

2 MW 熔盐实验堆钍利用与转化特性研究

陈 鹏^{1,2} 周 波¹ 严 睿¹ 邹 杨¹

1(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

2(中国科学院大学 北京 100049)

摘要 熔盐堆是钍资源核能利用的理想堆型,而燃料的钍(Th)含量会影响堆中子学特性和钍铀转换性能。基于MCNP(Monte Carlo N Particle Transport Code)和MOBAT(burnup code coupled with MCNP and ORIGEN2 using BATCh language)程序分析了2 MW(热功率)熔盐实验堆不同Th添加量满功率运行300 d的钍铀转换及堆中子学特性。结果表明:Th消耗率随添加量增加而减小。Th转化率随Th添加量增加而增大,但增长率逐渐减小。²³³Th浓度达到最大值的速率与Th的质量呈线性关系,²³³Pa与²³³Th的变化趋势一致。Th装量越高,生成的²³³U的浓度也越高,²³³U的积累量随运行时间不断增加。Th装量越大,需添加的²³⁵U越多,¹³⁵I浓度增加会增加Xe的平衡浓度。Th装量越大,中子能谱越硬,²³³U产量越高,意味着在快中子能谱下更易实现转换或增殖。80 kg Th运行4 d即可满足放化检测限。基于钍铀转化数据、反应性需求、放化检测限等因素综合考虑,实验堆可开展几十至百公斤级的Th利用与钍铀循环验证实验。

关键词 钍消耗率, 钍铀链, 钍铀转换, 中子能谱, 增殖

中图分类号 TL27

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.100602

Study on thorium utilization and conversion in 2 MW liquid molten salt reactor

CHEN Peng^{1,2} ZHOU Bo¹ YAN Rui¹ ZOU Yang¹

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

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract [Background] Thorium-uranium fuel cycle has the advantages of making use of abundant thorium resources, producing less nuclear waste and low toxicity, as well as nuclear non-proliferation. Molten salt reactor is an ideal type of nuclear energy utilization of thorium resources. The amount of thorium added in the core fuel can affect the thorium-uranium conversion performance in the molten salt reactor. [Purpose] This study aims to understand the effect of thorium addition on the conversion performance of thorium and uranium in molten salt reactor. [Methods] Based on MCNP (Monte Carlo N Particle Transport Code) program, the core physical model was established. The neutron physical characteristics and thorium-uranium conversion characteristics of 2 MW (thermal power) liquid fuel experimental reactor under different thorium additions running at full power for 300 days were

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)、上海市自然科学基金(No.19ZR1468000)资助

第一作者: 陈鹏, 男, 1992年出生, 2015年毕业于湖北大学, 现为硕士研究生, 研究领域为反应堆物理

通信作者: 严睿, E-mail: yanrui@sinap.ac.cn; 邹杨, E-mail: zouyang@sinap.ac.cn

收稿日期: 2020-01-20, 修回日期: 2020-04-20

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), Shanghai Natural Science Foundation (No.19ZR1468000)

First author: CHEN Peng, male, born in 1992, graduated from Hubei University in 2015, master student, focusing on the field of reactor physics

Corresponding author: YAN Rui, E-mail: yanrui@sinap.ac.cn; ZOU Yang, E-mail: zouyang@sinap.ac.cn

Received date: 2020-01-20, revised date: 2020-04-20

analyzed by using MOBAT (burnup code coupled with MCNP and ORIGEN2 using BATCh language) burnup program. Analysis objectives included the energy spectrum changes at the beginning and the end of burnup, Xe equilibrium, as well as the consumption ratio and transfer characteristics, and the evolution of important nuclides in thorium uranium chain. **[Results]** The results show that the consumption rate of thorium decreases with the increase of added amount. CR raises with the increase of Thorium addition, but the growth rate decrease gradually. The rate at which ^{233}Th concentration reaches the maximum value is linearly related to the thorium mass, and the ^{233}Pa has the same evolution trend as the ^{233}Th . The higher the thorium content in the fuel, the higher the concentration of ^{233}U , and the accumulation of ^{233}U increases with the running time. Based on the radiochemical detection limit, 80 kg thorium can meet the minimum detection value after 4 days. **[Conclusions]** Based on the data of thorium-uranium conversion, the amount of uranium fuel needed to maintain the back-up reactivity, the limit of radiochemical detection and other factors, the experimental reactor can carry out the utilization of thorium in the order of tens to hundreds of kilograms and the verification experiment of Thorium-Uranium cycle, with the priority of about 80 kg. In addition, the more thorium was added, the more Uranium needed to be added. The increase of ^{135}I concentration will increase the equilibrium concentration of Xe. The more thorium is added, the harder the neutron spectrum and the higher the ^{233}U output will be, which means that it is easier to achieve transformation or proliferation under the fast neutron spectrum.

