一种小型熔盐堆的主回路放射性产物分析

周炜龙[1,2] 严 睿[1,2] 周 波[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 为满足小区域供电需求，提出了一种热功率为100 MWt的小型熔盐堆的堆芯概念设计。该设计通过调整堆芯燃料初始装载量，使得反应堆在不添料的条件下可满功率运行1 250 d，然后在寿期末进行燃料批处理。针对这种长换料周期的燃耗特性和燃料盐的特点，对该堆在运行期间主回路的放射性核素产量及其来源进行了分析。通过三维蒙特卡罗运输程序的计算软件KENOVI和燃耗分析模块Origen-S，对主回路放射性产物的积存量以及中子能谱等中子学参数进行了分析。结果表明：寿期末该反应堆中放射性活度约为7.36×10^{18} Bq，其中锕系核素的总活度约为1.47×10^{18} Bq，裂变产物的总活度为5.89×10^{18} Bq。裂变产物中惰性气体、碘的同位素及易挥发裂变金属分别为7.35×10^{17} Bq、9.56×10^{17} Bq、8.17×10^{17} Bq；锕系核素^{239}Np同位素占绝大多数，约占锕系核素放射性总量的98%，也是堆运行过程中放射性最大的核素。本文结果可以为小型熔盐堆的反应堆放射性安全管理、燃料后处理以及辐射防护设计提供参考。

关键词 熔盐堆，放射性活度，主回路，锕系核素
中图分类号 TL277
DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.070601

Radioactive product analysis of a small molten-salt reactor in primary loop

ZHOU Weilong[1,2] YAN Rui[1,2] ZHOU Bo[1]
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]** Based on the research of molten salt reactor (MSR), a conceptual design of small MSR core with thermal power of 100 MWt is proposed to meet the power supply demand of small area. By adjusting the initial fuel load of the reactor core, the reactor can operate at full power for 1 250 days without refueling, and then batch process fuel at the end of its life. **[Purpose]** This study aims to analyze the yield and source of radionuclides in the main loop during such a small MSR operation by providing the constitutions, main components, and parameters according to the burnup characteristics and fuel salt characteristics of the long refueling cycle. **[Methods]** The calculation software KENOVI for three-dimensional Monte Carlo transportation program and burnup analysis module Origen-S were employed to analyze the fuel consumption analysis module, the storage of radioactive products in the main loop and the neutron energy spectrum and other neutron parameters. **[Results]** The computation results show that the radioactivity at the end-of-life this small MSR is about 7.36×10^{18} Bq, and the radioactivity of

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：周炜龙，男，1994年出生，2017年毕业于湖北科技学院，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
收稿日期：2021-01-04，修回日期：2021-04-16
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: ZHOU Weilong, male, born in 1994, graduated from Hubei University of Science and Technology in 2017, master student, focusing on reactor physics
Corresponding author: YAN Rui, E-mail: yanrui@sinap.ac.cn
Received date: 2021-01-04, revised date: 2021-04-16

fission products in the end-of-life primary loop is about 5.89×10^{18} Bq, of which the inert gases, iodine isotopes and the volatile fission metal account for 7.35×10^{17} Bq, 9.56×10^{17} Bq, 8.17×10^{17} Bq respectively. The total radioactivity of actinide nuclides is about 1.47×10^{18} Bq, of which the ^{239}Np accounts for 98%. **[Conclusions]** This study provides reference for radiation protection design and fuel reprocessing scheme of molten salt reactor.

Key words Molten salt reactor, Radioactivity, Primary loop, Actinoid nuclides

熔盐堆（Molten Salt Reactor，MSR）的概念源自于20世纪40~60年代美国橡树岭国家实验室（Oak Ridge National Laboratory，ORNL）开展的飞行实验反应堆（Aircraft Reactor Experiment，ARE）[1]和熔盐实验堆（Molten-Salt Reactor Experiment，MSRE）[2]。熔盐实验堆设计、施工和运行的成功奠定了熔盐堆的基础技术，为熔盐堆提供了实验数据。而后在1970年提出了100 MWt的熔盐增殖堆（Molten Salt Breeder Reactor，MSBR）[3]的概念。自20世纪80年代以来，法国、日本、俄罗斯、中国等国家开展了一系列针对Th-U增值TRU核素嬗变[4]的熔盐堆研究。由于其固有安全性、优良的中子经济性和在线后处理能力，熔盐堆被选为第四代先进（Generation IV International Forum，GIF）核能系统的反应堆之一，也是唯一使用液体燃料设计的先进反应堆系统。在2011年，中国科学院启动了钍基熔盐堆（Thorium-based Molten Salt Reactor，TMSR）战略先导专项，目的是建造一座2 MWt石墨慢化液体燃料反应堆，用于解决熔盐堆相应技术问题[5]。

