

文章编号: 1007-4627(2017)03-0672-05

小型模块化熔盐堆钍利用方案

李晓晓^{1,2}, 伍建辉^{1,2}, 余呈刚^{1,2}, 邹春燕^{1,2,3}, 蔡翔舟^{1,2,3,†}, 陈金根^{1,2,3,†}

1. 中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800;
2. 中国科学院先进核能创新研究院, 上海 201800;
3. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 钍基熔盐堆 (Thorium Molten Salt Reactor, TMSR) 核能系统先导专项的研究目标是研发第四代裂变反应堆核能系统(即钍基熔盐堆)。为充分利用液态燃料熔盐堆的在线添料与在线燃料处理的优势, 同时考虑熔盐堆的快速部署, TMSR 先导专项部署了小型模块化熔盐堆。考虑燃料处理技术现状及其可能的发展方向, 小型模块化熔盐堆钍利用方案采用“三步走”战略。第一阶段采用在线加料与离线处理, 实现钍的成规模利用; 第二阶段采用在线加料和在线处理(U)与离线处理(MA)的结合, 实现钍的高效利用; 第三阶段采用在线加料及在线处理全部重金属, 实现钍的自持增殖利用。随着“三步走”战略的逐步实施, 钍铀燃料循环模式及后处理性能稳步提高, 重金属利用率得到明显改善, 同时有效降低了卸料毒性。考虑燃料许可容易度和建堆时间, 首先为钍利用方案第一阶段布置了三种可能的启堆燃料, 分别为低富集铀、低富集铀加钍和²³³U加钍。计算结果显示: 以低富集铀启堆时, 燃料循环性能与水堆相当; 以²³³U启堆时, 燃料利用率明显高于水堆, 且其放射性毒性比水堆低约2个数量级。

关键词: 熔盐堆; 加料; 钍利用; 放射性毒性

中图分类号: O571.43

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.34.03.672

1 引言

熔盐堆^[1]是第四代反应堆国际论坛^[2]推荐开发的第四代候选堆型之一。经过近几十年的发展, 熔盐堆主要有两大类型, 一类是液态燃料熔盐堆(MSR-LF), 另一类是固态燃料熔盐堆(MSR-SF)。前者采用熔融盐作为燃料和冷却剂, 也即通常意义上的熔盐堆; 后者采用耐高温和抗辐照能力强的包覆燃料颗粒(TRISO)作为燃料, 以氟化盐为冷却剂, 通常称为氟盐冷却球床高温堆(FHR)。液态燃料熔盐堆可进行在线加料及在线燃料后处理, 是国际公认的适合钍燃料利用的堆型^[3, 4]。钍燃料因其固有优势, 如全球储量约3倍于铀^[5]、全能谱可实现增殖、长寿命次锕系核素产额低、防核扩散性能强等, 被认为是未来可能的铀燃料替代资源。

为了实现基于熔盐堆技术的钍资源高效利用, 中国科学院于2011年启动了钍基熔盐堆(Thorium Molten Salt Reactor, TMSR)核能系统先导专项(后文简称“TMSR先导专项”)^[6, 7]。其目标是用20年左右研发第四代裂变反应堆核能系统及钍铀燃料循环相关技术,

达到工业应用^[8]。TMSR先导专项包括液态燃料熔盐堆和固态燃料熔盐堆两种堆型, 采取同时部署和相继开发的技术路线。根据TMSR先导专项目标, 熔盐堆的发展包括2 MW实验堆、百MW示范堆和GW级商用堆。根据专项制定的不同阶段技术路线, 将渐次实现熔盐堆关键技术的突破, 从而逐步提高熔盐堆钍利用性能, 最后在熔盐堆核能系统上实现全闭钍铀燃料循环, 并确保核废料排放最小化。

从堆设计角度, 基于钍基熔盐堆的固有安全、高燃料利用率和灵活的燃料循环模式等优点, 同时考虑小型模块化堆^[9]具有的灵活电网匹配、降低的投资风险、加强的堆安全性能等优势, TMSR先导专项部署了电功率为百MW级别的小型模块化熔盐堆。作为液态燃料熔盐堆的一种, 小型模块化熔盐堆的核燃料熔盐于载体盐(LiF-BeF₂或NaF-BeF₂等)中, 可用于焚烧传统堆型(如LWR)产生的核废料中的超铀核素(TRU), 同时也可以很宽的能谱范围内实现钍的转换或增殖。从核燃料循环角度, 考虑²³³U的良好裂变性能、液态燃料盐的流动性以及燃料盐的在线高效后处理性能^[10],

