

熔盐堆临界与⁷Li丰度变化的核安全分析

杨 震^{1,2,3} 戴志敏¹ 邹 杨¹ 姚永奎³

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)

3(生态环境部西北核与辐射安全监督站 兰州 730020)

摘要 熔盐堆是被国际上认可的6种第四代核反应堆类型之一,与常规固态核燃料堆型不同,熔盐堆使用液态核燃料,其临界安全分析考虑也有所不同。为做好堆芯设计管理和核安全监管工作,有必要对熔盐堆⁷Li丰度与核临界参数的关系进行分析。本研究通过参考具有工程实践的熔盐实验堆进行建模,运用软件仿真模拟计算分析了不同⁷Li丰度燃料盐对熔盐堆反应性的影响以及核临界参数变化的规律。通过迭代计算快速精确找到熔盐堆核临界时的⁷Li丰度值。计算结果表明:熔盐堆反应性随着燃料盐⁷Li丰度增加,且熔盐堆反应性变化率也与⁷Li丰度有关。在临界⁷Li丰度(即99.98%附近)时,⁷Li丰度每变化0.001%,反应性就变化大于0.05%。最后根据本研究的分析成果进行深入探讨,从法律法规角度总结相关管理要求,从审管角度提出应该关注的建议要点。

关键词 熔盐堆, 燃料盐, ⁷Li丰度, 核临界, 核安全

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.120603

CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2024.47.120603

Nuclear safety analysis of molten salt reactor criticality with changes in ⁷Li abundance

YANG Zhen^{1,2,3} DAI Zhimin¹ ZOU Yang¹ YAO Yongkui³

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

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

3(North-Western China Regional Office of Nuclear and Radiation Safety Inspection, National Nuclear Safety Administration, Lanzhou 730020, China)

Abstract [Background] Molten salt reactor (MSR) is one of the six internationally recognized and recommended fourth generation reactors, which is different from conventional solid-state nuclear fuel reactors. It is necessary to analyze the relationship between ⁷Li abundance and nuclear critical parameters in order to manage MSR core design and nuclear safety supervision. [Purpose] This study aims to model a molten salt reactor with reference to engineering practice, and analyze the impact of different ⁷Li abundance fuel salts on the reactivity of the MSR, as well as the changes in nuclear critical parameters by simulation. [Methods] Firstly, a MSR with engineering practice, i.e. the Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) designed by Oak Ridge National Laboratory (ORNL), USA, was

中国科学院战略性先导科技专项项目(No.XDA02010000, No.XDA22010501)、中国科学院前沿科学重点研究项目(No.QYZDY-SSW-JSC016)、上海市基础研究特区计划(No.JCYJ-SHFY-2021-003)资助

第一作者: 杨震, 男, 1987年出生, 2010年毕业于清华大学, 现为博士研究生, 研究领域为反应堆工程与技术及核安全监管

通信作者: 戴志敏, E-mail: daizhimin@sinap.ac.cn

收稿日期: 2024-07-15, 修回日期: 2024-08-15

Supported by the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (No.XDA02010000, No.XDA22010501), Key Research Projects of Frontier Science of Chinese Academy of Sciences (No.QYZDY-SSW-JSC016), Shanghai Basic Research Special Zone Plan (No.JCYJ-SHFY-2021-003)

First author: YANG Zhen, male, born in 1987, graduated from Tsinghua University in 2010, doctoral student, focusing on reactor engineering and technology and nuclear safety supervision

Corresponding author: DAI Zhimin, E-mail: daizhimin@sinap.ac.cn

Received date: 2024-07-15, revised date: 2024-08-15

referenced to establish MSR model with mass abundance of nuclear fuel salt ^{235}U assigned to 20% (enrichment of 20.2%) instead of the 33% enrichment designed by MSRE. Then, based on the established model, Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation (SCALE) code was applied to iterative calculation for quick and accurate obtaining of the ^7Li abundance value at the critical state of the MSR core. Finally, in-depth exploration of calculation results was conducted from the perspective of applicable laws and regulations for the safety analysis of MSR. **[Results]** Simulation results show that the reactivity of the MSR increases with the increase of fuel salt ^7Li abundance, and the rate of reactivity variation of the MSR is also related to ^7Li abundance. At the critical ^7Li abundance (i.e. around 99.98%), for every 0.001% change in ^7Li abundance, the reactivity changes by more than 0.05%. **[Conclusions]** Based on the analysis results of this study, the abundance of ^7Li has a significant impact on the k_{eff} of MSR, hence it is necessary to choose an appropriate ^7Li abundance for safety analysis of MSR criticality.

