

一种适用于小型长寿命自然循环铅基快堆的冷却剂研究

余清远 肖 豪 刘紫静 赵鹏程 于 涛

(南华大学 核科学技术学院 衡阳 421001)

摘要 以小型化、长寿命、自然循环为铅基快堆的设计目标,构建 100 MWt 铅基快堆堆芯模型并开展冷却剂选型研究,选取 Pb 同位素/混合物及 Pb-Bi 混合物,分析比较了采用不同冷却剂堆芯的物理特性与自然循环特性。结果表明:得益于 ^{208}Pb 在高能区小的非弹性散射截面与中低能区极小的中子俘获截面,加之 Bi 较小的中子俘获截面,采用 ^{208}Pb -Bi 冷却的铅基快堆堆芯在 30 满功率年运行周期内的燃耗反应性损失最小,增殖性能最佳,且具备负值较大的空泡系数、冷却剂温度系数和较大的有效缓发中子份额,可装载较低富集度或较少量燃料,有利于堆芯小型化、长寿命和固有安全性; ^{208}Pb -Bi 相比 Pb 冷却的铅基快堆具备更强的自然循环能力、更弱的材料腐蚀、更宽的运行温度区间,有利于反应堆安全运行与维护。高 ^{208}Pb 丰度的铅可以从钍矿石及钍铀矿石中提取,极大降低了 ^{208}Pb 的分离提取难度。

关键词 铅基快堆, 冷却剂, 物理特性, 自然循环

中图分类号 TL329

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.030601

A coolant suitable for small long life natural circulation lead-based fast reactor

YU Qingyuan XIAO Hao LIU Zijing ZHAO Pengcheng YU Tao

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

Abstract [Background] Small long life natural circulation lead-based fast reactor has broad development prospects in the fields such as marine nuclear power, portable power, thermal-electric co-generation in remote areas, seawater desalination, *et al.*, and is one of the important development directions of lead-based fast reactor. [Purpose] This study aims at the coolant selection for the design goals of long life, miniaturization and natural circulation of lead-based fast reactors. [Methods] First of all, refer to the ALFRED design scheme of EU small lead based demonstration fast reactor, a 100 MWt lead-based fast reactor core model was taken as design parameters. Then, Pb element/mixture and Pb-Bi mixtures were selected for study by using three dimensional transport Monte Carlo code (RMC) developed by the reactor engineering calculation and analysis laboratory of Tsinghua University. High temperature nuclear database ADS-2.0 released by the International Atomic Energy Agency was employed to calculate and analyze the burnup characteristics, reactivity coefficient and effective delayed neutron fraction of lead based fast reactor cores with different coolants. Finally, the neutronics characteristics of different coolant cores and the natural circulation characteristics of different coolants were analyzed and compared. [Results] The results show

国家自然科学基金(No.12005097)、国家级大学生创新与实验研究计划(No.S202010555037)资助

第一作者: 余清远, 男, 2000 年出生, 现为南华大学本科生, 研究领域为快堆热工水力、热管冷却反应堆

通信作者: 刘紫静, E-mail: liuzijing1123@163.com

收稿日期: 2021-10-28, 修回日期: 2021-12-11

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.12005097), National Innovation and Experimental Research Program for College Students (No.S202010555037)

First author: YU Qingyuan, male, born in 2000, undergraduate student, focusing on fast reactor thermal hydraulic and heat pipe cooling reactor

Corresponding author: LIU Zijing, E-mail: liuzijing1123@163.com

Received date: 2021-10-28, revised date: 2021-12-11

that the neutron capture cross-section combined with Bi is smaller due to the small inelastic scattering cross-section of ^{208}Pb in the high-energy region and the extremely small neutron capture cross-section in the middle and low energy regions. The ^{208}Pb -Bi cooled lead-based fast reactor core has the lowest burnup reactivity loss and the best breeding performance with large negative void coefficient, coolant temperature coefficient and large effective delayed neutron fraction in at 30 EFPY operating cycle. **[Conclusions]** The ^{208}Pb -Bi cooled lead-based fast reactor core can be loaded with a lower enrichment or a smaller amount of fuel, which is beneficial to miniaturization, long life and inherent safety of the core; compared with Pb, ^{208}Pb -Bi cooled lead-based fast reactor has stronger natural circulation capability, weaker material corrosion, and wider operating temperature range, which is conducive to the safe operation and maintenance of reactor.