Key words Consumption rate, Thorium-uranium chain, Thorium-uranium conversion, Neutron energy spectrum, Proliferation

熔盐堆源自于美国核动力太空飞行器实验装置^[1-2](Aircraft Reactor Experiment, ARE),于1954年成功运行并维持了100 h,首次证明了熔盐堆的可行性。基于ARE的研究基础,美国橡树林国家实验室(Oak Ridge National Laboratory, ORNL)开展了熔盐实验堆^[3](Molten-Salt Reactor Experiment, MSRE)的研发。MSRE采用FLiBe作为燃料载体盐,在1964年该反应堆实现临界并运行了4.5 a,进一步证明了熔盐堆的安全性与可靠性。之后,ORNL进行了1 GW 钍基熔盐增殖堆^[4](Molten-Salt Reactor Breeding Reactor, MSBR)的研究,并完成了相关概念设计报告,相比于MSRE,MSBR实现了热谱下的Th-U燃料增殖,但好景不长,受政治与经济等因素影响,MSBR项目于1976年被终止。除了美国外,其他国家也对熔盐堆进行了相关研究。法国国家科学院(Centre National de la Recherche Scientifique, CNRS)在对MSBR的评估基础上,提出了无石墨慢化的熔盐熔盐快堆(Molten Salt Fast Reactor, MSFR)概念^[5-7]。俄罗斯的MOSART^[8-9](Molten Salt Actinide Recycler and Transforming System)也给出了用于次锕系元素(Minor Actinides)嬗变或者核燃料增殖等不同需求目标下的熔盐堆概念设计。熔盐堆作为第四代反应堆论坛六种候选堆型中唯一的液态燃料反应堆^[10],其在固有安全性、经济性、核燃料可持续发展及防止核扩散等方面具有独特优势^[11]。此外,由于使用液态燃料和在线处理燃料的可能,十分有利于开展钍的利用。

2011年,中国科学院瞄准核能领域国家重大战

略需求,启动了“未来先进核裂变能——钍基熔盐堆核能系统”战略性先导科技专项^[12],正建设一座2 MW的液态燃料钍基熔盐实验堆(Thorium Molten Salt Reactor-Liquid Fuel)。2 MW实验堆其设计方案为热中子堆,建造旨在验证一种熔盐堆核能系统设计方案的可行性、稳定性及安全特性。由于该方案为热中子谱实验堆,设计功率较小,不具备大规模用钍及钍铀增殖的能力,但在现有设计方案的基础上,可以进行钍铀转换实验验证,开展相关理论分析及放化取样检测分析方法的验证,后续为高功率钍铀增殖堆的设计研发提供技术支撑。钍铀转换相关验证实验希望对现有物理设计影响较小,且同时需满足放射化学对 ^{233}U 核素取样检测的限要求。因此,本文对不同Th添加量情况下 ^{233}U 产量进行了分析,同时分析了不同Th添加量对转换系数(Conversion Ratio, CR)、 ^{233}U 初始装载量、中子能谱及钍铀链重要核素等物理参数的影响。

1 计算模型

TMSR-LF1的堆芯等效布局如图1所示,由内向外主要包括堆芯活性区、上腔室、下腔室、石墨反射层以及堆芯围桶。表1为堆芯主要设计参数。

熔盐实验堆的堆芯(图1)堆芯是由一个直径为230 cm、高为260 cm的石墨圆柱体构成,该圆柱体内均匀分布着256个燃料盐流道,流道直径为4 cm,中心距为10 cm,长度为180 cm。同时,在整个燃料流道群体顶部和底部分别留有直径为184 cm、高为10 cm的上、下腔室。整个堆芯内的燃料盐流经区

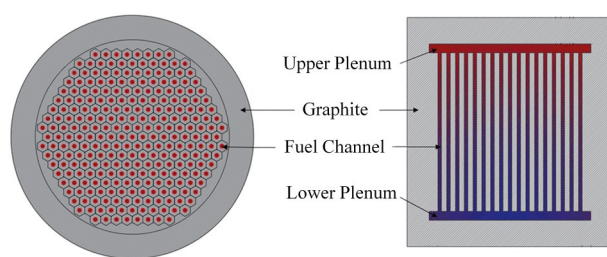


图1 堆芯计算模型
Fig.1 Calculation model of reactor core

表1 堆芯设计参数
Table 1 Design parameters of reactor core

主要参数 Main parameters	数值 Values
热功率 Thermal power	2 MW
燃料盐温度入口/出口 Fuel salt temperature inlet/outlet	630 °C/650 °C
⁷ Li 丰度 ⁷ Li abundance	99.95 at%
²³⁵ U 富集度 ²³⁵ U enrichment	19.75 wt%
石墨密度 The density of graphite	1.86 g·cm ⁻³
堆芯尺寸 Core size	Ø230 cm×260 cm
燃料流道 Fuel channel	Ø4 cm×180 cm
燃料流道中心距 Fuel channel center distance	10 cm
上、下腔室 Upper and lower chambers	Ø184 cm×10 cm
燃料盐体积 Total volumes of fuel salt	1.12 m ³

域由三部分组成:上腔室、下腔室和由256个燃料流道组成的管道区域。堆芯的其他区域为石墨。

TMSR-LF1 采用铀燃料运行。熔盐的准备分为三种:

基 盐 : $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4$ (65.0%-30.0%-5.0%, 摩尔比);

添加盐: LiF-UF_4 (72%-28%, 摩尔比);

目标盐: $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ 。

堆芯采用液态燃料,熔盐燃料的成分为 $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ 。钍的添加方式与铀相同,即通过添加 LiF-ThF_4 来验证堆中钍的利用与转化性能。在进行钍的添加时,不改变反应堆的运行安全,即热功率维持在 2 MW,加钍的同时添加盐来维持初始后备反应性,整个堆芯的初始中子有效增殖系数 k_{eff} 维持

在 1.02 ± 0.005 。此外,考虑到重金属的溶解度,添加钍和铀时,堆内重金属摩尔含量维持在 12% 的定值^[13]。

2 分析方法

采用 MCNP5 程序^[14]进行堆芯建模进行堆中子物理计算分析,然后基于 MOBAT (burnup code coupled with MCNP and ORIGEN2 using BATCh language)耦合程序进行燃耗分析,计算钍铀循环链条各核素的产额。MCNP5 是美国 Los Alamos 实验室应用物理理论物理部蒙特卡罗小组研制的可用于计算中子、光子、中子-光子耦合以及光子-电子耦合的能处理复杂三维几何结构的粒子输运多功能蒙特卡罗程序。MCNP5 的通用性很强,不受几何结构的限制,并且采用连续点截面计算,不需要对特殊堆型做能群结构处理,是反应堆中子物理分析的通用软件。

同时,为了计算燃耗,本文采用了基于 MCNP5 和 ORIGEN2^[15] 耦合的燃耗程序 MOBAT。ORIGEN2 是橡树岭国家实验室开发的一款采用矩阵指数法计算燃耗、衰变和材料放射性处理的软件。MOBAT 中,燃耗方程由 ORIGEN2 来求解,单群截面和中子通量则通过 MCNP5 软件及功率方程求解。MOBAT 的功能包括但不限于:可以通过缩短燃耗步长来修正由于单群截面近似存在的误差^[16-17];MOBAT^[18] 程序已经通过热堆、快堆多个基准题的验证,并且用于氟盐冷却球床高温堆、氟盐冷却板状高温堆和固态燃料熔盐冷却快堆的设计和優化^[19-20]。MOBAT 将一个燃耗步长分为 12 等分,基本可以避免因燃耗步长带来的 ORIGEN2 计算误差现象;MOBAT 程序可以允许用户通过自己的选取标准来添加和删减核素等。MCNP5 与 ORIGEN 耦合的基本思路是:通过 MCNP5 计算,求出各个区间的中子通量(或功率)、单群截面;将各个区的中子通量(功率)、单群截面和核素成分做为 ORIGEN2 的输入参数,给定燃耗步长运行 ORIGEN2,再把 ORIGEN2 计算得到的各个区间核素成分返回至 MCNP5 中,以此完成一个时间步长内的燃耗耦合计算。设计流程图^[17]见图 2,左边三项为输入参数,右边两项为输出结果,中间为代码,其中 n 为堆芯燃耗划分的区域数, N 为用户设定的燃耗步长数。代码内容主要为输入和输出文件格式的转换以及数据处理。燃耗计算的准确性直接体现在数据的设置和处理上。

