

利用超铀核素启动的小型模块化钍基熔盐堆中子学性能研究

邹春燕^{1,2} 余呈刚^{1,2} 朱贵凤^{1,2} 郭威^{1,2} 蔡翔舟^{1,2} 陈金根^{1,2} 邹杨^{1,2}

1(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

2(中国科学院先进核能创新研究院 上海 201800)

摘要 压水堆乏燃料中的超铀燃料(Transuranic isotopes, TRUs)含有大于50%的易裂变燃料,可作为熔盐堆钍铀循环的启动燃料。基于小型模块化钍基熔盐堆,采用TRUs和Th分别作为裂变燃料和增殖燃料,研究堆芯熔盐石墨比和初始重金属摩尔份额两个重要参数对堆芯中子能谱、²³³U产量、石墨寿命、温度反应性系数、TRUs消耗量等中子学特性的影响,为利用TRUs和Th的小型模块化钍基熔盐堆的堆芯参数选择提供依据。基于批处理周期及固有安全性等限值,给出满足要求的TRUs启动小型模块化钍基熔盐堆的燃料利用方案,分析其燃烧时间内的中子学特性。结果表明:采用压水堆中超铀核素作为易裂变燃料,是启动小型模块化钍基熔盐堆钍铀燃料循环的理想选择。在满足5a石墨寿命和固有安全性($-5\sim-8\text{ pcm}\cdot\text{K}^{-1}$)等限值的条件下,选择重金属摩尔份额为6%、堆芯熔盐石墨比为25%的堆芯结构参数可得到较佳的燃料利用率。此时,热功率为150 MW、满功率运行5a时,铀的年产量可达 $16.0\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$,TRUs的年消耗量约 $36.1\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$,可有效减少当前超铀乏燃料的储存。

关键词 小型模块化熔盐堆, 超铀燃料, 熔盐石墨比, 重金属摩尔份额

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.120601

Neutronic performances of small modular thorium-based molten salt reactor starting with TRUs

ZOU Chunyan^{1,2} YU Chenggang^{1,2} ZHU Guifeng^{1,2} GUO Wei^{1,2} CAI Xiangzhou^{1,2}
CHEN Jingen^{1,2} ZOU Yang^{1,2}

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2(CAS Center for Excellence in TMSR Energy System, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract [Background] Transuranic isotopes (TRUs) in the spent fuel of pressurized water reactor (PWR) contain more than 50% of fissile fuels and can be used as a starting fissile fuel for thorium fuel cycle. [Purpose] This study aims to analyze the neutronic performances of a small modular thorium-based molten salt reactor (SM-TMSR) core with TRUs as fissile fuel and Th as fertile fuel. [Methods] Considering the batch reprocessing period and the limit value of the inherent safety, proper scenarios for thorium utilization in the SM-TMSR initiated by TRUs were

中国科学院战略性先导科技专项项目(No.XDA02010000)、中国科学院前沿科学重点研究项目(No.QYZDY-SSW-JSC016)、国家自然科学基金(No.11790321)资助

第一作者: 邹春燕, 女, 1986年出生, 2012年于兰州大学获硕士学位, 研究领域为反应堆物理与燃料循环

通信作者: 陈金根, E-mail: chenjg@sinap.ac.cn; 邹杨, E-mail: zouyang@sinap.ac.cn

收稿日期: 2020-07-20, 修回日期: 2020-09-09

Supported by the Chinese TMSR Strategic Pioneer Science and Technology Project (No. XDA02010000), the Frontier Science Key Program of Chinese Academy of Sciences (No. QYZDY-SSW-JSC016), National Natural Science Foundation of China (No. 11790321)

First author: ZOU Chunyan, female, born in 1986, graduated from Lanzhou University with a master's degree in 2012, focusing on reactor physics and nuclear fuel cycle

Corresponding author: CHEN Jingen, E-mail: chenjg@sinap.ac.cn; ZOU Yang, E-mail: zouyang@sinap.ac.cn

Received date: 2020-07-20, revised date: 2020-09-09

proposed for the evaluation of the neutronic characteristics. Reactor analysis software SCALE6.1 was employed to analyze the influences of two important parameters (fuel volume fraction and initial heavy metal mole fraction) on the characteristics of neutron spectrum, ^{233}U production, graphite life, temperature coefficient, TRUs consumption, etc. **[Results & Conclusions]** The calculation results show that TRUs are an ideal fuel for starting Th-U fuel cycle of the SM-TMSR. Considering the constraints of the graphite's five-year life and the intrinsic safety ($-5\sim-8\text{ pcm}\cdot\text{K}^{-1}$), the core with 6% heavy metal mole fraction and 25% fuel volume fraction can obtain a preferable fuel utilization efficiency. With the thermal power of 150 MW for 5-year full-power operation, the uranium production is about $16.0\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$ and the transmutation rate of TRUs can achieve about $36.1\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$, which can effectively reduce the spent fuel containing TRUs.

Key words Small modular thorium-based molten salt reactor, TRUs, Fuel volume fraction, Heavy metal mole fraction

为实现核能的可持续发展,第四代核能系统国际论坛组织(The Generation IV International Forum, GIF)给出了6种第四代核反应堆候选堆型,其中熔盐堆是唯一的一种使用液态燃料的反应堆^[1]。液态燃料熔盐堆可以实现在线加料、在线处理裂变产物,是钍资源利用的理想堆型^[2]。此外,熔盐堆使用液态燃料,无需复杂的燃料元件制作,可以使用多种形式的燃料,包括反应堆乏燃料中的可利用燃料,如超铀核素(Transuranic isotopes, TRUs)^[3-6]。近年来,小型模块化反应堆因其设计建造简单、模块化、非能动安全、防核扩散等特点引起了世界范围内的广泛关注^[7-9]。小型模块化钍基熔盐堆结合熔盐堆及小型模块化反应堆的优势,能实现模块化生产、批次更换堆芯部件、核燃料批次处理、在线去除气体及难溶裂变产物等功能。

