



·蒙特卡罗方法及其应用·

基于运行反馈的压水堆氚排放量研究*

付鹏涛¹, 代明亮¹, 祝兆文², 刘新华², 方 岚², 徐春艳²

(1. 中广核研究院有限公司, 广东 深圳 518000; 2. 生态环境部核与辐射安全中心, 北京 100082)

摘 要: 以压水堆核电厂中氚的产生机理和氚源项计算模型为基础, 结合对国内外大量压水堆核电厂的氚排放运行数据的系统性分析, 识别出冷却剂硼酸活化和次级中子源活化是压水堆氚排放量的主要来源, 其中对中国广核集团运行机组, 铈铍中子活化后的产氚量对氚年排放量的贡献可达到 40%, 而氚从完整的锆合金包壳的燃料棒中的释放是可以忽略不计的。由于优化次级中子源是降低压水堆氚排放量的唯一有效措施, 通过分析建议压水堆核电厂采用双层不锈钢包壳的次级中子源或者取消次级中子源以降低压水堆氚排放。

关键词: 压水堆; 氚; 次级中子源; 锆基合金; 不锈钢包壳

中图分类号: TL38*2

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202234.210399

Study of annual tritium discharge in pressurized water reactor based on historical data

Fu Pengtao¹, Dai Mingliang¹, Zhu Zhaowen², Liu Xinhua², Fang Lan², Xu Chunyan²

(1. China Nuclear Power Technology Research Institute Co., Ltd., Shenzhen 518000, China;

2. Nuclear and Radiation Safety Center, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100082, China)

Abstract: Based on tritium production mechanism and the tritium calculation model in China General Nuclear Power Corporation (CGN), the historic tritium discharges in lots of nuclear power plants around the world have been comprehensively gathered and analyzed. It is recognized that the activation of boric acid in the primary loops and activation of Be in secondary neutron source (40% of annual tritium discharge in CGN's operating pressurized water reactor units) are the predominant origins, and the tritium release from intact fuel rods with zirconium alloy can be neglected. It is found that use of double encapsulated secondary neutron source or cancellation of secondary neutron source is the only way to reduce significantly the tritium discharges in the pressurized water reactors.

Key words: pressurized water reactor; tritium; secondary neutron source; zirconium alloy; stainless steel cladding

在压水堆正常运行期间, 压水堆中冷却剂中大部分氚流经废液处理系统后会直接排放到环境。排放的氚可以通过饮水、呼吸和食入等途径进入人体。氚半衰期长(12.3 a)且不能被传统三废系统有效去除, 导致氚成为液态流出物中含量最多的放射性核素(通常氚占压水堆液相流出物总活度的 95% 以上)。另外, 乏燃料水池内的含氚水经蒸发进入气相空间, 会对工作人员形成内照射。因此氚是核电厂安全分析和环境影响评价中重点关注的核素^[1-5]。考虑到核电站冷却剂中的氚全部被排放到环境中, 所以本文中不区分“氚产生量”和“氚排放量”。

在早期压水堆的运行中, 堆芯同时装载了燃料棒和次级中子源, 因而无法区分各自产生的氚的释放量。在开展这些机组的环境影响评价时, 通常采用了一些非常保守的释放假设得到能够包络机组将来运行后可能出现的氚排放量。过高地评估压水堆核电厂的氚排放量不仅会造成机组设计与运行排放量的严重背离, 也会影响同一厂址的机组容量。事实上, 准确地识别出燃料棒和次级中子源对排放氚的贡献是科学地评估压水堆排放量的基础, 也是进一步开展降低压水堆排放量氚的前提。

近年来, 国内外压水堆核电厂取消了次级中子源的运行, 为准确识别燃料棒和次级中子源对压水堆氚排放

* 收稿日期: 2021-09-06; 修订日期: 2022-01-12

基金项目: 中国广核集团专项基金项目

联系方式: 付鹏涛, fupengtao@cgnpc.com.cn。

量提供了条件。通过对比取消前后的运行氚排放量可以识别出次级中子源对氚排放量的贡献,并进一步评估得到燃料棒中氚的释放量。本文系统地整理分析了压水堆中产生氚的所有途径,通过对国内外大量压水堆核电厂氚排放量历史运行数据系统性分析,识别出硼酸和次级中子源是压水堆排放氚的主要来源。结合国内外良好实践,总结出采用双层不锈钢包壳的次级中子源或取消次级中子源是降低压水堆氚排放量的唯一有效措施。