收稿日期: 2016-12-12; 修改日期: 2017-07-13

基金项目: 中国科学院 TMSR 战略先导专项(XDA02010000); 国家自然科学基金资助项目(91326201); 钍铀燃料循环特性和若干关键问题研究(QYZDY-SSW-JSC016)

作者简介: 李晓晓(1984-), 女, 山东滨州人, 助理研究员, 博士, 从事钍铀燃料循环物理研究; E-mail: lixiaoxiao@sinap.ac.cn

† 通信作者: 陈金根, E-mail: chenjg@sinap.ac.cn; 蔡翔舟, E-mail: caixz@sinap.ac.cn。

TMSR 先导专项确认了一千多种可能的基于小型模块化熔盐堆的钍铀燃料循环模式, 并开展了一系列燃料循环评估。经过综合评估和筛选, TMSR 先导专项提出了创新的“三步走”钍利用方案(详见2.1节), 逐步提高钍利用性能, 最终实现全闭式钍铀燃料循环。为实现“三步走”第一阶段的燃料循环性能目标, 第3章给出了三种可能的核燃料循环模式。

2 小型模块化熔盐堆钍利用方案的制定

2.1 钍利用方案的提出

从核燃料循环角度, 核燃料主要分为铀钍燃料循环和钍铀燃料循环两大体系。钍铀燃料循环有其固有优势, 包括: 钍在热中子反应堆中转换能力更强并且能够在全能谱范围实现增殖, 钍基燃料所产生的长寿命次锕系核素(MA)产额低, 由于 ^{232}U 衰变链具有放射性使得钍燃料防核扩散能力更强。国际上包括国际原子能机构在内的多个国家和组织已经开始了针对钍资源利用的战略和工程方面的研究。但是与成熟的铀钍燃料循环技术相比, 钍铀燃料循环存在两个主要问题: (1) 天然钍燃料不含任何易裂变核素, 钍铀燃料循环必须使用额外的易裂变燃料(^{233}U , ^{235}U 或 ^{239}Pu)或外中子源启动; (2) 钍铀燃料循环存在中间核 ^{233}Pa , 其通过 β 衰变可得到易裂变燃料 ^{233}U 。但是 ^{233}Pa 有着较长的半衰期(约为27 d)和较高的热中子俘获截面, 会影响 ^{233}U 的产生。停堆后 ^{233}Pa 衰变产生的 ^{233}U 会引起反应性波动, 在钍基熔盐堆设计和安全分析时必须加以重视。为了提高中子经济性和反应堆运行安全, ^{233}Pa 和裂变产物的及时去除是实现钍铀增殖至关重要的因素。钍基熔盐堆因其核燃料和裂变产物熔融于载体盐中, 通过在线处理即可实现上述目标。同时, 通过在线添料, 可实现反应堆长期、高效及安全运行。此外, 钍基熔盐堆在后处理时可以考虑回收载体盐实现循环利用, 以提高堆运行经济性。

基于核燃料循环模式、钍铀燃料循环优势及熔盐堆的独有特征, TMSR 先导专项确认了一千多种基于小型模块化熔盐堆的燃料循环模式, 涵盖了不同堆堆燃料、不同中子能谱、不同加料模式和不同后处理模式等。通过系统地燃料循环评估和筛选, 考虑技术可行性(特别是后处理技术), TMSR 先导专项提出了创新的“三步走”钍利用方案^[7]。其总体目标是: 基于液态熔盐堆灵活的堆芯设计, 兼顾钍燃料的增殖和重金属的嬗变, 有效降低核废料排放及提高燃料利用率。“三步走”方案的可行性从高到低, 关键技术研发从易到难。第一阶段采用在线加料并离线处理重金属, 第二阶段实

现在线处理铀燃料, 第三阶段实现所有重金属的在线回收利用。从第一阶段到第三阶段, 燃料循环模式及后处理性能逐步提高, 钍利用性能得到稳步改善。此外, 第三阶段通过充分焚烧前两阶段的MA或TRU可实现全闭式钍铀燃料循环。

