

文章编号: 0258-0926(2018)03-0018-05; doi:10.13832/j.jnpe.2018.03.0018

TRU 燃料热谱 MSR 定期换料及 嬗变特性数值研究

于 涛, 谢金森, 赵文博, 陈珍平, 谢 芹, 刘紫静

南华大学核科学技术学院, 湖南衡阳, 421001

摘要: 熔盐反应堆 (MSR) 燃料制备方便、中子经济性好、燃料管理灵活, 具有直接利用轻水堆乏燃料中超铀核素 (TRU) 的潜力。本文通过优化燃料选取、栅格参数及燃料/石墨体积分数和去除裂变气体和惰性金属等方法, 对 TRU 燃料热谱 MSR 堆芯寿期、TRU 核素积存量、次锕系核素 MA 嬗变支持比和 TRU 焚毁率等进行计算分析, 证明 TRU 燃料热谱 MSR 可实现长周期定期换料, 减少在线换料的难度, 同时对 MA 和 TRU 核素具有一定的嬗变能力, 可降低乏燃料放射性毒性。

关键词: 热谱熔盐堆; TRU 燃料; 长周期换料; 嬗变

中图分类号: TL426 **文献标志码:** A

Periodically Reloading and Transmutation Characteristics Numerical Analysis of TRU Fueled Thermal Molten Salt Reactor

Yu Tao, Xie Jinsen, Zhao Wenbo, Chen Zhenping, Xie Qin, Liu Zijing

University of South China, School of Nuclear Science and Technology, Hengyang, Hunan, 421001, China

Abstract: The molten salt reactor (MSR) features convenient fuel fabrication, good neutron economy and flexible fuel management, has and there is the potential to utilize the TRU produced in the spent fuel of the light water reactor directly. The selection of fuel, lattice parameters and fuel/graphite volume fraction has been optimized in this paper. Through the calculating and analyzing the core lifetime of the TRU fueled thermal spectrum MSR, the stock of TRU, MA-fission ratio and TRU-fission ratio, it proves that thermal spectrum MSR can operate for a long period with long refueling cycle, which can reduce the difficulty of online refueling and have a better transmutation ratio of MA and TRU with lower radioactive toxicity.

Key words: Thermal spectrum MSR, TRU fuel, Long refueling cycle, Transmutation

0 引言

随着我国核电装机容量的不断提高, 乏燃料的数量逐渐增多。乏燃料中的超铀核素 (TRU) 的妥善处理一直受到国内外的广泛关注^[1]。对于 TRU 循环利用, 目前普遍的做法是将 TRU 中的 Pu 与 U 混合制成混合氧化物燃料 (MOX) 加以

利用, 为了更有效地管理 TRU, 焚烧堆概念设计相继被提出^[2-3]。Ignatiev^[4]和 Vergnes^[5]等人根据熔盐堆 (MSR) 液态燃料制备方便、中子经济性好、燃料管理灵活等优点, 分别提出了嬗变 TRU 的快谱和热谱 MSR 概念设计。

另外, 由于 MSR 燃料的在线制备与换料仍

收稿日期: 2017-04-12; 修回日期: 2017-07-20

基金项目: 国家自然科学基金 (11575079), 核反应堆系统设计技术重点实验室开放基金 (HT-QT-04-2015001)

作者简介: 于 涛 (1972—), 男, 教授, 主要从事反应堆物理及安全分析方面的研究

较为困难，若能够采用定期换料方案，将有助于在现有技术水平下实现 MSR 工程应用。本文对 TRU 燃料热谱 MSR 栅格设计区间和堆芯燃耗特性进行设计计算，并分析了 TRU 燃料热谱 MSR 实现定期换料的可行性和 TRU 核素的嬗变效果。

1 TRU 燃料热谱 MSR 参数设计分析

1.1 TRU 熔盐成分

本文以 $^{58}\text{NaF}-^{15}\text{LiF}-^{27}\text{BeF}_2$ 作为载体熔盐^[4]，其熔点为 479，具有 TRU 溶解度较高（对 TRU 的极限溶解度为 2.0 mol%）、腐蚀性低、性质稳定的特点^[6]。