1 压水堆氚源项的理论模型

1.1 氚的产生机理

在压水堆运行期间,一回路冷却剂中的氚由燃料棒中燃料的裂变反应,冷却剂中化学添加剂和次级中子源中铍的中子活化反应产生。表 1 列出了压水堆核电厂中产生氚的核反应^[6-11]。

表 1 压水堆核电厂中产生氚的核反应

Table 1 Nuclear reaction of tritium production in PWR

region	nuclear reaction
fuel	$U/Pu + {}^1_0n \rightarrow FP1 + FP2 + {}^3_1H$
boric acid (primary coolant)	${}^{10}_5B + {}^1_0n \xrightarrow{(n,2\alpha)} 2{}^4_2He + {}^3_1H$
	${}^{10}_5B + {}^1_0n \xrightarrow{(n,n\alpha)} {}^6_3Li + {}^1_0n + {}^4_2He \rightarrow {}^6_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^3_1H$
	${}^{10}_5B + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^7_3Li + {}^4_2He \rightarrow {}^7_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^1_0n + {}^3_1H$
	${}^{11}_5B + {}^1_0n \xrightarrow{(n,T)} {}^9_4Be + {}^3_1H \rightarrow {}^9_4Be + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^6_2He$ $\rightarrow {}^6_2He \xrightarrow{\beta} {}^6_3Li + {}^0_{-1}e \rightarrow {}^6_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^3_1H$ ${}^9_4Be + {}^1_0n \xrightarrow{(n,T)} {}^7_3Li + {}^3_1H \rightarrow {}^7_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^1_0n + {}^3_1H$
lithium hydroxide (primary coolant)	${}^6_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^3_1H$
	${}^7_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^1_0n + {}^3_1H$
deuterium (primary coolant)	${}^2_1H + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^3_1H$
antimony-beryllium in SNS	${}^9_4Be + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^6_2He \rightarrow {}^6_2He \xrightarrow{\beta} {}^6_3Li \rightarrow {}^6_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^3_1H$
	${}^9_4Be + {}^1_0n \xrightarrow{(n,T)} {}^7_3Li + {}^3_1H \rightarrow {}^7_3Li + {}^1_0n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}^4_2He + {}^1_0n + {}^3_1H$

(1)燃料中裂变材料经三分裂产生氚,该部分氚可能以一定比例通过锆基合金包壳扩散到冷却剂中。

(2)为调节堆芯反应性而加入冷却剂的硼被中子活化产生氚。该部分是冷却剂中氚的重要来源,其中 B-10(n,2α)H-3 是最主要的产氚途径。

(3)为保持一回路水化学条件(pH 值)加入的锂(实际为 LiOH)被中子活化产生氚。

(4)二次中子源内的 Be 经中子活化产生氚,该部分氚可能以一定比例通过不锈钢包壳扩散到冷却剂中。其中 Be-9(n,α)Li-6 和 Li-6(n,α)H-3 是最主要的产氚途径。

压水堆中其他途径产生的氚较少(比如氚被中子活化),可以忽略不计。

1.2 计算程序

PALM 软件—中广核自主研发的燃耗计算软件,该软件主要通过求解燃耗方程来进行衰变热和源项的计算。PALM 软件的数据库来自 JEFF 3.3,包含了 3853 种核素,考虑了 8 种中子反应通道和 12 种衰变通道^[12]。利用 PALM 软件可以计算出燃料里三元裂变反应产生的氚的积存量。

JMCT 软件—JMCT 软件是中物院高性能数值模拟中心自主研发的蒙特卡罗模拟软件,该软件支持中子、光子以及电子的输运过程,考虑了包括热化在内的各种核反应,能够模拟固定源、临界本征值等各种问题,计算使用的数据库为 ENDF/B-VII^[13]。利用 JMCT 软件可以模拟得到反应堆内各区域的中子注量率,四分之一反应堆 JMCT 模型如图 1 所示。

1.3 氚产生量的计算方法

1.3.1 直接来源

冷却剂中化学添加剂(硼酸和氢氧化锂)经中子活化反应可以产生氚,这部分氚会直接进入冷却剂并最终排放到环境,属于氚的“直接来源”。这部分氚的产生量 A_D (用活度表示)可通过求解核素反应方程得到或通过下

