熔盐实验堆备用停堆方案及其可行性分析

于世和[1] 刘亚芬[1] 杨 璞[1] 冀锐敏[1] 朱贵凤[1] 周 波[1] 康旭忠[1]
严 睿[1] 邹 杨[1] 兰 兵[2]
1（中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800）
2（生态环境部核与辐射安全中心 北京 100082）

摘要 反应性控制系统的设计是反应堆物理设计的主要内容之一。熔盐堆采用熔融的氟化盐混合物作为燃料，由于核燃料的特殊性，熔盐堆在反应堆设计方面与传统固体燃料反应堆有着较大区别。本文鉴于熔盐堆的特殊性，针对2 MW液态燃料钍基熔盐堆（Thorium Molten Salt Reactor-Liquid Fuel，TMSR-LF1），提出多种停堆方式，包括排燃料盐、套管中注中子毒物、改变燃料盐成分、改变堆芯石墨栅元数，并进行了计算分析。分析结果表明：往套管中注入中子毒物是在控制棒失效的情况下很好的替换停堆方式；燃料盐成分可调，是熔盐堆本身具有的特点，因此往燃料盐中添加BF_3、LiF-BeF_2-ZrF_4、LiF-ThF_4，是调节堆芯反应性很好的方式；改变石墨栅元数也可以使反应堆停堆。本研究分析可以为熔盐堆停堆方式提供技术储备和理论参考。

关键词 熔盐堆，钍基熔盐堆，停堆方式，反应性
中图分类号 TL3
DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.070603

Standby shutdown modes and feasibility analysis of molten salt experimental reactor

YU Shihe[1] LIU Yafen[1] YANG Pu[1] JI Ruimin[1] ZHU Guifeng[1] ZHOU Bo[1]
KANG Xuzhong[1] YAN Rui[1] ZOU Yang[1] LAN Bing[2]
1(*Shanghai Institute of Applied Physics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Shanghai 201800*, *China*)
2(*Nuclear and Radiation Safety Center*, *Beijing 100082*, *China*)

Abstract **[Background]** Reactivity control design is one of the main contents of reactor neutronics design. Molten fluoride mixture was used as fuel in molten salt reactor (MSR). Due to the particularity of nuclear fuel, molten salt reactor is different from traditional solid fuel reactor in reactor design. **[Purpose]** This study aims at feasibility analysis of shutdown modes with emphasis on the standby scheme. **[Methods]** The shutdown modes includes discharging fuel salt, injecting neutron poison into the core tube, changing the composition of fuel salts, changing the number of graphite cells. The 2 MW thorium molten salt reactor-liquid fuel (TMSR-LF1) model was taken as the reference reactor, and the calculation was completed by using Monte Carlo N particle transport code (MCNP). **[Results]** The analysis results show that injection of neutron poison into the core tube was a good alternative to shutdown the reactor when the control rod cannot be inserted into the core. The adjustable composition of fuel salts was the characteristic of MSR itself, thus, adding BF_3, LiF-BeF_2-ZrF_4, LiF-ThF_4 to fuel salts was a good way to adjust

中国科学院战略性先导科技专项(No.XDA02010000)、钍铀燃料循环特性和若干关键问题研究项目(No.QYZDY-SSW-JSC016)资助
第一作者：于世和，男，1984年出生，2012年于哈尔滨工程大学获硕士学位，研究方向为反应堆物理
通信作者：严睿，E-mail：yanrui@sinap.ac.cn；兰兵，E-mail：lanbing@chinansc.cn
收稿日期：2019-03-28，修回日期：2019-04-29
Supported by Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (No. XDA02010000), Thorium Uranium Fuel Cycle Characteristics and Key Problem Research Project (No.QYZDY-SSW-JSC016)
First author: YU Shihe, male, born in1984, graduated from Harbin Engineering University with a master's degree in 2012, focusing on reactor physics research
Corresponding author: YAN Rui, E-mail: yanrui@sinap.ac.cn; LAN Bing, E-mail: lanbing@chinansc.cn
Received date: 2019-03-28, revised date: 2019-04-29

the reactivity. Changing the number of graphite cells could also shutdown the reactor. **[Conclusion]** The analysis of this study can provide technical reserves and theoretical reference for the shutdown modes of molten salt reactor.