国际原子能组织（International Atomic Energy Agency，IAEA）核电技术发展部门表明，小型堆在效率、灵活性以及经济性方面具有显著优势，能够在未来清洁能源的转型中起到关键作用，预计小型堆在未来几年内会迎来广泛的部署。而作为第四代堆，熔盐堆具有多用途与小型灵活性的特点，易设计为小型堆，近年来全球对小型熔盐堆的前景也普遍看好。小型熔盐堆无需水进行冷却，特别适合干旱地区的电量供应，特别是我国中西部区域。针对该区域，预计2030年人均用电量在2 000~3 000 kW·h^{-1}，因此30 MWe的电量供应基本可以满足10万人口的乡镇能源供应需求。本文研究基于该应用场景，研究提出一种热功率为100 MWt的小型熔盐堆的堆芯概念设计。

熔盐堆在运行过程中会产生大量的放射性裂变产物，此外堆内结构材料、燃料盐及熔盐中的杂质也会受到堆内中子辐照而活化产生放射性，放射性产物的分析是核电厂安全分析、环评、废物管理和退役方面的基本依据，也是小型熔盐堆这类新堆型研发过程中应当考虑的重要内容。此外，小型熔盐堆采用寿期末批处理的方式，通过在燃料中加入一定量的钍，获取及验证部分其长时间运行的核素转化与源项特性。

小型堆的单批换料周期更长，这里初步设计为每1 250 d整体换料一次，对卸载的整个回路的燃料进行批处理。然后针对熔盐堆运行过程中放射性废物的特点，开展三类产物的放射性分析：1）裂变产物；2）锕系核素；3）冷却剂的活化。通过对小型熔盐堆满功率运行1 250 d的放射性产量及其来源的分析，为小型熔盐堆的源项分析、燃料后处理、小型化设计与钍利用方式提供重要依据，为小型熔盐堆堆的普及积累数据。

1 计算模型与分析方法

1.1 模型描述

图1为小型熔盐堆的堆芯物理模型，该堆是一个功率为100 MWt的石墨慢化的热堆，堆芯进出口平均温度为1 000 K。堆芯由内向外依次为活性区、石墨反射层、环腔、堆容器。活性区由含有熔盐流道的六边形石墨组件规则排列而成，石墨六棱柱组件直径约为10.4 cm，对边距为18 cm，流道中心间距为18 cm，熔盐燃料通道半径为3 cm。活性区半径为117 cm。外围为石墨反射层，由与活性区相同但不含流道的石墨组件组成，反射层厚度为20 cm。上下腔室厚度为10 cm，内部装有燃料熔盐。石墨反射层和堆容器之间为3 cm厚的熔盐环腔，外围为哈氏N镍基合金材料的堆容器。堆芯直径为280 cm，高度为300 cm。反应堆所用的燃料为LiF-BeF_2-ZrF_4-ThF_4-UF_4，摩尔组分为：50.6%-24%-5%-0.4%-20%，其中^{235}U的富集度为19.75%，^{7}Li的丰度为99.95%，熔盐的平均密度为3.98 g·cm^{-3}，整个熔盐体积为2.72 m^3，主要参数如表1所示。由于本小型熔盐堆具有较长的寿期，且期间不计划在线添料操作，因此初始后备反应性较大，在堆芯活性区内布置了两种不同尺寸的控制棒，共8根，用于反应性控制，其中细棒为调节棒，用于功率及温度补偿。粗棒为补偿棒和安全棒，分别用于燃耗补偿和停堆。

