

压水堆主冷却剂中氚源项计算分析

郭庆洋¹, 张竞宇¹, 孙业帅², 方 晟³, 陈义学^{1,*}

(1. 华北电力大学 核科学与工程学院, 北京 102206;

2. 国家电投集团科学技术研究院有限公司, 北京 102209;

3. 清华大学 先进反应堆工程与安全教育部重点实验室, 北京 100084)

摘要:压水堆主回路冷却剂流经堆芯时,水中固有及特加核素受中子辐照后会产生氚,氚几乎全部以气体和液体的形式排入环境,造成氚污染。因此,氚是压水堆辐射环境影响评价的主要关注内容之一。本文以 AP1000 为例,根据压水堆主回路冷却剂中氚的产生途径及其随时间的变化情况建立详细的计算模型,计算压水堆主回路冷却剂中的氚活度并分析各产氚途径对氚产生量的贡献。计算结果表明:主回路冷却剂中的氚主要来源于可溶性硼的中子活化和铀裂变,对氚产生量的贡献达 80% 以上;在 ${}^7\text{Li}$ 纯度为 99.9% 时,AP1000 主回路中的年产氚量为 5.23×10^{13} Bq, 锂产氚量占总量的 14.01%, 随 ${}^7\text{Li}$ 纯度的增加, 锂产氚量的贡献呈线性减小, 在 ${}^7\text{Li}$ 纯度为 99.99% 时, 锂产氚量占总量的 3.18%。其他途径对氚的产生量贡献很小, 可忽略。根据以上结果, 可通过控制主回路冷却剂中添加的初始硼浓度、提高燃料包壳质量、增加 LiOH 中 ${}^7\text{Li}$ 的纯度等多种途径来降低主冷却剂中氚的产生量, 从而减少氚对环境的放射性污染。

关键词: AP1000; 主冷却剂; 氚活度; 活化分析

中图分类号: TL364.5

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2018)12-2113-05

doi: 10.7538/yzk.2018.youxian.0176

Calculation Analysis of Tritium Source Term in PWR

GUO Qingyang¹, ZHANG Jingyu¹, SUN Yeshuai², FANG Sheng³, CHEN Yixue^{1,*}

(1. School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University,

Beijing 102206, China; 2. State Power Investment Corporation Research Institute,

Beijing 102209, China; 3. Key Laboratory of Advanced Reactor Engineering and Safety

of Ministry of Education, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: During AP1000 operation, the water itself in the primary loop and special nuclides added in the water will be activated by neutrons. Tritium is main activation product and it is drawing more and more attention as they are almost discharged into environment in form of gas or liquid. Therefore, it's essential to study tritium generation in the primary coolant. In this paper, the tritium generation and consumption

收稿日期: 2018-03-15; 修回日期: 2018-04-28

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11605058); 国际热核聚变实验堆计划专项资助项目(2014GB119000); 中央高校基本科研业务费专项资金资助项目(2017MS041)

作者简介: 郭庆洋(1991—), 女, 山东聊城人, 博士研究生, 核电与动力工程专业

* 通信作者: 陈义学, E-mail: yxchen1972@126.com

网络出版时间: 2018-11-01; 网络出版地址: <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2044.TL.20181030.1727.032.html>

mechanism of the primary coolant in AP1000 nuclear power plant was studied and the tritium calculation model was established. Based on the tritium calculation model, the tritium activity in the coolant loop of AP1000 was calculated and the contribution of various ways to generate tritium was analyzed. The results show that the quantity of tritium is mainly from the activation reaction of soluble boron by absorbing neutron and fission of uranium, which contributes more than 80%. The tritium production in AP1000 primary coolant is 5.23×10^{13} Bq/a at the purity of ${}^7\text{Li}$ is 99.9%, which accounts for 14.01% of total tritium production. With the increase of ${}^7\text{Li}$ purity, the contribution of lithium decreases linearly. When the purity of ${}^7\text{Li}$ is 99.99%, the tritium produced from lithium accounts for 3.18%. Based on the above results, the generation of tritium in coolant can be reduced by controlling the initial boron concentration added in coolant, improving the quality of the fuel cladding, and increasing the purity of ${}^7\text{Li}$ in LiOH.

