

事故工况下核电厂安全壳内放射性 气溶胶电荷分布研究

孙晓晖, 孙婧, 王辉*, 陈巧艳, 李精精, 龚培礼

(中国核电工程有限公司, 北京 100840)

摘要:核电厂发生严重事故后,在安全壳内形成大量的放射性裂变产物气溶胶。由于核电厂气溶胶放射性这一特殊性,放射性核素的衰变过程及衰变粒子与周围介质的相互作用过程会使得气溶胶粒子带电。同种电荷及不同电荷之间的相互作用,可能会影响气溶胶粒子的输运过程。然而,目前的核电厂源项评估过程中忽略了电荷对气溶胶输运过程的影响。考虑到放射性气溶胶所带电荷量及电荷分布是后续实验研究电荷对气溶胶输运影响的基础,本文研究了放射性气溶胶的放电机理,编写电荷分布及电荷量求解程序,并对计算过程进行了实验验证,最终得到了典型核电厂严重事故工况下安全壳内气溶胶所带的电荷量及电荷分布。结果表明:在核电厂事故条件下安全壳内的气溶胶整体带负电荷;对于典型粒径的气溶胶(0.1, 5) μm ,对应的电荷区间为(0, -25);电荷量随粒径的增大而增加;气溶胶粒子电荷呈正态分布。

关键词:放射性裂变产物;气溶胶;电荷分布;严重事故

中图分类号:TL334

文献标志码:A

文章编号:1000-6931(2022)S1-0067-07

doi:10.7538/yzk.2022.youxian.0115

Study on Radioactive Aerosol Charge Distribution in Containment of Nuclear Power Plant during Severe Accident

SUN Xiaohui, SUN Jing, WANG Hui*, CHEN Qiaoyan, LI Jingjing, GONG Peili

(China Nuclear Power Engineering Co., Ltd., Beijing 100840, China)

Abstract: A large amount of radioactive fission products will be released into the containment after severe accidents in a nuclear power plant. Except for noble gases and a small amount of iodine, these fission products are mainly in the form of aerosols. The fission products aerosols can be removed by natural processes, for instance, gravity settlement, agglomeration, Brownian diffusion, electrophoresis, etc. Due to the particularity of aerosol radioactivity in nuclear power plants, the decay process of radionuclides and the interaction process between decay particles and surrounding air will make aerosol particles charged. The interactions between the same sign charges and different sign charges may affect the transport process of aerosol particles, in particular, affecting the aerosol particle agglomeration process. Charges of same sign make aerosol particles

repulsive, while charges of different signs make aerosol particles attractive. Therefore, the charge on the aerosol particles will affect the removal process of the fission product aerosol. However, in the current source term evaluation process for the nuclear power plant, the effect of electric charge on the aerosol transport process has been ignored. Considering that the charge amount and charge distribution of radioactive aerosols are the basis for subsequent experiments to study the effect of charge on aerosol transport, the aerosol charge amount and charge distribution were studied. In this paper, the charging mechanism was researched and introduced, mainly including decay process, ionization process, recombination process and attachment process. The models for charging process including the above four processes were developed, and then the charging balance and ions equilibrium equations were obtained. The method for solving the equilibrium equations was introduced. A program for solving the charge distribution and charge amount was developed by FORTRAN language and the calculation results were verified by the experiment results. Referring the parameters in NUREG/CR-6189 report as the input parameters, the charge amount and charge distribution of the aerosol in the containment under the severe accident condition of a typical nuclear power plant were finally obtained which would provide boundary conditions for experimental studies. According to the calculation results, it can be concluded that the aerosol in the containment is negatively charged as a whole under the accident condition of the nuclear power plant. For the aerosol with a typical particle size of $(0.1, 5) \mu\text{m}$, the corresponding charge range is $(0, -25)$. The amount of charge is related to the particle size. The larger the particle size, the greater the charge. The amount of aerosol particle charge exhibits a normal distribution.