Key words Lead-based fast reactor, Coolant selection, Neutronics characteristics, Natural circulation

小型长寿命自然循环铅基快堆在核能综合利用方面具备独特优势,可应用于海洋核动力、可移动电源、热电联供、海水淡化等领域,是一种极具发展前景的先进核能系统。目前,国际上提出了多种长寿命小型自然循环铅基快堆设计方案,例如欧盟的 ELECTRA (European Lead-cooled Training Reactor)^[1]、美国的 ENHS (Encapsulated Nuclear Heat Source reactor)^[2] 和 SSTAR (Small Secure Transportable Autonomous Lead-Cooled Fast Reactor)^[3], 韩国的 PASCAR (Proliferationresistant, Accident-tolerant, Self-supported, Capsular and Assured Reactor)^[4] 和 URANUS (Ubiquitous, Rugged, Accident-forgiving, Non-proliferating, and Ultra-lasting Sustainer)^[5]; 国内多所高校与研究院也开展了相关概念设计,如清华大学的小型长寿命钍基铅堆^[6]、西安交通大学的 SPMBN^[7]、中国科学技术大学的 SNCLFR-100^[8]、中科院核能安全技术研究所的 CLEAR-M^[9]等。目前铅基快堆采用 Pb 和 Pb-Bi (LBE) 两类冷却剂,其中 Pb 包含多种同位素,Pb 和 Pb-Bi 具备不同的物性与热力学性质,Pb 同位素的中子学特性也存在差异,这对堆芯的小型化、长寿命和自然循环性能产生影响。

本文开展小型长寿命自然循环铅基快堆冷却剂选型研究,比较分析了 Pb 同位素/混合物及 Pb-Bi 混合物的物性参数、及其作冷却剂的堆芯的燃耗特性、反应性系数、有效缓发中子份额等,筛选出可强化堆芯性能的冷却剂类型,可为小型长寿命自然循环铅基快堆的设计提供参考。

1 铅基快堆堆芯模型

100 MWt 铅基快堆堆芯的主要设计参数参考欧盟小型铅基示范快堆 ALFRED 设计方案^[10-11]给出(表1)。铅基快堆采用高密度、高熔点与热导率的 PuN-ThN 作为燃料,以获得更好的中子经济性与热工安全特性。堆芯等效直径为 168 cm,活性区高度

为 170 cm; 包含 102 个燃料组件,7 个控制组件,90 个反射组件,98 个屏蔽组件,每个组件内包含 61 根燃料棒,堆芯如图 1 所示。

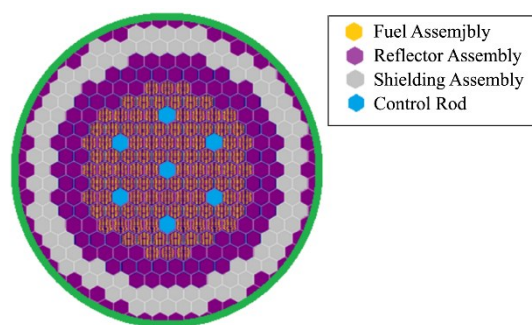


图1 100 MWt 铅基快堆堆芯
Fig.1 100 MWt LFR core

棒束型燃料组件采用疏松的三角形栅格结构设计,燃料棒直径为 10.5 mm, P/D 为 1.5, 如图 2 所示。

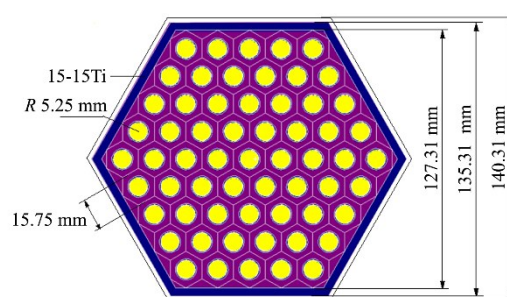


图2 铅基快堆燃料组件示意图
Fig.2 Diagram of 100 MWt LFR fuel assembly

燃料棒包含燃料芯块、气隙、弹簧、气腔、绝热层、端塞、包壳,燃料核素成分见表2。不插棒堆芯中的控制棒组件通道内填充液态 Pb 或 Pb-Bi。反射层组件材料为液态 Pb。屏蔽层组件材料为 B_4C 。

表1 100 MWt 铅基快堆堆芯设计参数
Table 1 Design parameters of 100 MWt LFR

设计参数 Design parameters	设计值 Design value
堆芯热功率 Core thermal power / MWt	100
燃料 Pu 质量分数 Pu mass fraction of fuel / wt%	PuN-ThN 25.4
活性区等效直径 Active zone equivalent diameter / cm	168
活性区高度 Active zone height / cm	170
燃料棒内/外直径 Inner/outer diameter of fuel rod / mm	0.9/1.05
燃料棒间隙填充气体 Fuel rod gap filling gas	He
燃料棒间隙宽度 Fuel rods gap width / mm	0.15
包壳材料 Cladding material	15-15Ti
包壳厚度 Cladding thickness / mm	0.6
组件盒厚度 Assembly thickness / mm	4
栅径比 P/D	1.5
燃料组件数目 Number of fuel assembly	102
燃料组件内棒数 Number of fuel pin in an assembly	61
反射组件数目 Number of reflector assembly	90
屏蔽组件数目 Number of shielding assembly	98