式计算。

$$A_D = f\lambda \sum_k \left\{ \sum_{j=1} \left[V_j \sum_{i=1} \left(N_{jk} \sigma_{ik} \phi_{ij} \right) \right] \right\} \quad (1)$$

式中： A_D 为产生的氚的活度(Bq/a)； λ 为氚的衰变常数(s^{-1})； f 为核电站年平均负荷因子； V_j 为堆芯各区受到活化的冷却剂体积(cm^3)； N_{jk} 为堆芯各区冷却剂中硼、锂、氚同位素的核子数密度($10^{28} m \cdot cm^{-1}$)； σ_{ik} 为各活化反应的30群微观截面($10^{-28} m^2$)； ϕ_{ij} 为堆芯各区30群中子注量率($cm^{-2} \cdot s^{-1}$)。

1.3.2 间接来源

燃料棒中易裂变核素可以通过三元裂变反应产生氚，二次中子源中铍(Be-9)经中子辐照也可以产生氚。但累积的大部分氚都被燃料和次级中子源的芯块及包壳所包容，只有其中一部分氚可以渗透过包壳进入冷却剂并最终排放到环境。因此这部分氚属于“间接来源”，释放进入冷却剂的氚产生量 A_{ID} (用活度表示)可以用下式表示。

$$A_{ID} = \varepsilon_i P_i \quad (2)$$

式中： P_i 表示燃料棒或次级中子源中氚的累积总量(Bq/a)； ε_i 为对燃料棒和次级中子源包壳的渗透比例； P_f 为燃料中累积的氚产生量，可以通过燃耗计算程序或者经裂变产额计算得到； P_s 为次级中子源中累积的氚产生量，需要求解级联核反应方程公式(1)。

除了燃料棒和次级中子源中氚的具体释放比例外，本研究中使用的氚产生量计算模型的其他细节见参考文献[10-11]。

2 关键来源识别及验证

2.1 技术难点

压水堆核电厂中氚的来源非常复杂。除了直接来自冷却剂中化学添加剂及杂质外，燃料棒和次级中子源等封闭部件也成为释放氚的潜在来源。这些封闭部件中产生的氚必须经扩散透过包壳才能释放到冷却剂中，并最终排放到环境中。目前行业内开展氚经这些包壳材料的扩散行为的研究较少。特别是在EPR, AP1000和VVER等堆型的引进过程中，各设计方在源项设计中对氚的间接来源的计算释放假设和结果存在非常大的差异。表2列出了EPR和AP1000反应堆的冷却剂内各种来源对氚产生量的相对贡献。尽管均使用锆基合金作为燃料棒的包壳，AREVA在EPR堆型中忽略了燃料棒中氚的释放但考虑了次级中子源中氚释放^[4]，但西屋在AP1000堆型的源项设计中使用非常保守的燃料中氚释放假设却忽略了次级中子源^[5]。表2也列出了VVER反应堆设计中冷却剂氚产生量的相对贡献^[6]。可见，对于采用锆合金燃料包壳的压水堆，不同反应堆设计中对压水堆中氚来源的识别有很大差异。这给设计者、评审者和电站运行者在氚来源的认识上带来困扰，也不利于不同机组的废液排放量进行横向比较。

表2 不同堆型的预期氚产生量的相对贡献

Table 2 Relative contribution of expected tritium production in different reactor

origin	relative contribution/%		
	EPR	AP1000	VVER
fuel	0	31	22
boric acid and lithium hydroxide	83	69	77
SNS	17	0	—
total	100	100	100

2.2 氚的关键来源识别

研究中收集了国内外核电厂的6000余堆年的气液态氚排放运行数据^[17-20]，经整理形成RRED数据库，包括CPR1000系列(包括M310机组)、VVER系列、英国的Sizewell-B机组、美国的西屋型机组、法国的CPY/P4/N4系列机组、德国的Siemens机组，西班牙的压水堆机组等。以这些机组的氚排放量运行数据为基础，结合这些机组实际装载的燃料和次级中子源的信息，可以识别出压水堆机组燃料棒和次级中子源对氚排放量的贡献，为确定不同