钍燃料具有储量丰富、废料量少、防核扩散等优点,是核能可持续发展的有效途径。然而,钍铀燃料循环中缺乏天然可用的易裂变核素 ^{233}U ,因此需其他裂变燃料进行启堆。虽然可使用富集铀作为启动燃料向钍铀燃料循环过渡,但需较高的 ^{235}U 富集度,将给防核扩散带来极大的挑战^[10]。目前的商用压水堆大部分仍然采用一次性通过式燃料循环,其燃料利用率较低,且乏燃料中还有大量可利用的燃料。为了实现核能的可持续利用,我国已确立采用闭式燃料循环,以提高燃料利用率。回收利用商业堆的乏燃料既能够有效解决核废料的处置问题,同时还能够节省天然铀的消耗,对核能可持续发展具有非常重要的作用。

本研究以轻水堆乏燃料中的TRUs作为启堆燃料,开展小型模块化钍基熔盐堆钍利用方案研究,分析不同重金属装量及不同能谱对燃料循环性能的影响。本文的优化目标是在满足石墨寿命和总温度反应性系数要求的前提下,尽可能实现高的燃料利用率。因此本文首先对石墨寿命和总温度反应性系数

进行分析,以选择出满足两者限值要求的多种方案;其次,以消耗单位TRUs的U产量作为衡量燃料利用率性能的参量,对满足石墨寿命和总温度反应性系数要求的各方案进行分析,最终选择燃料利用率较佳的方案。

1 小型模块化钍基熔盐堆结构

小型模块化钍基熔盐堆依托于中国科学院TMSR(Thorium-based Molten Salt Reactor)战略性先导专项,以模块化和钍基熔盐批处理示范装置为载体,实现钍的高效利用。针对不同的模块化和批处理技术发展成熟度,同时结合不同的钍利用目标,可为小型模块化钍基熔盐制定灵活多样的燃料循环方案^[11]。

小型模块化钍基熔盐堆堆芯结构主要分为以下几个区域:1)活性区,含燃料通道的石墨组件通道;2)上下腔室,熔盐导流层;3)石墨反射层,包括侧面反射层和上下反射层;4)堆芯容器。图1和表1分别给出了小型模块化钍基熔盐堆的堆芯结构示意图及主要物理参数。本文采用TRUs和Th分别作为裂变燃料和增殖燃料,TRUs成分来自于燃耗深度为 $33\text{ GWd}\cdot\text{t}^{-1}$,经过3 a冷却的PWR(Pressurized Water Reactor)乏燃料。单盒PWR组件产生的TRUs核素质量约为7.2 kg,其中各核素摩尔份额列于表2^[12];使用中子经济性较高的FLiBE熔盐, ^7Li 的丰度为99.995%。堆芯熔盐石墨比和FLiBE熔盐中的重金属摩尔浓度是影响反应堆中子学性能及钍利用性能的两个重要参数,对堆芯中子能谱、石墨寿命、固有安全性及Th转换等中子学性能都具有较大影响。因此,本文以上述两个参量为优化对象,同时以石墨寿命、总温度反应性系数及燃耗利用率等性能为优化目标,对各种不同方案进行了优化分析,以实现较高的燃料循环性能。

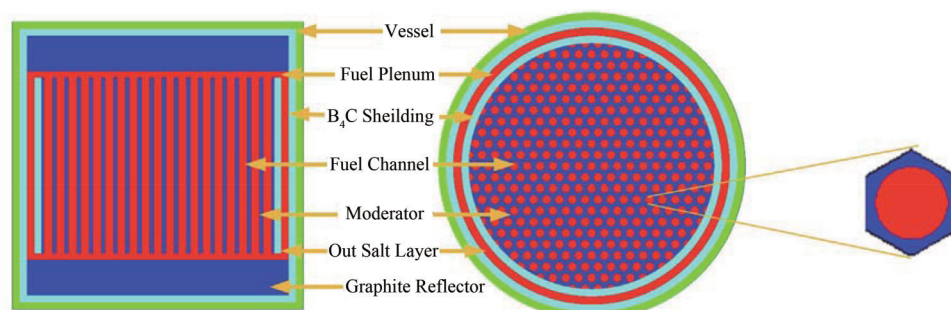


图1 小型模块化钍基熔盐堆堆芯结构示意图

Fig.1 Schematic diagram of small modular thorium-based molten salt reactor core

表1 小型模块化钍基熔盐堆主要物理参数
Table 1 Main physical parameters of small modular thorium-based molten salt reactor

物理量 Physics quantity	数值 Value
热功率 Thermal power / MWth	150
活性区高度/直径 Active core height/diameter / m	3.0/3.2
石墨组件对边距 Graphite assembly pitch / m	0.18
上下腔室熔盐厚度 Thickness of molten salt in upper and lower Chambers / m	0.2
侧熔盐层厚度 Thickness of side molten salt / m	0.05
侧反射层厚度 Thickness of side graphite reflector / m	0.2
堆芯包壳厚度 Thickness of core vessel / m	0.03
熔盐成分 Composition of molten salt	LiF + BeF ₂ + (HM)F ₄
⁷ Li丰度 ⁷ Li enrichment / %	99.995

表2 TRUs成分及摩尔份额
Table 2 Compositions and mole fractions of TRUs

核素 Nuclide	摩尔份额 Mole fraction / %
²³⁷ Np	6.3
²³⁸ Pu	2.7
²³⁹ Pu	45.9
²⁴⁰ Pu	21.5
²⁴¹ Pu	10.7
²⁴² Pu	6.7
²⁴¹ Am	3.4
²⁴³ Am	1.9
²⁴⁴ Cm	0.8
²⁴⁵ Cm	0.1

2 计算工具简介

本工作基于美国橡树岭国家实验室(Oak Ridge National Laboratory, ORNL)开发的反应堆分析软件SCALE6.1完成相关模拟计算^[13]。SCALE6.1主要用于反应堆临界安全分析、燃耗计算、辐射屏蔽计算、放射性源项分析以及灵敏性和不确定度分析等,