表2 燃料核素质量分数
Table 2 Nuclides weight fraction of fuel

燃料 Fuel	核素质量分数 Nuclides weight fraction / %					
PuN-ThN	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	²³² Th
	0.25	16.00	7.37	0.25	1.53	74.60

2 不同冷却剂铅基快堆堆芯物理特性研究

目前铅基快堆有 Pb 和 Pb-Bi (LBE) 两类冷却剂, 其中 Pb 的同位素包含: ²⁰⁴Pb、²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb 和 ²⁰⁸Pb。天然 Pb 中的 ²⁰⁴Pb 丰度较低, 选取天然 Pb、Pb-Bi、²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb、²⁰⁸Pb 同位素及其 Pb-Bi 混合物开展小型长寿命自然循环铅基快堆冷却剂选型研究。采用清

华大学反应堆工程计算分析实验室自主研发的反应堆三维输运蒙特卡罗程序 RMC (Reactor Monte Carlo Code)^[12] 及国际原子能机构 (International Atomic Energy Agency, IAEA) 发布的高温核数据库 ADS-2.0 开展不同冷却剂铅基快堆堆芯的燃耗特性、反应性系数、及有效缓发中子份额计算分析。华北电力大学以铅基快堆基准题 RBEC-M 验证了 RMC 程序的可靠性^[13]。开展铅基快堆中子学计算时采用的高温连续点截面库分别为: 燃料 1 200 K、冷却剂 600 K、包壳 900 K。天然 Pb 成分及 Pb-Bi 质量分数如表 3 所示。Pb 的密度以式(1)计算, Pb-Bi 的密度计算见式(2)^[14]。

表3 天然 Pb 成分及 Pb-Bi 质量分数
Table 3 Natural Pb composition and weight fraction of Pb-Bi

天然 Pb 成分 Natural Pb composition			Pb-Bi 质量分数 Pb-Bi MF / wt%	
成分 Composition	丰度 Abundance / %	计算用质量分数 MF in calculation / wt%		
²⁰⁴ Pb	1.48	0	Pb	45
²⁰⁶ Pb	23.62	25.1	Bi	55
²⁰⁷ Pb	22.6	22.6		
²⁰⁸ Pb	52.3	52.3		

$$\rho_{\text{Pb}} = 11\,441 - 1.279\,5 \cdot T \quad (1)$$

$$\rho_{\text{Pb-Bi}} = 11\,065 - 1.293 \cdot T \quad (2)$$

比较采用不同冷却剂 100 MWt 铅基快堆堆芯的燃耗特性与增殖特性, 调整燃料 Pu 质量分数 (Mass Fraction, MF), 保持堆芯初始 k_{eff} 基本一致。为定量分析堆芯的燃耗特性和增殖性能, 给出燃耗反应性损失 (Burnup Reactivity Loss, BRL) 定义, 如式(3)所示。

$$\text{BRL} = \frac{k_{\text{eff}}(\text{BOC}) - k_{\text{eff}}(\text{EOC})}{k_{\text{eff}}(\text{BOC})k_{\text{eff}}(\text{EOC})} \quad (3)$$

图 3 为使用 Pb/Pb-Bi 冷却剂堆芯 k_{eff} 随时间变化情况, 表 4 给出了不同冷却剂堆芯运行 30 EFPY 的燃耗反应性损失 BRL 及平均卸料燃耗 (Average Discharge Burnup, ADB), 可见, 使用 Pb-Bi 作冷却剂的堆芯运行时间更长, 燃耗反应性损失更小; 比较不同 Pb 冷却剂堆芯的燃耗特性, 燃料 Pu 质量分数和

燃料反应性损失大小为： $^{206}\text{Pb} > ^{207}\text{Pb} > \text{天然 Pb} > ^{208}\text{Pb}$ ，所有的冷却剂中， ^{208}Pb -Bi冷却堆芯在采用较低Pu质量分数(24%)燃料的情况下，获得了最小的燃料反

应性损失，为 $3.432\ 88 \times 10^{-2}$ ， ^{206}Pb 冷却堆芯采用最高Pu质量分数(26.3%)燃料，其燃料反应性损失也最大，为 $5.844\ 73 \times 10^{-2}$ 。

表4 不同冷却剂堆芯运行30 EFPY的燃料反应性损失
Table 4 Burnup reactivity loss of core with different coolants (30 EFPY)