Key words: radioactive fission product; aerosol; charge distribution; severe accident

核电厂发生严重事故后,大量的放射性裂变产物释放至安全壳中。除放射性碘和惰性气体外,上述裂变产物主要以气溶胶的形式进行迁移。由于核电厂气溶胶具有放射性这一特殊性,放射性核素的衰变过程及衰变粒子与周围介质的相互作用过程使气溶胶粒子带电。

通常认为气溶胶所带的电荷很少,原因是放射性源物质对放电的气溶胶进行了中和。目前,核电厂源项评估过程中,忽略了电荷对气溶胶运输过程的影响。然而,Reed 和 Clement 等^[1-2]搜集相关证据发现,静电可影响放射性气溶胶的迁移过程,如气溶胶粒子的凝聚速率和沉降速率。研究事故工况下安全壳内电荷对气溶胶运输过程的影响,其前提条件是确定安全壳内气溶胶的电荷分布。

本文对气溶胶放电过程及其数学模型进行描述,并采用 FORTRAN 编写气溶胶电荷量及电荷分布计算程序,以得到典型核电厂严重事故

工况下安全壳内气溶胶的电荷量及电荷分布。

1 放电过程及数学模型

1.1 放电过程

放射性气溶胶放电过程如图 1 所示,主要包括衰变、电离、再结合和吸附过程。

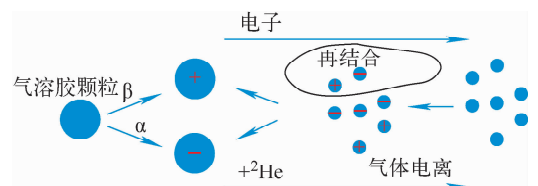


图 1 放射性气溶胶放电过程

Fig. 1 Charging process of radioactive aerosol

1) 衰变过程

放射性核素的衰变类型主要有 α 、 β 、 γ 辐射,其中 α 射线由氦原子核组成,带两个正电

荷,发射 α 射线的母核素带两个负电荷; β 辐射由原子核发射电子形成,包括正电子和负电子,主要指负电子,母核素带 1 个正电荷; γ 辐射是由于原子核结构变化发射出来的辐射,母核素不带电。由于 γ 射线能量较低,与前两者相比,电离产生的离子浓度很低且其母核素不带电,因此本文只考虑了 α 辐射和 β 辐射。

2) 电离过程

由辐射发射的辐射粒子与周围的空气分子作用,使气体分子发生电离产生离子对的过程即电离过程。此外, α 粒子的能量较高,若产生 α 粒子的位置位于气溶胶粒子内部,在气溶胶内部也会发生电离过程。因此,电离过程包括气溶胶内部电离和外部电离。

3) 再结合过程

经放射性粒子电离的区域,离子浓度较高,正负离子会按某一速率结合,使带电离子的浓度降低。

4) 吸附过程

在气溶胶周围的气体中通过电离形成的任何带电离子会迅速吸附在分子上形成离子,并与形成的离子一起重新组合或附在气溶胶颗粒上。

1.2 数学模型

1.2.1 过程模型

1) 衰变过程

为适用于气溶胶粒子的衰变计算,引入气溶胶放射性衰变速率 η 这一参数,其定义是单位时间、单个气溶胶颗粒放射性粒子的发射速率,可通过实验得到。测量单位体积气溶胶的发射速率,然后除以单位体积内气溶胶颗粒的个数得到单个气溶胶颗粒的发射速率。此参数依赖于放射性气溶胶的材料以及气溶胶材料中是否包含大量的可发射性物质。