已经广泛用于传统反应堆和第四代反应堆的设计与优化。SCALE6.1软件系统包含多个程序模块以实现不同的功能,其中CSAS(Criticality Safety Analysis Sequences)^[14]是临界计算模块,用于反应堆的临界计算;TRITON(Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion)^[15]是堆芯中子物理计算分析模块,耦合计算反应堆的临界与燃耗,临界计算产生的中子能谱通过相应的截面处理模块进行截面加工提供能谱相关的截面用于燃耗计算;ORIGEN-S是燃耗计算模块,可用于计算分析反应堆内核素质量演化、放射性活度、衰变热等相关物理参量。

SCALE6.1中的TRITON程序模块能够很好地完成固态反应堆的临界及燃料计算,但其本身不能够实现熔盐堆中的在线添料和在线去除功能。因此,为了模拟具有在线添加和在线去除裂变产物功能的熔盐堆中子物理,对SCALE进行了二次开发。通过耦合SCALE6.1程序中的截面处理模块、临界计算模块以及燃耗计算模块,开发了一套适用于多流体的液态燃料熔盐堆添料与后处理系统分析程序MSR-RRS(Molten Salt Reactor Refueling and Reprocessing System analysis code),实现熔盐堆的在线添料、裂变产物在线处理或离线批次处理等模拟功能,主要计算流程如图2所示^[16-18]。

采用TRITON模块开展临界计算并生成相应的核素截面及中子通量文件,为ORIGEN-S程序计算提供所需的单群截面及中子通量密度等。采用ORIGEN-S模块开展包含在线添料和在线去除裂变产物的燃耗计算,其中在线添料和在线后处理分别通过修改燃耗方程相应项加以实现。采用CSAS模块进行临界分析以判断在线添料的合理性。为精确模拟熔盐堆的燃耗特性,本文对小模熔盐堆堆芯结构(图1)进行了三维建模;同时考虑到液态熔盐的流动性,将堆芯中所有的燃料作为一个燃耗区进行计算。

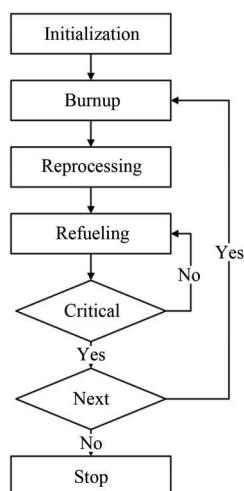


图2 MSR-RRS程序流程图
Fig.2 Flowchart of MSR-RRS code

3 结果与讨论

堆芯熔盐石墨比是影响中子能谱的重要参数之一,进而影响 ^{232}Th 的转换能力。此外,熔盐中的重金属摩尔份额直接影响钍的装量,从而影响 ^{232}Th 的利用性能。本工作基于小型模块化钍基熔盐堆

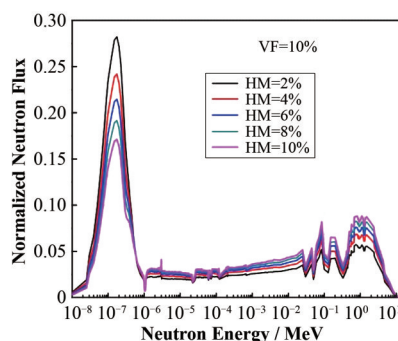
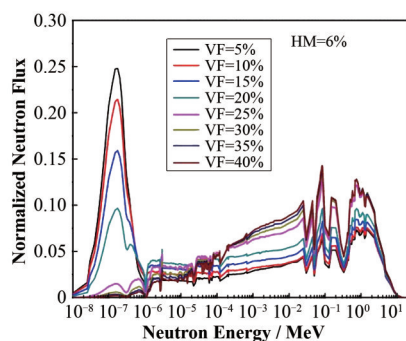
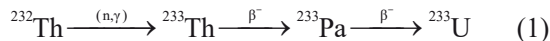


图3 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对应的中子能谱
Fig.3 Neutron spectra based on different fuel volume fractions and initial heavy metal mole fractions

3.2 Th转换能力及燃耗深度

^{232}Th 本身不能裂变,但通过吸收中子,并经过两次 β 衰变,可转化成易裂变核素 ^{233}U ,如式(1)所示。



使用TRUs作为裂变燃料时,其本身不存在铀同位素,因此运行一段时间后,通过批处理技术的氟化挥发化学分离方法能得到纯度较高的铀(^{233}U 占主导)燃料,并将提取的铀作为钍铀燃料循环的启动燃料。ORNL的相关研究表明,通过氟化挥发技术的铀提取效率能达99%以上^[19]。考虑到燃料批处理技术成熟度、燃料处理效率及中子经济性等诸多因素,目前小型模块化钍基熔盐堆的批处理周期推荐为5 a。本文计算分析了反应堆运行5 a时,不同重金属装量及不同熔盐石墨比条件下的Th-U转换

芯,对不同堆芯熔盐石墨比和重金属摩尔份额引起的堆芯中子学性能影响进行研究。基于石墨寿命及安全系数等限值参数,选择满足要求的堆芯熔盐石墨比及重金属摩尔份额范围。其次,基于满足要求的堆芯结构,对燃耗过程中的燃料循环性能(如钍转换性能、U年产量、燃耗深度等)进行研究。

3.1 中子能谱

为研究不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对能谱的影响,本文选取堆芯活性区作为统计区域计算堆芯中子能谱。图3分别给出了不同熔盐石墨比及不同重金属摩尔份额对中子能谱的影响,图3中HM表示重金属摩尔份额,VF表示熔盐石墨比。可看出,相同重金属摩尔份额条件下,熔盐石墨比越高,堆芯石墨装量越小,慢化能力减弱,中子能谱变硬。另外,相同熔盐石墨比条件下,增加重金属摩尔份额,中子能谱变硬。堆芯中子能谱的软硬程度将直接影响堆内各核素的单群截面,进而对堆芯中子学性能产生影响。主要的中子学性能参数将在下面进行详细讨论。

能力,并将Th的转化率和U(^{233}U 占90%以上)的年产量作为衡量堆芯中Th-U转换能力的性能指标;同时对TRUs的平均年消耗量进行了分析,以综合衡量堆芯的转化能力。

