

氟盐冷却高温堆主冷却剂放射性源项研究

周波^{1,2}, 严睿^{1,2}, 邹杨^{1,2,*}, 戴叶^{1,2}, 朱贵凤^{1,2},
于世和^{1,2}, 刘亚芬^{1,2}, 杨璞^{1,2}

(1. 中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800; 2. 中国科学院核辐射与核能技术重点实验室, 上海 201800)

摘要: 针对氟盐冷却高温堆(FHR)正常运行时主冷却剂放射性源项进行了研究。对主回路源项主要贡献来源及产生原理进行了分析, 基于三维蒙特卡罗输运程序KENOV1、燃耗分析模块ORIGEN-S及Mathematica程序, 对堆芯中子能谱、堆芯源项及主回路源项扩散及活化进行了分析。应用该方法对FHR的一种设计堆型进行了定量分析, 结果表明: 主回路氚源项相对其他堆的较高, 其产生率为 $5.16 \times 10^{14} \text{ Bq} \cdot \text{GWth}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$, 应采取有效措施限制其向环境的释放。本文结果可为FHR的工程设计、辐射防护设计、氚源项控制、三废处理系统设计等提供参考。

关键词: 氟盐冷却高温堆; 主冷却剂系统; 源项

中图分类号: TL929

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2017)03-0462-06

doi: 10.7538/yzk.2017.51.03.0462

Study on Radioactive Source Term of Primary Coolant System in Fluoride Salt Cooled High Temperature Reactor

ZHOU Bo^{1,2}, YAN Rui^{1,2}, ZOU Yang^{1,2,*}, DAI Ye^{1,2}, ZHU Gui-feng^{1,2},
YU Shi-he^{1,2}, LIU Ya-fen^{1,2}, YANG Pu^{1,2}

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

2. Key Laboratory of Nuclear Radiation and Nuclear Energy Technology,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract: The radioactive source term of primary coolant in fluoride salt cooled high temperature reactor (FHR) was studied in normal operating conditions. The main contributions of primary coolant source term were theoretically analyzed. Neutron spectrum, fuel source term concentration and source term activation and diffusion in primary coolant were also studied using 3D Monte Carlo transport program KENOVI, burnup analysis program ORIGEN-S and scientific computing program Mathematica. The radioactive source term of primary coolant was quantitatively analyzed based on one kind of design scheme of FHR using this method. The results show that tritium source term in primary coolant is higher than that of other reactors, tritium production rate is $5.16 \times$

收稿日期: 2016-05-16; 修回日期: 2016-09-27

基金项目: 中国科学院战略性先导研究项目资助(XDA02010200)

作者简介: 周波(1985—), 男, 山东邹城人, 工程师, 硕士, 核技术及应用专业

*通信作者: 邹杨, E-mail: zouyang@sinap.ac.cn

$10^{14} \text{ Bq} \cdot \text{GWth}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$, and its release to the environment should be limited using effective method. The results can be used as reference for engineering design, radiation protection design, tritium control and waste treatment system design for FHR.

Key words: fluoride salt cooled high temperature reactor; primary coolant system; source term

熔盐堆(MSR)的概念源自于美国 20 世纪 50~70 年代橡树岭国家实验室(ORNL)建造或设计的 ARE^[1-2]、MSRE^[3-4]、MSBR^[5-6]、DMSR^[7] 等实验堆。2001—2003 年间,ORNL、桑地亚国家实验室(SNL)和加州大学伯克利分校(UCB)共同发展了先进高温堆——AHTR 的概念,后正式命名为氟盐冷却高温堆(FHR)^[8-10]。2011 年,中国科学院启动了“未来先进核裂变能——钍基熔盐堆核能系统”战略性先导专项,其首期计划建成 2 MW 液态燃料熔盐实验堆和 10 MW 固态燃料熔盐实验堆^[11]。

现有燃耗程序无法针对 FHR 考虑裂变产物、腐蚀活化产物对主回路源项的贡献,且存在部分核素反应道截面缺失的问题,如⁷Li及 C 的同位素截面等。⁷Li及 C 同位素是构成 FHR 主回路及慢化剂的主要成分,源项分析应尽可能完整考虑到所有可能的来源。针对以上问题,基于 ENDF. B VII 基础截面库的截面插值,利用 Mathematica 求解微分方程,对 FHR 主冷却剂系统源项进行分析。