2.2 基于小型模块化熔盐堆的钍利用方案

小型模块化熔盐堆的钍利用方案(即“三步走”)主要基于放化后处理技术成熟度制定, 重点考虑钍铀燃料循环性能, 包括钍能量贡献、钍铀转换比、重金属利用率和卸料放射性毒性等。考虑到载体盐(或冷却剂)的制备和储备需求, 可通过减压蒸馏回收冷却剂实现循环利用, 以提高堆运行经济性。

钍利用方案第一阶段(图1)技术程度高, 实现难度低。通过裂变气体的连续吹扫提高中子经济性; 通过在线加料(铀和/或钍)以维持堆临界运行; 运行数年(5年或10年)后, 整堆卸料进行离线处理, 通过氟化挥发回收U和Th重新装堆, 以提高燃料利用率; 裂变产物(FP)和次锕系核素(MA)暂存(MA留待实现全闭式循环时使用, 进一步提高燃料利用率并降低核废料的放射性毒性)。该阶段可实现铀的批次回收并确认钍的批次回收流程, 以实现钍的成规模利用。其燃料循环性能略优于传统水堆, 重金属利用率优于传统水堆(高于1%), 卸料毒性与传统水堆量级相当。

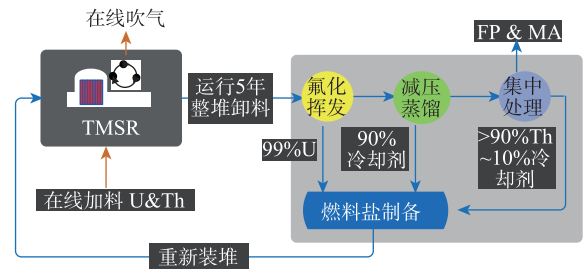


图1 (在线彩图) 钍利用方案第一阶段

随着放化后处理技术的提高, 钍利用方案第二阶段(图2)逐步实现部分在线处理(即不停堆处理)。第二阶段实现在线加料(铀和/或钍)的同时在线提取铀燃料并在线回堆, 钍燃料离线批处理并在线回堆, 裂变产物

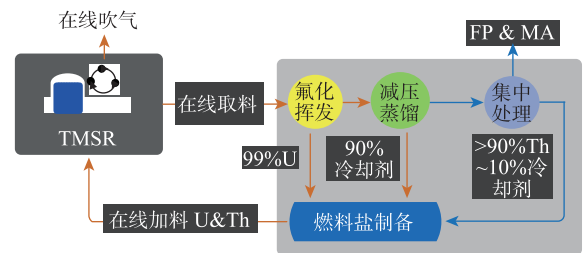


图2 (在线彩图) 钍利用方案第二阶段

和次锕系核素的处理方式同第一阶段(即暂存)。该阶段可实现铀的连续回收和钚的批次回收,其燃料利用率和卸料毒性有显著改善,同时可实现钚的高效利用。

钚利用方案第三阶段(图3)实现全在线燃料循环模式,在线提取全部重金属(包括铀和钚燃料)并在线回堆。该阶段实现了深燃耗全闭循环,MA在线回堆,钚在线回堆并实现自持利用,最终只排放裂变产物,极大地提高了燃料利用率并降低了卸料放射性毒性(比传统水堆低两到三个量级左右)。该阶段可实现铀的连续回收及钚和TRU的批次回收,达到钚自持利用的目标;亦可焚烧第一和第二阶段的MA和/或TRU,最终实现全闭循环和核废料排放最小化。

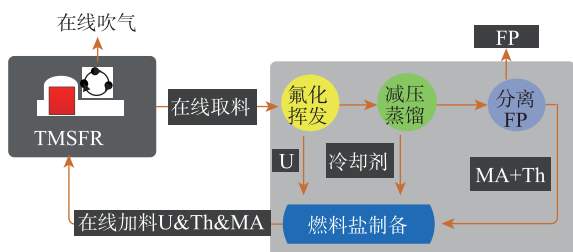


图 3 (在线彩图) 钚利用方案第三阶段

3 小型模块化熔盐堆钚利用方案第一阶段初步分析

钚利用“三步走”方案第一阶段的目标是实现重金属的连续(铀)或批次(钚)回收流程,并实现钚的成规模利用。为此,该阶段的燃料循环以铀为主,考虑钚铀混合运行,验证钚铀转换和增殖的可行性。此时,小型模块化熔盐堆燃料循环系统主要包括液态燃料熔盐堆、在线吹气系统、离线燃料处理系统和燃料盐重构系统等。