考虑到单位体积内包含不同粒径的气溶胶粒子,1 个气溶胶颗粒中可能包括了多种放射性核素。假设半径为 a 的气溶胶浓度为 $N(a)$,则总的气溶胶粒子浓度 $Z(\text{m}^{-3})$ 如式(1)所示。

$$Z = \int N(a) da \quad (1)$$

假设球形气溶胶粒子的密度为 ρ_s ,则总的气溶胶密度 $\rho_a(\text{kg}/\text{m}^3)$ 如式(2)所示。

$$\rho_a = \frac{4}{3} \pi \rho_s \int N(a) a^3 da \quad (2)$$

同位素 i 的半衰期为 τ_i ,则其衰变速率 η_i 如式(3)所示。

$$\eta_i(a) = \frac{4}{3} \pi a^3 \rho_s f_{di} N_A \ln 2 / (\bar{\mu} \tau_i) \quad (3)$$

$$\bar{\mu} = \sum_i (\mu_i f_i + \mu_{di} f_{di}) \quad (4)$$

式中: $\bar{\mu}$ 为平均原子质量; N_A 为阿伏伽德罗常数;角标 di 指其衰变产物。

单位体积的某一放射性气溶胶的衰变速率如式(5)所示。

$$\int N(a) \eta_i(a) da = \frac{\rho_a N_A f_{di} \ln 2}{\bar{\mu}} \frac{1}{\tau_i} \quad (5)$$

若气溶胶是单分散的,则上式可简化为 ηZ ,核素衰变速率可直接转化为气溶胶粒子衰变速率。

2) 电离过程

(1) 气溶胶粒子外部电离

α 粒子能量较高,因此电离的离子密度较高,形成的离子数量与 α 粒子的能量呈正比。若 α 粒子与空气分子之间的反应不足引发电离,则空气分子将会被激发,激发态的分子返回基态的过程会发射二次光子。在与空气分子的每次碰撞中,在激发和电离之间消耗的 α 粒子的能量比例大致相等。因此,每个 α 粒子产生的离子数取决于这个比例和产生离子对所需的能量。Christophorou^[3]于 1970 年给出了在空气中进行 α 电离的离子对产生的能量约 35 eV。

考虑激发效应,每个能量为 E_0 的 α 粒子产生的离子对数通过式(6)可估算得到。

$$I_a = E_0 / 2\omega_i \quad (6)$$

式中: I_a 为 α 粒子的电离常数; ω_i 为物质的平均电离电位,keV。

与 α 辐射相比, β 辐射产生相对低密度的电离辐射,电离的过程伴有少量的气体分子激发。来自一个源的 β 粒子具有不同的能量分布,最大值为 E_{\max} 。能谱的形状给出了 β 粒子的平均能量约为 E_{\max} 的 $1/3$ ^[4]。

因此,对于特定能量的 β 辐射,离子对产生常数 I_β 如式(7)所示。

$$I_\beta = E_{\max} / 3\omega_i \quad (7)$$

(2) 气溶胶粒子内部电离

Yeh 等于 1976 年通过实验进行 β 辐射的气溶胶内部存留电荷研究;Reed 等于 1977 年、Clement 和 Harrison 等于 1990 年进行了相关

的数值模拟,发现数值模拟结果与实验结果一致,均接近+1个电荷。对于发生 α 辐射的气溶胶粒子,气溶胶粒子带电量可能不等于-2。Ehrenhaft于1925年、Ivanov等在1969年的实验和Yeh等在1978年的实验全部给出一些指示, m 的期望值应大于1,范围为(1,20)^[5]。

可用Bethe-Bloch公式^[6]估计发生 α 辐射后气溶胶粒子的电荷量。

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^2 q_a^2 nA}{m_e v^2} \cdot$$

$$\left[\ln \frac{2m_e v^2}{w} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \quad (8)$$

$$\beta = v/c_0 \quad (9)$$

式中: e 为1个电子的电量,C; m_e 为电子质量,kg; v 为粒子速度,m/s; A 为原子数。

3) 吸附过程

放射性粒子在空气中电离形成的电子将非常迅速地吸附在分子上形成离子,并与形成的正离子再结合或吸附在气溶胶颗粒上。吸附速率取决于气溶胶半径和相应的克努森数。本文采用了Gunn在1954年提出的解析吸附系数^[7],表达式如下。

$$\beta_{1,j} = \frac{j e \mu_+}{\epsilon_0 [\exp(2\lambda j) - 1]} \quad (10)$$

$$\beta_{-1,j} = \frac{j e \mu_-}{\epsilon_0 [1 - \exp(-2\lambda j)]} \quad (11)$$

$$\lambda = \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0 a k T} = \frac{8.351}{a T} \quad (12)$$