Th的转化性能与堆芯中钍的装量和能谱密切相关:钍装量将对 ^{232}Th 的宏观截面产生影响,从而影响 ^{232}Th 的转化能力,而中子能谱将影响 ^{232}Th 的单群微观俘获截面,因此也将对 ^{232}Th 的转化性能产生影响。图4(a)给出了初始时刻临界条件下 ^{232}Th 摩尔份额随堆芯熔盐石墨比和重金属摩尔份额的变化。可看到,临界 ^{232}Th 摩尔份额随堆芯熔盐石墨比增加略有降低,这主要是由于随着中子能谱的硬化,TRUs核素中易裂变核素的单群裂变截面减少,临界TRUs摩尔份额增加。图4(b)给出了不同熔盐石墨

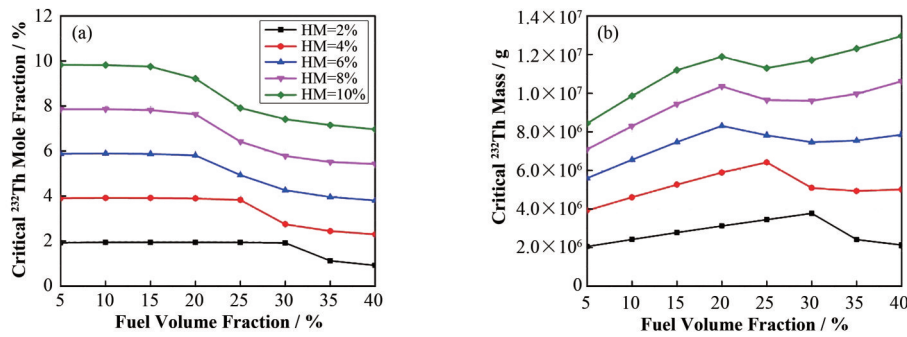


图4 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对初始 ^{232}Th 摩尔份额(a)和 ^{232}Th 装载量(b)的影响
Fig.4 Effects of different molten salt graphite ratio and different initial heavy metal mole fractions on initial mole fraction (a) and mass (b) of ^{232}Th

比及初始时刻不同重金属摩尔份额条件下的 ^{232}Th 临界装载量。可看到,对于同一种熔盐石墨比,增加重金属摩尔份额可明显提高堆芯钍装量。例如当熔盐石墨比为20%时,如果重金属摩尔份额从2%增加到10%, ^{232}Th 装量将增加约4倍。此外,重金属摩尔份额相同时,随着堆芯熔盐石墨比的增加,一方面堆芯中子能谱明显偏硬,核素的共振吸收导致了TRUs的装量增加,在一定程度上降低了 ^{232}Th 的装量。另一方面,由于堆芯结构保持固定,增加熔盐石墨比直接导致堆芯熔盐体积的增加, ^{232}Th 装量增多。综合两方面因素, ^{232}Th 的临界装载量随熔盐石墨比的增加而略有增加。此外,当能谱移向共振区时,各核素共振吸收增加,导致临界所需易裂变核素(TRUs)明显增加, ^{232}Th 的摩尔份额减少,从而导致 ^{232}Th 的装载量有所下降。

为研究堆芯中 ^{232}Th 的转化能力,本文使用 ^{232}Th 转化率和U年产量两个重要参量进行分析。其中 ^{232}Th 转化率计算公式为:

$$\text{CR}(^{232}\text{Th}) = (R_p(^{232}\text{Th}) - R_p(^{233}\text{Pa})) / R_a(^{233}\text{U}) \quad (2)$$

式中:CR表示转化率; R_p 表示俘获率; R_a 表示吸收率。

本文采用批处理模式对燃料进行后处理且初始燃料中不含有U燃料。因此,U产量即为每次批处理周期末的提取量总和。U年产量为寿期末U的卸载量总和与燃耗时间的比值。

图5给出了 ^{232}Th 的转换率随堆芯熔盐石墨比与重金属摩尔份额的变化。 ^{232}Th 的转化率越大,表明 ^{232}Th 的转换性能越好。增加熔盐石墨比或重金属摩尔份额,一方面堆芯中子能谱明显偏硬,在一定程度上降低了 ^{232}Th 的单群俘获截面。另一方面,增加熔盐石墨比直接导致 ^{232}Th 装量增多(图4(a))。综合两方面因素, ^{232}Th 的转换率随着重金属摩尔份额和堆芯熔盐石墨比而增加。

图6给出了堆芯熔盐石墨比与重金属摩尔份额

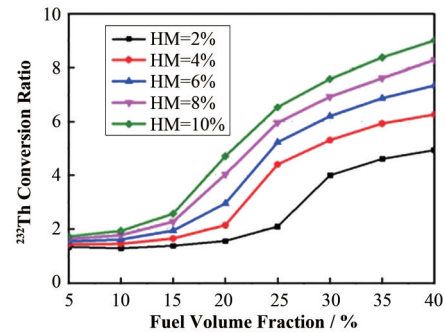


图5 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额模型对 ^{232}Th 转化率的影响
Fig.5 Effects of different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions on ^{232}Th conversion ratio

对U年产量的影响。由式(1)可知, ^{232}Th 俘获中子并经过两次 β 衰变生成 ^{233}U ,因此U产量与 ^{232}Th 的俘获截面和 ^{232}Th 的初装量密切相关。如前所述,增加堆芯熔盐石墨比或重金属摩尔份额,一方面直接增加 ^{232}Th 装量,一方面降低 ^{232}Th 的单群俘获截面。以重金属摩尔份额为6%为例,当堆芯熔盐石墨比从5%增加到20%时,堆芯中 ^{232}Th 的单群俘获截面从2.39 b($1\text{ b}=10^{-28}\text{ m}^2$)降低到1.82 b,其 ^{232}Th 装量从5.59 t增加到8.30 t。此外,当熔盐石墨比为20%时,若将重金属摩尔份额从2%增加到10%, ^{232}Th 的单群俘获截面从2.72 b降低到1.36 b,其 ^{232}Th 装量从3.12 t增加到11.9 t。由此可看出, ^{232}Th 装量变化比 ^{232}Th 单群俘获截面变化对U产量的影响更为明显。因此可得知,U年产量随着 ^{232}Th 初装量而增加。