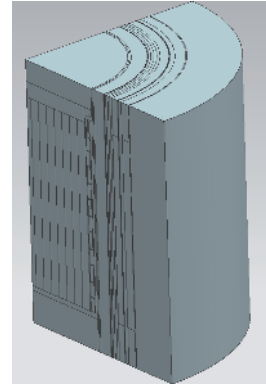


Fig. 1 Quarter reactor JMCT model

图1 四分之一反应堆 JMCT 模型

氚源项计算模型及其采用假设的合理性提供了验证方式。

2.2.1 硼酸和氢氧化锂对氚产生量的贡献评价

硼酸中的硼元素含有 B-10 和 B-11 两种同位素,但同位素 B-10 对氚的产生起主要贡献。计算表明,压水堆使用天然硼酸时, B-10 被活化产生的氚是 B-11 的 2500 倍。硼酸是国内外核电厂广泛使用的补偿堆芯剩余反应性的可溶中子毒物,目前并没有替代措施。另外,由于富集硼酸仅降低了 B-11 和硼酸浓度,所以使用富集硼酸并不能有效降低冷却剂中硼酸产生的氚。德国 Philippsburg 2 机组在 1998 年开始使用富集硼酸后,氚的年排放量没有出现统计误差范围外的明显变化^[20-21]。另外,EDF 对硼酸的替代物进行了综合评估,包括在中子吸收能力、物理和化学特性的稳定性、设备完整性、对工作人员安全和健康等方面。研究后认为,在目前的认知水平下,技术上还无法实现对核电厂一回路系统中使用硼酸的替代^[21]。

由于与 Li-6 的产氚截面远大于 Li-7 的产氚截面,因此当使用天然丰度的 Li-7(92.4%)时,一回路冷却剂中由 LiOH 活化产生的氚高达约 120 TBq/a,因此目前压水堆电厂运行时都采用 Li-7 富集后的 LiOH 溶液。当 Li-7 丰度达到 99.9% 以上时(向冷却剂添加的氢氧化锂中 Li-7 丰度 $\geq 99.9\%$ 是当前核电行业的最低要求),氢氧化锂对氚排放量的贡献小于 2 TBq/a。调研了国内某压水堆中氢氧化锂样品的检测结果, Li-7 丰度最高可以达到 99.96%,对应的氢氧化锂产生的氚约为 1 TBq/a。

因此,在当前压水堆运行条件下,通过改变冷却剂中硼酸和氢氧化锂的同位素丰度不能有效地降低氚的直接产生量。

2.2.2 燃料对氚产生量的贡献评价

燃料内通过三元裂变产生的氚会逐渐累积,其活度与堆芯平均燃耗(或辐照时间)成正比关系。对于 1000 MWe 的压水堆机组,在堆芯所有燃料棒内的氚活度总计约 900 TBq^[41]。堆芯内所有燃料棒内累积的氚向冷却剂的少量扩散的影响也可能是不可忽略的,因此开展氚从锆基燃料包壳的释放比例或释放量的评估是必要的。

研究中收集分析了国内外核电厂堆芯中不装载次级中子源的压水堆机组的氚排放运行数据。这些机组的类型包括法国的 CPY 系列压水堆、德国的 Siemens 压水堆、俄罗斯的 VVER 系列、中国的 CPR1000 系列(包含 M310 机组),这些机组的燃料管理包括年度换料和 18 个月换料,燃料类型包括 UO_2 燃料和 MOX 燃料。采用百万 kW 级压水堆 12 个月换料和 18 个月换料的典型中子注量率水平和一回路水化学参数进行了理论计算。

对于这些已经取消次级中子源的机组,机组排放的氚仅来自冷却剂中硼锂活化和燃料棒的释放。在机组的运行氚排放量中扣除冷却剂中硼酸和锂产生的氚后,剩余的氚排放量则来自燃料棒。由于目前世界上在运的压水堆核电站的燃料包壳几乎都是采用锆合金包壳,其中 Zr 元素组成在 98% 以上,同时锆合金包壳密度相近,因此在计算中近似认为氚对于各个电厂使用的燃料锆合金的渗透率是相同的。图 2 提供了根据 1.3 节方法的氚源项理论计算值和氚排放运行测量值的对比,图 3 提供了采用 1% 燃料释放比例模型计算的氚排放量与运行测量值的对比^[21]。分析表明,忽略燃料棒的氚向冷却剂和环境释放的情况下,理论模型和实际测量数据符合的较好。当考虑燃料棒的氚向冷却剂和环境释放(采用 1% 燃料释放比例)时,理论模型计算的氚排放量会系统地大于实际测量数据。