冷却剂类型 Coolant type	Pu MF / wt%	k_{eff} (BOC)	k_{eff} (EOC)	BRL / 10^{-2}	(ADB/MWD) / kgHM
Pb_{nat}	24.8	1.032 00	0.992 76	3.830 06	126.72
^{206}Pb	26.3	1.034 56	0.975 57	5.844 73	92.43
^{207}Pb	25.4	1.033 81	0.995 48	3.724 48	136.37
^{208}Pb	23.9	1.031 32	0.993 93	3.647 59	131.74
Pb_{nat} -Bi	24.5	1.032 56	0.994 82	3.674 02	131.64
^{206}Pb -Bi	25.0	1.031 38	0.986 56	4.404 83	112.07
^{207}Pb -Bi	24.7	1.030 10	0.994 82	3.442 74	131.61
^{208}Pb -Bi	24.0	1.030 66	0.995 44	3.432 88	131.72

表5 不同冷却剂的堆芯能谱
Table 5 Energy spectrum of cores with different coolants

冷却剂类型 Coolant type	不同能区的NFD NFD in different energy zones / $\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$			总NFD Total NFD / $\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
	$< 1 \times 10^{-6}$ MeV	$1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-1}$ MeV	$> 1 \times 10^{-1}$ MeV	
Pb_{nat}	$1.129\ 2 \times 10^{10}$	$1.932\ 3 \times 10^{14}$	$3.880\ 8 \times 10^{14}$	$5.812\ 9 \times 10^{14}$
^{206}Pb	$1.344\ 7 \times 10^{10}$	$1.815\ 4 \times 10^{14}$	$3.753\ 9 \times 10^{14}$	$5.569\ 4 \times 10^{14}$
^{207}Pb	$6.494\ 6 \times 10^9$	$2.006\ 8 \times 10^{14}$	$3.729\ 6 \times 10^{14}$	$5.736\ 5 \times 10^{14}$
^{208}Pb	$1.630\ 7 \times 10^{10}$	$1.891\ 6 \times 10^{14}$	$4.008\ 7 \times 10^{14}$	$5.900\ 4 \times 10^{14}$
Pb_{nat} -Bi	$1.326\ 9 \times 10^{10}$	$1.927\ 2 \times 10^{14}$	$3.950\ 1 \times 10^{14}$	$5.877\ 4 \times 10^{14}$
^{206}Pb -Bi	$1.482\ 5 \times 10^{10}$	$1.903\ 7 \times 10^{14}$	$3.907\ 5 \times 10^{14}$	$5.811\ 3 \times 10^{14}$
^{207}Pb -Bi	$9.803\ 7 \times 10^9$	$1.981\ 8 \times 10^{14}$	$3.883\ 7 \times 10^{14}$	$5.865\ 6 \times 10^{14}$
^{208}Pb -Bi	$1.581\ 3 \times 10^{10}$	$1.923\ 3 \times 10^{14}$	$4.021\ 4 \times 10^{14}$	$5.944\ 8 \times 10^{14}$

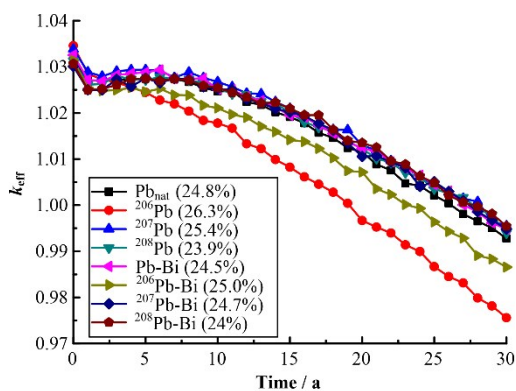


图3 使用Pb/Pb-Bi冷却剂堆芯 k_{eff} 随时间变化情况
Fig.3 k_{eff} of core using Pb/Pb-Bi coolant changes with time

表5给出了采用不同冷却剂堆芯寿期初的中子能谱，其中 ^{208}Pb -Bi冷却堆芯在高中能区的中子通量密

度(Neutron Flux Density, NFD)与总中子通量密度最大，中子能谱最硬，增殖性能最佳； ^{206}Pb 冷却堆芯在中能区的中子通量密度与总中子通量密度最小。

上述结果主要是因为冷却剂核素的中子核反应截面存在差异。表6给出了Pb、Bi的中子反应截面，图4给出了Pb同位素及Bi的中子俘获截面随入射中子能量变化情况。图5给出了Pb同位素的非弹性散射截面。从表6、图4和图5看出， ^{208}Pb 相比其他Pb同位素有更小的中子俘获截面和更高的非弹性散射阈能^[15]，尤其在 ^{208}Pb 在中低能区的中子俘获截面极低(仅为 $10^{-2} \sim 10^{-4}$ b)，Bi在高中能区的中子共振吸收积分和中子俘获截面小于Pb的同位素；因此采用 ^{208}Pb -Bi作冷却剂的铅基快堆中子无效吸收最少，堆芯中子能谱硬且增殖性能最好，可装载较低富集