Key words Molten salt reactor, TMSR, Shutdown modes, Reactivity

熔盐堆的研究开始于20世纪50年代[1−3]。熔盐堆在固有安全性、经济性、核燃料可持续发展及防核扩散等方面具有独特优势。2011年，中国科学院瞄准核能领域国家重大战略需求，成立了钍基熔盐堆（Thorium Molten Salt Reactor，TMSR）中心[4−5]，拟建2 MW液态燃料钍基熔盐堆（Thorium Molten Salt Reactor-Liquid Fuel，TMSR-LF1）。

TMSR-LF1采用的液态燃料熔盐既是燃料，又是冷却剂。由于核燃料的特殊性，给堆芯反应性控制带来了多种可能的方式。本文以TMSR-LF1为参考反应堆，采用蒙特卡罗程序MCNP（Monte Carlo N Particle Transport Code）[6]，对除控制棒以外的停堆方式，如排燃料盐、套管中注中子毒物、改变燃料盐成分、改变堆芯石墨栅元数等进行了计算分析。本研究分析可以为熔盐堆停堆方式提供技术储备和理论参考。

1 计算模型与方法

1.1 计算模型

熔盐实验堆的计算分析模型如图1所示。由内向外主要包括燃料盐流道区、无燃料盐流道石墨区、燃料盐缝隙、主容器；由上向下主要包括上石墨层、上腔室、上支撑板、堆芯、下支撑板、下腔室、下石墨层。

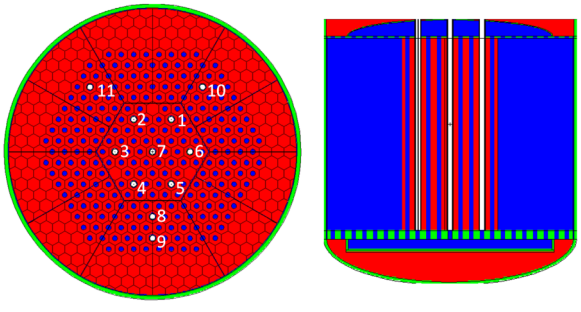

图1 计算模型结构示意图
Fig.1 Schematic diagram of computational model

堆芯位于上下支撑板之间，由开孔的石墨构件拼接构成，其中径向由中心1个六棱柱石墨构件和周边12个扇形石墨构件构成，轴向各分4层。石墨构件中的孔道，以及石墨构件与石墨构件拼接形成的孔道，形成了燃料盐流道，流道直径4.0 cm，流道中心距10.0 cm。堆芯石墨区直径为230 cm，高度为180 cm。同时，石墨构件上开有功能通道，其中1#、2#、3#、4#、5#为控制棒通道，6#、7#、8#、9#径向中子通量测量通道，10#为中子源通道，11#为实验样品辐照通道，功能通道套管内径为4.4 cm[7]。11个功能通道均由镍基高温合金套管构成，这些功能通道确保其内运行的设备与熔盐的隔绝，并构成一回路包容边界。

堆芯采用液态燃料，熔盐燃料的成分为LiF-BeF_2-ZrF_4-UF_4（摩尔比为：65.39%-28.34%-4.72%-1.55%），燃料为^{235}U，富集度为19.75%，^{7}Li丰度99.95%，密度为2.345 g·cm^{-3}。慢化剂采用石墨，密度为1.785 g·cm^{-3}。

TMSR-LF1堆芯设置2套共5根控制棒停堆系统（1#、2#、3#、4#、5#）进行反应性控制，第一停堆系统包含3根控制棒，其中3#、5#为补偿棒，1#为安全棒，执行反应性控制功能和停堆功能，包括功率调节、温度补偿、氙毒效应补偿、燃耗补偿、缓发中子流动效应、运行后备、以及实验样品等所引起的反应性变化的补偿；第二停堆系统包含2根控制棒，即2#、4#安全停堆棒，执行停堆功能。

TMSR-LF1冷态时剩余反应性为2 000×10^{-5}，核设计要求冷停堆深度小于−1 000×10^{-5}，冷态停堆时堆芯平均温度为550 ℃。本研究的备用停堆方案作为第二停堆系统，只需考虑温度反馈和缓发中子流动效应，约1 000×10^{-5}的反应性补偿，因此，在采用备用停堆方案情况下，只要引入2 000×10^{-5}的反应性，就能满足冷停堆要求。