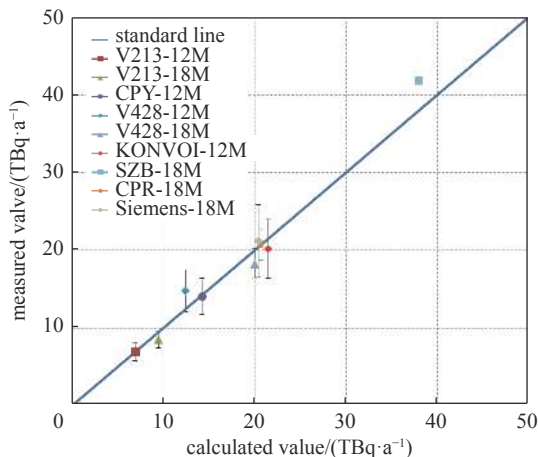


Fig. 2 Comparison between calculated and measured values of tritium production by neutron activation

图 2 硼锂产氚模型的计算值与测量值的比较

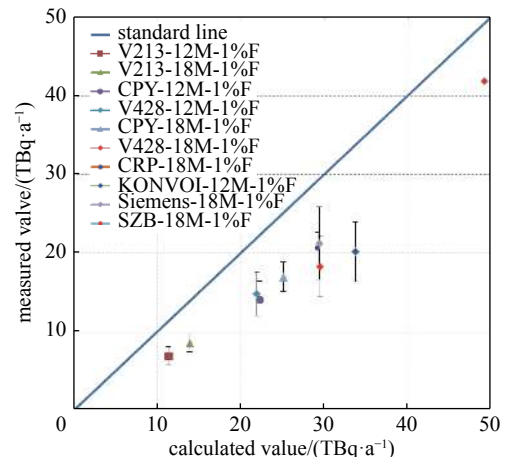


Fig. 3 Comparison between calculated and measured values of tritium production (1% released from fuel)

图 3 燃料模型(1%释放)氚排放量计算值与测量值的比较

在准确获得这些压水堆的燃料管理情况下,理论上可通过“逐渐减小燃料中氚的释放比例以逐渐逼近氚年排放量实测值的思路”得出氚对燃料包壳排放比例的最佳值。通过对各种堆型的氚年排放数据和理论值的比较,综合分析认为氚对压水堆锆合金渗透比例不大于 0.3%(对百万 kW 级压水堆,堆芯所有燃料棒对氚排放量的贡献 < 2 TBq/a)^[11, 20-22]。因此燃料棒不是压水堆排放氚的主要来源。另外,当前运行中燃料棒破损率已很低(达到 < 2×10^{-6} 数量级),氚从破损燃料棒中释放的量也可以忽略不计。所以工程设计中可以忽略燃料中氚通过锆基燃料包壳向冷却剂的释放。

2.2.3 次级中子源对氚排放量的贡献分析

根据次级中子源中 Be 经中子活化产生的氚的核反应,研究中建立并求解了次级中子源产氚的微分方程组,计算了不同辐照时间下次级中子源的累积产氚量和向冷却剂的释放量。

随着辐照时间的增加,次级中子源内的氚不断累积,向冷却剂释放的氚量也逐渐增加。图 4 提供了大亚湾核电站氚源项的计算值和实测值的对比^[11, 23]。理论计算与运行实践均表明,对于 CPR1000 机组(包括 M310),辐照 15 a 时所有次级中子源向冷却剂的氚渗透量可达 13~15 TBq,对氚年排放量的贡献最高可达到 40%。计算工况包括了机组年度换料、18 个月换料、带次级中子源和取消次级中子源运行,理论计算结果均与实测数据符合较好。