表6 Pb、Bi中子反应截面
Table 6 Micro cross section of Pb and Bi

核素 Nuclide	中子俘获截面 Neutron capture cross section / b	中子散射截面 Neutron scatter cross section / b	中子运输截面 Neutron transportation cross section / b
Pb	0.17	11.4	11.57
Bi	0.033	~9	9

度或较少质量的燃料,更有利于铅基快堆堆芯的小型化与长寿命。而 ^{206}Pb 的中子共振吸收积分大于其他Pb同位素及Bi, ^{206}Pb 的非弹性散射阈能最低,中子能谱相对更软,导致 ^{206}Pb 冷却的铅基快堆增殖性能及中子经济性较差。

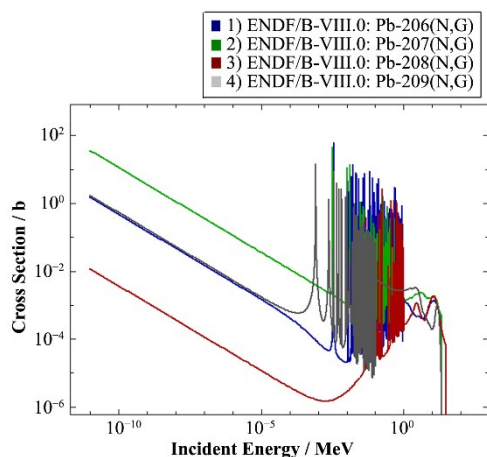


图4 Pb同位素及Bi的俘获截面
Fig.4 Capture cross section of Pb isotopes and Bi

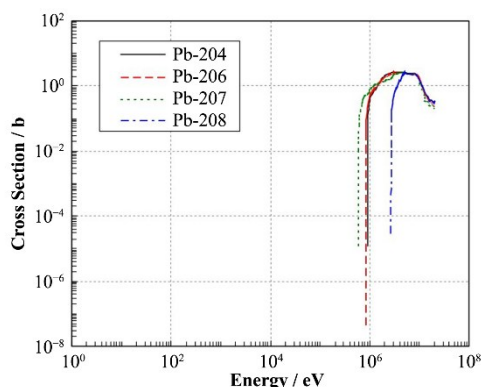


图5 Pb同位素的非弹性散射截面
Fig.5 Inelastic scattering cross section of Pb isotopes

当冷却剂温度上升或出现空泡时,单位体积内的冷却剂核减少,中子散射反应率降低,中子能谱变硬,快中子俘获反应率降低,使得冷却剂温度或空泡负反馈较小或趋正,这是影响液态金属冷却快堆固有安全性的一个重要问题。

表7给出了不同冷却剂堆芯的冷却剂温度系数(Coolant Density Coefficient, CDC)和空泡系数(Void Coefficient, VC)。由表7可知,Pb相比Pb-Bi冷却的堆芯具备负值更大的冷却剂温度系数;Pb的同位素中, ^{208}Pb 的冷却剂系数和空泡系数负值最大。 ^{208}Pb 更小的中子俘获截面和更高的非弹性散射阈能降低了堆芯能谱硬化带来的影响;因此采用 ^{208}Pb 作冷却剂可以获得最大的堆芯冷却剂温度或空泡反应

性负反馈, ^{208}Pb -Bi次之。除此之外,表7给出了不同冷却剂堆芯的有效缓发中子份额 β_{eff} ,使用Pb-Bi冷却剂堆芯的 β_{eff} 大于使用Pb冷却剂的堆芯,Pb-Bi冷却堆芯的 β_{eff} 由大到小为: ^{206}Pb -Bi、 ^{207}Pb -Bi、 ^{208}Pb -Bi。由此可见,采用Pb-Bi冷却剂的铅基快堆更有利于反应性控制。

表7 不同冷却剂堆芯的反应性系数
Table 7 Reactivity coefficients of cores with different coolant

冷却剂类型 Coolant type	VC / 10^{-5} K^{-1}	CC / 10^{-3}	β_{eff} / %
Pb_{nat}	-0.738 4	-51.817 3	0.293
^{206}Pb	-0.736 6	-48.943 7	0.337
^{207}Pb	-0.500 7	-46.131 7	0.260
^{208}Pb	-0.783 1	-83.967 4	0.208
Pb_{nat} -Bi	-0.714 8	-58.274 5	0.339
^{206}Pb -Bi	-0.640 9	-51.893 7	0.385
^{207}Pb -Bi	-0.541 6	-49.146 6	0.323
^{208}Pb -Bi	-0.763 7	-69.316 2	0.317