1 模型描述

FHR 堆芯模型如图 1 所示,活性区为球床随机堆积,燃料球间隙形成冷却剂流道。堆芯热功率为 10 MW,冷却剂为 2LiF-BeF₂ (⁷Li 丰度>99.99%),燃料元件直径为 6 cm,²³⁵U 富集度为 17.0%,燃料及 TRISO 包覆颗粒结构

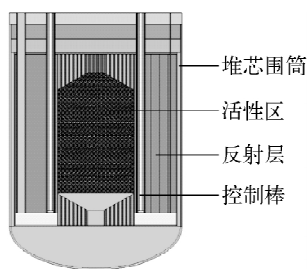


图 1 FHR 堆芯示意图

Fig. 1 Schematic diagram of FHR core

如图 2 所示。堆芯主冷却剂正常运行工况进出口温度为 600~650 °C,堆芯直径为 2.6 m,高度为 3.0 m,堆芯设计寿命 20 a,满功率运行燃耗寿期 250 d。

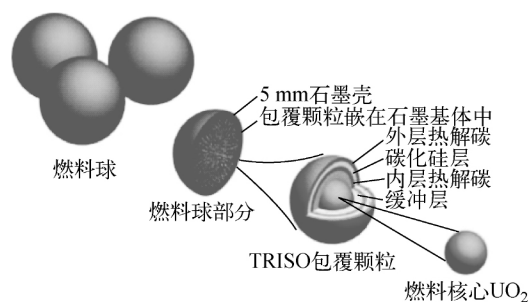


图 2 燃料及 TRISO 包覆颗粒结构

Fig. 2 Fuel and TRISO coated particle structure

TRISO 颗粒建模时采用了简单立方栅元的排列,单个燃料球铀装量 7 g,燃料球堆积因子为 60%,采用体心立方建模。

2 理论及方法

2.1 堆芯积存量源项

能谱采用三维蒙特卡罗输运程序 KENOVI 计算。堆芯积存量计算采用 SCALE6.1 程序包中的 TRITON 控制模块^[12],该模块主要调用 ORIGEN-S^[13]进行核素燃耗计算。

2.2 裂变产物源项

堆芯裂变产物源项扩散份额参考 HTR-10 的计算方法^[14],裂变产物从燃料元件扩散至主回路主要考虑 3 种来源:1) 完整包覆颗粒的扩散;2) 破损包覆颗粒的扩散;3) 石墨基体中自由铀污染的贡献。

根据扩散份额利用 Mathematica 对主回路裂变产物源项扩散方程进行了求解。图 3 示出主回路源项的扩散路径。以放射性核素¹³³Xe 为例,考虑系统间扩散及系统内的衰变与演化,¹³³Xe 扩散至主回路的浓度可写成以下微分方程组:

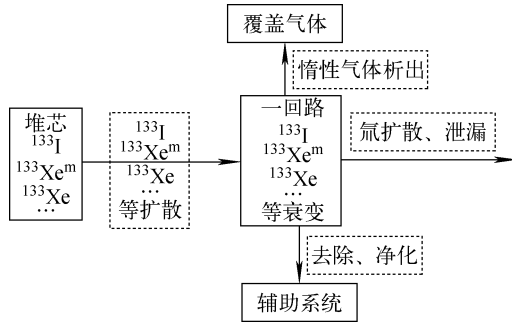


图3 主回路相关源项扩散衰变处理流程

Fig. 3 Flow chart of diffusion of source term in primary coolant

$$\frac{dN_{i133}(t)}{dt} = S_{i133} \text{Rel}_{i133} - N_{i133}(t)(\lambda_{i133} + \text{Rem}_{i133}) \quad (1)$$

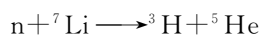
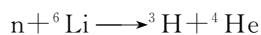
$$\begin{aligned} \frac{dN_{xe133m}(t)}{dt} &= S_{xe133m} \text{Rel}_{xe133m} + \\ &N_{i133}(t)\lambda_{i133} b_{i133xe133m} - \\ &N_{xe133m}(t)(\lambda_{xe133m} + \text{Rem}_{xe133m}) \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_{xe133}(t)}{dt} &= S_{xe133} \text{Rel}_{xe133} + \\ &N_{i133}(t)\lambda_{i133} b_{i133xe133} + N_{xe133m}(t)\lambda_{xe133m} - \\ &N_{xe133}(t)(\lambda_{xe133} + \text{Rem}_{xe133}) \end{aligned} \quad (3)$$