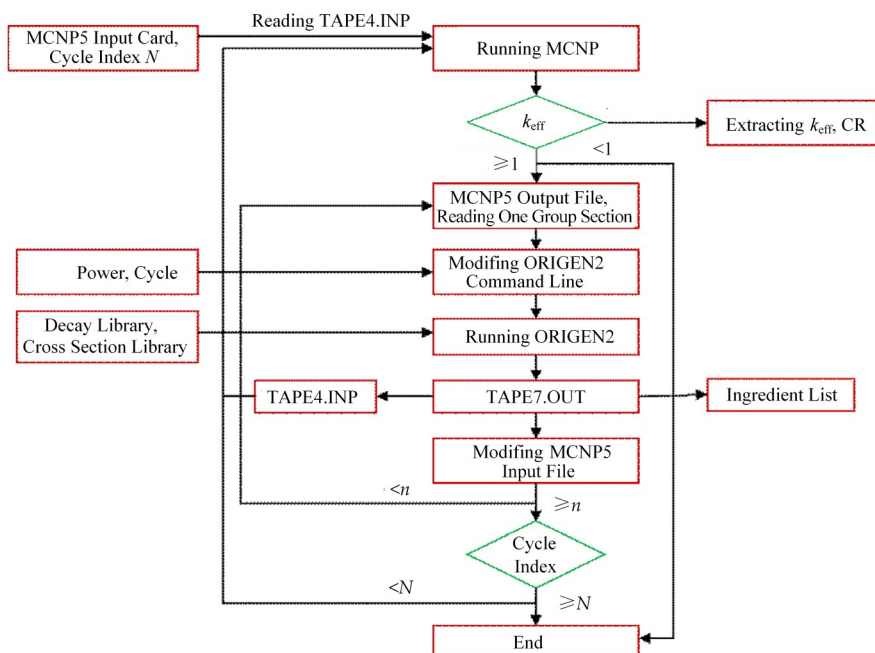


图2 MOBAT 设计流程图
Fig.2 MOBAT design flow chart

3 结果与讨论

3.1 Th的消耗率分析

实验堆的运行目标为等效满功率运行 300 d (300EFPD)。为了分析燃料中 Th 添加量的大小对 Th 消耗率的影响, 首先计算了 1 kg、10 kg、20 kg、50 kg、100 kg、200 kg、500 kg、1 000 kg 在堆芯中满功率运行 300 d 时的燃耗变化。Th 的消耗率 m 定义如式(1)所示, 其中 M_t 为寿期末消耗掉的 Th 质量, M_0 为寿期初的 Th 质量。Th 相对消耗率 m_Δ 的定义如式(2)所示, 表示不同质量 Th 添加量下寿期末的消耗率相比于 Th 添加量为 1 kg 时寿期末 Th 消耗率的百分比变化, 其意义在于可以直观地反映不同质量 Th 添加量对 Th 消耗率变化的趋势; 其中: $m_{1\text{kg}}$ 为 Th 添加量是 1 kg 寿期末时消耗量, $m_{n\text{kg}}$ 为 Th 添加量在不同质量下寿期末单位质量 Th 的消耗量:

$$m = \frac{M_t}{M_0} \quad (1)$$

$$m_\Delta = \frac{m_{1\text{kg}} - m_{n\text{kg}}}{m_{1\text{kg}}} \quad (2)$$

图3为Th的消耗曲线和相对消耗率变化率曲线。从图3可知, 当燃料中Th添加量在100 kg时, m_Δ 为17.53%即100 kg时Th的消耗率相比于1 kg时的消耗率下降了17.53%; 当燃料中Th添加量为200 kg时, m_Δ 为35.94%即200 kg时Th消耗率相比于1 kg时Th的消耗率已经下降了35.94%。两条曲线分别随着Th装载量呈下降和上升趋势, 并在

200 kg 附近相交。为了维持较高的Th消耗率和相对消耗率, 燃料中的Th用量选取在200 kg 以内较为适宜。

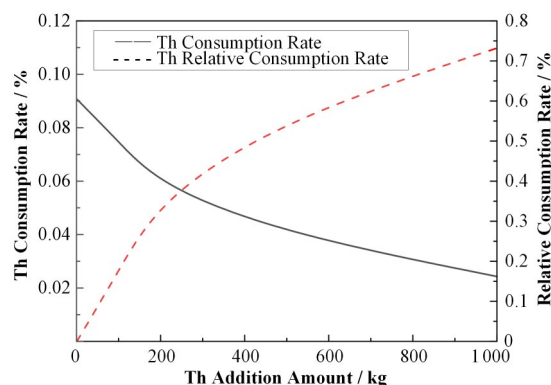
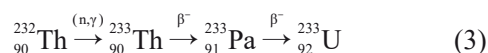


图3 Th的消耗率曲线与Th的相对消耗率曲线
Fig.3 Th consumption rate curve and relative consumption rate curve

3.2 核燃料转换比分析

燃料转换比CR (Conversion Ratio) 可以用来衡量反应堆的易裂变核素转换能力, CR的定义为易裂变核的生成率与消耗率的比值。燃料中重金属组分主要包含 ^{232}Th 、 ^{235}U 、 ^{238}U 等核素, 在进行转换比CR计算时, 需要在考虑Th-U循环的同时考虑U-Pu循环。

其中, 钍铀循环链为:



铀钍循环链为:

相关贝特曼方程为：

$$\frac{dN(t)}{dt} = -N(t)\sigma_{(n,\gamma)}\Phi - N(t)\sigma_{(n,2n)}\Phi - \lambda N(t) \quad (6)$$

在热中子能谱下， $(n, 2n)$ 反应可忽略不计； ^{232}Th 的半衰期为 $1.41 \times 10^{10} \text{ a}$ ，在几百天的时间尺度范围内，衰变导致的消失可以忽略不计。因此，方程的解可以简化为：

$$N(t) = N_0 e^{\sigma_{(n,\gamma)}\Phi t} \quad (7)$$

从方程解可知， ^{232}Th 的浓度随时间是按指数关系下降，图7给出了4组Th添加量的 ^{232}Th 随时间的变化曲线。从图7可以看出，4组实验组中的 ^{232}Th 浓度均随时间逐渐变小，在对数坐标下呈线性变化，实验结果与理论一致。

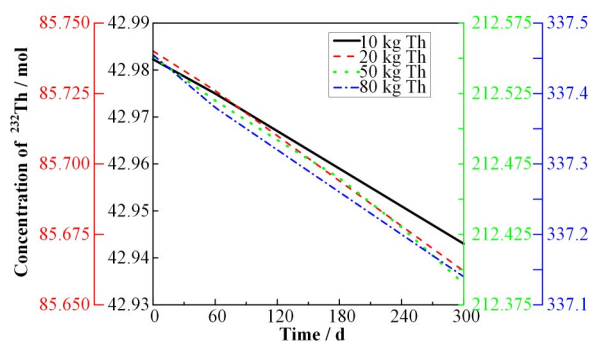


图7 不同Th添加量下 ^{232}Th 随时间的变化
Fig.7 ^{232}Th changes with time under different Th addition amounts