式中: $\beta_{1,j}$ 为正离子与带 j 个电荷的气溶胶颗粒吸附系数, s^{-1} ; $\beta_{-1,j}$ 为负离子与带 j 个电荷的气溶胶颗粒吸附系数, s^{-1} ; ϵ_0 为真空介电常数, F/m ; μ_+ 为正离子迁移率, $m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$; μ_- 为负离子迁移率, $m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$; a 为气溶胶粒子半径, μm ; T 为温度,K。

为能准确计算事故工况下的吸附系数,借鉴Harrison给出的事故典型温度400K对应的电迁移率^[2],如式(13)和式(14)所示。

$$\mu_+ = 9.76 \times 10^{-5} m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1} \quad (13)$$

$$\mu_- = 1.07 \times 10^{-4} m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1} \quad (14)$$

由上述放射性气溶胶过程的描述可知,影响放射性气溶胶电荷的主要参数包括温度、衰变类型、衰变速率、气溶胶粒径等。

1.2.2 气溶胶电荷平衡方程 考虑上节描述的气溶胶过程,气溶胶电荷方程可如下给出。

$$\begin{aligned} \frac{dN_j}{dt} = & \beta_{1,j-1} n_+ N_{j-1} - \beta_{1,j} n_+ N_j + \\ & \beta_{-1,j+1} n_- N_{j+1} - \beta_{-1,j} n_- N_j + \\ & \eta \sum_m P_m (N_{j-m} - N_j) \end{aligned} \quad (15)$$

正负离子浓度变化关系式如下所列。

$$\frac{dn_+}{dt} = -n_+ \sum_j \beta_{1,j} N_j + I\eta Z - \alpha n_+ n_- + q \quad (16)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_-}{dt} = & -n_- \sum_j \beta_{-1,j} N_j + \\ & I\eta Z - \alpha n_+ n_- + \eta Z \sum_m m P_m + q \end{aligned} \quad (17)$$

用平均电荷参数代替上述方程和离子浓度方程的求和项,可得到下列方程。

$$\frac{dn_+}{dt} = \beta_{1,j} n_+ Z + I\eta Z - \alpha n_+ n_- + q \quad (18)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = -\beta_{-1,j} n_- Z + I\eta Z - \alpha n_+ n_- + \bar{m}\eta Z + q \quad (19)$$

$$\frac{dJ}{dt} = \beta_{1,j} n_+ - \beta_{-1,j} n_- + \bar{m}\eta \quad (20)$$

式中: N_j 为携带 j 个电荷的气溶胶数量浓度, m^{-3} ; P_m 为衰变在气溶胶粒子上留下 m 个电荷的概率; j_{\max} 为截断误差。

通过对上述3个方程进行迭代求解,可得到稳态情况下,放射性气溶胶所携带的平均电荷。

稳态情况下,电荷方程的左侧项 dN_j/dt 为0,电荷方程可转化为 N_j/N_0 的1组线性方程。一般情况,通过设置最大截断电荷数 $|J|$ 来进行数值求解。为区别放射性气溶胶和非放射性气溶胶,对于非放射性气溶胶,引入变量。

$$x = \frac{n_+ \mu_+}{n_- \mu_-} \quad (21)$$

则可推导方程的解如下。

$$\frac{N_j}{N_0} = \frac{x^j}{\lambda j} \sinh \lambda j \exp(-\lambda j^2) \quad (22)$$

$$\begin{aligned} \frac{N_j}{N_{j-1}} = & \frac{\beta_{1,j-1} n_+ + \eta}{\beta_{-1,j} n_-} = \frac{[1 - \exp(-2\lambda j)]}{j} \cdot \\ & \left\{ \frac{x(j-1) \exp[-2\lambda(j-1)]}{1 - \exp[-2\lambda(j-1)]} + y \right\} \quad j > 1 \end{aligned} \quad (23)$$