其中: N 为原子密度; t 为辐照时间; Rel 为核素从燃料到冷却剂的释放份额; λ 为半衰期; Rem 为移除率; $b_{i133xe133m}$ 为 ^{133}I 到 $^{133}\text{Xe}^m$ 的衰变分支比; S 为燃料中积存量; 下标 $i133$ 、 $xe133m$ 、 $xe133$ 分别表示 ^{133}I 、 $^{133}\text{Xe}^m$ 和 ^{133}Xe 。对 ^{135}I 、 $^{135}\text{Xe}^m$ 、 ^{135}Xe 、 ^{88}Kr 及 ^{88}Rb 等核素也采用同样的方式进行求解。

2.3 氚源项

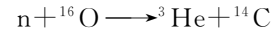
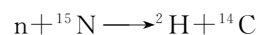
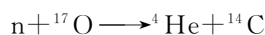
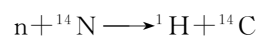
氚源项在 FHR 中主要有以下两种来源:



控制棒中的硼、石墨及冷却剂中的硼锂杂质对氚源项均有一定贡献,但其靶核数量较少,其贡献也相对较少,主冷却剂中的 ${}^6\text{Li}$ 、 ${}^7\text{Li}$ 为产氚主要来源。

2.4 ^{14}C 源项

在 FHR 中, ^{14}C 的产生来源主要有:



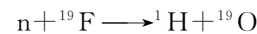
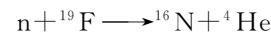
冷却剂及燃料球中的 C、N、O 杂质活化可生成 ^{14}C , 少部分 ^{14}C 可通过燃料球磨损进入主回路。燃料球在熔盐冷却剂中磨损率参数尚无确定的实验数据, 石墨球的磨损速率根据德国 AVR 堆的运行经验推得。AVR 堆共有 10.3 万个燃料球, 年磨损产生的石墨粉量为 3 kg, 根据经验公式得到的石墨的总磨损速率理论值为 1.67 kg/a^[15]。本文以理论磨损速率作为输入。由于熔盐环境燃料球之间的润滑摩擦要小于 HTR-10 中的干性摩擦, 因此采用 AVR 堆的实验结果作为 FHR 的计算输入, 理论上具有较大的保守性。

2.5 腐蚀活化产物源项

FHR 的主回路压力边界采用耐腐蚀、耐高温性能较好的镍基合金材料——Hastloy N, 但在熔盐腐蚀及高温环境下, 仍有少量合金腐蚀产物进入堆芯从而被活化, 这部分源项称之为腐蚀活化产物源项, 主要由 Fe、Co、Ni、Mn、Cr 等同位素通过 (n, γ) 、 (n, p) 两种反应产生。结合 MSRE 的运行经验对熔盐杂质浓度进行了评估, 核素浓度均采用平衡浓度作为评估值, 以确保最大保守性。主要核素及其浓度为: Cr, 100 ppm; Ni, 20 ppm; Fe, 50 ppm; Mn, 10 ppm; Co, 1 ppm。

2.6 其他活化产物源项

主冷却剂除氚源项外, 还会产生多种活化产物, 如 ${}^8\text{Li}$ 、 ${}^{16}\text{N}$ 、 ${}^{20}\text{F}$ 、 ${}^6\text{He}$ 、 ${}^{19}\text{O}$ 、 ${}^{18}\text{F}$ 和 ${}^{17}\text{N}$ 等。其中, ${}^{16}\text{N}$ 、 ${}^{20}\text{F}$ 和 ${}^{19}\text{O}$ 的产生量大, 能量较高, 对主屏蔽外设备和管道的活化产生重要影响, 主要由冷却剂中 ${}^{19}\text{F}$ 核素通过以下核反应产生:



3 结果与讨论

图 4 示出主回路裂变产物源项随时间的变化。寿期末裂变产物放射性总强度约为 1.19×10^{11} Bq, 燃料球中积存量约为 1.95×10^{18} Bq, 主回路裂变产物放射性活度比堆芯积存量低 7 个数量级, 其原因为 TRISO 包覆颗粒能很好地包容放射性产物。图 4 中, 惰性气体的总活度为 6.47×10^{10} Bq, 占主回路总裂变产物的