TMSR-LF1的熔盐准备分为三种：基盐，LiF-BeF_2-ZrF_4（摩尔比为：65%-30%-5%）；添加铀盐，LiF-UF_4（摩尔比为：72%-28%）；添加钍盐，LiF-ThF_4（摩尔比为：72%-28%）。TMSR-LF1采用熔盐堆特有的加料临界方式。首先，往基盐罐中的基盐混入添加铀盐，混合的盐在燃料盐罐和基盐罐中来回倒料，直至形成均相的目标盐LiF-BeF_2-ZrF_4-UF_4。注入堆芯，测量反应性后排出至燃料盐罐；其次，在上一步骤的基础上继续注入添加盐，调节目标盐中的铀浓度，均相后注入堆芯，测量反应性；最后，通过多批次操作，在快接近临界时，改用通过添加盐胶囊的方式使反应堆临界。若需要加钍燃料运行，可以通过混入添加钍盐LiF-ThF_4的方式完成。

1.2 计算方法

考虑到熔盐实验堆几何结构的复杂性及高温下

堆芯石墨构件的移动，本文采用MCNP程序建模分析。MCNP程序是由美国洛斯阿拉莫斯国家实验室（Los Alamos National Laboratory，LANL）开发的一个运用蒙特卡罗方法进行输运计算的计算机程序。MCNP程序输入灵活、参数合理，能够完整描述任何模型在体积结构和材料密度等方面的细节。该程序的输出数据准确丰富，对于一个反应堆系统能够给出诸如有效增殖系数、能谱、单群或多群截面、中子产生和泄漏率等各种计算结果。

2　停堆方式

反应堆通过引入负反应性使其停堆，并达到一定的停堆深度。对熔盐堆来说，除控制棒[8]以外，还可采用排燃料盐、套管中注中子毒物[9]、改变燃料盐成分、改变堆芯石墨栅元数等停堆方式。本文将对这几种停堆方式的驱动方式与物理过程进行设计，并对反应性变化、对堆芯结构的影响及停堆后临界恢复等特性进行分析和对比。

2.1　排燃料盐

排燃料盐停堆方式主要是通过改变堆芯的活性区体积，使反应堆处于次临界状态或者无盐状态。排燃料盐是熔盐堆特有的安全保护方式。当熔盐堆出现反应性控制失效、主冷却系统不能带走热量、燃料盐回路系统有放射性产物泄漏等事故工况下，都可以把燃料盐排放到排盐罐中，使熔盐堆处于次临界，通过排盐罐的余热排出功能带走燃料盐的余热，并包容放射性产物。但是，排燃料盐系统的冷冻阀开启需要时间（MSRE的排盐冷冻阀通过加热开启的时间为5 min）[2]，排燃料盐过程也需要时间，所以排燃料盐一般不用于紧急停堆。

图2为堆芯反应性随燃料盐高度变化，图中以堆芯石墨区下端面为零点，燃料盐高度下降到145 cm时，由于堆芯活性区体积减少，堆芯反应性约下降$2\,000\times10^{-5}$，即通过排盐完全能满足反应堆停堆需求。