作为燃耗过程的主要易裂变核素,TRUs的消耗率能够反映堆芯中的燃料转换性能。燃耗过程中,通过持续在线添加TRUs维持反应堆临界运行,因此TRUs消耗率的计算公式为:

$$\text{DR} = (m_0 + m_f - m_t) / t \quad (3)$$

式中:DR表示消耗率; m_0 表示初装量; m_f 添加量; m_t 表示卸载量。

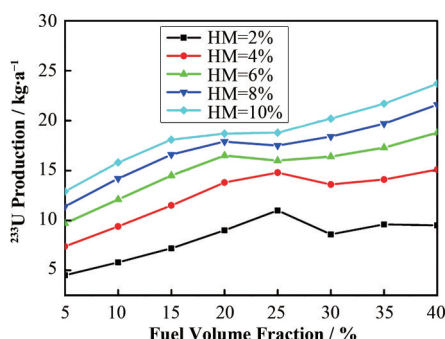


图6 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额模型下对U年产量的影响

Fig.6 Effects of different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions on uranium production

图7给出了TRUs消耗率随熔盐石墨比和重金属摩尔份额的变化。可看到,重金属摩尔份额相同时,随着堆芯熔盐石墨比的增加,TRUs消耗率先降低后增加,表明堆芯燃料转换能力先增加后减少。此外,对于相同熔盐石墨比时,重金属摩尔份额增加有利于降低TRUs的消耗率,提高燃耗转换性能。

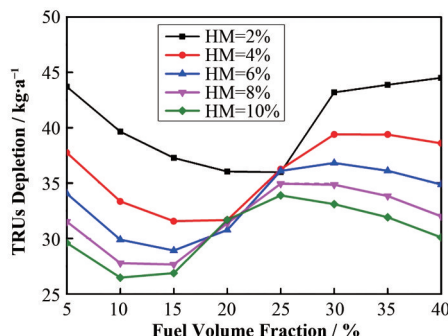


图7 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额模型对TRUs消耗率的影响

Fig.7 Effects of different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions on TRUs depletion rate

燃耗深度是衡量堆内核燃料利用率的重要参数之一。对于液态熔盐堆而言,可通过在线添加核燃料维持临界;同时,小型模块化钍基熔盐堆具有燃料批处理技术,燃料经过化学处理后能够再返回堆芯利用,因此能维持长时间运行,达到较深的燃耗。液态熔盐堆的平均燃耗深度(Burn up, BU)计算公式为:

$$BU = P \times T / (m_{10} + m_{\text{feeding}}) \quad (4)$$

式中: P 为热功率; T 为运行时间; m_{10} 为初始重金属装量; m_{feeding} 为运行时间内的总重金属添加量。

从式(4)可看出,液态熔盐堆的燃耗深度与初始重金属装量及运行过程中的添加量相关。本文主要对比分析堆芯运行5 a时,不同熔盐石墨比和重金属摩尔份额对燃耗深度的影响,结果如图8所示。可看出,当功率和运行时间都保持相同时,燃耗深度随

着堆内熔盐石墨比和重金属摩尔份额的增加而减少。在接近共振能区附近(如熔盐石墨比为30%、重金属摩尔份额为2%及熔盐石墨比为25%、重金属摩尔份额为4%等条件),维持临界的TRUs添加量明显增加,导致燃耗深度降低。

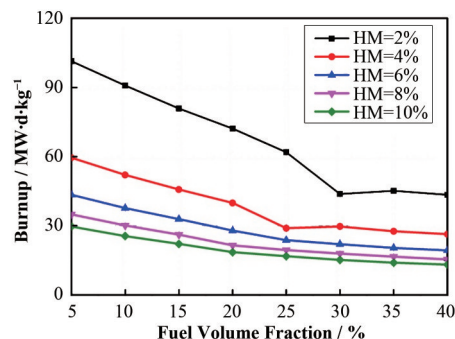


图8 不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额模型下的燃耗深度变化

Fig.8 Burnup variations under different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions

3.3 石墨寿命

石墨作为熔盐堆的慢化剂材料,中子辐照所导致的寿命问题是石墨在反应堆内遇到的最大问题。在小型模块化钍基熔盐堆中,石墨是影响堆芯重要部件更换周期的重要因素之一。石墨受到中子辐照后,将出现先收缩后膨胀,这将导致其孔隙率的增加及结构性能的降低。石墨的辐照损伤限制了其在堆内的使用寿命,需及时进行更换。在反应堆内,石墨的辐照损伤主要由快中子(能量大于50 keV)引起。当石墨的快中子通量累积达到 $3 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时所需的时间即为石墨的寿命。本文选取堆芯中子通量分布中快中子通量最大值计算石墨寿命,即当最大快中子注量值累积达到 $3 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 时所需的时间。本文采用SCALE6.1程序中的CSAS模块计算得到中子能量大于50 keV的快中子份额,乘以总中子通量即可得到快中子通量。根据石墨的累积通量限值 $3 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,即可得到石墨寿命。

本文对比优化了不同熔盐石墨比及不同初始重金属摩尔份额条件下的石墨寿命变化。图9给出了不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对堆内石墨寿命的影响。可看出,熔盐石墨比相同时,重金属摩尔份额越大,能谱偏硬,导致快中子份额增加,石墨寿命变短。当重金属摩尔份额相同时,熔盐石墨比增加,具有两方面效应:一方面是堆内熔盐体积增加,堆芯燃料功率密度减少,中子通量降低,有利于石墨寿命的延长;另一方面是熔盐石墨比增加,能谱变硬,快中子份额增加,将缩短石墨寿命。两种效应的综合结果使得石墨寿命随着熔盐石墨比的增加而略有增加。

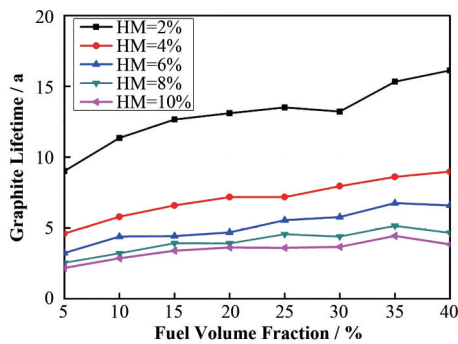


图9 不同熔盐石墨比和不同初始摩尔份额下的石墨寿命
Fig.9 Graphite life under different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions

如前所述,燃料批处理周期为5 a,为兼顾小型模块化钍基熔盐堆的经济性,采用堆芯更换周期不低于批处理周期的方案,因此,石墨的寿命不能低于5 a。基于上述考虑,在所优化的熔盐石墨比(5%~40%)和重金属摩尔份额(2%~10%)范围内,能满足石墨寿命大于5 a的堆芯参数范围分别为:重金属摩尔份额为2%(熔盐石墨比为5%~40%)、重金属摩尔份额为4%(熔盐石墨比为10%~40%)、重金属摩尔份额为6%(熔盐石墨比为25%~40%)。

3.4 温度反应性系数

负温度反应性系数是反应堆物理设计的基本准则之一,必须保证反应堆在整个运行过程中满足以上准则,从而使其具备固有安全性。本文分析了不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对堆芯温度反应性系数的影响。对于液态燃料熔盐堆而言,总温度反应性系数主要由燃料温度系数和石墨慢化剂温度系数两部分组成。燃料温度系数主要受燃料多普勒效应和燃料密度效应影响。由于石墨因温度引起的密度变化非常小,因此在本计算中只考虑由于温度引起的石墨热效应。综上所述,总温度反应性系数计算公式如下:

$$\left(\frac{dK}{dT}\right)_{\text{Total}} = \left(\frac{dK}{dT}\right)_{\text{Fuel Doppler}} + \left(\frac{dK}{dT}\right)_{\text{Fuel Density}} + \left(\frac{dK}{dT}\right)_{\text{Graphite}} \quad (5)$$

在温度系数计算中,温度变化步长为100 K,温度变化范围为823~1 023 K。本文使用SCALE6.1中的CSAS临界计算模块,通过改变燃料及石墨的温度及密度等相关参数,得到不同温度下的 k_{eff} ,再通过线性拟合法得到各项的温度反应性系数。熔盐多普勒、熔盐密度、石墨及总温度反应性系数随堆芯熔盐石墨比和重金属摩尔份额的变化如图10所示。TRUs中的易裂变核素 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 在中子能量为0.295 eV和0.254 eV处分别存在一个裂变共振峰,因此,当重金属摩尔份额较低或者熔盐石墨比较小

时,中子能谱偏热,燃料温度升高引起的多普勒效应使得易裂变核素 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的裂变截面增加,从而出现燃料多普勒的正效应。对于液态燃料,温度升高时,由于密度膨胀效应引起的燃料减少将引起两方面影响:一方面将直接降低堆内易裂变核素的减少从而降低堆内的 k_{eff} ;另一方面将导致熔盐石墨比降低,从而使能谱向热中子范围移动,进而改变主要核素的单群裂变及俘获截面。由图10可知,在熔盐石墨比较小或重金属摩尔份额较低时,由于能谱向热中子能区移动引起的裂变率增加效应小于燃料减少引起的 k_{eff} 减少效应,因此燃料密度系数表现为负值;在熔盐石墨比较大或重金属摩尔份额较高时,由于能谱向热中子能区移动引起的裂变率增加效应大于燃料减少引起的 k_{eff} 减少效应,因此燃料密度系数表现为正值。石墨温度升高时,导致中子能谱中的麦克斯韦区域向高能区移动,从而对堆内核素的反应截面产生影响。中子能谱变硬对反应性的影响,主要体现在堆内增殖核素 ^{232}Th 的俘获反应和易裂变核素 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的裂变反应两者之间的竞争。当中子能谱偏热时,其热中子份额较大,这意味着中子能谱向高能区移动时,对 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的裂变反应率更为有利,导致反应性增加,表现为正石墨温度系数。当中子能谱偏硬且偏离 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的裂变共振峰时,石墨温度升高增加了 ^{232}Th 的俘获反应,从而引起了负的石墨反应性系数。从图10中可看出,石墨的正温度反应性系数明显大于燃料多普勒和燃料密度引起的温度效应,因此,总的正温度系数主要由石墨温度系数引起。

综合考虑固有安全性、热工水力、控制棒系统设计等要求,本小型模块化钍基熔盐堆的总温度反应性系数要求在 $-5\sim-8 \text{ pcm} \cdot \text{K}^{-1}$ 。从图10可看出,增加堆芯熔盐石墨比和重金属摩尔份额,能降低总温度反应性系数,满足固有安全性限制的参数范围有:HM为2%(VF为35%~40%)、HM为4%(VF为30%~40%)、HM为6%(VF为25%~40%)、HM为8%(VF为20%~40%)、HM为10%(VF为20%~40%)。

在所优化的各方案中,能同时满足石墨寿命大于5 a,总温度反应性系数在 $-5\sim-8 \text{ pcm} \cdot \text{K}^{-1}$ 所对应的VF和HM有:HM为2%(VF为35%~40%)、HM为4%(VF为30%~40%)、HM为6%(VF为25%~40%)。

随着运行时间的增加,堆芯核素的演化导致温度反应性系数可能发生变化。为保证整个运行时间内的固有安全性,要求总温度反应性系数需在寿期内保持在指定的限值范围。图11示出了9种不同熔盐石墨比和重金属摩尔份额条件下的温度反应性系数演化规律。可看到,在整个燃耗运行期间,上述9