54.2%, I 同位素的活度约为 4.96×10^{10} Bq, 占 41.6%, 重金属元素放射性总活度约为 4.93×10^9 Bq, 占 4.13%。计算中忽略泄漏及管道设备沉积导致的消失的裂变产物, 假设具有一定的保守性。

^7Li 、 ^6Li 的消耗及氚产量列于表 1。由表 1 可见, 氚总活度为 1.29×10^{15} Bq, ^6Li 对氚产量的贡献约为 92.4%, ^7Li 贡献约为 7.6%。

主冷却剂中 ^{14}C 产量计算所用到的输入参数及寿期末计算结果列于表 2。由表 2 可看出, 主冷却剂中 ^{17}O 及 ^{13}C 杂质的贡献要比主冷却剂中 ^{14}N 的贡献低 5 个数量级以上, 由于燃料球磨损进入主回路的 ^{14}C 的活度为 6.50×10^5 Bq, 相对主冷却剂中 ^{14}N 杂质的贡献要低 5 个数量级, 因此, 主冷却剂中 ^{14}C 源项主要贡

献来源为熔盐中的 ^{14}N 杂质, 寿期末主回路 ^{14}C 源项约为 3.12×10^{10} Bq。

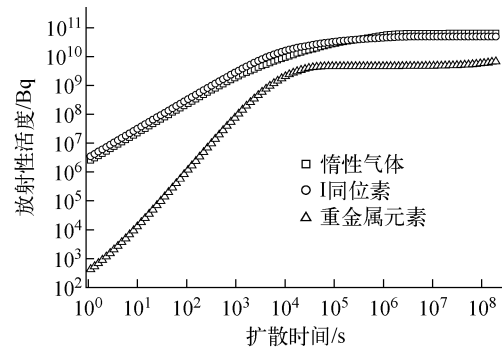


图 4 主回路裂变产物源项
Fig. 4 Fission product source term in primary coolant

表 1 主冷却剂氚源项

Table 1 ^3H source term in primary coolant

核素	中子通量密度/ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	(n, T)截面/ cm^2	活性体积/ cm^3	寿期末 氚产量/g	寿期末 总活度/Bq	比活度/ ($\text{Bq} \cdot \text{GW}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$)
^6Li	5.08×10^{13}	1.947×10^{-22}	2.23×10^6	5.47	1.26×10^{15}	2.83×10^{22}
^7Li	5.08×10^{13}	9.89×10^{-28}	2.23×10^6	0.442	3.16×10^{13}	2.29×10^{21}
总和				5.92	1.29×10^{15}	3.07×10^{22}

表 2 ^{14}C 源项来源及贡献

Table 2 ^{14}C source term and its contribution

源项来源	中子通量密度/ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	有效截面/ cm^2	^{14}C 总质量/g	比活度/ ($\text{TBq} \cdot \text{GW}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$)
^{14}N	5.08×10^{13}	3.80×10^{-25}	1.88×10^{-1}	4.49×10^5
^{17}O		5.70×10^{-26}	8.87×10^{-6}	2.10×10^1
^{13}C		3.28×10^{-28}	1.93×10^{-6}	4.58
燃料球磨损			3.94×10^{-6}	9.35

表 3 列出寿期末腐蚀活化产物源项, 其中 ^{56}Mn 、 ^{51}Cr 及 ^{60}Co 的活度较大, 分别为 1.41×10^{13} Bq、 2.62×10^{13} Bq 和 1.59×10^{12} Bq。表 4 列出主要腐蚀活化产物源项半衰期及截面参数。由表 4 可见, ^{60}Co 半衰期为 5.27 a, 是正常运行过程以及停堆后冷却剂中主要的放射性源项, 另外, ^{63}Ni 、 ^{59}Ni 半衰期分别为 7.61×10^4 a 以及 1.00×10^2 a, 为长时间停堆后的主要放射性源项。

表 3 腐蚀活化产物源项

Table 3 Corrosion activation product source term

核素	活度/Bq	核素	活度/Bq
^{56}Mn	1.41×10^{13}	^{58}Co	1.60×10^{11}
^{51}Cr	2.62×10^{13}	^{60}Co	1.59×10^{12}
^{54}Mn	1.30×10^{10}	^{59}Ni	1.73×10^8
^{55}Fe	5.48×10^{11}	^{63}Ni	2.32×10^{10}
^{59}Fe	7.67×10^{10}	^{65}Ni	1.27×10^{11}