为实现熔盐堆型的快速部署,第一阶段部署了小型模块化熔盐堆,通过更换少量模块即可实现不同需求,如发电、海水淡化、制氢和供热/供热蒸汽等。基本设计考虑如下:为满足小型模块化需求,其电功率设计为百MW级^[9];考虑可行性和尽快部署,设计本身尽量简单可靠,尽量利用TMSR先导专项前期工作中的技术基础和橡树岭国家实验室(ORNL)已经建成熔盐堆的技术基础;同时应尽可能充分基于熔盐堆特点进行设计,以达到更高的安全性和更高的经济性;核燃料循环以铀燃料为主,同时考虑钚燃料的利用;考虑燃料盐制备可行性和经济性,载体盐拟采用FNaBe(NaF-BeF₂);实现在线吹气(包括Xe, Kr和T等)和在线添加核燃料;单堆运行5个满功率年后整体冷却卸载;核岛内不进行维修,直接更换模块。其堆芯结构示意图和主要设计参数如图4和表1所示。

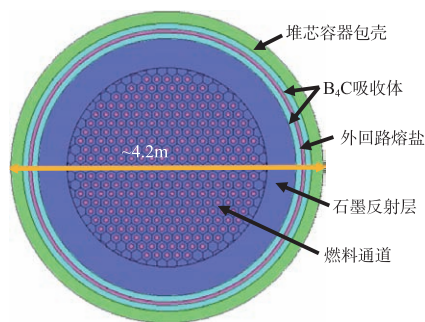


图 4 (在线彩图) 小型模块化熔盐堆堆芯示意图(第一阶段)

表 1 小型模块化熔盐堆主要设计参数

| 设计参数 | 值 | 设计参数 | 值 |
|-----------|-------------|-----------------------|-----------------------|
| 热/电功率 | 667/300 MW | 热电转换效率 | 45% |
| 堆本体模块寿命 | 5 a | 堆本体进/出口温度 | 600/700 °C |
| 堆本体直径/高度 | 5.0 m/5.1 m | 堆芯直径/高度 | 3.4 m/3.4 m |
| 上下/侧反射层厚度 | 0.3 m/0.3 m | B ₄ C吸收体厚度 | 0.1 m |
| 熔盐导流层厚度 | 5 cm | 堆芯容器包壳厚度 | 0.25 m |
| 堆芯燃料盐体积份额 | 12% | 堆芯功率密度 | ~22 MW/m ³ |

小型模块化熔盐堆的钚利用方案第一阶段以铀为主,考虑钚转换,基准燃料循环可设计为含钚、以20%富集度的低富集铀(LEU)启堆(即LEU+Th)。基准燃料循环流程如图5所示,具体为:(1)在线添加LEU,运行数年换堆罐,燃料集中处理再利用;(2)在线吹气的同时考虑主要重金属(铀、钚等)和裂变产物(FP)及次锕系核素(MA)的分离。为了提高堆运行经济性,载体盐考虑回收循环使用。考虑燃料许可容易度,第一阶段的燃料循环亦可采用低富集铀(即LEU,此时富集度为3%)启堆,可实现迅速建堆。此外,若解决了U-233的来源问题,亦可直接采用U-233启堆(即U3+Th),在线添加U-233维持临界,从而实现钚铀自持或增殖,也是未来钚基熔盐堆的主要燃料循环模式。载体盐选择

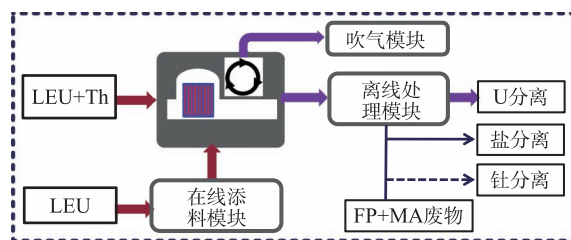


图 5 基准燃料循环模式(针对钚利用方案第一阶段)