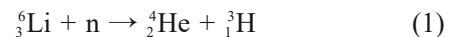
Key words Molten salt reactor, Fuel salt, Abundance of ^7Li , Nuclear criticality, Nuclear safety

熔盐堆与现有的轻水堆、重水堆和高温气冷堆等不同,其堆芯燃料可以为高温液态熔盐^[1]。高温液态熔盐可同时作为一回路的冷却剂。当堆芯处于常压运行时,使用石墨作为慢化剂^[2]。目前,国外熔盐堆具有实际功率负荷运行经验的只有美国橡树岭国家实验室(Oak Ridge National Laboratory, ORNL)的熔盐实验堆(Molten Salt Reactor Experiment, MSRE)。MSRE是一个8 MW(th)的反应堆^[3],其一回路初始临界状态燃料盐的组成为 $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ ^[4](摩尔配比为65%-29.1%-5%-0.9%)^[5],熔融的氟盐在922 K下循环通过石墨通道^[6],其目的在于用实践证明熔盐堆的关键特性^[7]。

本研究以MSRE模型为参考,根据《中华人民共和国核材料管制条例》,民用核材料 ^{235}U 质量丰度设计为最高值20%^[8],将模型核燃料盐 ^{235}U 的质量丰度设计为20%(富集度为20.2%),而不采用MSRE设计的33%富集度^[9],研究各核素中子微观吸收截面^[10](单位为 10^{-28} m^2)。处于常温20 °C(293.15 K)时,中子能量为0.025 3 eV;由 $T(\text{K}) = 1.16 \times 10^4 E_n(\text{eV})$ 可知,MSRE堆芯运行温度为922 K时,对应温度的中子能量为0.079 5 eV。定义 E_c 为分界能或缝合能,一般与堆芯中子的热平衡温度有关,通常把某个分界能量 E_c 以下的中子称为热中子。设常温下对应的缝合能为 E_{c1} ,MSRE堆芯正常运行时的温度对应的缝合能为 E_{c2} 。查美国国家核能数据中心(National Nuclear Data Center, NNDC)数据库可知,在 E_{c1} 以下作为热中子情况下, ^{19}F 的中子微观吸收截面为0.009 5 b, ^6Li 为938.041 b, ^7Li 为0.045 4 b, ^9Be 为0.009 2 b,天然Zr为0.158 b, ^{235}U 为680.9 b, ^{238}U 为2.70 b;查National Nuclear Data Center数据库并作线性插值,在 E_{c2} 以下作为热中子情况下,其微观吸收截面分别对应于 ^{19}F 为0.005 4 b, ^6Li 为529.822 b, ^7Li 为0.025 6 b, ^9Be 为0.005 7 b,天然Zr为0.104 b, ^{235}U 为338.2 b, ^{238}U 为1.53 b。熔盐堆作为

石墨慢化热中子反应堆^[10],其高能区近似为裂变中子谱^[11],慢化能区近似按 $1/E$ 规律变化,热能区近似为麦克斯韦谱^[12]。因此,除了 ^{238}U 在慢化能区内对中子有共振吸收及其多普勒效应之外,还有 ^6Li 在热能区内对中子吸收与 ^{235}U 形成的竞争关系等^[13]。 ^6Li 在热能区内中子吸收能力与 ^{235}U 的比值随温度的变化不大,在 E_{c2} 以下能谱范围的吸收截面比为1.38~1.57。

^6Li 中子吸收截面大,且在堆内吸收中子后会致氦产生量增加,影响反应堆临界装料量并增加流出物排放^[14]。其中,氦产生量与反应堆中子通量、堆芯 ^6Li 密度及堆运行时间有关。



理论上熔盐堆使用100%纯 ^7Li 更符合安全环保的要求,但天然锂中 ^7Li 丰度为92.41%, ^6Li 丰度为7.59%^[15],提纯 ^7Li 分离同位素成本较高,全世界年产能也只有吨级。目前的工业水平生产100%丰度纯 ^7Li 也是不现实的^[16]。因此,必须考虑熔盐堆燃料盐中 ^6Li 对反应性的影响,了解其安全特征和规律,有利于监管部门的审评许可和监督检查。

1 建模

燃料盐在堆芯内的温度设为648.9 °C,堆芯近似为圆柱体容器模型^[17],石墨以一定占比填充其中。对于液态燃料熔盐堆,中子慢化及核燃料裂变反应主要在石墨通道区域进行,且可以通过堆芯填充减少堆芯石墨结构外燃料盐的影响。由于燃料盐循环会带走一定的缓发中子核而减少临界反应性,且与流速及堆外管路长度有关,回路燃料盐流动对缓发中子影响而导致的反应性变化不计入 k_{eff} 计算是偏安全保守的^[18]。由于较强的温度负反馈,运行过程具有自调节的固有安全而不需过于考虑温度波动,本文主要基于首次装料和临界的情况进行计算,防止瞬时引入过多正反应性,再定性进行其他工况的

分析。因此本研究未考虑石墨堆芯外燃料盐的反应性、燃料盐流动缓发中子的影响、温度负反馈效应以及堆芯外石墨布置结构等,且以上影响因素与本文所关注的研究内容关系不大,但营运单位在具体工程设计和运行时需要进行详细考虑。