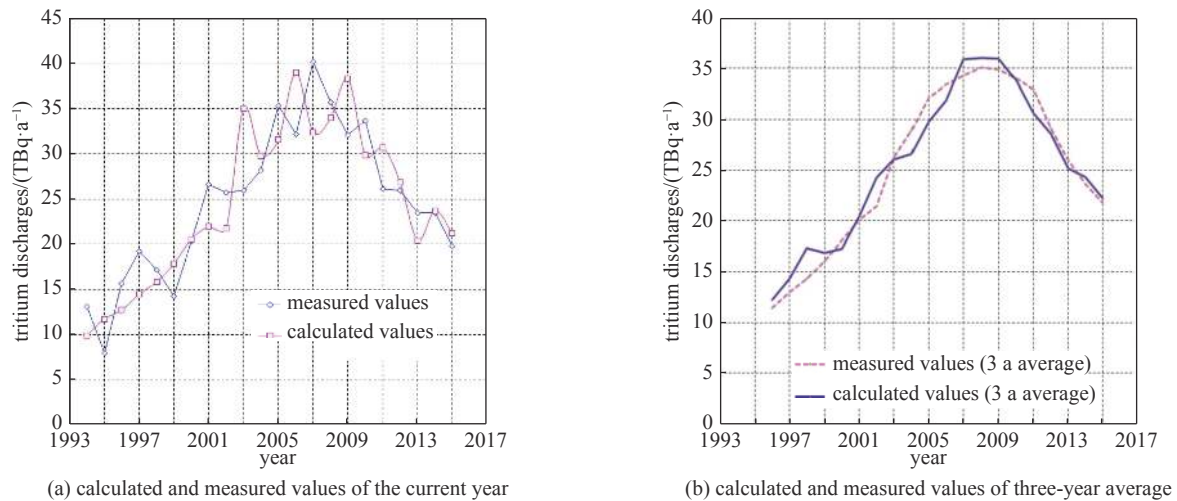


Fig. 4 Comparison between calculated and measured values of tritium production of Daya Bay Nuclear Power Plant

图 4 大亚湾核电站氚源项的计算值和实测值的对比

3 次级中子源的优化方案

经分析识别出冷却剂中可溶硼酸和单层不锈钢包壳的次级中子源是压水堆排放氚的主要来源。考虑到冷却剂硼酸浓度取决于反应堆燃料管理设计,国内外并没有其他替代措施,因此优化次级中子源的结构设计和使用的是降低压水堆核电站排放氚的唯一有效方式(不考虑氚的后处理技术,如 CANDU 堆会进行排放氚的后处理)。目前有两种优化方向:一种是改进次级中子源的包壳结构,采用双层不锈钢包壳的次级中子源;另一种是取消堆芯装载的次级中子源。这两种方式均是降低压水堆氚排放量的有效措施,已被国内外大量核电站的运行实践验证。

3.1 采用双层包壳的次级中子源

不锈钢和锆基合金是核电站的燃料棒和相关组件中使用最广泛的包壳材料。虽然高温下氚经锆合金包壳的扩散量明显低于不锈钢^[24-29],但由于锆合金堆内的使用寿命较短,在次级中子源寿命内(通常 10~15 a)使用锆合金的次级中子源必然会增加放射性固体废物(次级中子源属于高放固体废物)。目前采用双层不锈钢包壳的次级中子源已成为经大量核电站运行的良好实践^[30],双层不锈钢包壳的截面示意图见图 5。

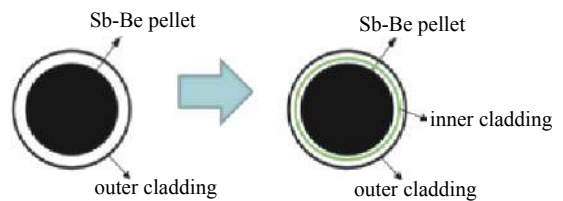


Fig. 5 Schematic diagram of SNS in double-layer stainless steel cladding

图 5 双层不锈钢包壳的次级中子源的截面示意图

英国 Sizewell B 是西屋设计的四环路压水堆,机组热功率为 3411 MWe,电功率为 1258 MW^[31]。自 1995 年装载单层不锈钢包壳的次级中子源运行以来,Sizewell B 机组的氚年排放量显著增加,于 2003 年达到最高值 70 TBq/a。

为了降低氚排放量, Sizewell B 机组于 2004 年开始采用双层不锈钢包壳的次级中子源, 之后机组的氚年排放量明显下降^[32]。2005 年至 2013 年间 Sizewell B 机组的氚排放量平均值为 42 TBq/a, 相比 2003 年减少了 40%。