$^{58}\text{NaF}-^{15}\text{LiF}-^{27}\text{BeF}_2$ 熔盐密度（单位为 g/cm^3 ）随温度变化的计算公式为^[4]：

$$\rho = 2.163 \pm 0.0023 - (4.06 \pm 0.29)10^{-4}(t - 601.4) \quad (1)$$

式中， t 为温度，。

出于保守考虑，本文取溶解度为 1.5 mol%，TRU 燃料熔盐密度公式为：

$$\rho = \frac{4095.459282}{1656.521219 + 0.394825t} + 0.151(V_{\text{fuel}} - 0.5) \quad (2)$$

式中， V_{fuel} 为燃料熔盐的摩尔体积分额，mol%。在 1.5 mol% 的溶解度下，TRU 燃料熔盐的具体核素含量见表 1。

表 1 TRU 燃料熔盐核素成分

Table 1 Isotopic Components of TRU Molten Salt

核素名称	质量分数/%	核素名称	质量分数/%
^{237}Np	6.15943×10^{-3}	^{241}Am	4.36853×10^{-3}
^{238}Pu	2.77884×10^{-3}	^{243}Am	2.07647×10^{-3}
^{239}Pu	3.16564×10^{-2}	^{244}Cm	7.23610×10^{-4}
^{240}Pu	1.79715×10^{-2}	Li	2.29121×10^{-2}
^{241}Pu	6.68621×10^{-3}	Na	2.93798×10^{-1}
^{242}Pu	6.77994×10^{-3}	Be	5.35818×10^{-2}
F	5.50507×10^{-1}	—	—

注 ①采用压水堆初始富集度为 4.5% 的 UO_2 燃料在 60 GW·d/t(U) 燃耗深度下，经 10 a 冷却后的成分

1.2 堆芯、栅格参数敏感性分析

本文 TRU 燃料热谱 MSR 的堆芯、栅格设计参考 ThU 燃料热谱熔盐增殖堆 (MSBR)，采用 Vanderhaegen 等人提出的简化等效模型^[7]。由于 TRU 燃料热谱 MSR 不同于 ThU 燃料 MSBR，因

此需要对栅格熔盐/石墨体积比重新进行设计，并分析 TRU 燃料热谱 MSR 的栅格物理特性。

本文选取 2.50%、5.00%、7.5%、10.0%、13.2%、15.0%、17.5%、20.0%、27.4%、37.3% 和 48.7% 熔盐/石墨体积比，采用 DRAGON 程序计算分析了栅格等温温度系数和无限增殖系数随燃料/石墨体积分数的变化，如图 1 所示。可见，当燃料/石墨体积分数大于 1.50% 时，等温温度系数为负且为欠慢化栅格，可满足反应堆对温度反应性反馈的基本要求。

另外，计算了额定满功率条件下不同燃料/石墨体积分数栅格无限增殖系数下降到 1 时所经历的时间、TRU 总焚毁率，结果如图 2 所示。由图 2 可见，当燃料/石墨体积分数在 10.0%~20.0% 时，可获得超过 300 等效满功率天 (EFPDs) 的燃耗时间，堆芯具有长周期定期换料的潜力；当