表4 腐蚀活化产物源项半衰期及截面参数

Table 4 Half-life and cross section parameters of corrosion activation product

核素	半衰期/s	有效截面/cm ²	核素	半衰期/s	有效截面/cm ²
⁵⁶ Mn	9.28×10 ³	2.12×10 ⁻²⁴	⁵⁸ Co	6.12×10 ⁶	6.90×10 ⁻²⁷
⁵¹ Cr	2.39×10 ⁶	2.36×10 ⁻²⁴	⁶⁰ Co	1.66×10 ⁸	6.08×10 ⁻²⁴
⁵⁴ Mn	2.70×10 ⁷	5.24×10 ⁻²⁷	⁵⁹ Ni	2.40×10 ¹²	6.44×10 ⁻²⁵
⁵⁵ Fe	8.61×10 ⁷	3.51×10 ⁻²⁵	⁶³ Ni	3.16×10 ⁹	2.29×10 ⁻²⁴
⁵⁹ Fe	3.85×10 ⁶	1.77×10 ⁻²⁵	⁶⁵ Ni	9.06×10 ⁻³	2.48×10 ⁻²⁵

¹⁶N、²⁰F、¹⁹O等放射性源项由于具有高的放射性以及较强的穿透性,也是主回路屏蔽的主要源项,图5为¹⁶N、²⁰F和¹⁹O的放射性活度产生源项。由图5可见,¹⁶N及²⁰F平衡强度分别为 1.21×10^{16} Bq和 4.21×10^{15} Bq,其半衰期较短,分别为11.2 s和7.13 s。

相较其他堆型,氚源项在FHR主回路中较为突出,一方面其强度相对压水堆大4个量级,另一方面氚极易扩散迁移。表5列出不同堆型在稳定运行情况下氚产生率的对比^[15]。由表5可见,FHR与CANDU堆的归一化氚产生率相比较, CANDU堆在设计上考虑了氚在线移除装置,将处理收集的氚以钛金属吸

收氚气的形式存储于钢制容器内,并将钢容器放置于混凝土结构中。

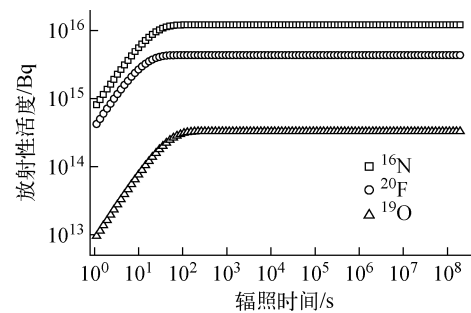
图5 ¹⁶N、²⁰F和¹⁹O源项Fig. 5 Source terms of ¹⁶N, ²⁰F and ¹⁹O

表5 不同堆型的归一化氚产生率

Table 5 Tritium production rate for different types of reactors

反应堆	堆功率	总产生率/(Bq·d ⁻¹)	归一化氚产生率
PWR(平均)	1.000 GWe	7.36×10^{10}	7.36×10^{10} Bq·GWe ⁻¹ ·d ⁻¹
CANDU	3.512 GWe	1.96×10^{15}	5.59×10^{14} Bq·GWe ⁻¹ ·d ⁻¹
MSR	1.000 GWe	8.95×10^{13}	8.95×10^{13} Bq·GWe ⁻¹ ·d ⁻¹
PBMR	0.133 GWe	6.64×10^{13}	4.99×10^{14} Bq·GWe ⁻¹ ·d ⁻¹
FHR	0.010 GWth	5.16×10^{12}	5.16×10^{14} Bq·GWth ⁻¹ ·d ⁻¹

为降低FHR主回路氚源项,设计中有必要考虑降低氚源项的产生及限制其扩散,主要采取以下方式:1)设计在线除氚及氚收集储存系统与装置;2)目前冷却剂中⁷Li的丰度为99.99%,还可考虑进一步富集至99.995%,这样既能降低氚产量,还可降低冷却剂对中子的吸收,从而提高中子经济性,改善冷却剂的温度反应性系数;3)主回路管道内壁及一、二回路熔盐换热器考虑阻氚涂层的设计。