$$\frac{N_1}{N_0} = (1 - \exp(-2\lambda)) \left(\frac{x}{2\lambda} + y \right) \quad (24)$$

$$\frac{N_{-j}}{N_{-j+1}} = \frac{1}{x} \frac{(j-1)}{j} \left[\frac{1 - \exp(-2\lambda j)}{\exp[2\lambda(j-1)] - 1} \right] /$$

$$\left\{ 1 + \frac{y}{x} \frac{[1 - \exp(-2\lambda j)]}{j} \right\} \quad (25)$$

$$\frac{N_{-1}}{N_0} = \frac{1}{2\lambda x} \left/ \left\{ [1 - \exp(-2\lambda)]^{-1} + \frac{y}{x} \right\} \right. \quad (26)$$

通过对上述方程进行求解可得到稳态情况下放射性气溶胶所携带电荷的分布。

方程求解流程如图 2 所示,其中, j_{\max} 为截断误差。

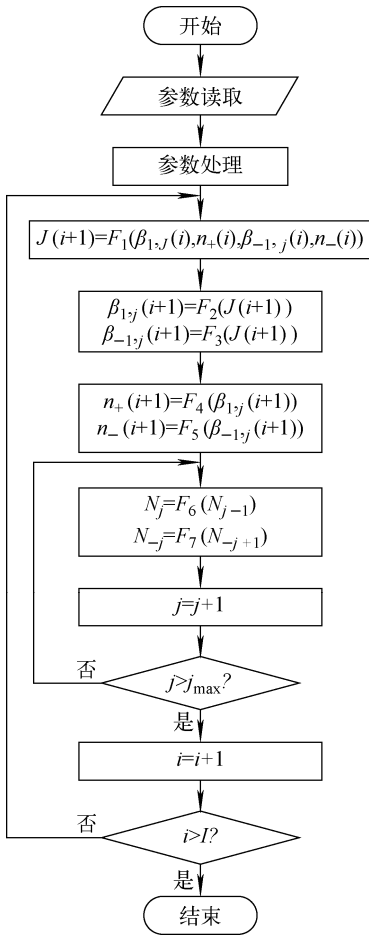


图 2 方程求解流程图

Fig. 2 Flowchart for solving equation

2 计算程序验证

通过实验验证编写的气溶胶电荷量及电荷分布计算程序。Yeh 于 1976 年对 ^{198}Au 单分散气溶胶的放电过程进行了实验^[8]。实验过程采用的气溶胶参数为:半径, $0.265 \mu\text{m}$;气溶胶粒子浓度, $1.5 \times 10^7 \text{ m}^{-3}$;粒子衰变系数, 0.47 、 0.210 、 0.077 s^{-1} 。

针对不同的衰变系数,气溶胶粒子所携带的平均电荷计算结果如图 3 所示。平均电荷随时间迅速上升,达峰值后缓慢下降并趋于稳定。电荷分布如图 4 所示,呈正态分布。

程序计算结果与 Yeh 实验对比结果列于表 1。由对比结果可知,对于衰变速率较大的气溶胶,程序计算结果与实验值吻合较好;对于衰变速率较小的气溶胶,程序计算结果与实验结果差近 1 倍。考虑到气溶胶放电精密实验的测量不确定性和模型中多处假设及经验参数的使用引入误差的不确定性,此误差在可接受范围内。