1.2 分析方法

堆芯燃耗以及核素的放射性源项分析采用Scale6.1软件包中的TRITON[5-6]模块来完成，

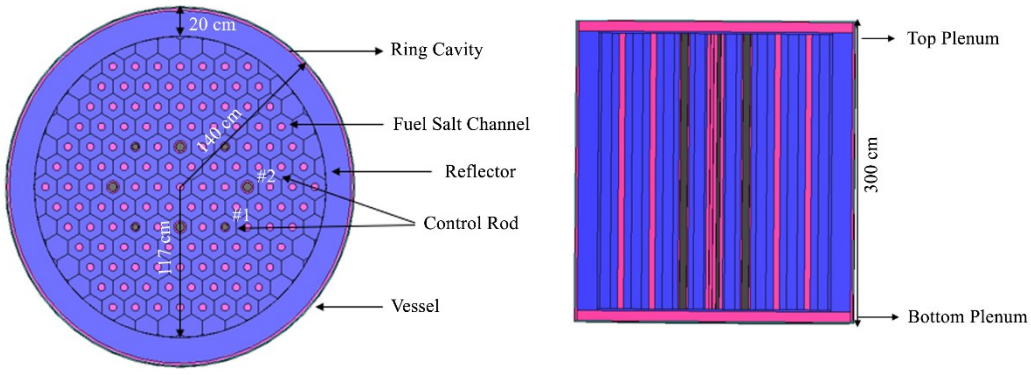

图1 堆芯物理模型
Fig.1 Schematic diagram of computational model

表1 堆芯主要参数
Table 1 Main parameters of molten salt reactor

参数 Parameter	数值 Data
热功率 Thermal power / MW	100
流道直径 Flow channel diameter / cm	10.4
流道间距 Flow spacing / cm	18
进出口平均温度 Average temperature / K	1 000
^{235}U 富集度 ^{235}U enrichment	19.75%
^{7}Li 丰度 ^{7}Li abundance	99.95%
上下腔室高度 Height of upper and lower plenum / cm	10
控制棒(#1/#2)半径 Control rod radius	2.665/3.5
石墨反射层厚度 Graphite thickness / cm	20
堆芯尺寸 Core size / cm	ϕ 280 × H 300

Scale6.1是美国橡树岭国家实验室开发的用于核安全分析和堆模型设计的多功能软件，可以实现核安全分析、临界安全分析、燃耗分析等功能。其中在Scale的中子运输计算功能模块KENO-VI[7]中创建堆芯物理模型，通过使用几何数据包中的各种几何体对复杂堆芯进行建模，并且进行三维结构反应堆有效增值因数的计算。而Scale程序中TRITON控制模块则是进行燃耗计算，具体步骤流程如图2所示。经由TRITON模块经输运计算产生燃耗库，由燃耗计算模块Origen-S调用该库进行燃耗计算。将整个寿期分为若干个时间步长，每个时间步长下的放射性计算可分为以下三个步骤：1)中子通量计算处理；2)Couple截面计算；3)Origen燃耗衰变计算[8]。

2 结果及讨论

100 MWt小型熔盐堆主回路放射性产物主要来自于两个方面：

1)裂变产物和锕系元素：反应堆中易裂变核素在中子轰击下发生裂变反应，产生大量的裂变产物和锕系核素。生成的裂变产物和锕系元素基本上都具有放射性，是反应堆整个寿期内主要的放射性来源。

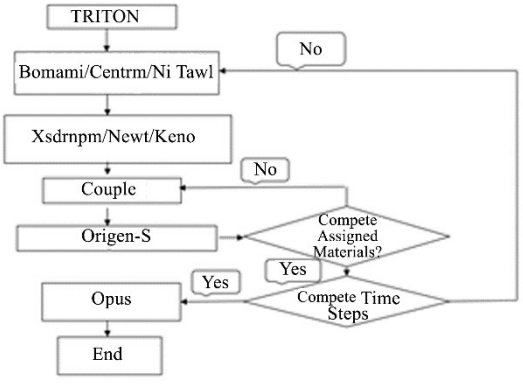

图2 Scale程序中TRITON模块进行燃耗计算的流程
Fig.2 TRITON control module flowchart for depletion calculation

2)冷却剂活化：熔盐堆采用燃料盐同时作为冷却剂在主回路流动。冷却剂中的一些成分，包括^{6}Li、^{7}Li、^{9}Be、^{19}F，在中子辐照下，会产生^{20}F、^{16}N等。另外由于受燃料加工、输运环节的影响，熔盐堆燃料中不可避免地存在天然杂质或人工带入杂质，它们在受到中子辐照的条件下，会活化从而产生具有放射性的核素。

2.1 裂变产物

在熔盐堆运行过程中，核燃料中易裂变核素不断消耗，另一方面可转换核素俘获中子又转换生成易裂变核素。因此燃料熔盐中的同位素的成分及其密度随着反应堆运行时间不断变化。核燃料的燃耗链与所采用的燃料循环类型有关，裂变产物为由裂变反应直接产生的裂变碎片以及随后这些碎片经过放射性衰变生成各种同位素[9]。

堆芯裂变产物放射性积存量计算的核心是求解如下燃耗方程[10]：

$$\frac{\mathrm{d}N_i(t)}{\mathrm{d}t}=\sum_i^n\sigma_{ij}N_i(t)\phi+\sum_k^n f_{ik}\lambda_k N_k(t)-\left(\lambda_i N_i(t)+\sigma_i^a N_i(t)\phi\right)+\sum_m^n\gamma_{im}\sigma_m^f N_m(t)\phi \tag{1}$$