图8(a)为不同Th添加量下产生的 ^{233}Th 浓度随时间的变化。由图8可知：

1) 4组 ^{233}Th 的浓度均在60 d左右达到最大值，初始Th添加量越大，产生的 ^{233}Th 量越大，其中添加80 kg Th时，满功率运行60 d时， ^{233}Th 每摩尔的浓度含量可以达到 1.85×10^{-5} 。

2) ^{233}Th 产生的速率和平衡浓度与堆芯燃料中Th的质量呈线性关系。主要原因是 ^{233}Th 的产生途径是 ^{232}Th 的俘获反应 (n, γ) ，与之相关的宏观俘获截面为 $\Sigma_{\gamma} = N\sigma_{\gamma}$ ，其中 N 为靶核密度，堆芯燃料中Th含量越高，靶核密度越大，发生俘获反应的几率越高，生成的 ^{233}Th 也就越多，而 ^{233}Th 的消失途径源于其自身的 β 衰变，与截面无关。

3) ^{233}Pa 与 ^{233}Th 的变化趋势一致，这是因为 ^{233}Pa 的来源主要由 ^{233}Th 的 β 衰变产生， ^{233}Th 的浓度越高，生成的 ^{233}Pa 浓度也越高；而 ^{233}Pa 的消失途径虽然有 $(n, 2n)$ 反应、 (n, γ) 反应，但是这两种反应截面比其自身的 β 衰变小太多，所以消失项还是以自身的 β 衰变为主，其宏观截面的贡献极小。

^{233}U 产量是衡量熔盐堆转换性能的一个重要指标。图9为不同Th添加量下 ^{233}U 浓度随时间的演化

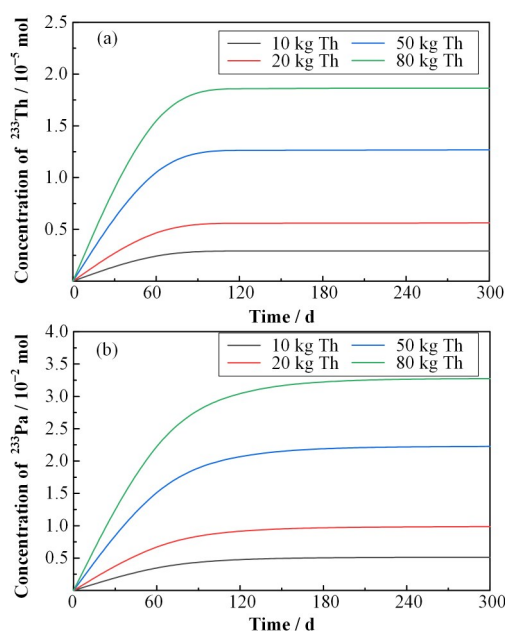


图8 不同Th添加量下 ^{233}Th (a)和 ^{233}Pa (b)的产量演化曲线
Fig.8 ^{233}Th (a), ^{233}Pa (b) changes with time under different Th addition amounts

化。由图9可知：

1) 堆芯中产生的易裂变核素 ^{233}U 的浓度也是由燃料中Th的质量决定的。燃料中的Th装量越高，生成的 ^{233}U 的浓度也越高；

2) ^{233}U 的积累量随满功率运行的时间而不断增加。 ^{233}U 的产生主要靠 ^{233}Pa 的 β 衰变，因此 ^{233}Pa 的浓度越高，产生的 ^{233}U 也越高。但与 ^{233}Th 、 ^{233}Pa 浓度变化趋势不同， ^{233}U 浓度并没有达到平衡，在300 d满功率运行的过程中， ^{233}U 的浓度不断增加。 ^{233}U 的消失主要由三个反应道贡献，即 (n, α) 反应、 (n, γ) 俘获反应、 (n, f) 裂变反应，其中 (n, f) 裂变反应的截面远大于其他两个反应，占据其消失项目的最主要份额。此外， ^{233}U 的自身衰变也会导致其含量的下降，但由于其半衰期为 $1.59 \times 10^5 \text{ a}$ ，相对于核反应，该项影响可以忽略不计。

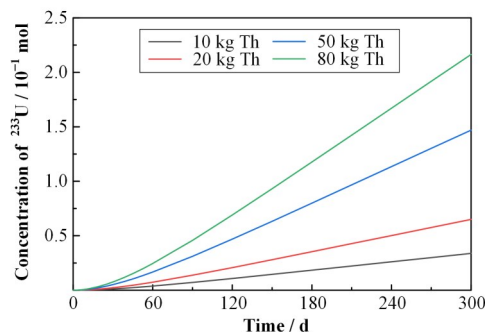


图9 不同Th添加量下 ^{233}U 浓度随时间的演化
Fig.9 ^{233}U concentration with time under different Th addition amounts