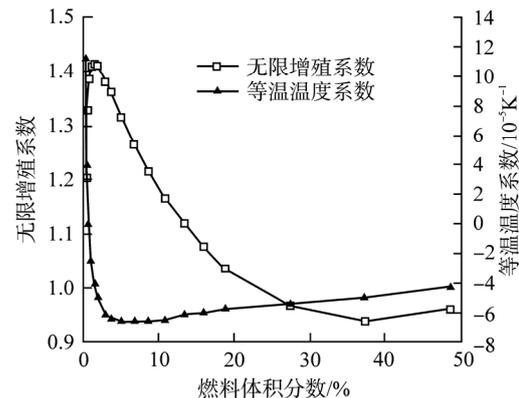


图 1 慢化区间与温度系数敏感性分析

Fig.1 Moderated Interval and Temperature Coefficient Sensitivity Analysis

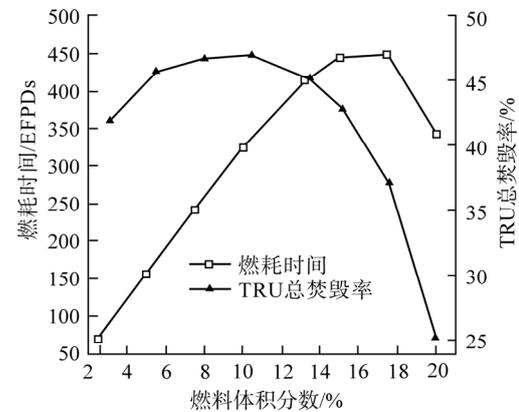


图 2 焚烧能力与焚毁率敏感性分析

Fig.2 Burning Ability and Transmutation Rate Sensitivity Analysis

燃料/石墨分数在 2.50%~15.0%之间时,TRU 总焚毁率大于 40%,具有较好的嬗变效果。总焚毁率的定义为:吸收中子直接裂变消耗掉的 TRU 核素与初始 TRU 核素含量之比。

通过对以上温度反应性反馈、燃耗时间和 TRU 总焚毁率等参数敏感性分析,TRU 燃料热谱 MSR 燃料/石墨体积分数优化区间可设计为 10.0%~15.0%。

ThU 燃料 MSR 堆芯布置采取了内外 2 种栅格设计方案,堆芯内区栅格的燃料/石墨体积比为 13.2%,可满足 10.0%~15.0%的设计区间;堆芯外区栅格的燃料/石墨体积比为 37%,与内区栅格相比,栅格未达到临界条件,且 TRU 燃料栅格可满足温度反应性反馈的要求。由于该区栅格主要作用是保证堆芯熔盐流量均匀分布,无需达到临界。因此本文 TRU 燃料 MSR 堆芯外侧栅格燃料/石墨体积分数可采用 ThU 燃料 MSR 设计。

TRU 燃料热谱 MSR 堆芯内区和外区的栅格数量分别为 1445 和 560,堆芯主要参数见表 2。

表 2 TRU 燃料热谱 MSR 堆芯参数
Table2 Core Parameters for TRU Fueled Thermal Spectrum MSR

堆芯高度/cm	546
堆芯半径/cm	338
堆芯活性区高度/cm	396
堆芯活性区半径/cm	263
堆芯反射层厚度/cm	75
堆芯功率/MWt	2250
堆芯流量/kg·s ⁻¹	3×10 ³
组件功率密度/W·cm ⁻³	22
组件数目	2005 (内区 1445、外区 560)
组件平均温度/°C	600
组件尺寸(内区)/cm ²	10.16×10.16
燃料流道直径(内区)/cm	4.165
组件尺寸(外区)/cm ²	10.16×10.16
燃料流道直径(外区)/cm	6.973

2 堆芯燃耗特性

2.1 MSR 燃耗计算方法

与传统固体燃料反应堆(如 PWR、BWR 等)不同,MSR 将产生 Xe、Kr 等不溶于熔盐的惰性气体^[8]和惰性金属^[9],需对上述难溶物质进行定期去除;此外,传统固体燃料反应堆不同组件的核素积存量和宏观截面仅与组件的初始状态和积分功率有关,而 MSR 采用液态流动燃料。由于

熔盐流出堆芯后被搅混在一起,并经过换热器换热后再次进入堆芯,因此,MSR 堆芯不同流道的熔盐核素积存量及宏观截面是由平均燃耗深度所决定的。

图 3 给出了利用 DRAGON/DONJON 程序开展 MSR 燃耗计算的流程。TRU 燃料热谱 MSR 堆芯的熔盐质量约为 1.6×10⁵ kg,熔盐质量流率约为 3×10³ kg/s^[10],堆芯熔盐约每分钟完成 1 次搅混,因此在较短的时间范围内堆芯各区燃耗深度差异是较小的。出于计算代价与精度的双重考虑,本文假设每天对熔盐进行一次搅混处理,在 DRAGON 程序进行组件计算时燃耗步长设为 1 天,在 1 个燃耗步内假设熔盐不流动,进行每一步的燃耗计算后去除惰性产物,之后进行核子密度混合,同时存储截面供 DONJON 程序调用。