式中：$N_i(t)$表示寿期内t时刻、核素i的原子密度；σ_{ij}表示核素j生成i核反应的平均截面；ϕ表示堆芯内中子通量密度；σ_i^a表示核素i的吸收截面；σ_m^f表示m发生裂变反应时的截面；f_{ik}表示核素k发生衰变反应生成核素i的转换比；γ_{im}表示核素m发生裂变反应生成核素i的转换比；λ_k为衰变常数。

熔盐堆运行过程中重要的放射性裂变产物主要分为如下几类：1）惰性气体；2）碘的同位素；3）金属裂变产物核素。在熔盐堆中，各产物核素大都包容在熔盐中，由于燃料熔盐的熔点较高，即使发生了破口事故使得熔盐泄漏，熔盐也会迅速冷却凝固，没有固、液态流出物的直接释放，防止了放射性的进一步向环境中的扩散。因此在熔盐堆核设施的影响评价时，对环境产生威胁的应当主要考虑气载放射性裂变核素对厂区环境的影响。

100 MWt熔盐堆在满功率运行的过程中裂变产物的放射性随着时间的变化如图3所示。裂变产物放射性活度在短时间内迅速增加，此后变化缓慢且基本趋于稳定，直至寿期末，裂变产物放射性总量接近5.89×10^{18} Bq。

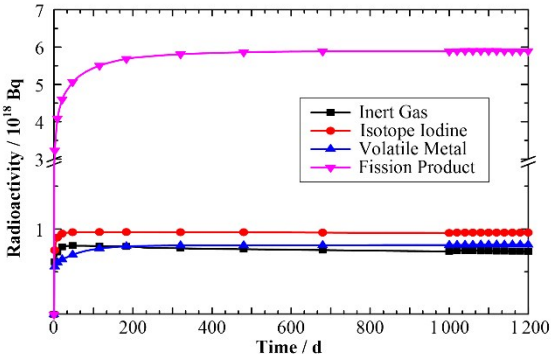

图3 堆内裂变产物放射性活度随时间的变化

Fig.3 The radioactivity of fission products changes with time

结合熔盐堆燃料的上述特点，并参考公众所受剂量估算有重要贡献的放射性核素，本文中主回路分析的核素有：^{85}Kr、^{85m}Kr、^{87}Kr、^{88}Kr、^{133}Xe、^{135}Xe、^{131}I、^{132}I、^{133}I、^{134}I、^{135}I、^{134}Cs、^{135}Cs、^{136}Cs、^{137}Cs、^{138}Cs、^{89}Sr、^{91}Sr、^{92}Sr、^{103}Ru、^{106}Ru。

100 MWt熔盐堆运行过程中，主要的易挥发金属裂变产物放射性活度随时间变化如图4所示，易挥发金属裂变产物总量在开始的两天时间内急剧增加，此时易挥发金属裂变产物的放射性总量为5.60×10^{17} Bq，此后的时间放射性虽然在持续增加，但增加的线性幅度大幅减少，增加速率约为1.00×10^{16} Bq·d^{-1}，200 d后增加速度更加缓慢，基本趋于平衡。寿期末易挥发金属裂变产物的放射性达到8.18×10^{17} Bq。由图4可知，从启堆至寿期末这段时间内，放射性水平较高核素有^{89}Sr、^{91}Sr、^{92}Sr、^{106}Ru等。它们的放射性活度在短期迅速增加，放射性最大分别达到了1.35×10^{17} Bq、1.80×10^{17} Bq、1.85×10^{17} Bq、4.09×10^{17} Bq。就Sr的三种核素来说，一方面作为裂变产物直接由裂变产生，其存量相对较大，此外它们较容易发生β^-衰变，衰变周期分别为50.5 d、9.65 h、2.66 h，堆运行期间不断放出能量，故放射性水平一直处于较高水平。而对于Cs的几种核素，如^{134}Cs、^{135}Cs、^{136}Cs、^{137}Cs，它们放射性相对于Sr核素，其放射性增长幅度慢，放射性水平低，这是因为它们基本都是由慢饱和裂变产物^{133}Cs逐级俘获中子而来，由于^{133}Cs吸收截面较小，故它们的浓度随运行时间的增加而缓慢增加，在主回路内部的存量也相对较小，至于^{135}Cs主要由^{135}Xe衰变生成。