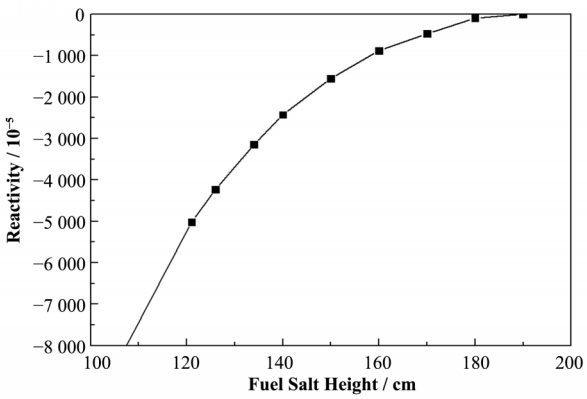

图2　反应性随燃料盐高度变化
Fig.2　Reactivity curve with fuel salt height

2.2　套管中注入中子毒物

当控制棒发生卡棒事故时，可以往控制棒套管或其他功能套管里注入高温液态中子毒物，作为熔盐堆停堆控制的一种方式。可以用作中子毒物的材料较多，本文选用$NaBF_4$-NaF（摩尔比为：92.0%-8.0%）、LiF-ThF_4、LiF-BeF_2-ZrF_4这三种作为研究对象。其中$NaBF_4$-NaF为MSBR二回路的冷却剂[10]，熔点为385 ℃，550 ℃时的密度为1.86 g·cm^{-3}；LiF-ThF_4的熔点为562 ℃，562 ℃时的密度为4.58 g·cm^{-3}；LiF-BeF_2-ZrF_4的熔点445 ℃，550 ℃时的密度为2.14 g·cm^{-3}。

表1　套管中注入中子毒物对反应性的影响
Table 1　The effect of neutron poison injection into tube on reactivity

管号 Tube number	$NaBF_4$-NaF	LiF-ThF_4	LiF-BeF_2-ZrF_4
1#	$-2\,041\times10^{-5}$	-428×10^{-5}	-717×10^{-5}
1#、3#、5#	$-6\,643\times10^{-5}$	$-1\,259\times10^{-5}$	$-2\,198\times10^{-5}$
1#、2#、3#、4#、5#、6#	$-12\,653\times10^{-5}$	$-2\,583\times10^{-5}$	$-4\,393\times10^{-5}$

从表1中可知，往套管中注入中子毒物是一种有效的停堆控制手段，可以快速引入负反应性，不用改变堆芯的结构，是在控制棒失效的情况下很好的停堆方式。相比之下，其中$NaBF_4$-NaF引入的负反应性幅度最大。虽然在套管中注入中子毒物可以快速停堆，但是熔融的中子毒物需要存放系统、保温系统、注入系统等系统的配合，另外注入的中子毒物怎么取出来，也是一个问题。

2.3　改变燃料盐成分

根据熔盐堆特有的加料方式，可以往燃料盐中添加中子毒物、基盐、钍盐等，改变燃料盐成分，从而改变反应性，达到反应堆停堆目的。

2.3.1　添加氟化硼

熔盐堆可以采用在燃料盐里添加氟化硼中子毒物的停堆方式[11]。氟化硼在熔盐燃料中溶解度与其压力和系统温度有关。氟化硼的溶解度随其分压呈线性变化，分压增加溶解度增加。氟化硼的溶解度

随着温度的升高而降低。氟化硼的溶解度线性关系式为 $P=B/K$，其中 P 为分压，10^5 Pa；B 为溶解度，mol·cm^{-3}；K 为亨利系数，mol·(cm^3×10^5 Pa)$^{-1}$，550 ℃时，K 为14.5×10^{-5}。

表2为堆芯反应性随碳化硼浓度的变化。从表2可以看出，通过改变氟化硼的分压，可以调节氟化硼的溶解度，从而控制堆芯反应性。但是，氟化硼用于熔盐堆的反应性控制，还需要做很多方面的工作[11]。如：溶解度与燃料盐成分的关系；石墨对氟化硼的吸收；氟化硼添加与去除的速率；氟化硼对结构材料的腐蚀；碳化硼可能在辐照环境中的分解。

表2 氟化硼浓度对反应性的影响
Table 2 The effect of boron trifluoride concentration on reactivity

氟化硼浓度 Concentration of BF_3 / 10^{-5} mol·cm^{-3}	分压 Partial pressure /10^5 Pa	反应性变化 Effect of reactivity / 10^{-5}
0.2	1.38×10^{-2}	−1 093
0.4	2.76×10^{-2}	−2 166
0.6	4.14×10^{-2}	−3 241
0.8	5.52×10^{-2}	−4 311
1.0	6.90×10^{-2}	−5 387

2.3.2 添加基盐

TMSR-LF1运行中的目标盐，是基盐LiF-BeF_2-ZrF_4与添加铀盐LiF-UF_4的混合。通过添加铀盐，改变目标盐中重金属浓度，增加堆芯反应性。同理，往目标盐中加入基盐，可以稀释目标盐中重金属浓度，达到引入负反应性的目的。