1.1 燃料盐参数

根据美国 MSRE 数据^[19], LiF-BeF₂-ZrF₄-UF₄ 燃料盐的密度约为 $2.26 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, 则^[11]:

$$\frac{0.65m_{\text{LiF}}N_0}{N_A} + \frac{0.291m_{\text{BeF}_2}N_0}{N_A} + \frac{0.05m_{\text{ZrF}_4}N_0}{N_A} + \frac{0.009m_{\text{UF}_4}N_0}{N_A} = 2.26 \times 10^6 \quad (2)$$

式中: N_A 为阿伏伽德罗常数 $6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$; m_{LiF} 、 m_{BeF_2} 、 m_{ZrF_4} 、 m_{UF_4} 分别为 LiF、BeF₂、ZrF₄、UF₄ 的分子量^[20]。计算可得阳离子总数 N_0 约为 $3.259 58 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ 。燃料盐所有阴离子与阳离子数的密度之和为:

$$N_{\text{sum}} = \sum_i N_i = 8.044 64 \times 10^{28} \quad (3)$$

1.2 堆芯几何参数

MSRE 的堆芯直径为 1.372 m, 慢化区高度为 1.626 m, 其中由 0.051 m 的正方形截面的石墨棒构造^[20], 如图 1 所示设计可放置 260 根石墨棒。则堆芯装载燃料盐质量为:

$$\begin{aligned} V_{\text{total}} &= \pi \left(\frac{D}{2} \right)^2 H = 3.14 \times 1.626 \times \left(\frac{1.372^2}{4} \right) = 2.40 \\ V_{\text{fuel}} &= \pi \left(\frac{D}{2} \right)^2 H - na^2 H = 1.626 \times \left(3.14 \times \frac{1.372^2}{4} - \right. \\ &\quad \left. 260 \times 0.051^2 \right) = 1.30 \\ m_{\text{fuel}} &= V_{\text{fuel}} \rho = 1.3 \times 2.26 \times 10^3 = 2 945 \quad (4) \end{aligned}$$

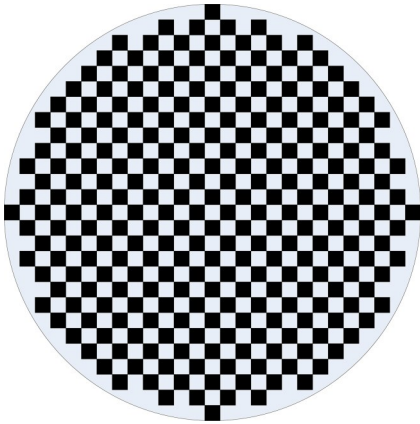


图1 MSRE堆芯截面示意图(黑色为石墨棒)
Fig.1 Layout of MSRE core cross-section (black is graphite rod)

式中: V_{total} 为堆芯总体积; D 为堆芯直径; H 为堆芯高度; a 为燃料盐通道直径或边长; V_{fuel} 为堆芯燃料盐体积; m_{fuel} 为堆芯燃料盐总质量; ρ 为燃料盐密度。根据中子慢化反射特征及安全保守性, 假设石墨与堆容器的内壁无缝贴合, 液态燃料盐只能经由石墨包围的内部孔道通过^[21]。首先以 MSRE 慢化区熔盐质量为参考^[22], 分析 225 孔道(孔道半径 3.4 cm)的反应性变化。由于熔盐堆与水堆不一样, 由石墨作为堆芯结构和燃料盐通道且石墨结构浸泡在燃料盐中, 缺少类似水堆的反射层, 中子泄漏率也比水堆高, 但作为非均匀堆却在逃脱共振吸收上具有优势^[23]。因此, 熔盐堆结构设计的关键在于石墨孔道直径和孔道间距的选取, 其次才是合适的堆芯高径比。为确保 20% 丰度 ²³⁵U 熔盐堆装料能够临界, 本研究设计堆芯直径为 2 m (原 MSRE 堆芯直径为 1.372 m), 堆芯燃料盐通道截面积为 0.80 m², 堆芯燃料盐装载体积为 1.3 m³ 即 2 945 kg, 其他参数不变。

因此, 为本文研究设计一个石墨堆芯, 类似于蜂窝煤结构。其中直径 D 为 2 m、高 H 为 1.626 m, 石墨结构的燃料盐流道半径为 0.033 7 m, 共 225 个这样的流道。每个流道与周围的石墨结构可以划分为边长为 0.093 4 m 的栅格, 如图 2 所示。

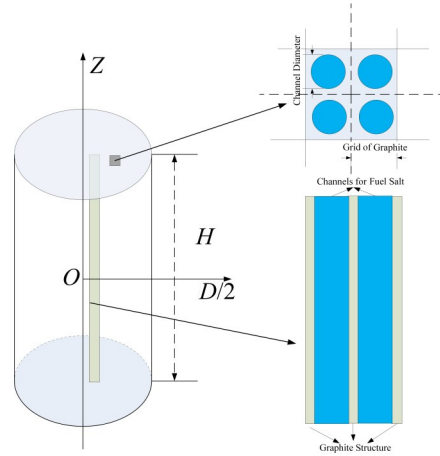


图2 堆芯及其燃料盐流道截面尺寸示意图
Fig.2 Diagram of cross section dimensions of porous channel core