在进行钍铀循环的验证实验时,燃料盐中放射性核素的检测限是需要满足实验验证的最低要求。表2为不同Th质量 ^{233}U 在不同寿期的具体浓度数值。以放化检测限 30×10^{-9} 为指导,则80 kg Th经过4 d即可满足最低检测值,10 kg Th也只需要运行10 d即可检出。

表2 ^{233}U 浓度变化
Table 2 Change in the concentration of ^{233}U

时间 Time / d	10 kg Th / 10^{-9}	20 kg Th / 10^{-9}	50 kg Th / 10^{-9}	80 kg Th / 10^{-9}
1	0.33	0.63	1.43	2.10
4	5.30	10.21	23.07	33.95
4.5	6.69	12.88	29.11	42.84
7	15.91	30.65	69.26	101.93
10	31.75	61.15	138.19	203.37
300	6 999.92	13 469.78	30 452.26	44 847.47

3.4 钍对中子学特性的影响

在热中子反应堆中, ^{135}Xe 是裂变产物中最关键的中子毒物^[21],主要是因为它的热中子吸收截面非常大,在中子能量为0.025 eV时, ^{135}Xe 的微观吸收截面为 2.7×10^6 b,另一方面,其先驱核 ^{135}I 等的直接裂变产额很高,他们经过 β 衰变后便形成了 ^{135}Xe ,综合起来 ^{135}Xe 的裂变产额就变得相当可观,造成反应性的震荡,不容忽视。反应堆功率运行初始, ^{135}I 与 ^{135}Xe 的浓度均为零。当反应堆在 $t=0$ 时刻启动,并且很快达到满功率,那么 ^{135}I 和 ^{135}Xe 的浓度是随着运行时间不断增加;其中 ^{135}I 浓度的增加是由于 ^{235}U 等裂变核素裂变产生,其消失项有两方面:即自身的衰变与吸收中子形成的新核。 ^{135}Xe 浓度的增加来自两个方面,裂变核直接裂变和 ^{135}I 的衰变。 ^{135}Xe 浓度的减少与 ^{135}I 类似,自身衰变和吸收中子形成新的核素。当 ^{135}I 或 ^{135}Xe 核的产生率正好等于其消失率时, ^{135}I 或 ^{135}Xe 的浓度达到了平衡。

在Th的利用与转化分析的基础上,为了得到Th对反应堆中子学特性的影响,分析了燃料中不同Th添加量对Xe毒和中子能谱的影响,主要包含Th添加量分别为10 kg、20 kg、50 kg、80 kg的Xe平衡浓度分析和满功率运行300 d时,不同寿期的能谱变化。在中子能量为0.025 eV时, ^{135}Xe 的微观吸收截面达到 2.7×10^6 b左右。因此必须认真考虑 ^{135}Xe 中毒带来的影响。虽然在裂变时, ^{135}Xe 的直接裂变产额不高,但是其先驱核 ^{135}I 等的直接裂变产额很高,他们经过 β 衰变后便形成了 ^{135}Xe ,综合起来 ^{135}Xe 的裂变产额就变得相当可观,不容忽视。图10为不同Th添加量对 ^{135}Xe 平衡浓度的影响曲线。由图10可知,实验堆在36 h左右, ^{135}Xe 浓度达到平衡。燃料

中Th添加量会对氙平衡浓度带来一定影响,料中Th添加量变大, ^{135}Xe 平衡浓度随之变大,幅度在每10 kg增加0.35%左右,80 kg Th对氙平衡浓度影响百分比为2.20%。主要原因为燃料中Th添加量变大的同时,为了满足有效增殖因数在1.02, ^{235}U 的初始装载量也变大, ^{135}Xe 的先驱核 ^{135}I 浓度也会增加。

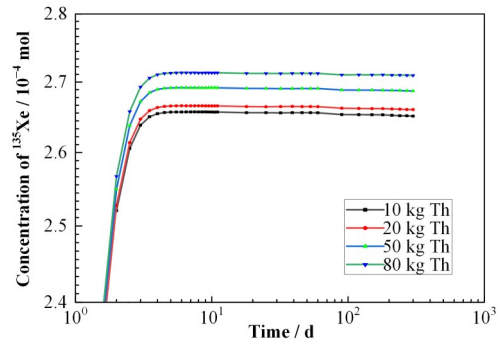


图10 不同Th添加量对 ^{135}Xe 平衡浓度的影响
Fig.10 Effects of different Th addition on ^{135}Xe equilibrium concentration

反应堆中子能谱的变化会引起堆内相关核素中子截面的变化,进而对反应堆内相关物理参数产生影响。图11为不同钍的添加量对堆芯中子能谱的影响。图11(a)为燃料中80 kg Th添加量时,整个运