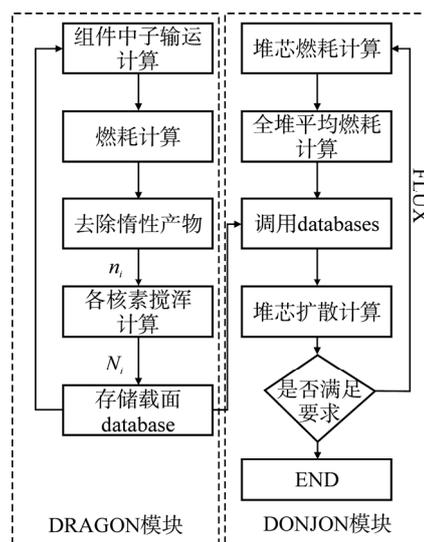


图 3 MSR 堆芯燃耗计算流程
Fig. 3 Flow Burn-up Calculation of MSR

对于不同燃耗区搅混后的核子密度采用下式计算:

$$N_i = \sum_{j=1}^J n_{i,j} m_j \quad (3)$$

式中, N_i 为各燃耗区搅混后的第 i 种核素的核子密度; $n_{i,j}$ 为搅混前的第 j 燃耗区的第 i 种核素的核子密度; J 为总的燃耗区数目; m_j 为第 j 燃耗区燃料的质量权重比。

在 DONJON 程序进行堆芯扩散计算时,在 1 个燃耗步长内,根据堆芯燃耗区划分得到全堆平均燃耗,再根据平均燃耗调用 DRAGON 生成的

各核素搅混截面，保证 MSR 在固定时间内完成燃料熔盐充分混合，实现各区燃耗的定期更新。

2.2 反应性随燃耗变化

利用 DRAGON/DONJON 程序计算得到 TRU 燃料热谱 MSR 堆芯有效增殖系数 k_{eff} 随燃耗时间的变化曲线 (图 4)。熔盐在无任何净化情况下，裂变产物毒物的快速积累吸收堆内热中子，将造成起始阶段 k_{eff} 下降较快；随后因裂变产物毒物 ^{135}Xe 平衡， k_{eff} 下降逐渐平缓；最终由于堆芯总易裂变核素不断消耗， k_{eff} 下降逐渐加快。当不对熔盐进行任何净化时，MSR 堆芯寿期为 320 EFPDs；除裂变气体时，堆芯寿期为 430 EFPDs；同时去除裂变气体和惰性金属时，堆芯寿期为 510 EFPDs，此时堆芯可以获得最高的中子经济性， k_{eff} 下降趋势最为平缓。

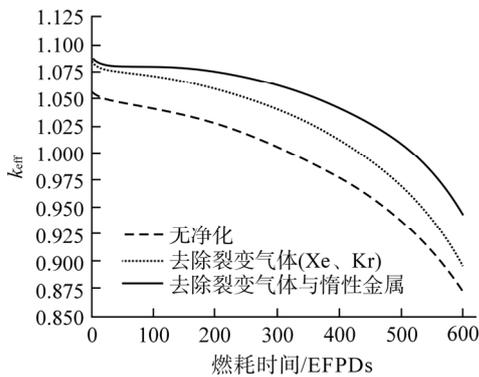


图 4 MSBR 堆芯无净化、仅去除惰性气体、去除全部惰性物质 k_{eff} 曲线

Fig. 4 k_{eff} Curve of MSBR in Processless、Remove Noble Gas、Remove Noble Metal and Gas

2.3 TRU 嬗变能力分析

在无净化、仅去除裂变气体、同时去除裂变气体和惰性金属 3 种熔盐处理策略下，计算 TRU 燃料热谱 MSR 寿期初 (BOC) 堆芯 TRU 的含量以及寿期末 (EOC) 堆芯的 TRU 烧毁率 (表 3)。从表 3 中可以看出，在上述 3 种熔盐处理策略下 TRU 总烧毁率分别为 30.181%、40.436% 和 47.864%。分析其原因为：随着熔盐净化程度的提高，堆芯中子经济性得以提高，有更多的富余中子可用于 TRU 嬗变。表 3 同时给出了 TRU 燃料热谱 MSR 的次锕系核素 MA 核素的嬗变率以及嬗变比消耗，定义见式 (4)、式 (5)，MA 嬗变率表示 MA 核素的总消耗量，嬗变比消耗表示 1 GW 热功率的热谱 MSR 每年可嬗变的 MA