通过设定⁷Li 丰度, 可以利用 SCALE6.1 (Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, SCALE) 计算对应的 k_{eff} 。该程序系统是由 ORNL 开发并维护的许可评估标准化计算机分析程序包, 主要用于反应堆物理分析、临界安全和辐射屏蔽计算等方面。它是一个根据多群截面三维蒙特卡罗中子输运理论设计的模块化程序系统。整个 SCALE 系统包含了数据库、截面处理程序、辐射输运程序及燃料燃耗和活化分析等功能, 通用中子反

应截面库包括 238-ENDF/B-V 和 44-ENDF/B-V 中子库, 本计算采用的是 238-ENDF/B-V 中子库。

在寻找 $k_{\text{eff}}=1$ 时的 ^7Li 丰度时, 若采用 0~1 逐点求值法, 工作量太大, 耗时长。因此, 本文创新应用迭代分段判定的方法, 逐步缩小 k_{eff} 的取值范围, 直至其处于所需结果的误差范围内。首先改变燃料盐 ^7Li 丰度, 其中 ^7Li 初始丰度设为 100%。以上述堆芯初始装料量及堆芯几何尺寸不变, ^7Li 丰度利用“黄金分割”逐点进行迭代逼近运算, 以 SCALE6.1 计算软件求出核临界条件下的 ^7Li 丰度。根据 SCALE6.1 针对该模型的每次临界分析计算结果可知, k_{eff} 标准差最大为 0.001 04, 因此判断收敛的误差限为 $|k_{\text{eff}}-1|<0.001$ 是合适的。设置循环次数最多为 15 次防止迭代错误而计算进入死循环, 其设置 ^7Li 丰度精度可达 10^{-6} 量级, 足够本文分析使用的精度。计算过程如图 3 所示。

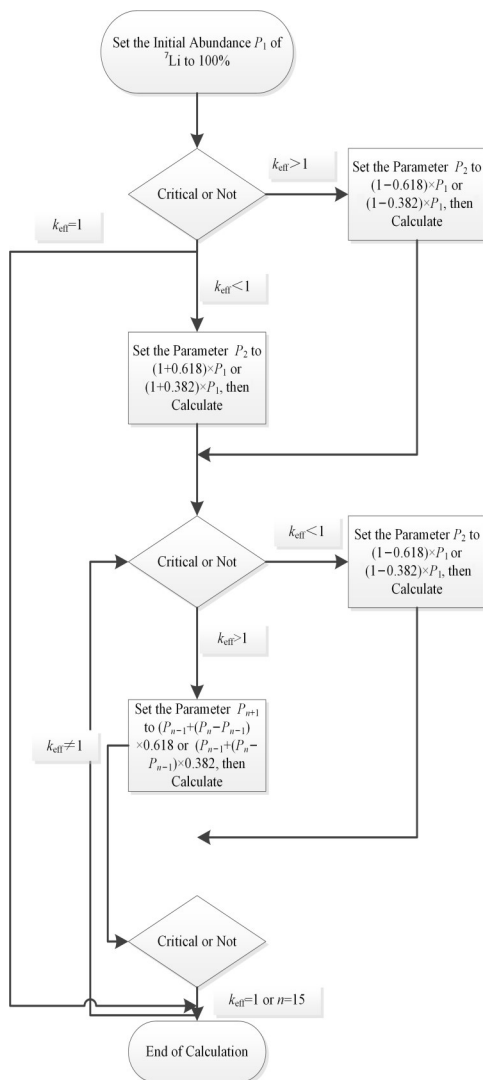


图3 临界计算迭代流程图

Fig.3 Flowchart of critical calculation iteration

2 ^7Li 丰度对装料铀浓度影响

已知天然 Li 中, ^7Li 丰度为 92.41%, ^6Li 丰度为 7.59%。则本研究设定 ^7Li 初始丰度上限为 100%、下限为 90% 来迭代变化, 使用 SCALE6.1 计算工具, 求有效增殖系数 k_{eff} , 计算可得基本参数如表 1 所示。

表1 MSRE 燃料盐核素配比及代码
Table 1 MSRE fuel salt nuclide ratio and code

核素 Nuclide	配比 Proportion	核子数 Nucleon number
F	1.468 0	19
Li	0.650 0	6, 7
Be	0.291 0	9
^{90}Zr	0.026 1	90
^{91}Zr	0.005 6	91
^{92}Zr	0.008 5	92
^{94}Zr	0.008 4	94
^{96}Zr	0.001 3	96
^{235}U	0.001 8	235
^{238}U	0.007 2	238

2.1 上限初始 ^7Li 丰度

100% 丰度 ^7Li 为本次研究上限计算值。可得当堆芯大小为直径 2 m、高 1.626 m、每一个孔道半径为 0.034 m 时, k_{eff} 为 1.075, 足以使其临界。此时, 燃料盐总装料体积为 1.30 m^3 、总质量为 2 938 kg, 堆芯总铀质量为 150 kg, 总 ^{235}U 质量为 30 kg。计算如表 2 所示。