Key words: AP1000; primary coolant; tritium activity; activation analysis

压水堆运行时,作为冷却剂的水及水中特加核素,在冷却剂流经堆芯时会受到强中子辐照产生放射性氚。氚的半衰期较长(12.3 a)且可替代水中的氢形成氚化水长期存在于核电厂中,如果不及时净化处理将会导致核电厂放射性污染。但由于氚与水一起存在的特性,使用传统废水处理技术存在一定难度,最终氚几乎全部以 HTO 或 HT 的形态排入环境^[1-3]。氚是低能 β 辐射体,释放到环境中后,虽不能对人体造成外辐照损伤,但一旦通过吸入、食入或皮肤渗透等途径进入人体,可能会对人体造成长期内照射^[4-6],影响人体健康。因此研究压水堆主回路中氚的产生途径及贡献是压水堆辐射环境影响评价的主要关注内容之一。本文以 AP1000 压水堆核电站为例,建立模型,研究主回路中的产氚机制、年产生量及各途径对产氚总量的贡献。

1 压水堆中氚的产生途径

压水堆主回路中氚的来源主要有 5 个途径。

1) 燃料元件内铀核裂变产生的氚,其核反应式为 ${}^{235}\text{U} + n \rightarrow X + Y + {}^3\text{H}$, X、Y 为裂变碎片。燃料裂变产生的氚通过在完整包壳中的扩散或包壳破损处进入主回路中,约 2% 的氚进入主冷却剂中。

2) 含有 B_4C 的可燃毒物棒中的硼与中子反应直接产生的氚,其核反应式为 ${}^{10}\text{B} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^3\text{H}$ 。此外,可燃毒物棒中的硼与中子还

可间接产生氚,其反应式为 ${}^{10}\text{B} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^7\text{Li}$, ${}^7\text{Li} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^3\text{H} + n$ 。氚经过在完整包壳中的扩散或在包壳破损处进入主回路中。

3) 在反应堆运行过程中,需加入一定量的硼酸溶液来调节反应堆运行过程中反应性的变化,加入的可溶性 ${}^{10}\text{B}$ 在随冷却剂经过辐照区时被中子活化产生氚,其核反应式为 ${}^{10}\text{B} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^3\text{H}$ 。可溶性硼产生的氚是主回路中氚的主要来源。

4) 为补偿硼酸的酸度,提高反应堆中结构材料的耐腐蚀性,减少活化腐蚀产物的产生,在冷却剂中加入 LiOH 将冷却剂调节至偏碱性,可溶性 ${}^6\text{Li}$ 、 ${}^7\text{Li}$ 在随冷却剂经过辐照区时被中子活化产生氚,其反应式为 ${}^7\text{Li} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^3\text{H} + n$ 和 ${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^4\text{He} + {}^3\text{H}$ 。

5) 由于冷却剂中存在约 0.015% 的天然氚同位素,氚被中子活化也会产生少量的氚^[7-8],其核反应式为 ${}^2\text{H} + n \rightarrow \gamma + {}^3\text{H}$ 。

在压水堆主冷却剂中氚的产生途径及排放如图 1 所示。

2 氚源项计算

2.1 计算模型

由于 ${}^3\text{H}$ 的半衰期很长,冷却剂流动与否对长寿命核素影响较小,因此可建立均相模型,即不考虑冷却剂在反应堆冷却剂回路内的流动,对放射性核素氚建立核素平衡方程,同时假定冷却剂中特加的核素及水中添加核素的浓度为

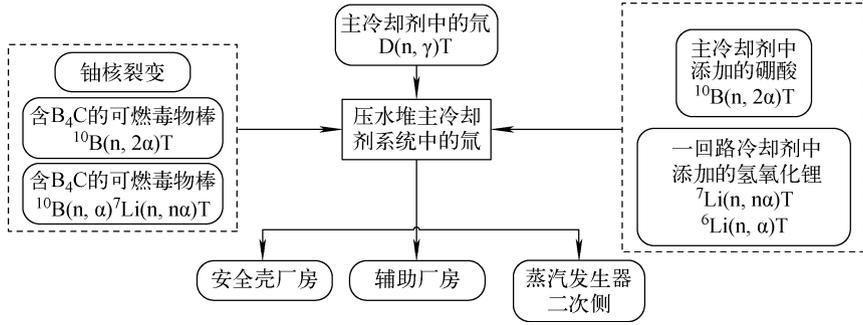


图1 压水堆中氚的产生及排放过程

Fig. 1 Tritium generation and emission in PWR

常数,但可溶性硼是随时间变化的。

1) 根据反应堆运行功率、裂变速率、氚平均裂变产额、包壳破损率等对燃料中的铀核裂变产氚过程建立平衡方程:

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^1(t)}{dt} = (CPYF - \lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V})N_{\text{H-3}}^1(t) \quad (1)$$