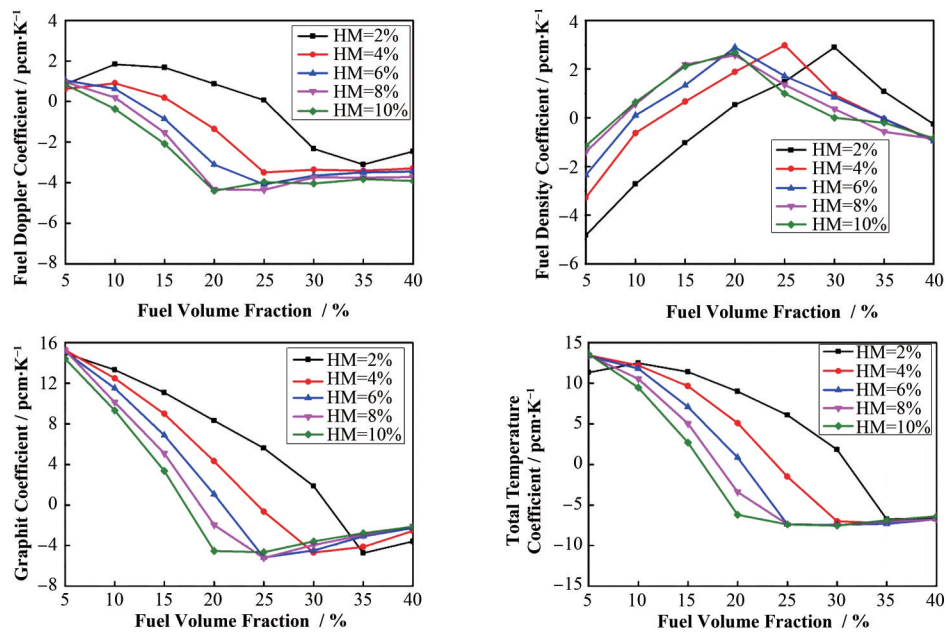


图10 不同熔盐石墨比和重金属摩尔份额对应的温度反应性系数
Fig.10 Temperature coefficients under different molten salt graphite ratio and initial heavy metal mole fractions

种不同条件下的总温度反应性系数均维持在 $-6\sim-8\text{ pcm}\cdot\text{K}^{-1}$,满足小型模块化钍基熔盐堆的固有安全性要求。

综合考虑小型模块化钍基熔盐堆的批处理周期、石墨寿命、钍铀转换性能、温度反应性系数等因素,表3列出了9种满足要求的燃料模式及其主要性能。选择不同的重金属摩尔份额和熔盐石墨比,TRUs装量最低为1.74 t,最高为4.67 t;且铀的最低年产量与最高年产量相差将近1倍。从燃料利用角度分析,单位裂变燃料装量下铀的年产量越高,燃料利用率越高。

从表3可看出,9种方案中,采用重金属摩尔份额为6%、堆芯熔盐石墨比为25%作为TRUs启动小型模块化钍基熔盐堆燃料循环的堆芯参数时,单位裂变燃料装量下铀的年产量最高,燃料利用率最高,

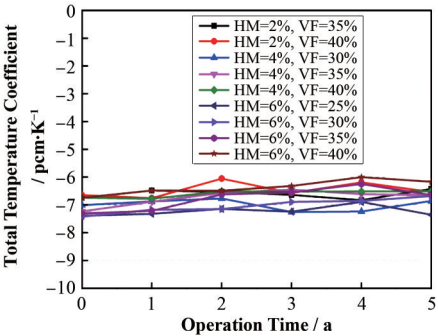


图11 总温度反应性系数随运行时间的变化
Fig.11 Evolutions of total temperature coefficient with operation time

为 $9.2\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}\cdot\text{tTRUs}^{-1}$ 。
目前,压水堆中的乏燃料作为核废料储存,大部分超铀核素半衰期长,放射性毒性大,储存要求高,

表3 不同熔盐石墨比和重金属摩尔份额条件下的中子学参数 Table 3 Neutronic parameters based on different fuel volume fractions and initial heavy metal mole fractions						
参数	TRUs装量 / t	铀年产量 / $\text{kg}\cdot\text{a}^{-1}$	单位TRUs装量下的铀年产量 / $\text{kg}\cdot\text{a}^{-1}\cdot\text{tTRUs}^{-1}$	TRUs消耗量 / $\text{kg}\cdot\text{a}^{-1}$	燃耗深度 / $\text{MW}\cdot\text{d}^{-1}\cdot\text{t}^{-1}$	石墨寿命 / a
HM=2%,VF=35%	1.92	9.6	5.0	43.9	45.1	15.3
HM=2%,VF=40%	2.56	9.5	3.7	44.5	43.4	16.1
HM=4%,VF=30%	2.39	13.6	5.7	39.4	29.6	7.9
HM=4%,VF=35%	3.23	14.1	4.4	39.4	27.6	8.6
HM=4%,VF=40%	3.82	15.1	4.0	38.6	26.3	9.0
HM=6%,VF=25%	1.74	16.0	9.2	36.1	23.7	5.5
HM=6%,VF=30%	3.15	16.4	5.2	36.8	22.0	5.8
HM=6%,VF=35%	4.01	17.3	4.3	36.1	20.3	6.8
HM=6%,VF=40%	4.67	18.8	4.0	34.9	19.3	6.6

对环境影响大。熔盐堆使用液态形式的燃料,且可达到较深的燃耗,在TRUs的利用上具有很好的有利条件。从表3可看到,当采用6%重金属摩尔份额及25%熔盐石墨比的堆芯参数且热功率为150 MW、满功率运行5 a时,TRUs的平均消耗量约为 $36.1 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$,可有效减少TRUs核废料的储存。

4 结语

本文基于小型模块化钍基熔盐堆,利用基于SCALE6.1进行改进的MSR-RRS程序进行计算,研究分析了不同熔盐石墨比和不同初始重金属摩尔份额对中子能谱、石墨寿命、温度反应性系数、钍转化能力及燃耗特性等堆芯重要物理参数的影响。

基于批处理周期、石墨寿命、固有安全性等参数限值,通过优化不同堆芯熔盐石墨比和重金属摩尔份额条件下的燃料循环性能,给出满足各限值要求的中子学参数,同时对钍的转换性能以及燃耗特性进行了研究分析。考虑小型模块化钍基熔盐堆的经济性及燃料后处理的可行性,采用5 a批处理模式,要求石墨寿命不低于5 a;同时考虑小型模块化钍基熔盐堆的固有安全性要求,总温度反应性系数优化在 $-5 \sim -8 \text{ pcm} \cdot \text{K}^{-1}$ 。综合上述,同时为了得到较高的燃料利用率,建议选择6%重金属摩尔份额和25%熔盐石墨比作为TRUs启动小型模块化钍基熔盐堆燃料循环的堆芯参数。根据目前的计算结果分析,在小型模块化钍基熔盐堆中利用压水堆中提取的超铀核素(TRUs)作为启动燃料,既可解决钍铀循环中易裂变燃料短缺的问题,同时也可有效降低当前核废料的储存。