表2 100% 丰度 ^7Li 的 k_{eff}
Table 2 k_{eff} with 100% abundance of ^7Li

项目 Items	数值 Value
迭代次数 Iterations	0
迭代系数 Iterative parameter	1.000 0
堆芯高度 Core height / m	1.630 0
堆芯半径 Core radius / m	1.000 0
孔道半径 Channel radius / m	0.033 7
栅格半宽 Grid half width / m	0.046 7
窗格半宽 Window half width / m	0.700 0
燃料盐体积 Fuel volume / m^3	1.30
燃料盐质量 Fuel mass / t	2.94
总铀质量 Uranium mass / kg	150
k_{eff}	1.075
标准差 Standard deviation	0.001 02

2.2 下限初始 ^7Li 丰度

90% 丰度 ^7Li 为本次下限计算值。此时, k_{eff} 为 0.074。计算如表 3 所示。

2.3 历次迭代 ^7Li 丰度

根据图 3 计算方法, 进行第一次迭代计算。 ^7Li

表3 90%丰度⁷Li的 k_{eff}
Table 3 k_{eff} with 90% abundance of ⁷Li

项目 Items	数值 Value
迭代次数 Iterations	0
⁷ Li 丰度 Abundance of ⁷ Li / %	90
⁷ Li 配比 Proportion of ⁷ Li	0.585 0
⁶ Li 配比 Proportion of ⁶ Li	0.065 0
k_{eff}	0.074
标准差 Standard deviation	0.000 07

丰度为 P_1 时, $k_{\text{eff}}=1.075>1$;而⁷Li 丰度为 P_2 时, $k_{\text{eff}}=0.074<1$ 。取迭代系数(丰度) $P_3=P_2+0.618\times(P_1-P_2)=0.962$,此时, k_{eff} 为0.120。

进行第2次迭代计算。因⁷Li 丰度为 P_1 时, $k_{\text{eff}}=1.075>1$;而⁷Li 丰度 $P_3=96.2\%$ 时, $k_{\text{eff}}=0.120<1$ 。取迭代系数(丰度) $P_4=P_3+0.618\times(P_1-P_3)=0.98541$,此时, k_{eff} 为0.203。

依次迭代(为方便比较,考虑数值差异,表4中的数据根据需要合理显示小数点后保留有效位数)。

表4 不同丰度⁷Li的 k_{eff}
Table 4 k_{eff} with different abundances of ⁷Li

迭代次数 Iterations	迭代系数 Iterative parameter	⁷ Li 丰度 Abundance of ⁷ Li / %	⁷ Li 配比 Proportion of ⁷ Li	⁶ Li 配比 Proportion of ⁶ Li	k_{eff}	标准差 Standard deviation
1	0.962 000	96.200 0	0.625 200	0.024 800	0.120	0.000 12
2	0.985 410	98.541 0	0.640 500	0.009 500	0.203	0.000 21
3	0.994 430	99.443 0	0.646 400	0.003 600	0.344	0.000 42
4	0.997 870	99.787 0	0.648 600	0.001 400	0.571	0.000 65
5	0.999 190	99.919 0	0.649 500	0.000 500	0.800	0.000 88
6	0.999 690	99.969 0	0.649 800	0.000 200	0.948	0.001 00
7	0.999 880	99.988 0	0.649 920	0.000 077	1.022	0.000 98
8	0.999 810	99.981 0	0.649 880	0.000 125	0.992	0.001 04
9	0.999 850	99.985 0	0.649 930	0.000 095	1.009	0.000 97
10	0.999 840	99.984 0	0.649 890	0.000 107	1.004	0.001 00
11	0.999 825	99.982 5	0.649 886	0.000 114	0.999	0.001 00
12	0.999 832	99.983 2	0.649 891	0.000 109	1.001	0.001 00
13	0.999 829	99.982 9	0.649 999	0.000 111	1.000	0.001 00

3 数据拟合及应用研讨

以MSRE堆型为参考,设计堆芯尺寸参数,通过计算225孔道石墨堆芯、²³⁵U丰度为20%时,其达到临界所需要的⁷Li丰度,反映的反应性变化规律及安全参数对反应堆核设计及核安全监管部门具有参考价值。

如图4所示, k_{eff} 随⁷Li丰度增加的变化趋势越来越快。对于本研究设计的堆芯,99.97%附近丰度⁷Li的使用是合理的,99.98%丰度以上⁷Li的使用可以确保堆芯临界。而100%丰度⁷Li, k_{eff} 为1.075,超临界份额大于缓发中子份额,其使用有可能导致瞬发临界或反应堆周期保护。反之,使用天然丰度或99%丰度以下⁷Li有可能影响核燃料中²³⁵U的中子利用率而导致熔盐堆无法临界。