质量。传统压水堆每 GW 热功率每年可产 MA 6.6 kg^[3]，热谱 MSR 与传统压水堆相比，MA 嬗变比消耗约为压水堆的 4.136 倍，即热谱 MSR 嬗变支持比约为 4.136，证明热谱 MSR 可以用于嬗变乏

表 3 快、热谱栅格无净化、仅去除惰性气体、去除全部惰性物质下栅格焚烧能力与单一核素嬗变率

Table 3 Burning Ability and Transmutation Rate of Fast and Thermal Spectrum Lattice with Original Core, Noble Gas Removed and All Noble Material Removed

前提条件	无净化	去除惰性气体	去除惰性气体和惰性金属
满功率焚烧天数 EFPDs	320	430	510
燃耗深度/GW · d · t ⁻¹ (U)	291.008	391.042	463.794
TRU 总烧毁率/%	30.181	40.436	47.864
MA 核素嬗变率/%	14.835	19.380	22.063
MA 核素嬗变比消耗 /kg · (GWt · a) ⁻¹	28.488	27.696	26.584

料中的 MA 核素。

$$\text{嬗变率} = \frac{(\text{裂变} + \text{转化}) \text{ TRU 核素}}{\text{初始 TRU 核素含量}} \quad (4)$$

$$\text{嬗变比消耗} = \frac{(\text{裂变} + \text{转化}) \text{ TRU 核素}}{\text{堆芯功率} \times \text{堆芯寿期}} \quad (5)$$

图 5 给出了 Pu 以及 MA 核素的核子密度随燃耗的变化，从中可以看出： ^{237}Np 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 核素核子密度随燃耗加深而降低 (图 5a)；TRU 核素在热谱 MSR 中俘获裂变比分别为： ^{238}Pu : 8.116； ^{239}Pu : 0.572； ^{240}Pu : 107.569； ^{241}Pu : 0.336； ^{242}Pu : 93.143； ^{237}Np : 105.926； ^{241}Am : 92； ^{243}Am : 209.827； ^{244}Cm : 41.845。由于 ^{237}Np 、 ^{240}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 在热谱中具有较大的俘获/裂变比，吸收中子转化为其他的 TRU 核素，因此 ^{238}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 等核素核子密度随燃耗加深而增加， ^{241}Pu 随着燃耗加深，核子密度由增长逐渐转变为裂变消耗 (图 5b)。

综合考虑 MA 嬗变支持比以及 TRU 总体烧毁率的共同作用，热谱 MSR 对 MA 核素具有一定的焚烧嬗变能力。为防核扩散影响，以美国为首的少部分国家把 Pu 和 MA 一同做嬗变处理，此时 Pu 燃料也成为不容忽视的长寿命放射性毒物。本文同时对热谱 MSR 焚烧后增长的 ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 等 TRU 核素开展了包括该核素自身及其衰变子体在内的放射性毒性

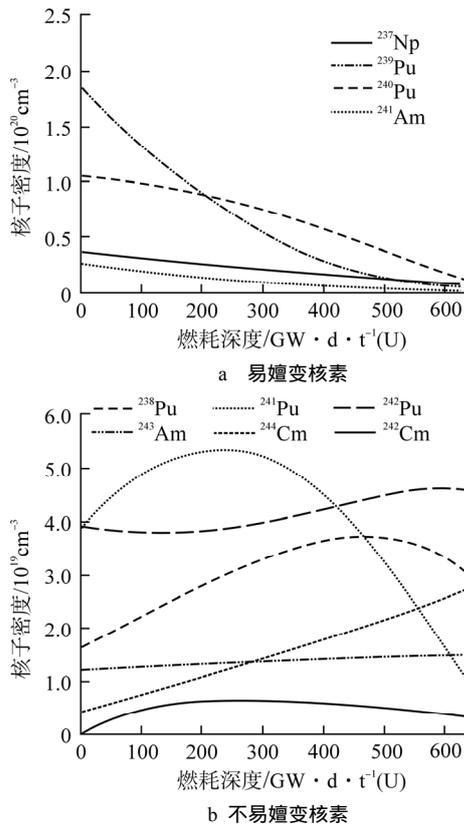
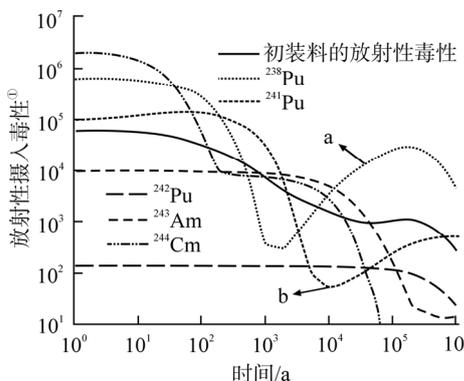