参考文献

- 1 Doe U S. A technology roadmap for generation IV nuclear energy systems[J]. Philosophical Review, 2002, **66** (2): 239–241.
- 2 Igor L P. Handbook of generation IV nuclear reactors[M]. 2016: 174–205.
- 3 江绵恒, 徐洪杰, 戴志敏. 未来先进核裂变能——TMSR核能系统[J]. 中国科学院院刊, 2012, **27**(3): 366–374. DOI: 10.3969/j.issn.1000-3045.2012.03.016.
JIANG Mianheng, XU Hongjie, DAI Zhimin. Advanced fission energy program - TMSR nuclear energy system[J]. Bulletin of the Chinese Academy of Sciences, 2012, **27** (3): 366 – 374. DOI: 10.3969/j. issn. 1000-3045.2012. 03.016.
- 4 蔡翔舟, 戴志敏, 徐洪杰. 钍基熔盐堆核能系统[J]. 物理, 2016, **45**(9): 578–590. DOI: 10.7693/wl20160904.
- 5 CAI Xiangzhou, DAI Zhimin, XU Hongjie. Thorium molten salt reactor nuclear energy system[J]. Physics, 2016, **45**(9): 578–590. DOI: 10.7693/wl20160904.
- 6 李光超, 邹杨, 余呈刚, 等. 基于熔盐快堆的模型优化与Th-U增殖性能研究[J]. 核技术, 2017, **40**(2): 020603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.020603.
LI Guangchao, ZOU Yang, YU Chenggang, *et al.* Model optimization and analysis of Th-U breeding based on MSFR[J]. Nuclear Techniques, 2017, **40**(2): 020603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.020603.
- 7 Li G C, Zou Y, Yu C G, *et al.* Influences of ^7Li enrichment on Th-U fuel breeding for an Improved Molten Salt Fast Reactor (IMSFR) [J]. Nuclear Science and Techniques, 2017, **28**(7): 97. DOI: 10.1007/s41365-017-0250-7.
- 8 Ingersoll D T. Deliberately small reactors and the second nuclear era[J]. Progress in Nuclear Energy, 2009, **51**(4–5): 589–603. DOI: 10.1016/j.pnucene.2009.01.003.
- 9 Sabharwall P, Kim E, Mckellar M, *et al.* Small Modular Molten Salt Reactor (SM-MSR) [C]. ASME 2011 Small Modular Reactors Symposium, 2011: 31 – 39. DOI: 10.1115/SMR2011-6527.
- 10 马玉雯, 陈金根, 蔡翔舟, 等. 小型模块化钍基熔盐堆防核扩散性能初步定量评估[J]. 原子能科学技术, 2018, **52** (11): 1994–2000. DOI: 10.7538/yzk.2018.youxian.0162.
MA Yuwen, CHEN Jingen, CAI Xiangzhou, *et al.* Preliminary quantitative proliferation resistance assessment of small modular thorium based MSR[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2018, **52**(11): 1994–2000. DOI: 10.7538/yzk.2018.youxian.0162.
- 11 陈其昌, 司胜义, 卑华, 等. 钍基熔盐堆燃料循环与启动策略研究[J]. 原子能科学技术, 2018, **52**(8): 1393–1399. DOI: 10.7538/yzk.2017.youxian.0752.
CHEN Qichang, SI Shengyi, BEI Hua, *et al.* Study on thorium-based MSR fuel cycle and start-up scheme[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2018, **52**(8): 1393–1399. DOI: 10.7538/yzk.2017.youxian.0752.
- 12 Zou C Y, Zhu G F, Yu C G, *et al.* Preliminary study on TRUs utilization in a small modular Th-based molten salt reactor (smTMSR) [J]. Nuclear Engineering and Design, 2018, **339**: 75 – 82. DOI: 10.1016/j. nucengdes. 2018. 08.026.
- 13 Mukaiyama T, Yoshida H, Ogawa T, *et al.* Minor actinide transmutation in fission reactors and fuel cycle considerations[C]. IAEA-TECDOC-693. Vienna, Austria: IAEA, 1993.
- 13 Scale: a comprehensive modeling and simulation suite for

- nuclear safety analysis and design[R]. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1. 2011.
- 14 ORNL. CSAS6: control module for enhanced criticality safety analysis with KENO- VI [R]. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1. 2011.
- 15 DeHART M D. TRITON: a two dimensional transport and depletion module for characterization of spent nuclear fuel[R]. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1. 2011.
- 16 Zou C Y, Cai X Z, Jiang D Z, *et al.* Optimization of temperature coefficient and breeding ratio for a graphite-moderated molten salt reactor[J]. Nuclear Engineering and Design, 2015, **281**: 114 – 120. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2014.11.022.
- 17 Yu C G, Li X X, Cai X Z, *et al.* Analysis of minor actinides transmutation for a Molten Salt Fast Reactor[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, **85**: 597 – 604. DOI: 10.1016/j.anucene.2015.06.014.
- 18 余呈刚, 邹春燕, 伍建辉, 等. 基于 SCALE 的熔盐堆添料与后处理系统分析程序开发及验证[J]. 原子能科学技术, 2018, **52**(12): 2136 – 2142. DOI: 10.7538/yzk.2018.youxian.0123.
- YU Chenggang, ZOU Chunyan, WU Jianhui, *et al.* Development and verification of molten salt reactor refueling and reprocessing system analysis code based on SCALE[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2018, **52**(12): 2136 – 2142. DOI: 10.7538/yzk.2018.youxian.0123.
- 19 Mailen J C, Cather G I. Fluorination of falling droplets of molten fluoride salt as a means of recovering uranium and plutonium[R]. ORNL-4224, 1980.