如表5所示,在临界点⁷Li丰度为99.98%附近,其反应性变化率最大(曲线斜率最大),即该段曲线内反应堆临界对⁷Li丰度变化需求小,可以此作为反

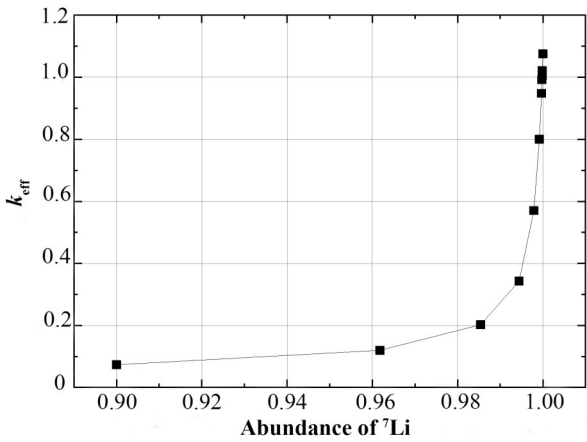


图4 k_{eff} 与⁷Li丰度关系
Fig.4 Relationship between the k_{eff} and the abundance of ⁷Li

应堆设计时⁷Li丰度值。考虑 k_{eff} 为0.9以上,即99.92%~100%的⁷Li丰度范围,使用插值法计算中值,可得建议的⁷Li丰度范围是99.95%~99.99%。对于²³⁵U热中子裂变,临界时缓发中子的反应性影响

表5 ^7Li 丰度变化与反应性系数关系
Table 5 The relationship between abundance variation of ^7Li and reactivity coefficient

^7Li 丰度区间 Abundance range of ^7Li	^7Li 丰度变化 / 0.01% Abundance change value of ^7Li / 0.01%	反应性变化值 / 10^{-5} Reactivity change value of ^7Li / 10^{-5}	平均 ^7Li 丰度变化0.01%的 反应性变化值 / 10^{-5} Reactivity change value corresponding to an average ^7Li abundance change of 0.01% / 10^{-5}	计算不确定度 Calculate uncertainty / %
0.900 000~0.960 000	618.00	51 981	84	0.02
0.962 000~0.985 000	236.08	33 682	143	0.03
0.985 000~0.994 000	90.18	20 225	224	0.06
0.994 000~0.998 000	34.45	11 578	336	0.11
0.998 000~0.999 000	13.16	5 021	382	0.15
0.999 200~0.999 700	5.03	1 955	389	0.19
0.999 700~0.999 800	1.19	465	392	0.20
0.999 810~0.999 830	0.17	75	434	0.20
0.999 825~0.999 828	0.03	13	515	0.20
0.999 828~0.999 836	0.08	39	471	0.20
0.999 800~0.999 900	0.45	168	370	0.20
0.999 900~1.000 000	1.19	486	410	0.20

为 650×10^{-5} 。对于MSRE,使用 ^{235}U 燃料初始装料时其3根控制棒同时插入堆芯的实测总价值约为 $5\,590 \times 10^{-5}$ (理论计算价值约 $5\,460 \times 10^{-5}$),1根控制棒实测价值为 $2\,260 \times 10^{-5}$ (理论计算价值约 $2\,110 \times 10^{-5}$)。

1)若 ^7Li 丰度在99.97%~99.99%范围变化,对应的反应性值变化在 759×10^{-5} ,大于缓发中子份额。若模块化熔盐堆等堆型一次实际装料 ^7Li 为99.99%,设计却是按照99.97%,控制棒等反应性控制条件也按预设位置调节,则存在单靠瞬发中子堆芯就核临界的可能性,反应堆周期将会很小。一旦出现这种状态,反应堆即无法控制,非常危险。

2)若 ^7Li 丰度在99.92%~100%范围变化,对应的反应性值变化在 $3\,201 \times 10^{-5}$,大于MSRE单根控制棒的价值。若熔盐堆实际装料 ^7Li 为99.92%,设计却是按照近似100%,则存在反应堆后备反应性不够或无法临界的问题;若熔盐堆实际装料 ^7Li 为趋近100%,设计却是按照99.92%,则存在单根安全棒停堆价值不够的隐患。因此,为便于反应性控制,熔盐堆装料 ^7Li 丰度应大于99.92%。

3)若 ^7Li 丰度在99.78%~99.97%范围变化,对应的反应性值变化在 $6\,976 \times 10^{-5}$ 。则实际装料与设计装料的 ^7Li 丰度在此范围存在偏差,MSRE反应性控制唯一依赖的所有控制棒价值将无法补偿由此产生的反应性变化,反应堆是失控或者无法临界的。

同时,根据《研究堆营运单位报告制度》^[8],在熔盐堆的运行和实验期间,从首次装料开始到核设施退役为止,若在首次装料趋近临界时,由于 ^7Li 丰度

比设计值偏高,导致堆芯反应性引入速率过高,向堆芯引入的反应性超出规定的限值,使得熔盐堆功率倍增周期小于规定值;或运行阶段由于 ^6Li 消耗过快而导致 ^7Li 丰度升高,使得停堆裕度偏离规定的限值。发生此类事件时,营运单位必须向国家核安全局和所在地区监督站报告(运行阶段事件报告)。