假设TMSR-LF1原有基盐体积为2.0 m^3，通过添加体积为0.143 m^{3}的添加铀盐LiF-UF_4，使堆芯剩余反应性2 000×10^{-5}，此时UF_4摩尔浓度为1.55%。在这基础上，往堆内加入0.146 m^{3}的基盐时，UF_4摩尔浓度减少0.1%，堆芯反应性下降1 527×10^{-5}；当基盐量为0.314 m^{3}时，UF_4摩尔浓度减少0.2%，堆芯反应性下降3 228×10^{-5}，反应堆停堆，并有足够的次临界度。如想恢复反应堆运行，可以通过往堆内加入铀盐LiF-UF_4，增加UF_4摩尔浓度，使反应堆再次临界。堆内添加基盐对堆芯反应性的影响见表3。

2.3.3 添加钍盐

钍是中子吸收体，往燃料盐里添加钍盐LiF-ThF_4时，可以起到引入负反应性的作用。假设TMSR-LF1原有基盐体积为2.0 m^3，通过添加体积为0.143 m^{3}的添加铀盐LiF-UF_4，使堆芯剩余反应性2 000×10^{-5}，此时UF_4摩尔浓度为1.55%。在这基础上，往堆内添加9.6 L钍盐，堆芯反应性下降857×10^{-5}；当钍盐添加到38.7 L时，堆芯反应性下降3 247×10^{-5}，使反应堆停堆，并有足够的停堆深度。如想恢复反应堆运行，往堆内加入添加铀盐LiF-UF_4就行。添加钍盐对反应性的影响见表4。

表3 添加基盐对反应性的影响
Table 3 The effect of adding LiF-BeF_2-ZrF_4 on reactivity

四氟化铀浓度 Concentration of UF_4 / %	加基盐量 Adding LiF-BeF_2-ZrF_4 / m^3	反应性变化 Effect of reactivity / 10^{-5}
−0.1	0.146	−1 527
−0.2	0.314	−3 228

表4 添加钍盐对反应性的影响
Table 4 The effect of adding LiF-ThF_4 on reactivity

四氟化钍浓度 Concentration of ThF_4 / %	加钍盐量 Thorium salt / L	反应性变化 Effect of reactivity / 10^{-5}
0.1	9.6	−857
0.2	19.2	−1 690
0.4	38.7	−3 247

2.3.4 小结

改变燃料盐成分是熔盐堆特有的停堆方法。除了添加氟化硼外，添加基盐、钍盐方式，采用现存的加料方式就可以完成，不影响堆芯，重返临界的方法与加料临界的方式一致，只是引入负反应速度较慢，适合长期停堆时采用。往燃料盐中填加氟化硼，相当于压水堆的冷却剂中添加硼酸，需要配一套溶解和去除系统。

2.4 改变石墨栅元数

熔盐堆在低压下运行，这给更换石墨栅元带来了方便。为了进行可行性分析，假设原有的堆芯活性区不是由石墨构件拼接而成，而是由规则的石墨栅元组成，且石墨栅元可以更换。石墨栅元为正六棱柱，栅元中心距为10.0 cm，边长为5.8 cm，高180 cm，燃料盐流道半径为2.0 cm。改变石墨栅元数分为两种情况，如图3所示，方案一直接抽出石墨栅元，抽出的位置被燃料盐填充；方案二把石墨栅元换成实心的石墨栅元，即把燃料流道用石墨完全填充。

TMSR-LF1的燃料盐体积比为15%，在最佳燃料盐体积比附近，这里，燃料盐体积比为石墨栅元中燃料盐体积占总体积的比值，有效增殖因数最大值对应的燃料盐体积比值叫做最佳燃料盐体积比。在堆芯活性区，抽出一定量的燃料元件或者更换成实心的石墨元件，相当于改变了活性区燃料盐与石墨的体积比，堆芯中子能谱发生变化，使堆芯反应性下降，达到停堆的目的。如表5所示，抽出石墨栅元34根或者插入34根实心的石墨栅元都能使反应堆停堆，并有一定的停堆深度。

