環後端的概念中，需要增加對放射性和易裂變物質的處理材料。這些包裝挑戰將因 SMR SNF 相對較大的能量等效體積並將介紹成本和輻射暴露於核燃料循環的風險。

5.2. LILW 管理和處置

SMR 將產生 LILW 的能量等效體積比 PWR 更大 (圖 1)。其中一些廢物可能適合用於在近地表、短壽命 LILW 處置庫中處置 (<30 米深)。然而，中子激活的長壽命 LILW 管理起來更複雜，因為輻射暴露必須在運營和地質時間尺度上得到緩解。部分原因是需要限制工人接觸激活的 LWR 組件發出的輻射，尤其是由 ^{60}Co ($t_{1/2} = 5.3 \text{ y}$) 活化產物發出鋼，退役費用約佔 LWR 廢物的 ~20% 管理和處置成本。由於 SMR 會產生中子活化鋼比 LWR 能量當量高 10 倍以上，如核退役引入化學處理的需要放射性鈉和熔鹽冷卻劑，它們可能會顯著增加與相關的成本和暴露風險。 ^{60}Co 衰變後，長壽命的 ^{59}Ni 、 ^{63}Ni 、 ^{14}C 、 ^{94}Nb 和 ^{93}Mo 需保持足夠高以保證活化 LWR 組件的地質處置 (表 2)。鎳同位素在酸性條件下可溶，因此在 LILW 儲存庫中使用了水泥阻隔材料施加限制鎳溶解的鹼性條件在儲存庫地下水中。移動性比鎳，模型表明 ^{14}C 和 ^{93}Mo 將占主導地位從激活的儲存庫中為未來劑量做出貢獻廢棄物退役。

激活的 SMR 和 LWR 鋼將具有相似的放射化學成分，因此 ^{14}C 和 ^{93}Mo 可能主宰未來來自 SMR 廢物庫的劑量，儘管這樣的劑量，如能量當量放射性核素存量，SMR 廢物可能更高。由於很少側重於限制放射性核素庫存的研究可提供輻照石墨、熔鹽和鈉，這些廢物流的未來劑量後果仍然存在不清楚。

結論

對三種不同(水冷、熔鹽冷卻和鈉冷)SMR 設計的分析顯示，相對於千兆瓦階 PWR，這些反應爐將增加 Spent nuclear fuel (SNF)、長壽命 LILW (low- and intermediate-level waste (LILW)) 和短壽命 LILW 的體積 (volume) 分別高達 5.5、30 和 35。這些發現與擁護者聲稱先進核技術可減少廢物的好處形成鮮明對比。

更重要的是，SMR 廢物流與現有反應爐的廢物流具有顯著的 (放射) 化學差異。熔鹽和鈉冷卻 SMR 將使用高腐蝕性自燃燃料和冷卻劑，在輻照後會變得具有高放射性。

低燃耗 (low-burnup) SMR SNF 中相對高濃度的 ^{239}Pu 和 ^{235}U 將使再臨界成為這些化學不穩定廢物流的重大風險。

與水或其他處置庫材料接觸時易受放熱化學反應或核臨界影響的 SMR 廢物流不適合直接地質處置。因此，在地質處置之前，需要對大量反應性 SMR 廢物進行處理、調節和適當包裝。

這些過程將給核燃料循環的後端帶來可觀的成本——可能還有輻射暴露和裂變材料擴散途徑——並且對長期安全沒有明顯的好處。

儘管我們只分析了數十種擬議的 SMR 設計中的三種，但這些發現是由基本物理現實驅動的，即相對於具有類似設計和燃料循環的大型反應爐，SMR 堆芯中的中子洩漏會增加。

因此，大多數 SMR 設計都對核廢料處理作業造成明顯的劣勢。鑑於 SMR 與現有的核廢料處理技術和概念不相容，未來的研究應解決在美國地質處置庫開發持續延遲的情況下，反應 SMR 廢料流的安全臨時儲存是否可信。