4 结语

本文对特定堆芯的 k_{eff} 与 ^7Li 丰度关系进行了研究,并基于SCALE6.1程序创造了一套利用黄金分割取值求临界条件下 ^7Li 丰度的计算方法,从临界特性曲线进行研讨分析,从核安全监管角度首次提出相关监督审评要点。对于该堆芯,临界安全特性如下:

1) ^6Li 具有显著的中子吸收效应,因此 ^7Li 丰度对有效增殖系数 k_{eff} 是有显著影响的,选择合适的 ^7Li 丰度是非常必要的。如果只考虑反应堆物理核临界特性,丰度一般在大于99.92%是合适的。对于本文类似的设计堆型, ^7Li 丰度可以选取 $(99.97 \pm 0.02)\%$ 范围内。

2) ^7Li 丰度越高则装料后的有效增殖系数 k_{eff} 越大。 ^7Li 实际丰度与设计值相比,偏高或偏低都是值得关注的。 ^7Li 丰度偏高,有可能导致熔盐堆反应性升高,导致意外临界或超临界; ^7Li 丰度偏低,则熔盐堆有可能在装料其他参数满足要求的条件下无法达到临界。

3) ^7Li 丰度接近100%时,对有效增殖系数 k_{eff} 的贡献越明显, ^7Li 丰度与 k_{eff} 的关系曲线变化越快。特

别是在临界⁷Li丰度(即99.98%附近)时,⁷Li丰度每变化0.001%,反应性就变化大于 50×10^{-5} 。实际应用中⁷Li丰度也是接近100%的,有必要防止核临界时的陡边效应。

应重视液态燃料熔盐堆作为“首台套”的安全性,建立核安全经验反馈体系,并高度重视运行调试阶段的试验工作。核设施首次装投料前,熔盐堆营运单位应当把⁷Li丰度对反应堆反应性控制等安全影响作出分析评估计算。在接近临界时,应尽量采用核燃料分批加载和保守外推法,防止由于⁷Li丰度偏高,导致堆芯反应性引入速率超过规定值,向堆芯引入的反应性超出规定的限值。且过多⁶Li的中子吸收反应会导致流出物氚排放总量或浓度上升,影响辐射环境安全。长期运行应防止⁶Li消耗导致的停堆裕度偏离。从审管上,为确保各项措施到位,营运单位申请运行许可证时,应把⁷Li丰度影响作出分析评估,并考虑实验室分析检测偏差的影响。归纳审管建议总结如下:

1)作为国家核安全局及其地区监督站,建议把熔盐堆⁷Li实验室分析检测能力及装料过程中的⁷Li丰度检测作为重要监督内容,⁷Li丰度检测结果应根据后果影响设定运行限制条件。

2)⁷Li入堆前丰度的复检结果,应通过有效管理措施传递至熔盐堆调试运行特别是临界前的技术方案制定和执行,以防反应性失控,并作为监管部门监督检查营运单位质管理的重要内容。

3)监管部门和营运单位均应关注⁷Li丰度随反应堆燃耗变化的影响,积累工程实践经验。特别是在应用于核动力厂等大功率、高燃耗反应堆时的核安全影响。

作者贡献声明 杨震负责酝酿和实施研究、采集数据、分析和解释数据、起草文章;戴志敏负责对文章的知识性内容作批评性审阅和指导等;邹杨和姚永奎负责堆物理计算指导以及行政、技术或材料支持等。

参考文献

- Zhao X C, Zou Y, Yan R, *et al.* Analysis of burnup performance and temperature coefficient for a small modular molten-salt reactor started with plutonium[J]. Nuclear Science and Techniques, 2023, **34**(1): 17. DOI: 10.1007/s41365-022-01155-2.
- 霍雨婷, 罗艳, 项海飞, 等. 熔盐减压蒸馏过程中关键金属氟化物的冷凝行为研究[J]. 核技术, 2024, **47**(1): 010301. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010301.
- HUO Yuting, LUO Yan, XIANG Haifei, *et al.* Study on the condensation behavior of the key metal fluorides in molten salts during low-pressure distillation[J]. Nuclear Techniques, 2024, **47**(1): 010301. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010301.
- 周天泽, 虞凯程, 程懋松, 等. 基于KNN方法的熔盐堆系统瞬态识别模型开发及分析[J]. 核技术, 2023, **46**(11): 110604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.110604.
- ZHOU Tianze, YU Kaicheng, CHENG Maosong, *et al.* Development and analysis of a K-nearest-neighbor-based transient identification model for molten salt reactor systems[J]. Nuclear Techniques, 2023, **46**(11): 110604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.110604.
- 陈世超, 李锐, 左献迪, 等. 基于EPICS架构的熔盐堆实时建模与仿真平台开发及验证[J]. 核技术, 2023, **46**(11): 110601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.110601.
- CHEN Shichao, LI Rui, ZUO Xiandi, *et al.* Development and validation of real-time modeling and simulation platform for molten salt reactor based on EPICS framework[J]. Nuclear Techniques, 2023, **46**(11): 110601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.110601.
- Yu S H, Liu Y F, Yang P, *et al.* Neutronics analysis for MSR cell with different fuel salt channel geometries[J]. Nuclear Science and Techniques, 2021, **32**(1): 9. DOI: 10.1007/s41365-020-00844-0.
- 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.
- 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.
- 环境保护部核与辐射安全中心组织. 核安全相关法律法规[M]. 修订版. 北京: 中国原子能出版社, 2018.
- Center for Nuclear and Radiation Safety, Ministry of Environmental Protection. Laws and regulations related to nuclear safety[M]. Revised ed. Beijing: China Atomic Energy Press, 2018.
- He L Y, Cui Y, Chen L, *et al.* Effect of reprocessing on neutrons of a molten chloride salt fast reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2023, **34**(3): 46. DOI: 10.1007/s41365-023-01186-3.