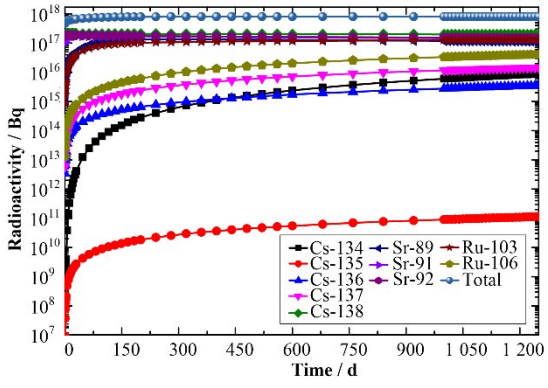

图4 易挥发金属裂变产物放射性活度随时间的变化

Fig.4 The radioactivity of volatile metal fission products changes with time

主回路中，主要的惰性气体核素放射性活度随时间变化的曲线如图5所示。从起堆至寿期末，惰性气体的放射性水平经历了迅速增加，缓慢增到最后的慢慢逐渐减小。从反应堆运行开始的0~0.5 d，惰性气体放射性活度迅速增加，放射性达到2.71×10^{17} Bq，这个过程中放射性主要是由^{87}Kr、^{88}Kr提供的，几乎占了此时惰性气体放射性总量的70%，在随后的时间内，^{133}Xe、^{135}Xe迅速增加，并随之超过前者，成为惰性气体放射性最要的贡献来源。2 d后，放射性水平放射性增加速度放缓，至50 d左右，达到最大值7.87×10^{17} Bq。此后总的放射性开始由于核素的衰变而减少，寿期末放射性总量为7.35×10^{17} Bq。在惰性气体中^{133}Xe放射性活度最大，其次是^{135}Xe。裂变反应中虽然^{135}Xe的裂变份额只有0.228%，但是其先驱核^{135}I的直接裂变产额很大，加之^{135}I吸收中子的损失远小于其衰变，故认为^{135}I全部衰变成^{135}Xe，

这样^{135}Xe的总体产额可达到6%。起堆后，由于^{135}Xe具有很大的吸收截面和短的半衰期，其浓度很快增加并且饱和，此后随着燃耗的加深，^{135}I的生成将会减少，自身也会衰变损失，故^{135}Xe会慢慢减少。

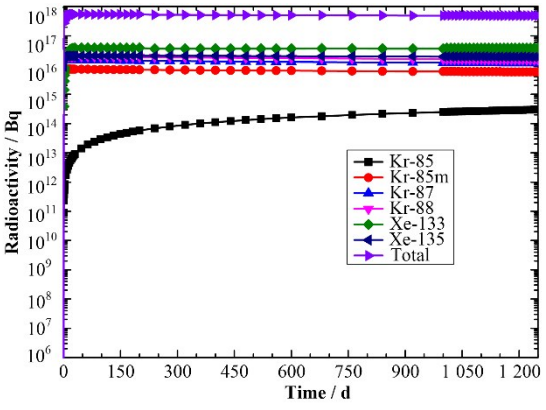

图5 惰性气体放射性活度随时间的变化

Fig.5 The radioactivity of inertial gas changes with time

碘的同位素放射性活度随时间变化的曲线如图6所示，碘的同位素的放射性总量处于一个较高的水平，寿期末放射性总量达到9.56×10^{17} Bq。^{135}I的放射性活度随时间而增加，从图6可知，反应堆在稳定功率下，运行很短的时间后（约40 h），^{135}I的浓度就已经很接近它的平衡值了，为1.95×10^{17} Bq。此后由于衰变原因，它们的放射性活度达到最大之后，开始很缓慢减小。

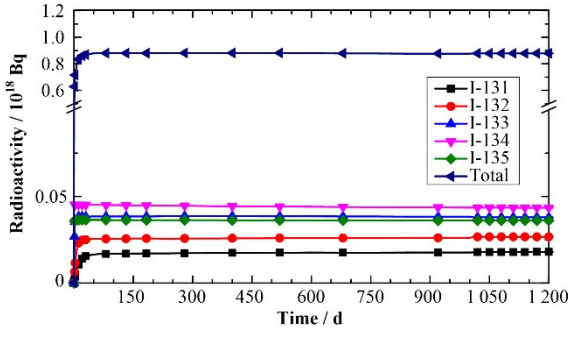

图6 碘的同位素放射性活度随时间的变化

Fig.6 The change of radioisotope of iodine radioactivity with time

2.2 锕系核素

本文主要计算了32种锕系同位素，由于大部分锕系核素积存量较小，故统计其总量，其中主要的锕系元素（Am、Cm、Np、Th、Pu、U）的积存量随运行时间的变化如图7所示。从图7可以看出，寿期末，锕系核素放射性总活度约为1.47×10^{18} Bq，其中Np（主要为^{239}Np）约占锕系核素总活度的98%。其寿期末的放射性活度为1.44×10^{18} Bq，剩余不足2%的活度由U、Am、Cm、Th等贡献。在1 250 d的燃耗时间内，6种核素放射性活度在开始的2 d内迅速增加，此后基本缓慢增加基本趋于稳定，产生量最多的是Np元素，而Pu、Am、Cm的生成量与之相比几乎可以忽略不计。