4 结论及展望

本文对氟盐冷却高温堆主回路源项的主要来源进行了理论分析及研究,主回路源项中,¹⁴C、³H、I及惰性气体源项为环境排放的主要限制源项,应重点关注氚源项的扩散与排放;¹⁶N、²⁰F及金属腐蚀活化产物⁶⁰Co、⁵⁵Fe、⁵⁴Mn、⁵⁹Ni、⁶³Ni等具有强穿透性的 γ 放射性,是运行工况辐射防护设计需考虑的主要源项,而⁶⁰Co、⁵⁵Fe、⁵⁴Mn、⁵⁹Ni、⁶³Ni等腐蚀活化产物半

衰期相对较长,在停堆后的辐射防护设计中仍需重点考虑其剂量贡献。

后续研究将考虑以下内容:1)将堆芯及冷却剂回路根据中子通量、冷却剂流速及温度的变化划分为多个节点,进行精细计算,并对不同设备考虑不同形态放射性产物的附着沉积等效应;2)对双熔盐换热器、熔盐泵、二回路等关键设备及系统的放射性评估设计相关实验,通过对实验结果的分析,获得更接近实际的估计替代本文的保守假设,并基于实验结果对分析方法进行修正。

参考文献:

- [1] COTTRELL W B, HUNGERFORD H E, LESLIE J K, et al. Operation of the aircraft reactor experiment[R]. USA: ORNL, 1955.
- [2] BRIANT R. Collection of papers on the aircraft reactor experiment[J]. Nuclear Science and Engineering, 1957, 2: 797-853.
- [3] WEINBERG A M, ROSENTHAL M W, HAUBENREICH P N, et al. Collection of papers on the molten salt reactor experiment[J]. Nuclear Application & Technology, 1970, 8(2): 105-219.
- [4] SCOTT D, GRINDELL A G. Components and systems development for molten-salt breeder reactors, ORNL-TM-1855[R]. USA: ORNL, 1967.
- [5] ROBERTSON R C, SMITH O L, BRIGGS R B. Two fluid molten-salt breeder reactor design study, ORNL-4528[R]. USA: ORNL, 1970.
- [6] ROBERTSON R C. Conceptual design study of a single fluid molten-salt breeder reactor, ORNL-4541[R]. USA: ORNL, 1971.
- [7] ENGEL J, BAUMAN H, DEARING J, et al. Conceptual design characteristics of a denatured molten-salt reactor with once-through fueling [R]. USA: ORNL, 1980.
- [8] FORSBERG C W, PETERSON P F, PICKARD P S. Molten-salt-cooled advanced high-temperature reactor for production of hydrogen and electricity[J]. Nuclear Technology, 2003, 144(3): 289-302.
- [9] WILLIAM R C, TIMOTHY D B, WILLIAM H, et al. Updated generation IV reactors integrated materials technology program plan, Revision 2[R]. USA: ORNL, 2004.
- [10] INGERSOLL D T, FORSBERG C W, OTT L J, et al. Status of preconceptual design of the advanced high-temperature reactor (AHTR)[R]. USA: ORNL, 2004.
- [11] 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. Advanced fission energy program—TMSR nuclear energy system[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2012, 27(3): 366-374 (in Chinese).
- [12] DEHART M D. TRITON: A two-dimensional transport and depletion module for characterization of spent nuclear fuel[R]. USA: ORNL, 2006.
- [13] GAULD I C, HERMANN O W, WESTFALL R M. ORIGEN-S: Scale system module to calculate fuel depletion, actinide transmutation, fission product buildup and decay, and associated radiation source terms[R]. USA: ORNL, 2006.
- [14] 曹建主,奚树人. 高温堆燃料元件和包覆颗粒对裂变产物的滞留性能研究[J]. 核动力工程, 1999,20(5):440-443.
CAO Jianzhu, XI Shuren. Study on retaining performance of fuel element and coated particles to fission products in HTGR[J]. Nuclear Power Engineering, 1999, 20(5): 440-443 (in Chinese).
- [15] ALLEN T, ANDERSON M, BALLINGER R, et al. Fluoride-salt-cooled High Temperature Reactor (FHR) materials, fuels and components white paper[R]. USA: Department of Nuclear Engineering and Engineering Physics, University of Wisconsin, 2013.