- 10 Wulandari C, Waris A, Permana S, *et al.* Evaluating the JEFF 3.1, ENDF/B-VII.0, JENDL 3.3, and JENDL 4.0 nuclear data libraries for a small 100MWe molten salt reactor with plutonium fuel[J]. Nuclear Science and Techniques, 2022, **33**(12): 165. DOI: 10.1007/s41365-022-01141-8.
- 11 Li X X, Cui D Y, Ma Y W, *et al.* Influence of ^{235}U enrichment on the moderator temperature coefficient of reactivity in a graphite-moderated molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, **30**(11): 166. DOI: 10.1007/s41365-019-0694-z.
- 12 Liu H, Lei G H, Huang H F. Review on synergistic damage effect of irradiation and corrosion on reactor structural alloys[J]. Nuclear Science and Techniques, 2024, **35**(3): 57. DOI: 10.1007/s41365-024-01415-3.
- 13 Sun G M, Cheng M S. Development of a MCNP5 and ORIGEN2 based burnup code for molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2016, **27**(3): 65. DOI: 10.1007/s41365-016-0070-1.
- 14 Zhang Z H, Xia X B, Cai J, *et al.* Simulation of radiation dose distribution and thermal analysis for the bulk shielding of an optimized molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2015, **26**(4): 040603. DOI: 10.13538/j.1001-8042/nst.26.040603.
- 15 Zhang D L, Qiu S Z, Liu C L, *et al.* Steady thermal hydraulic analysis for a molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2008, **19**(3): 187 – 192. DOI: 10.1016/S1001-8042(08)60048-2.
- 16 Zhu G F, Yan R, Peng H H, *et al.* Application of Monte Carlo method to calculate the effective delayed neutron fraction in molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, **30**(2): 34. DOI: 10.1007/s41365-019-0557-7.
- 17 Xu H X, Lin J, Zhong Y J, *et al.* Characterization of molten 2LiF-BeF_2 salt impregnated into graphite matrix of fuel elements for thorium molten salt reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, **30**(5): 74. DOI: 10.1007/s41365-019-0600-8.
- 18 Yu J H, Xu H X, Ye X X, *et al.* Corrosion behavior of pure metals (Ni and Ti) and alloys (316H SS and GH3535) in liquid GaInSn [J]. Nuclear Science and Techniques, 2024, **35**(3): 54. DOI: 10.1007/s41365-024-01413-5.
- 19 Huang J L, Jia G B, Han L F, *et al.* Dynamic simulation analysis of molten salt reactor-coupled air-steam combined cycle power generation system[J]. Nuclear Science and Techniques, 2024, **35**(2): 30. DOI: 10.1007/s41365-024-01394-5.
- 20 Ai H, Yang X M, Liu H J, *et al.* Study on the corrosion behavior of 316H stainless steel in molten NaCl-KCl-MgCl_2 salts with and without purification[J]. Nuclear Science and Techniques, 2023, **34**(12): 191. DOI: 10.1007/s41365-023-01352-7.
- 21 王玉娇, 曲雅馨, 付海英, 等. 硫化物沉淀分离 LiF-BeF_2 熔盐中稀土类裂变产物[J]. 核技术, 2024, **47**(1): 010302. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010302.
WANG Yujiao, QU Yaxin, FU Haiying, *et al.* Separation of rare earth fission products from LiF-BeF_2 molten salt by sulfide precipitation[J]. Nuclear Techniques, 2024, **47**(1): 010302. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010302.
- 22 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 反应堆外易裂变材料的核临界安全 第3部分: 易裂变材料贮存的核临界安全要求: GB 15146.3—2008[S]. 北京: 中国标准出版社, 2009.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Nuclear criticality safety for fissile materials outside reactors - Part 3: Requirements for nuclear criticality safety in the storage of fissile materials: GB 15146.3—2008[S]. Beijing: Standards Press of China, 2009.
- 23 Yu G P, Cheng Y F, Zhang N, *et al.* Multi-objective optimization and evaluation of supercritical CO_2 Brayton cycle for nuclear power generation[J]. Nuclear Science and Techniques, 2024, **35**(2): 22. DOI: 10.1007/s41365-024-01363-y.