Np元素含量占主要部分的是^{239}Np，反应过程为：

$$^{238}_{92}\mathrm{U} + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{239}_{92}\mathrm{U} + \gamma$$

$$^{239}_{92}\mathrm{U} \rightarrow ^{239}_{93}\mathrm{Np} + \mathrm{e}^{-}$$

在反应堆中，^{238}U通过俘获一个中子，会变成激发态的^{239}U，并放出γ射线，此后^{239}U发生β衰变，产生^{239}Np。过程间虽然也会吸收中子产生^{240}U，但^{239}U的吸收截面很小（0.2 MPa）而且半衰期又很短，只有23 min左右，因此绝大部分的^{239}U都是通过β衰变变成了^{239}Np。同理可知，^{240}Np的产量也是极小的，虽然^{238}U的吸收截面较小，只有0.02 MPa，但燃料内^{238}U初始装载量很高，因此^{239}Np的放射性量仍然最大。

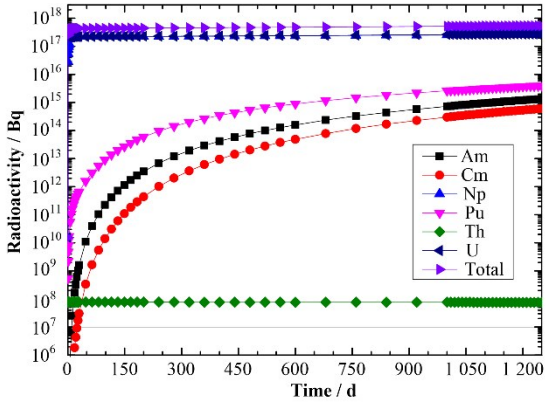

图7 锕系核素放射性活度随时间的变化

Fig.7 The radioactivity of actinoid nuclides changes with time

在燃耗寿期内，燃料中易裂变核素^{233}U、^{235}U及其他铀的同位素放射性随燃耗时间的演化关系如图8所示，对于初始装载核素，^{235}U作为主要裂变核素来维持堆芯临界，随着燃耗时间逐渐减小，放射性也随着时间而减小，^{238}U也不断通过吸收中子发生反应而消耗，所以它们的放射性随着时间推移缓慢减小。而^{233}U的放射性从启堆开始迅速增加，在55 d左右超过^{235}U，约120 d时超过^{238}U，此后放射性一直处于主导地位，1 100 d后，放射性虽然也在增加，但变化缓慢，基本处于稳定。

对于增殖核素^{232}Th装载量以及它的产物^{233}Pa随时间的变化关系如图9所示。^{232}Th虽然在燃耗时间内变化较小，但基本呈线性变化减少，^{232}Th主要通过俘获中子生成易裂变核素^{233}U而损失，相应的^{233}Pa从燃耗时间开始便线性增加。由于^{233}Pa衰变为^{233}U的周期27 d，故此时其增加的斜率开始变平缓，^{232}Th的消耗量也大于^{232}Pa的产量，这是因

为^{232}Th在熔盐堆中还会发生其他类型的核反应。

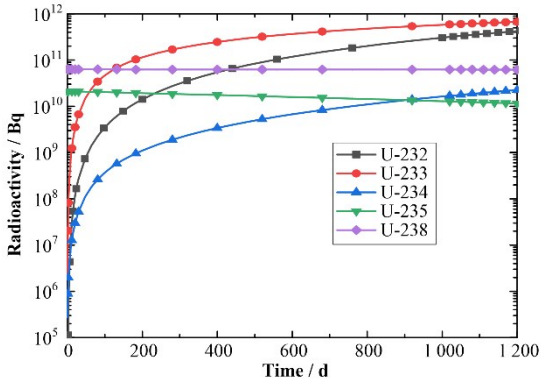

图8 铀的同位素放射性活度随时间的变化
Fig.8 The radioactivity of uranium isotopic varies with time

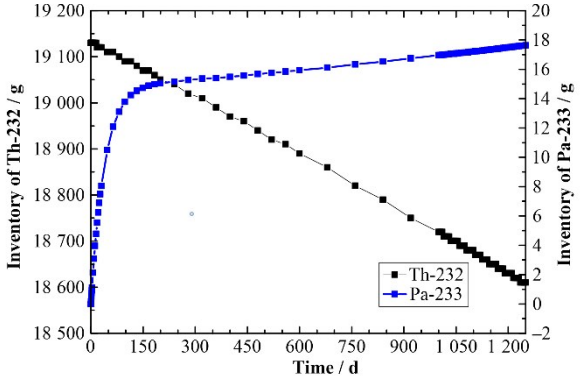

图9 ^{232}Th和^{233}Pa质量随时间的演变关系
Fig.9 The inventory of ^{232}Th and ^{233}Pa changes with time