3 不同冷却剂的自然循环特性分析

冷却剂类型不仅会影响铅基快堆的长寿命性能,还会改变反应堆的流动换热特性与安全性。通过对比分析不同冷却剂的物性参数等,初步评估不同冷却剂铅基快堆的自然循环能力。

Pb/Pb-Bi密度是Na的12倍,铅基快堆堆芯有更大的提升压降,有利于提高自然循环能力;但是铅基冷却剂的热导率低于Na,冷却能力相对更弱,堆芯往往需要设计更大的栅径比,这导致铅基快堆功率密度较低;而采用 ^{208}Pb / ^{208}Pb -Bi作为冷却剂,可以通过降低中子无效吸收与增大燃料增殖比,来提高铅基快堆的中子经济性。Pb及Pb-Bi的高沸点避免了冷却剂在升温时出现空泡,大幅降低了快堆空泡系数可能为正的风险。相比于Na,Pb及Pb-Bi的中子活化产物放出的 γ 射线少很多,且不与水发生反应,遇空气不会自燃,若堆容器出现小裂缝,Pb及Pb-Bi能够迅速凝固并降低泄漏,因此铅基快堆的自然循环能力和安全性高于钠冷快堆。但是,Pb及Pb-Bi会对主泵和结构材料造成腐蚀,为限制腐蚀,冷却剂流速通常小于 $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ [16]。

表8给出了液态Pb与Pb-Bi主要物性参数情况,图6给出了Pb和Pb-Bi不同温度下的热膨胀系数,图7给出了Pb和Pb-Bi不同温度下的粘性系数。由表7可知,Pb-Bi的熔点比Pb低 200°C ,Pb-Bi冷却堆芯具备更宽的运行温度区间,降低了铅基快堆的运行维护难度。

表8 液态Pb和Pb-Bi的主要物性对比
Table 8 Comparison of main physical properties of liquid Pb and Pb-Bi

名称 Name	关系式 Relational expression	
	Pb	Pb-Bi
熔点 Melting point / K	600.06±0.1	398±1
沸点 Boiling point / K	2 021±3	1 927±16
密度 Density / kg·m ⁻³	11 441-1.279 5·T	11 065-1.293·T
热膨胀系数 Thermal expansion coefficient / K ⁻¹	1/(8 942-T)	1/(8 558-T)
动力黏度 Dynamic viscosity/ Pa·s	4.55×10 ⁻⁴ ·exp(1 069/T)	4.94×10 ⁻⁴ ·exp(754.1/T)

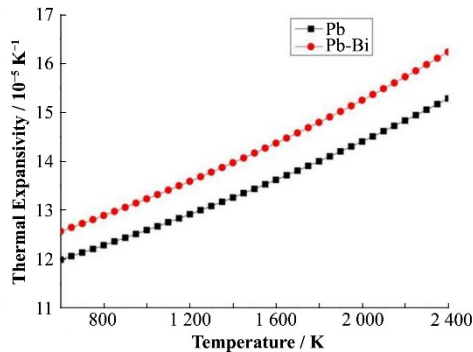


图6 不同温度下的Pb和Pb-Bi热膨胀系数
Fig.6 Thermal expansion coefficient of Pb and Pb-Bi with different temperature

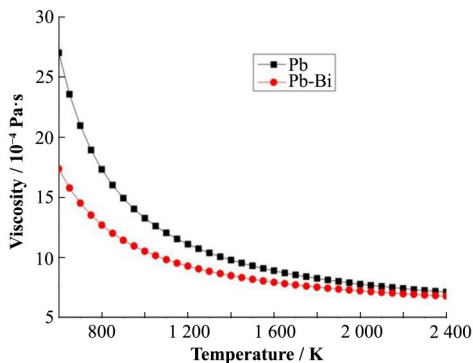


图7 不同温度下的Pb和Pb-Bi粘性系数
Fig.7 Viscosity coefficient of Pb and Pb-Bi with different temperature

从图6、7看出,Pb-Bi相比Pb具备更大的热膨胀系数与更小的粘性系数。同时,得益于²⁰⁸Pb-Bi良好的中子经济性,其冷却的铅基快堆可采用更疏松的栅格设计,堆芯冷却剂摩擦压降较低,自然循环质量流量(kg·s⁻¹)得到提升。更疏松的栅格设计也使得在相同的温升条件下冷却剂流速更低,有利于减轻Pb-Bi腐蚀。因而采用液态²⁰⁸Pb-Bi作为冷却剂的铅基快堆自然循环能力相比天然Pb/Pb-Bi更为突出,且具备更好的热工安全特性。

4 ²⁰⁸Pb的天然来源

铅同位素²⁰⁸Pb、²⁰⁶Pb和²⁰⁷Pb分别是从小²³²Th和²³⁵U开始的放射性衰变链的最终产物,如图8所示。理论上可以从天然钍和钍铀矿中可以提取出大量²⁰⁸Pb,而无需进行任何同位素分离。