2) 可燃毒物棒一般在第一燃料循环周期内使用,但有时为延长燃料周期、展平功率分布等,可燃毒物棒可能会在后续的循环周期中使用。因此,对于可燃毒物棒中硼活化($^{10}\text{B}(n,2\alpha)\text{T}$)建立浓度平衡方程:

$$\frac{dN_{\text{B-10}}^{\text{bp}}(t)}{dt} = - \left(\sum_E (\sigma_{\text{B-10} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E)) + \sum_E (\sigma_{\text{B-10} \rightarrow \text{Li-7}}(E)\phi(E)) \right) N_{\text{B-10}}^{\text{bp}}(t) \quad (2)$$

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^2(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{B-10} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{B-10}}^{\text{bp}}(t)F_{\text{bp}} - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^2(t) \quad (3)$$

$$\frac{dN_{\text{Li-7}}^{\text{bp}}(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{B-10} \rightarrow \text{Li-7}}(E)\phi(E))N_{\text{B-10}}^{\text{bp}}(t) - \sum_E (\sigma_{\text{Li-7} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{Li-7}}^{\text{bp}}(t) \quad (4)$$

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^3(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{Li-7} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{Li-7}}^{\text{bp}}(t)F_{\text{bp}} - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^3(t) \quad (5)$$

3) 冷却剂中可溶性硼来自向冷却剂中添加的硼酸溶液,可溶性硼的产氚主要通过 $^{10}\text{B}(n,2\alpha)\text{T}$ 反应,对冷却剂中的可溶性硼建立平衡方程:

$$N_{\text{B-10}}(t) = N_{\text{B-10}}(0)(1 - k_{\text{B-10}}(t)) \quad (6)$$

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^4(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{B-10} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{B-10}}(t) - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^4(t) \quad (7)$$

4) 为补偿硼酸的酸度,提高反应堆中结构材料的耐腐蚀性,减少活化腐蚀产物的产生,在冷却剂中加入 LiOH 将冷却剂调至偏碱性, LiOH 溶液中的 ^7Li 、 ^6Li 可被中子活化而产氚,对其建立平衡方程:

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^5(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{Li-7} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{Li-7}}(t) - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^5(t) \quad (8)$$

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^6(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{Li-6} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{Li-6}}(t) - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^6(t) \quad (9)$$

5) 冷却剂中天然氚同位素也会被中子活化,发生 $\text{D}(n,\gamma)\text{T}$ 反应产生氚,对其建立平衡方程:

$$\frac{dN_{\text{H-3}}^7(t)}{dt} = \sum_E (\sigma_{\text{H-2} \rightarrow \text{H-3}}(E)\phi(E))N_{\text{H-2}}(t) - \left(\lambda_{\text{H-3}} + \sum_E \sigma_a^{\text{H-3}}(E)\phi(E) + \frac{\eta Q}{V} \right) N_{\text{H-3}}^7(t) \quad (10)$$

其中: $N_{\text{H-3}}^i(t)$ 为某时刻不同途径*i*产生的氚原子个数,*i*=1为铀核裂变,*i*=2为可燃毒物棒中的 ^{10}B ,*i*=3为可燃毒物棒中的 ^7Li ,*i*=4为冷却剂中的 ^{10}B ,*i*=5为冷却剂中的 ^7Li ,*i*=6为冷却剂中的 ^6Li ,*i*=7为冷却剂中的天然 ^2H ;C为单位热功率平均发生的裂变率, $\text{s}^{-1} \cdot \text{MW}^{-1}$;P为反应堆堆芯热功率,MW;*F*为氚从燃料棒释放到一回路冷却剂中的份额,%;*Y*为裂变产额; F_{bp} 为氚从可燃毒物棒中释放到主回路冷却剂中的份额,%; $N_{\text{B-10}}^{\text{bp}}(t)$ 为某时刻可燃毒物棒

中 ^{10}B 的原子数, m^{-3} ; $N_{\text{Li-7}}^{\text{bp}}(t)$ 为某时刻可燃毒物棒中 ^7Li 的原子数, m^{-3} ; $N_{\text{B-10}}(0)$ 为冷却剂中 ^{10}B 的初始量, m^{-3} ; $\sigma_{m \rightarrow n}$ 为原子核 m 生成核 n 的反应截面, cm^2 ; λ_n 为衰变常量, s^{-1} ; $\sigma_n^a(E)$ 为原子核 n 的吸收截面, cm^2 ; $\phi(E)$ 为中子通量密度, $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; η 为净化装置除靶核的效率, %; Q 为过滤器旁路流量, m^3/s ; V 为冷却剂体积, m^3 ; $k_{\text{B-10}}(t)$ 为硼迁移率, s^{-1} 。