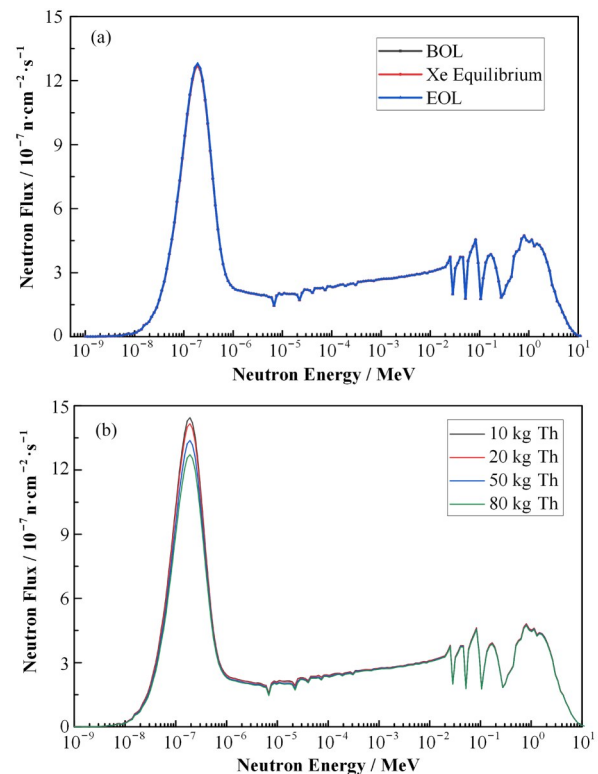


图11 Th添加量对堆芯中子能谱的影响
(a) 添加80 kg Th不同寿期, (b) 不同Th添加量寿期末
Fig.11 The effect of Th addition on the neutron spectrum in the core
(a) Add 80 kg Th with different life cycle, (b) Different amount of Th at end of life

行过程中寿期初、 ^{135}Xe 平衡时、寿期末三个时刻的中子能谱,能谱为热谱,且在整个300 d满功率运行过程中,没有显著差异。

图11(b)为不同Th添加量下的寿期末中子能谱分布。从图11(b)可知,不同的Th添加量满功率运行300 d寿期末,对应的中子能谱在中高能量区域变化较小,但在低能区,随着燃料中的Th添加量增大,通量降低,能谱变硬。其原因在于, ^{232}Th 在低能区有较大的吸收截面,当堆芯中的Th添加量变大时,其宏观吸收截面随之变大,吸收中子数增加,导致低能区的中子份额减少,高能区的中子份额相对的增多,能谱变硬。

4 结语

在维持实验堆初始后备反应性不变的情况下,根据反应堆物理特性、Th的利用需求及钍铀循环实验验证的检测限,选取了Th添加量实验组:10 kg、20 kg、50 kg、80 kg,通过用MCNP建立实验堆的物理模型,MOBAT燃耗计算程序,分析了不同Th添加量时的Th消耗率、转化特性、以及Th对堆中子物理的影响,得出了以下结论:

1)Th消耗率随着Th添加量增加不断减小。为了维持反应性不变,需要添加的U逐渐增加,当Th添加到200 kg时,为了维持反应性,U燃料需求已经超过初始值的两倍。

2)在Th的转化率CR随Th添加量增加不断增加,但增长率逐渐减小。 ^{233}Th 的浓度均在60 d左右达到最大值,初始Th添加量越大,产生的 ^{233}Th 量越大,达到最大值的速率与堆芯燃料中Th的质量呈线性关系。 ^{233}Pa 与 ^{233}Th 的变化趋势一致。

3)堆芯中产生的 ^{233}U 的浓度也由燃料中Th的量决定。燃料中的Th装量越高,生成的 ^{233}U 的浓度也越高, ^{233}U 的积累量随满功率运行的时间而不断增加。实验堆可以开展几十至百公斤量级的钍的利用及钍铀循环验证实验研究,推荐值可为80 kg。以放化检测限 30×10^{-9} 为基准,80 kg Th经过4 d即可满足最低检测值,10 kg Th需运行10 d可检出。Th添加量越多,产生的 ^{233}U 越多,越容易满足实验验证的检测需求。钍添加量越大,中子能谱越硬, ^{233}U 产量越高,意味着在快中子能谱下更易实现转化或增殖。

4)燃料中Th添加量会对氙平衡浓度带来一定影响,料中Th添加量变大,Xe平衡浓度随之变大,但主要原因为燃料中Th添加量变大的同时,为了满足初始后备反应性不变增加了U的初装量导致的 ^{135}I 浓度增加。