3 典型核电厂安全壳内气溶胶电荷计算

本文的最终目的是评估核电厂安全壳内在严重事故工况下气溶胶的电荷分布。参考 NUREG/CR-6189 报告中给出的典型核电厂安全壳内气溶胶放射性的相关参数(表 2^[9])。报告中给出了事故后 2~10 h 之间的数据,1 个粒径为 $1 \mu\text{m}$ 的气溶胶粒子对应的衰变速率为 $5 \sim 2000 \text{ s}^{-1}$,本文采用 1000 s^{-1} 。此外,根据 EHRENHAFT、Ivanov 和 Yeh 等的实验,1 次 α 衰变在气溶胶粒子内部电离电子逃逸导致气溶胶粒子所带正电荷的量一般不超过 20 个,假设由 α 衰变导致的气溶胶粒子所带正电荷的量为 19,则根据 α 和 β 的份额,平均电荷

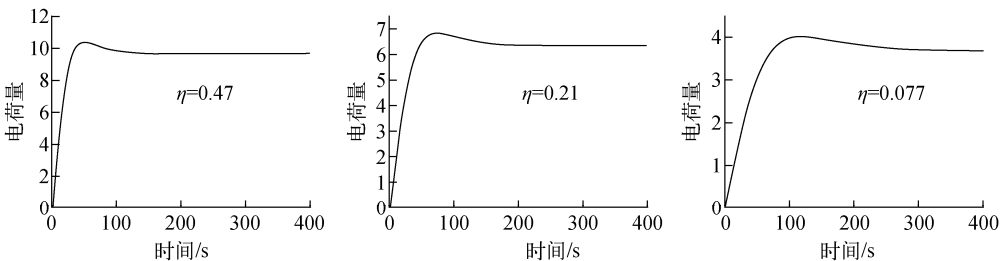


图 3 气溶胶平均电荷量

Fig. 3 Mean charge of aerosol

量 $1 \leq \bar{m} \leq 19$ 。计算不同粒径、不同 \bar{m} 情况下对应的气溶胶电荷量如图 5、6 所示。由图可知,在核电厂事故条件下安全壳内的气溶胶整体上带负电荷;对于典型粒径的气溶胶(0.1, 5) μm , 对应的电荷区间为(0, -25); 电荷量随粒径的增大而增加。

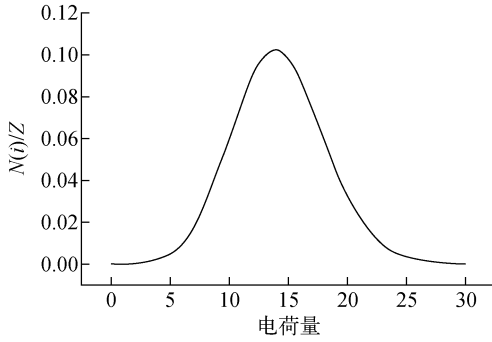


图 4 气溶胶电荷分布

Fig. 4 Charge distribution of aerosol

表 1 程序计算电荷量与实验结果对比

Table 1 Comparison between charge calculated by program and experimental results

气溶胶衰变速率/ s^{-1}	实验值	理论修正计算结果
0.470	9.0	9.67
0.210	5.2	6.35
0.077	1.9	3.69

表 2 典型核电厂严重事故工况下

安全壳内气溶胶参数

Table 2 Aerosol parameters in containment under severe accident conditions of typical nuclear power plants

参数	数值
正离子扩散系数	0.05
负离子扩散系数	0.08
正负离子结合速率因子, cm^3/s	2×10^{-6}
离子产生速率, $\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$	2×10^{12}
1 μm 气溶胶颗粒衰变速率, s^{-1}	300
气溶胶密度, g/cm^3	1×10^{-7}
气溶胶微粒有效密度, g/cm^3	3