由图10可以看出，反应堆正常运行时，燃料中的放射性活度主要来自于裂变产物。寿期末反应堆中总的放射性活度约为7.36×10^{18} Bq，其中锕系核素的总活度约为1.47×10^{18} Bq，裂变产物的总活度为5.89×10^{18} Bq。在裂变产物中，惰性气体的总活度约为7.35×10^{17} Bq，占主回路裂变产物放射性活度的12.48%，I的同位素的活度约为9.56×10^{17} Bq，占16.23%，易挥发金属裂变产物Cs、Sr、Ru放射性活度约为8.17×10^{17} Bq，占主回路裂变产物总活度的13.87%，这些气载放射性产物易于泄露在环境中，故需要重点关注。

2.3 冷却剂活化

100 MWt熔盐堆在运行过程中除了以上主要放射性核素外，还有产生多种活化放射性产物，其中^{16}N、^{19}O、^{20}F产量最大，且能量较高，它们对屏蔽设备的使用寿命以及管道活化反应的产生有较大影响，它们主要是由冷却剂中的^{19}F核素俘获中子生成：

$$n+{}^{19}F\rightarrow{}^{16}N+{}^{4}He$$

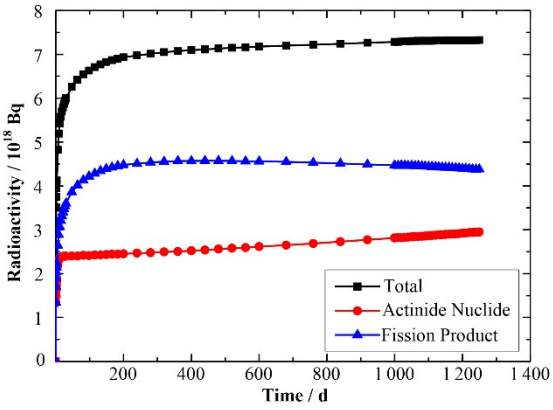

图10 运行过程中放射性核素的活度随燃耗时间的变化
Fig.10 Total radioactivity varies with time during operation

$$n+{}^{19}F\rightarrow{}^{20}F+\gamma$$

$$n+{}^{19}F\rightarrow{}^{19}O+{}^{1}H$$

图11为^{16}N、^{19}O、^{20}F的放射性活度随燃耗时间的变化。由图11可知，相较^{19}O，^{16}N、^{20}F从起堆开始，强度上升更快，它们的半衰期短，分别为11.2 s和7.13 s。寿期末它们的放射性活度近似在2.48×10^{16} Bq和1.97×10^{16} Bq，但是它们的半衰期较短，具有较高的放射性以及较强的穿透性，对堆内管道材料的影响较大。对于^{19}O源项，相对于前两种，放射性活度整整低一个量级，为1.80×10^{15} Bq。

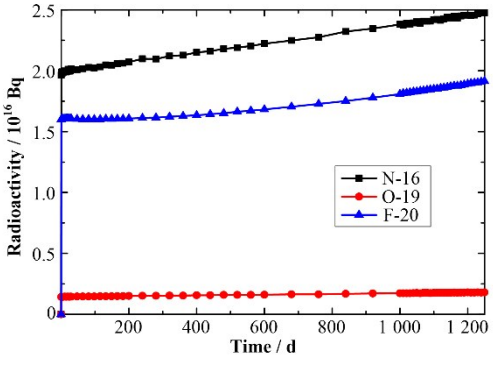

图11 ^{16}N、^{19}O和^{20}F放射性活度随时间变化
Fig.11 Radioactivity of ^{16}N, ^{19}O, ^{20}F in source term varies with time

熔盐通道内部的燃料盐是流动的，始终处于均匀混合的状态。整个寿期内燃料熔盐流道内平均中子能谱图如图12所示。由图12可知，中子通量主要集中在热谱区，表明该熔盐堆是一个典型的热堆，共振能区的共振峰是由^{238}U的共振吸收导致的，而快中子能区则是因为冷却剂FLiBe的共振吸收导致的。由于起初燃料装载中重金属含量较多，使得初始时刻中子慢化变少，中子能量偏高，能谱相对偏硬。随着燃耗的不断加深，裂变燃料不断消耗和产物的积累，能谱有所变软。