2.2 例题描述

以 AP1000 反应堆冷却剂回路为例, 不考虑冷却剂流动, 采用上述均相计算模型计算主回路冷却剂中氚年产生量以及各途径对产氚量的贡献。表 1 列出了计算过程中用到的相关参数。

2.3 计算结果及分析

在压水堆中一般采用 ^7Li 浓度大于 99.9% 的 LiOH 调节冷却剂的 pH 值。 ^7Li 纯度为 99.9%

时, 主冷却剂中氚产生量的计算结果列于表 2, 不同方法得到的 AP1000 核电厂中氚的年产生量列于表 3, ^7Li 纯度对氚产生量贡献份额的影响示于图 2。

表 1 AP1000 冷却剂回路运行参数^[9-10]

Table 1 Operation parameter of coolant loop in AP1000^[9-10]

| 参数 | 数值 |
|------------------------------|-------|
| 堆芯热功率, MW | 3 400 |
| 包壳破损率 | 0.025 |
| 可燃毒物棒中 ^{10}B 质量, g | 3 460 |
| 化学补偿模式下冷却剂中硼的初始浓度, ppm | 1 400 |
| 冷却剂中锂的初始浓度, ppm | 3 |
| 一回路冷却剂体积, m^3 | 218.5 |
| 一回路冷却剂温度, $^{\circ}\text{C}$ | 303.4 |

表 2 一回路冷却剂中氚产生量计算结果

Table 2 Result of tritium production in primary coolant of AP1000

| 氚来源 | 氚年产生量/Bq | 贡献份额/% |
|--|------------------------|--------|
| 铀核裂变 | 1.160×10^{13} | 22.170 |
| 可燃毒物棒 $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)\text{T}$ 反应 | 2.115×10^{11} | 0.404 |
| 可燃毒物棒 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}(n, n\alpha)\text{T}$ 反应 | 7.473×10^{11} | 1.428 |
| 主冷却剂中 $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)\text{T}$ 反应 | 3.231×10^{13} | 61.760 |
| 主冷却剂中 $^7\text{Li}(n, n\alpha)\text{T}$ 反应 | 8.289×10^{11} | 1.584 |
| 主冷却剂中 $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反应 | 6.501×10^{12} | 12.430 |
| 主冷却剂中 $\text{D}(n, \gamma)\text{T}$ 反应 | 1.237×10^{11} | 0.224 |

表 3 不同方法计算结果比对

Table 3 Comparison of results of different methods

| 方法 | 氚年产生量/Bq |
|-----------------------------|-----------------------|
| IAEA ^[11] 统计典型值 | 3.70×10^{13} |
| PWR-GALE 程序 ^[12] | 5.03×10^{13} |
| 本文方法 | 5.23×10^{13} |

分析表 2、3 及图 2 的计算结果可知: 1) 本文方法计算结果具有理论计算的可靠性和现实保守性。2) 主冷却剂氚的各种产生途径中, 冷却剂中可溶性硼的中子活化和铀裂变是氚的主要产生途径, 对氚的贡献总和高达 80% 以上。

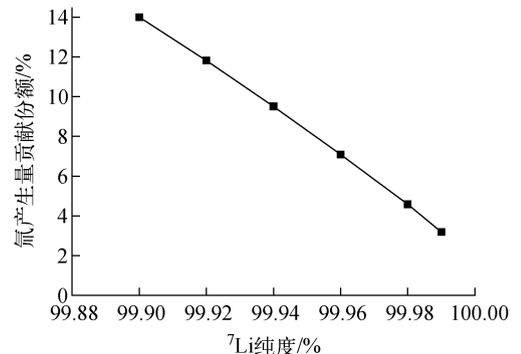


图 2 ^7Li 纯度对氚产生量贡献份额的影响
Fig. 2 Contribution share of tritium production vs ^7Li purity

其中,可溶性硼产生氚的贡献份额达 60% 以上,在燃料包壳破损率为 2.5% 时,铀核裂变产生的氚对主冷却剂中产氚贡献份额约为 22.17%。3) 冷却剂中加入的氢氧化锂溶液中, ^7Li 纯度为 99.9% 时,年产氚总量为 5.23×10^{13} Bq,可溶性锂产生的氚对主冷却剂中产氚贡献份额约为 14.01%。随着氢氧化锂中 ^7Li 纯度的升高,锂产氚量的贡献呈现线性减小的趋势,当 ^7Li 纯度从 99.9% 提高到 99.99% 时,锂产氚量的贡献从 14.01% 降低到 3.18%。4) 可燃毒物棒和天然铀产氚量很小,约占主冷却剂中产氚总量的 2%,一般可忽略不计。