气溶胶电荷分布如图 7 所示,不同粒径的气溶胶电荷分布曲线中位值均小于 0,且与图 6 中的平均电荷量匹配;随着气溶胶粒径增加,电

荷分布的中位值向左偏移且峰值下降。

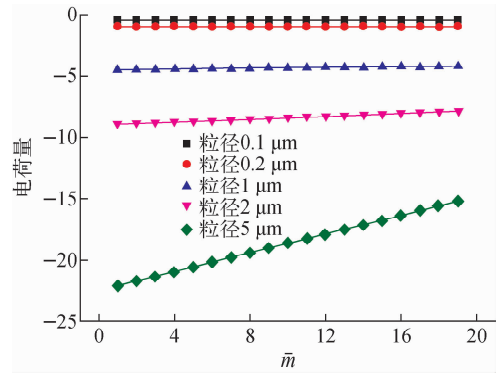


图 5 气溶胶电荷量与 \bar{m} 之间的关系

Fig. 5 Relationship between aerosol charge and \bar{m}

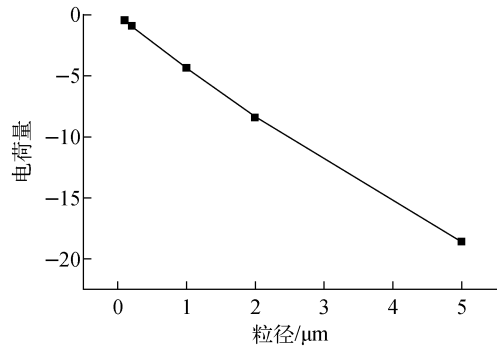


图 6 电荷量与粒径之间的关系

Fig. 6 Relationship between aerosol charge and particle size

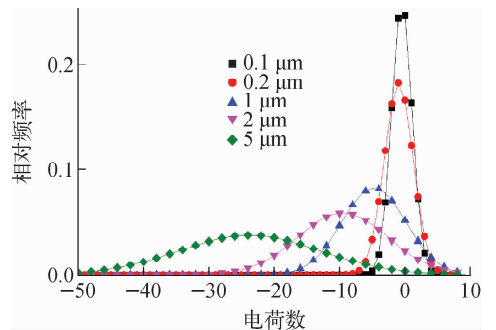


图 7 气溶胶电荷分布

Fig. 7 Aerosol charge distribution

4 结论

本文描述了气溶胶的放电过程,推导了气溶胶电荷分布及平均电荷的计算过程,编写了计算程序,并通过实验数据对计算程序进行了验证,最终通过典型核电厂严重事故工况下的

相关参数计算得到安全壳内气溶胶的平均电荷量及电荷分布,并得到如下结论:

1) 在核电厂事故条件下安全壳内的气溶胶整体上带负电荷;

2) 对于典型粒径的气溶胶(0.1,5) μm ,对应的电荷区间为(0, -25);

3) 电荷量随粒径的增大而增加;

4) 气溶胶粒子电荷呈正态分布。

本文的研究结论可为接下来实验研究电荷对安全壳内气溶胶输运及迁移影响提供基础参数。

参考文献:

- [1] REED L D, JORDAN H, GIESEKE J A. Charging of radioactive aerosols[J]. *Journal of Aerosol Science*, 1977, 8(6): 457-463.
- [2] CLEMENT C F, HARRISON R G. Radioactivity and atmospheric electricity, Harwell Report AERE M3770 [R]. Harwell, UK; UKAEA, 1990.
- [3] CHRISTOPHOROU L G. Atomic and molecular

radiation physics[R]. New York: Wiley, 1970.

- [4] COOPER D W, REIST P C. Neutralizing charged aerosols with radioactive sources[J]. *Coll Interface Sci*, 1973, 45: 17-26.
- [5] CLEMENT C F, HARRISON R G. The charging of radioactive aerosols[J]. *Journal of Aerosol Science*, 1992, 23(5): 481-504.
- [6] DERTINGER H, JUNG H. Molecular radiation biology[R]. Berlin: Springer-Verlag, 1970.
- [7] GUNN R. Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients[J]. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 1954, 11(5): 339-347.
- [8] YEH H C. A theoretical study of electrical discharging of self-charging aerosols[J]. *Journal of Aerosol Science*, 1976, 7(4): 343-349.
- [9] POWERS D A, WASHINGTON K E, SPRUNG J L, et al. A simplified model of aerosol removal by natural processes in reactor containments, NUREG/CR-6189[R]. US: Nuclear Regulatory Commission, 1995.