图 5 TRU 核子密度-燃耗变化曲线

Fig. 5 TRU Nuclide Density-Burn up Change Curve

计算,以分析热谱 MSR 对 TRU 的嬗变能力,结果如图 6 所示。

由图 6 (图中计算放射性毒性包括核素本身及其衰变子体的放射性毒性)可见:除 ²³⁸Pu 外,其他核素长期放射性毒性均小于 TRU 燃料初始装载燃料放射性毒性,证明热谱 MSR 可以对压



a—回升的放射性毒性来源于衰变子体 ²¹⁰Pb、²¹⁰Po、²²⁶Ra、²³⁰Th ;
b—回升的放射性毒性来源于衰变子体 ²²⁵Ra、²²⁵Ac、²²⁹Th、²³³U

图 6 等质量 TRU 核素放射性毒性曲线

Fig. 6 TRU Radiotoxicity Curve with Equal Mass

注: 通过多少立方米的水将每克放射性核素降到天然本底水平

水堆乏料进行嬗变,降低乏燃料毒性,²³⁸Pu 则可以通过分离提取加以利用。综上,热谱 MSR 具有较高的嬗变支持比,可将 MA 间接转化为 Pu 燃料进行焚烧,同时热谱 MSR 对 TRU 整体具有较好的嬗变效率,而且采用定期换料的热谱 MSR 可以实现较长周期运行。

3 结论

本文通过优化燃料的选取、栅格参数、优化燃料/石墨体积分数和去除裂变气体和惰性金属等方法,对 TRU 燃料热谱 MSR 堆芯寿期、TRU 核素积存量、MA 嬗变支持比和 TRU 焚毁率等进行计算分析,证明 TRU 燃料热谱 MSR 可实现长周期定期换料,减少在线换料的难度,同时对 MA 和 TRU 核素具有一定的嬗变能力,可降低乏燃料放射性毒性。

参考文献:

- [1] Tao Yu, Xiang Wu, Jin-sen Xie, et al. A study on the burn-up characteristics of inert matrix fuels[J]. Progress in Nuclear Energy, 2015, 78: 341-345.
- [2] 杨永伟, 邱励俭. PWR(U)乏燃料中超铀元素在混合堆快裂变包层内嬗变研究[J]. 核动力工程, 1995, 16(01): 40-45.
- [3] 胡赞. 钠冷快堆嬗变研究[D]. 北京:清华大学, 2009.
- [4] Ignatiev V, Feynberg O, Gnidoi I, et al. Progress in development of Li, Be, Na/F molten salt actinide recycler and transmuter concept[C]. France: Proceedings of ICAPP, 2007
- [5] Vergnes J. The AMSTER Concept (Actinide Molten Salt TransmutER) [C]. Physor 2000 Conference, Pittsburgh, USA, 2000.
- [6] Ignatiev V, Surenkov A. Material Performance in Molten Salts[C]. The Kingdom of Netherlands, Amsterdam: Elsevier Ltd. 2012.
- [7] Vanderhaegen M, Janssens-Maenhout G. Considerations on safety and proliferation-resistant aspects for the MSBR design[J]. Nuclear Engineering & Design, 2010, 240(3): 482-488.
- [8] Bell M J. Calculated radioactivity of MSRE fuel salt[R]. ORNL-TM-2970, USA: ORNL, 1970.
- [9] Sheu R J, Chang C H, Chao C C. Depletion analysis on long-term operation of the conceptual molten salt actinide recycler & transmuter (mosart) by using a special sequence based on SCALE6/TRITON[J]. Annals of Nuclear Energy, 2013, 53: 1-8.
- [10] Robertson Roy c. Conceptual design study of a single-fluid molten-salt breeder reactor[R]. USA: ORNL, 1971.

(责任编辑: 孙 凯)