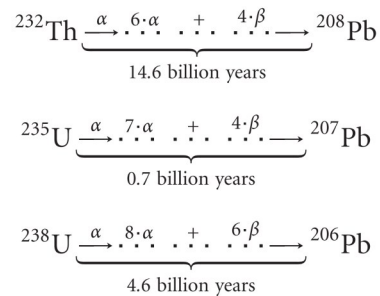


图8 ²³²Th、²³⁵U和²³⁸U的放射性衰变链
Fig.8 The radioactive decay chains starting from ²³²Th, ²³⁵U, and ²³⁸U

铅同位素的相对含量取决于矿石年龄和矿石中作为杂质的天然铅含量。通常,天然铅中²⁰⁸Pb的丰度达到了52.4%;而在文献[17]中表明:在巴西、澳大利亚、乌克兰勘探的钍铀矿中,²⁰⁸Pb的丰度均达到了93%以上。因此,高²⁰⁸Pb丰度的铅可以作为铀矿和钍矿开采过程中的副产物获得,这极大降低了²⁰⁸Pb的分离提取难度,增加了²⁰⁸Pb/²⁰⁸Pb-Bi工程应用的可能性。

但是Bi在中子辐照后会产生具有挥发性的剧毒物质,而随着近年来除钚技术的不断突破,²¹⁰Po逐渐不再成为制约铅铋快堆发展的关键技术瓶颈^[18]。

5 结语

本文以铅基快堆的小型化、长寿命、自然循环为设计目标,在采用RMC程序构建100 MWt铅基快堆堆芯模型的基础上开展了冷却剂适用性研究,选取Pb同位素/混合物及Pb-Bi混合物,比较研究了不同冷却剂堆芯的燃耗特性、增殖特性、反应性系数、有效缓发中子份额,对比分析了不同冷却剂的自然循环特性等,评估判断使用不同冷却剂的铅基快堆

堆芯与长寿命、小型化与自然循环设计目标的契合度。具体得到以下结论：

1) 由于 ^{208}Pb 在高中能区的非弹性散射截面与中低能区的中子俘获截面极小, 非弹性散射阈能高, 加之 Bi 的中子俘获截面较小, 采用 ^{208}Pb -Bi 冷却的铅基快堆堆芯燃耗反应性损失最小, 中子能谱最硬、增殖性能最佳, 有利于堆芯小型化与长寿命。

2) 采用 ^{208}Pb -Bi 作为冷却剂, 可以获得负值更大的冷却剂温度系数、空泡系数和较大的有效缓发中子份额, 提高了铅基快堆的固有安全性。

3) 得益于 ^{208}Pb -Bi 良好的中子学特性, ^{208}Pb -Bi 冷却的铅基快堆可采用更疏松的栅格设计以降低堆芯冷却剂摩擦压降与流速, 相比 Pb 冷却的铅基快堆具备更加突出的自然循环能力, 更弱的材料腐蚀, 更宽的运行温度区间, 有利于堆芯的安全运行与维护。

4) 高 ^{208}Pb 丰度的铅可以从钍及钍铀矿石中提取, 极大降低了 ^{208}Pb 的分离提取难度。

本文针对 Pb 同位素/混合物及 Pb-Bi 混合物在小型长寿命自然循环铅基反应堆的适用性作出了初步分析与评估。而 ^{208}Pb 的良好中子学优势可以应用到铅基反应堆发展的多方面, 如嬗变增殖堆、加速器驱动次临界洁净核能系统 ADS 等, 这些均有待进一步研究。

致谢 本研究开发过程使用了清华大学反应堆工程计算分析实验室 (REAL 团队) 自主开发的堆用蒙特卡罗分析程序 RMC, 在此深表感谢。

作者贡献声明 余清远: 实施研究方案, 开展冷却剂选型相关计算分析; 肖豪: 协助分析 / 解释计算数据并起草文章; 刘紫静: 负责小型长寿命自然循环铅基反应堆冷却剂选型研究方案酝酿、设计和文章审阅修改; 赵鹏程: 负责论文的审稿、校核、技术指导; 于涛: 对文章的知识性内容作批评性审阅, 提供研究经费、行政、技术支持。