3 结论

本文通过对压水堆核电站主冷却剂中氚的产生及消失机理研究建立了计算模型,并以 AP1000 为例计算了主回路冷却剂中氚的年产生量及各途径产氚量对氚总量的贡献,将计算结果与 IAEA 出版的 TRS-421 中的国际统计数据以及 PWR-GALE 程序的计算结果进行了比对。结果表明:本文计算结果与 IAEA 统计数据及 PWR-GALE 程序的计算结果相吻合,且具有理论可靠性和现实保守性;AP1000 核电站满功率运行 1 a 后,主回路冷却剂中氚的产生量为 5.23×10^{13} Bq/a,冷却剂中的可溶性硼的中子活化反应是氚的主要产生途径,产氚量为 3.23×10^{13} Bq/a,对氚的贡献高达 60% 以上,其次是铀裂变,在包壳破损率为 2.5% 的情况下,通过包壳破损处进入冷却剂中的氚量为 1.16×10^{13} Bq/a,对氚产生量的贡献达到 20% 以上;锂的产氚量的贡献随 ^7Li 纯度的升高而线性减小, ^7Li 纯度由 99.9% 提高到 99.99% 时,年产氚总量从 5.23×10^{13} Bq 降到 4.65×10^{13} Bq,可溶性锂产生的氚对主冷却剂中产氚贡献份额从 14.01% 降低到 3.18%。

综上所述,可根据各途径产氚的计算结果,通过控制主回路冷却剂中添加的初始硼浓度、提高燃料包壳质量、增加 LiOH 中 ^7Li 的纯度等多种途径来降低主冷却剂中的氚产生量,从而减少氚对环境的放射性污染。

参考文献:

[1] 陈晓秋,李冰,上官志洪. 内陆核电厂液态流出

物排放在受纳水体中的氚浓度限制[C]// 中国环境科学学会学术年会论文集. 北京:中国农业大学出版社,2012.

- [2] 邓飞,陈志东,林清,等. 大亚湾核电站监测井水中 ^3H 的来源[J]. 辐射防护通讯,2006,26(2):10-14.
DENG Fei, CHEN Zhidong, LIN Qing, et al. Source of ^3H in monitored well water at Daya Bay Nuclear Power Station[J]. Radiation Protection Bulletin, 2006, 26(2): 10-14(in Chinese).
- [3] 杨端节,陈晓秋. 我国核电厂运行中的氚排放[J]. 辐射防护,2011,31(4):193-197.
YANG Duanjie, CHEN Xiaoqiu. Tritium discussion during nuclear power operation in China[J]. Radiation Protection, 2011, 31(4): 193-197(in Chinese).
- [4] 方栋,李红. 环境中的氚和碳-14[J]. 辐射防护,2002,22(1):51-56.
FANG Dong, LI Hong. Tritium and carbon-14 in the environment[J]. Radiation Protection, 2002, 22(1): 51-56(in Chinese).
- [5] GUENBA L. Impact of tritium around EDF nuclear power plant[J]. Journal of Radiological Protection, 2009, 29(2): 163-167.
- [6] PALOMO M, PENALVER A, AGUILAR C, et al. Tritium activity levels in environmental water samples from different origins[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2007, 65(9): 1 048-1 053.
- [7] 杨怀元. 氚的安全与防护[M]. 北京:原子能出版社,1995.
- [8] 云桂春. 压水反应堆水化学[M]. 哈尔滨:哈尔滨工程大学出版社,2009.
- [9] 林诚格. 非能动安全先进核电厂 AP1000[M]. 北京:原子能出版社,2008.
- [10] WINTERS J W, VIJUK R P, CUMMINS W E. AP1000 design control document[J]. US: Westinghouse Electric Company LLC, 2004.
- [11] BALONOV M, DUBOURG M, EFREMENKOV V, et al. Management of waste containing tritium and carbon-14, TRS 421-2004[R]. Vienna: IAEA, 2004.
- [12] CHANDRASEKARAN T, LEE J Y, WILLIS C A, et al. Calculation of releases of radioactive materials in gaseous and liquid effluents from pressurized water reactors (PWR-GALE code), NUREG-0017, Rev. 1[R]. USA: NRC, 1985.