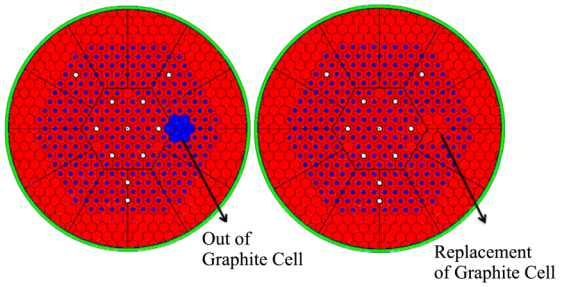

图3 石墨栅元更换示意图
Fig.3 Schematic diagram of graphite element replacement

表5 石墨栅元更换对反应性的影响
Table 5 The effect of graphite element replacement on reactivity

石墨栅元变化数 The number of graphite cell changes	方案一 Case 1 ($\Delta\rho\times10^{-5}$)	方案二 Case 2 ($\Delta\rho\times10^{-5}$)
12	−929	−592
22	−2 055	−1 461
34	−3 390	−2 639

改变石墨栅元数虽然能使反应堆停堆，但是它破坏了堆芯结构；此外，一般反应堆顶层结构很复杂，石墨栅元的安装和拆卸装置可能会与其它顶层结构冲突，顶层的辐射防护也是一大问题。本文只是对这种停堆方式的可行性进行了分析。

3 结语

不同的停堆方式，在驱动原理、停堆时间、对反应堆系统的影响、恢复临界方法等方面差别较大。本文基于TMSR-LF1的设计，采用MCNP程序，从中子物理方面分析排燃料盐、套管中注中子毒物、改变燃料盐成分、改变堆芯石墨栅元数等停堆方式的可行性。分析发现，通过排燃料盐；在套管里注入中子毒物，包括$NaBF_4$-NaF、LiF-BeF_2、LiF-ThF_4；改变燃料盐成分，包括往燃料盐添加BF_3、LiF-BeF_2-ZrF_4、LiF-ThF_4；改变石墨栅元数都能使反应堆停堆。熔盐堆可用于停堆的方式较多，往套管中注入中子毒物是在控制棒失效的情况下很好的替换停堆方式；特别是排燃料盐和改变燃料盐成分是熔盐堆特有的停堆方法。

参考文献

1 Bettis E S, Schroeder R W, Cristy G A, *et al*. The aircraft reactor experiment-design and construction[J]. Nuclear Science and Engineering, 1957, **2**: 804−825.

2 Haubenreich R C. MSRE design and operations report Part I description of reactor[R]. ORNL-TM-728, Tennessee, America: ORNL, 1965.

3 Haubenreich P N, Engel J R, Prince B E, *et al*. MSRE design and operations report Part III nuclear analisis[R]. ORNL-TM-730, Tennessee, America: ORNL, 1964.

4 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.
JIANG Mianheng, XU Hongjie, DAI Zhimin. The future of advanced nuclear fission energy − TMSR nuclear energy systems[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2012, **27**(3): 366−374.

5 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.
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 Pelowitz D B. MCNP6TM user's manual[R]. Los Alamos, NM, USA: Los Alamos National Laboratory, LA-CP-13-00634, 2013.

7 于世和, 刘亚芬, 杨璞, 等. 熔盐实验堆堆芯结构变化对反应性的影响分析[J]. 核技术, 2019, **42**(2): 020603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.020603.
YU Shihe, LIU Yafen, YANG Pu, *et al*. Effect analysis of core structure changes on reactivity in molten salt experimental reactor[J]. Nuclear Techniques, 2019, **42**(2): 020603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.020603.

8 Yan R, Yu S H, Zou Y, *et al*. Study on neutronics design of ordered-pebble-bed fluoride-salt-cooled high-temperature experimental reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, **29**(6): 81. DOI: 10.1007/s41365-018-0414-0.

9 Boustani E, Hassanzadeh M. Neutronic design investigation of a liquid injection-based second shutdown system for a typical research reactor using MCNPX[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, **29**(3): 33. DOI: 10.1007/s41365-018-0372-6.

10 Koger J W. Corrosion and mass transfer characteristics of $NaBF_4$-NaF (92~0.8 mol%) in hastelloy n[R]. ORNL-TM-3866, Tennessee, America: ORNL, 1972.

11 Shaffer J H, Grimes W R, Watson G M. Boron trifluoride as a soluble poison in molten salt reactor fuels[J]. Nuclear Science and Engineering, 2017, **12**: 337−340.