参考文献

- Wallenius J, Suvdantsetseg E, Fokau A. ELECTRA: European lead-cooled training reactor[J]. Nuclear Technology, 2012, **177**(3): 303 - 313. DOI: 10.13182/NT12-A13477.
- Hong S G, Greenspan E, Kim Y I. The encapsulated nuclear heat source (ENHS) reactor core design[J]. Nuclear Technology, 2005, **149**(1): 22 - 48. DOI: 10.13182/NT05-A3577.
- Smith C F, Halsey W G, Brown N W, *et al.* SSTAR: the US lead-cooled fast reactor (LFR)[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, **376**(3): 255 - 259. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.02.049.
- Choi S, Cho J H, Bae M H, *et al.* PASCAR: long burning small modular reactor based on natural circulation[J]. Nuclear Engineering and Design, 2011, **241**(5): 1486 - 1499. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2011.03.005.
- Shin Y H, Choi S, Cho J, *et al.* Advanced passive design of small modular reactor cooled by heavy liquid metal natural circulation[J]. Progress in Nuclear Energy, 2015, **83**: 433 - 442. DOI: 10.1016/j.pnucene.2015.01.002.
- 余纲林, 王侃. 一种钍基长寿命反应堆堆芯的物理设计[J]. 核动力工程, 2010, **31**(S2): 116 - 120.
YU Ganglin, WANG Kan. Physical design of a thorium fuel-based long life reactor core[J]. Nuclear Power Engineering, 2010, **31**(S2): 116 - 120.
- 袁显宝, 曹良志, 吴宏春. 铅铋冷却氮化物燃料小型模块化快中子反应堆堆芯物理特性分析[J]. 核技术, 2017, **40**(10): 100603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.100603.
YUAN Xianbao, CAO Liangzhi, WU Hongchun. Physical characteristics of small modular Pb-Bi cooled reactor with nitride nuclear fuel[J]. Nuclear Techniques, 2017, **40**(10): 100603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.100603.
- 赵鹏程. 小型自然循环铅冷快堆 SNCLFR-100 一回路主冷却系统热工安全分析[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2017.
ZHAO Pengcheng. Thermal-hydraulic safety analysis of primary cooling system for small modular natural circulation LFR SNCLFR-100[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2017.
- 吴宜灿. 革新型核能系统安全研究的回顾与探讨[J]. 中国科学院院刊, 2016, **31**(5): 567 - 573. DOI: 10.16418/j.issn.1000-3045.2016.05.010.
WU Yican. Review and discussion on nuclear safety research of innovative nuclear energy system[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2016, **31**(5): 567 - 573. DOI: 10.16418/j.issn.1000-3045.2016.05.010.
- Grasso G, Petrovich C, Mattioli D, *et al.* The core design of ALFRED, a demonstrator for the European lead-cooled reactors[J]. Nuclear Engineering and Design, 2014, **278**: 287 - 301. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2014.07.032.
- Sobolev V, Malambu E, Abderrahim H A. Design of a fuel element for a lead-cooled fast reactor[J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, **385**(2): 392 - 399. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.12.027.

- 12 梁金刚, 丘意书, 王侃, 等. 基于计数器数据分解的RMC全堆燃耗计算研究[J]. 核动力工程, 2014, **35**(S2): 231 - 234. DOI: 10.13832/j.jnpe.2014.S2.0231.
LIANG Jingang, QIU Yishu, WANG Kan, *et al.* Research of full core burnup calculations based on tally data decomposition in RMC[J]. Nuclear Power Engineering, 2014, **35**(S2): 231 - 234. DOI: 10.13832/j.jnpe.2014.S2.0231.
- 13 许谦, 马续波, 仇若萌, 等. 不同核评价数据库中Pb和Bi的截面对铅基快堆 k_{eff} 的影响[J]. 原子能科学技术, 2017, **51**(12): 2242 - 2247. DOI: 10.7538/yzk.2017.51.12.2242.
XU Qian, MA Xubo, QIU Ruomeng, *et al.* Effect of Pb and Bi cross section from different nuclear evaluation databases on k_{eff} of LFR[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2017, **51**(12): 2242 - 2247. DOI: 10.7538/yzk.2017.51.12.2242.
- 14 孙伟. 行波堆物理分析方法及物理特性研究[D]. 北京: 清华大学, 2014.
SUN Wei. Research on the reactor physics analysis methods and characteristics of traveling wave reactor[D]. Beijing: Tsinghua University, 2014.
- 15 Okawa T, Sekimoto H. A design study on Pb-208 cooled compact CANDLE burning reactor for future nuclear energy supply[J]. Annals of Nuclear Energy, 2010, **37**(11): 1620 - 1625. DOI: 10.1016/j.anucene.2010.06.002.
- 16 Hong S G, Kim J H, You W. A neutronic design study of lead-bismuth-cooled small and safe ultra-long-life cores [J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, **85**: 58 - 67. DOI: 10.1016/j.anucene.2015.04.032.
- 17 Godoy J M, Godoy M L D P, Aronne C C. Application of inductively coupled plasma quadrupole mass spectrometry for the determination of monazite ages by lead isotope ratios[J]. Journal of the Brazilian Chemical Society, 2007, **18**(5): 969 - 975. DOI: 10.1590/s0103-50532007000500014.
- 18 Lorusso P, Bassini S, del Nevo A, *et al.* GEN-IV LFR development: status & perspectives[J]. Progress in Nuclear Energy, 2018, **105**: 318 - 331. DOI: 10.1016/j.pnucene.2018.02.005.