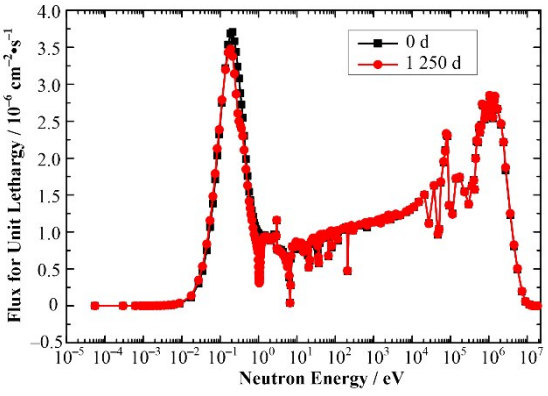

图12 寿期始末燃料通道内的中子能谱

Fig.12 Neutron energy spectrums in the fuel channel at the beginning and end life cycle

3 结语及展望

本文提出了一种100 MWt熔盐堆的堆芯设计方案，通过调整初始燃料装载使其在不添料的条件下，满功率运行1 250 d，然后针对该堆芯的静态物理模型，对正常工况下熔盐堆进行了放射性积存量的分析，主要结论如下：

1）熔盐堆在正常运行时，堆内的放射来源主要由裂变产物和锕系核素提供，基本来自于短寿命核素通过不断的衰变提供。

2）主回路放射性产物中，本文主要考虑惰性气体、碘的同位素以及易挥发金属裂变产物，它们是环境排放的主要限制对象。寿期末放射性裂变产物总活度约为5.89×10^{18} Bq，惰性气体的活度约为7.35×10^{17} Bq，I的同位素的活度约为9.56×10^{17} Bq，易挥发金属裂变产物放射性活度约为8.17×10^{17} Bq，它们放射性产额整体较大，且作为主要的气载流出物，应重点关注它们的扩散与排放。

3）锕系核素主要考虑Am、Cm、Np、Th、Pu、U。寿期末放射性积存量约为1.47×10^{18} Bq，其中^{239}Np及其同位素约占总活度的98%，其余份额由其他核素贡献。虽然寿期末锕系核素的放射性低于裂变产物，^{239}Np半衰期都比较小，除去^{239}Np外，寿期末锕系核素的放射性活度只有3.11×10^{16} Bq。但是许多长寿命核素使得锕系核素的放射性直至几万年后还是处于较高水平，这也是乏燃料处理的主要难点。

参考文献

1 Cottrell W B, Hungerford H E, Leslie J K, *et al*. Operation of the aircraft reaction Experiment[R]. USA: ORNL,1995. DOI: 10.2172/4237975.

2 Scott D, Grindell A G. Components and system development for molten-salt breeder Reaction, ORNL-TM-1995[R]. USA: ORNL, 1967. DOI: 10.2172/4367859.

3 Robertson R C. Conceptual design study of a single fluid molten-salt breeder reaction, ORNL-4541[R]. USA: ORNL,1971. DOI: 10.2172/4030941.

4 彭一鹏, 奚坤, 潘登, 等. 双区氯盐快堆的增殖及嬗变性能分析[J]. 核安全, 2019, **18**(2): 36−42. DOI: 10.16432/j cnki.1672-5360.2019.02.004.
PENG Yipeng, XI Kun, PAN Deng, *et al*. Analysis of breeding and transmutation performance for a doublezone chloride salt fast reactor[J]. Nuclear Safety, 2019, **18**(2): 36−42. DOI: 10.16432/j cnki.1672-5360.2019.02.004.

5 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: 10.3969/j.issn.1000-3045.2012.03.016.
JIANG Mianheng, XU Hongjie, DAI Zhimin. Advanced nuclear fission energy in the future-TMSR nuclear energy systems[J]. Proceedings of the Chinses Academy of Sciences, 2012, **27**(3): 366 − 374. DOI: 10.3969/j. issn. 1000-3045.2012.03.016.

6 Dehart M D. TRITON: a two-dimensional transport and depletion module for characterization of spent nuclear fuel [R]. USA: ORNL, 2006.

7 Hollenbach D F, Petrie LM, Goluoglu S, *et al*. KENO-VI: a general quadratic version of the KENO program[R]. ORNL/TM-2005/39, Version 6, 2011.

8 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.

9 谢仲生. 核反应堆物理分析[M]. 西安: 西安交通大学出版社, 2004: 166−167.
XIE Zhongsheng. Nuclear reactor physical analysis[M]. Xi'an: Xi'an Jiaotong University Press, 2004: 166−167.

10 Croff A G. ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code [B]. ORNL-5621. 1980. DOI: 10.2172/5352089.