经济实惠的NaF-BeF₂, 加料燃料盐中LEU的富集度为20%。为改善钍增殖, 商业化钍基熔盐堆的部署阶段可选择Li-7丰度较高的(如99.995%)LiF-BeF₂作为载体盐。考虑堆本体模块的设计寿命, 换料时间设计为5 a。

本文采用基于中子输运与燃耗计算程序SCALE6.1开发的熔盐后处理程序MSR-RS^[12](MSR reprocessing sequence)对小型模块化熔盐堆的核燃料循环模式进行研究。MSR-RS程序通过耦合SCALE6程序中的临界计算模块(CSAS)、截面处理模块(TRITON)和燃耗与衰变计算模块(ORIGEN-s), 可实现熔盐堆的在线加料、在线燃料处理等功能。燃耗过程中截面加工采用的是238群的ENDF/B-VII库。考虑计算精度和计算资

源, 燃耗步长设置为60 d, 共约30个步长(计5 a); 同时每个燃耗步长的循环设为200代(其中跳过50代, 每代运行2000个粒子), 每步燃耗考虑的核素数目为388种。

利用后处理程序MSR-RS进行模拟计算, 小型模块化熔盐堆的3种可能的核燃料循环模式(LEU, LEU+Th和U3+Th)的性能如表2所列。从中可以看出: 前两种燃料循环模式以LEU启堆, 其燃料利用率与传统水堆相当, 分别为0.4%和0.5%; 第3种燃料循环模式以U-233启堆, 无铀富集过程, 其燃料利用率可达55%。3种燃料循环模式的放射性毒性依次降低一个数量级, 分别为 1.3×10^9 , 6×10^8 和 1.3×10^7 Sv/GW·a。

表2 钍利用方案第一阶段的核燃料循环模式性能比较

| 性能参数 | LEU | LEU+Th | U3+Th |
|-----------------|---|--|---|
| 燃料盐形式 | NaF-BeF ₂ -3%LEUF ₄ | NaF-BeF ₂ -ThF ₄ -20%LEUF ₄ | NaF-BeF ₂ -ThF ₄ - ²³³ UF ₄ |
| 换料时间/a | 5 | 5 | 5 |
| 燃料添料率/(kg/d) | 2.5 (^{20%} LEU) | 2.25 (^{20%} LEU) | 0.5 (²³³ U) |
| 转换比 | 0.4 | 0.75 | 0.8 |
| 燃料利用率/(%) | 0.4 | 0.5 | 55.0 |
| 放射性毒性/(Sv/GW·a) | 1.3×10^9 | 6×10^8 | 1.3×10^7 |

4 总结与展望

TMSR 先导专项旨在研发第四代的裂变反应堆核能系统及钍铀循环技术。通过一系列燃料循环评估, 基于小型模块化熔盐堆, 提出了“三步走”钍利用方案, 总体目标是实现钍资源高效自持利用和核废料最小化。随着燃料循环模式及后处理性能提高, 逐步实现钍的成规模利用、高效利用到自持利用, 显著改善重金属利用率并有效降低卸料毒性。在钍利用方案第一阶段中, 小型模块化熔盐堆的设计功率为百 MWe。依据燃料许可容易度和建堆时间考虑, 为其布置了三种燃料循环模式。其中以 U-233 启堆的燃料循环模式(即 U3+Th)有望实现钍铀自持甚至增殖, 是未来钍基熔盐堆核能系统的主要燃料循环模式。

“三步走”钍利用方案的提出, 为基于钍基熔盐堆的核燃料闭式循环提供了可能的堆型和燃料循环模式, 通过堆型和燃料循环模式的优化组合可进一步提高燃料利用率并降低核废料的产生。此外, 各阶段还需开展详尽的燃料循环评估, 为钍基熔盐堆燃料循环战略的制定和实施提供可靠依据。基于钍利用方案第一阶段的小型模块化熔盐堆的燃料循环性能有待进一步改善, 主要途径包括堆芯几何、燃料布置方式、启堆燃料和后处理模式等的优化。

参考文献:

- [1] SERP J, ALLIBERT M, BENEŠ O, *et al.* Progress in Nuclear Energy, 2014, **77**: 308.
- [2] KELLY J E. Progress in Nuclear Energy, 2014, **77**: 240.
- [3] KŘEPEL J, HOMBOURGER B, FIORINA C, *et al.* Annals of Nuclear Energy, 2014, **64**: 380.
- [4] MATHIEU L, HEUER D, BRISSOT R, *et al.* Progress in Nuclear Energy, 2006, **48**(7): 664.
- [5] LESTER R M, NORMAN E, JEAN F. The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements[M]. Forth Edition. New York: Springer Science & Business Media, 2010: 1.
- [6] JIANG M H, XU H J, DAI Z M. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2012, **27**(3): 366. (in Chinese)
(江绵恒, 徐洪杰, 戴志敏. 中国科学院院刊, 2012, **27**(3): 366.)
- [7] CAI X Z, DAI Z M, XU H J. Physics, 2016, **45**(9): 578. (in Chinese)
(蔡翔舟, 戴志敏, 徐洪杰. 物理, 2016, **45**(9): 578.)
- [8] XU H J. Thorium Energy and Molten Salt Reactor R&D in China[M]. Thorium Energy for the World. New York: Springer International Publishing, 2016: 37.
- [9] International Atomic Energy Agency (IAEA). Advances in Small Modular Reactor Technology Developments[M]. A Supplement to: IAEA Advanced Reactors Information System (ARIS), 2016 Ed.
- [10] XU H J, DAI Z M, CAI X Z. Nuclear Physics News, 2014, **24**(2): 24.
- [11] Reactor and Fuel Cycle Technology Subcommittee Report to

the full Commission, Blue Ribbon Commission on America's Nuclear Future[C]. Washington, DC, January, 2012.

[12] YU C G, LI X X, CAI X Z, *et al.* Annals of Nuclear Energy, 2015, **85**: 597.

Thorium Utilization Strategy for a Small Modular Molten Salt Reactor

LI Xiaoxiao^{1,2}, WU Jianhui^{1,2}, YU Chenggang^{1,2}, ZOU Chunyan^{1,2,3}, CAI Xiangzhou^{1,2,3,†}, CHEN Jingen^{1,2,3,†}

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

2. CAS Innovative Academies in TMSR Energy System, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The missions of the Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) Nuclear Energy System are to research and develop the thorium based molten salt reactors (MSR) belonging to the fourth generation of nuclear fission reactor system. A Small modular Molten Salt Reactor (SmMSR) is deployed to make full use of the advantages of online refueling and online reprocessing and to consider the rapid deployment of MSR. An innovative “three-stage” strategy of thorium utilization based on SmMSR is proposed to take the current condition of fuel reprocessing and its future evolution. The first stage can realize the thorium utilization at a large scale with online refueling and off-line processing. The second stage can obtain efficient thorium utilization with online refueling, online processing of uranium and off-line processing of minor actinides (MAs). The third stage is implemented with self-sustaining or breeding mode with online refueling and online processing of all heavy metals. Along with the development of three stages, the utilization of heavy metals will be obviously improved and the radio-toxicity will be significantly reduced. A SmMSR is designed to achieve the goals of the first stage of thorium utilization. And three kinds of nuclear fuel cycles with different startup fuel types (*i.e.*, low enriched uranium (LEU), thorium mixed with LEU (LEU+Th) and thorium mixed with ^{233}U ($^{233}\text{U}+\text{Th}$)) are implemented. The results show that the performance for fuel cycle containing LEU is comparable to the pressurized-water reactor (PWR). Meanwhile, the nuclear utilization for that containing ^{233}U is much higher than PWR, and the radio-toxicity for which is lower by ~ 2 magnitudes than that for PWR.

Key words: Molten Salt Reactor(MSR); refueling; thorium utilization; radio-toxicity

Received date: 12 Dec. 2016; **Revised date:** 13 Jul. 2017

Foundation item: TMSR Strategic Pioneer Science and Technology Project of CAS (XDA02010000); National Natural Science Foundation of China (91326201); Frontier Science Key Program of Chinese Academy of Sciences (QYZDY-SSW-JSC016)

† **Corresponding author:** CHEN Jingen, E-mail: chenjg@sinap.ac.cn; CAI Xiangzhou, E-mail: caixz@sinap.ac.cn.