参考文献

- 1 Bettis E S, Cottrell W B, Mann E, *et al.* The aircraft reactor experiment operation[J]. Nuclear Science and Engineering, 1957, **2**(6): 841 – 853. DOI: 10.13182/NSE57-A35497.
- 2 Rosenthal M W, Kasten P R, Briggs R B. Molten-salt reactors: history, status, and potential[J]. Nuclear Applications and Technology, 1970, **8**(2): 107–117. DOI: 10.13182/nt70-a28619.
- 3 Haubenreich P N, Engel J R. Experience with the molten-salt reactor experiment[J]. Nuclear Applications and Technology, 1970, **8**(2): 118 – 136. DOI: 10.13182/NT8-2-118.
- 4 Robertson R C. Conceptual design study of a single-fluid molten-salt breeder reactor[R]. US: Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 1971. DOI: 10.2172/4030941.
- 5 Mathieu L, Heuer D, Merle-Lucotte E, *et al.* Possible configurations for the thorium molten salt reactor and advantages of the fast nonmoderated version[J]. Nuclear Science and Engineering, 2009, **161**(1): 78 – 89. DOI: 10.13182/NSE07-49.
- 6 Rouch H, Geoffroy O, Rubiolo P, *et al.* Preliminary thermal-hydraulic core design of the molten salt fast reactor (msfr) [J]. Annals of Nuclear Energy, 2014, **64**: 449–456. DOI: 10.1016/j.anucene.2013.09.012.
- 7 Brovchenko M, Heuer D, Merle-Lucotte E, *et al.* Design-related studies for the preliminary safety assessment of the molten salt fast reactor[J]. Nuclear Science and Engineering, 2013, **175**(3): 329 – 339. DOI: 10.13182/nse12-70.
- 8 Ignatiev V, Feynberg O, Gnidoi I, *et al.* Molten salt actinide recycler and transforming system without and with Th-U support: fuel cycle flexibility and key material properties[J]. Annals of Nuclear Energy, 2014, **64**: 408–420. DOI: 10.1016/j.anucene.2013.09.004.
- 9 Ignatiev V, Feynberg O, Gnidoi I, *et al.* Progress in development of Li, Be, Na/F molten salt actinide recycler & transmuter concept[C]. Nice Acropolis, France: ICAPP 2007 - International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, 2007.
- 10 US-DoE. A technology roadmap for generation IV nuclear energy systems[C]. Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum, 2002: 1–97. DOI: 10.2172/859029.

- 11 周波, 严睿, 邹杨, 等. 正常运行工况熔盐堆主回路衰变热特性研究[J]. 核技术, 2018, **41**(4): 040602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.040602.
ZHOU Bo, YAN Rui, ZOU Yang, *et al.* Analysis of decay heat in primary loop of molten salt reactor under normal conditions[J]. Nuclear Techniques, 2018, **41**(4): 040602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.040602.
- 12 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: 10.3772/j.issn.1673-6516.2016.05.021.
JIANG Mianheng, XU Hongjie, DAI Zhimin. Advanced fission energy program-TMSR nuclear energy system[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2012, **27**(3): 366–374. DOI: 10.3772/j.issn.1673-6516.2016.05.021.
- 13 于世和, 李晓晓, 刘亚芬, 等. 熔盐实验堆堆芯物理参数研究[J]. 核技术, 2019, **42**(3): 030604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.030604.
YU Shihe, LI Xiaoxiao, LIU Yafen, *et al.* Study on core physical parameters for molten salt experimental reactor [J]. Nuclear Techniques, 2019, **42**(3): 030604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.030604.
- 14 Team M C. MCNP-a general Monte Carlo N-particle transport code, version 5[R]. MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version, 2003. DOI: 10.1074/jbc.271.40.24922.
- 15 Croff A G. ORIGEN2: a revised and updated version of the Oak Ridge isotope generation and depletion code[R]. US: Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 1980. DOI: 10.2172/5352089.
- 16 余纲林, 王侃, 王煜宏. MCBurn-MCNP 和 ORIGEN 耦合程序系统[J]. 原子能科学技术, 2003, **37**(3): 250–254. DOI: 10.3969/j.issn.1000-6931.2003.03.014.
YU Ganglin, WANG Kan, WANG Yuhong. MCBurn-a coupling package of program MCNP and ORIGEN[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2003, **37**(3): 250–254. DOI: 10.3969/j.issn.1000-6931.2003.03.014.
- 17 Xu Z W, Hejzlar P. An improved MCNP-ORIGEN depletion program (MCODE) and its verification for high-burnup applications[C]. Seoul, Korea: International Conference on the New Frontiers of Nuclear Technology: Reactor Physics, Safety and High-Performance Computing, 2002.
- 18 Zhu G F, Yan R, Dai M, *et al.* Monte Carlo burnup code development based on multi-group cross section method [J]. Progress in Nuclear Energy, 2019, **110**: 24–29. DOI: 10.1016/j.pnucene.2018.09.003.
- 19 朱贵凤. 氟盐冷却球床高温堆钍利用研究[D]. 上海: 中国科学院上海应用物理研究所, 2015.
ZHU Guifeng. Investigation on thorium used in pebble-bed fluoride salt-cooled high temperature reactor[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Science, 2015.
- 20 彭玉. 固态燃料熔盐冷却快堆的钍铀增殖特性研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2017.
PENG Yu. Thorium breeding investigation of a solid-fuel fluoride-salt-cooled fast reactor[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2017.
- 21 Zhou B, Yu X H, Zou Y, *et al.* Study on dynamic characteristics of fission products in 2 MW molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2020, **31**(2): 17. DOI: 10.1007/s41365-020-0730-z.