采用双层不锈钢的另一个优点是可以降低传统次级中子源破损的风险。在国内外压水堆核电厂的长期运行中, 出现了传统设计的次级中子源破损的情况^[33-35]。尽管次级中子源发生破损的频率不是很高, 但其对辐射防护和机组运行的影响不可忽视。从次级中子源泄漏的 Sb-122 和 Sb-124 会引起冷却剂系统的活度增加, 并沉积在一回路管道及相连接系统的管道表面造成局部的辐射“热点”, 造成设备外表面辐射剂量率大幅度升高, 导致工作人员辐照剂量率的升高。例如, 秦山核电厂第 10 循环中发生次级中子源破损, 冷却剂中 Sb-122 和 Sb-124 显著增加, 化学与溶剂控制系统管道的辐射水平升高了 2~3 倍。西班牙 Almaraz 1 号机组在第 13 循环大修期间发现 Sb-122 和 Sb-124 的活度异常增高, 识别出堆芯装载的次级中子源破损, 造成大修期间工作人员的辐照剂量增加了 1 倍。

3.2 取消次级中子源

辐照过的乏燃料组件中的 U-238 与中子发生级联核反应后会产生一些衰变过程中释放中子的超铀核素, 如 Cm-242 和 Cm-244。计算表明, 乏燃料组件的发射中子率(或中子源强)与其燃耗成正相关。只要将乏燃料组件装入堆芯相应位置后其发射的中子可以引起堆外源量程探测器产生足够的有效中子计数, 就达到监督堆芯临界状态的目的。这种情况下堆芯就可以不再装载次级中子源组件, 由满足要求的乏燃料组件替代次级中子源的功能。

目前法国的 900 MWe 系列机组、德国 Siemens 压水堆和美国的部分压水堆已经取消次级中子源。在国内的运行电厂中, 大亚湾核电厂、岭澳核电厂、阳江核电厂、秦山核电厂、昌江核电厂等均已在机组运行数循环后取消了次级中子源^[36-37]。这些运行反馈表明, 压水堆机组在运行中取消次级中子源是完全可行的, 不仅满足堆芯安全的监管要求, 也显著地降低了氚排放量以及机组运行对环境和公众的影响。图 6 提供了法国某 900 MWe 机组取消次级中子源前后的氚排放量变化曲线, 说明取消次级中子源可以显著降低机组的氚排放量^[21]。

因此, 建议国内在运核电厂开展安全分析评估, 尽快启动采用双层不锈钢包壳或完全取消次级中子源的分析, 以降低机组运行期间的氚排放量和次级中子源发生破损的风险。

4 结 论

以压水堆核电厂中氚的产生机理和氚源项计算模型为基础, 本研究系统地整理分析了国内外大量核电厂的氚排放运行数据, 识别出冷却剂可溶中子毒物硼酸和次级中子源中 Be 的活化是压水堆排放量氚的主要来源, 锆基合金的燃料棒释放的氚可以忽略, 解决了困扰行业内数十年的燃料和次级中子源对氚排放量贡献的难题。本研究的结论不仅适用于在运压水堆降低氚排放量, 也对新型压水堆研发中氚源项评估具有重要意义。

本文的创新点为: (1) 研究中系统地收集、整理并分析了国内外大量核电厂的氚源项运行排放数据并形成数据库。结合机组的燃料和次级中子源的实际情况, 为识别压水堆氚产生的关键来源和降低氚排放奠定了基础, 也为氚源项计算理论模型提供了验证途径。(2) 研究中识别出优化次级中子源是降低压水堆的液氚排放量的唯一有效措施, 采用双包壳的次级中子源或取消次级中子源是经国内外大量核电厂运行检验的运行反馈。在保证堆芯安全运行的前提下, 建议国内压水堆核电厂尽快推广取消次级中子源的良好实践。

致 谢 本研究开展过程中, 作者与中广核研究院有限公司蔡德昌、中广核工程有限公司姜晓玮等专家并进行了有益的技术讨论, 在此表示感谢。

参考文献:

- [1] IAEA. Management of waste containing tritium and carbon-14[R]. Technical Reports Series No. 421, 2004: 28-35.
- [2] Bechtold T E, Dyer N C. Radionuclides in United States commercial nuclear power reactors[R]. WINCO-1191, 1994: 6-25.
- [3] ASN. Groupes de réflexion menés de mai 2008 à avril 2010 sous l'égide de l'ASN et Bilan annuel des rejets de tritium pour les installations nucléaires de base de 2015 à 2019[R]. 2019: 4-241.

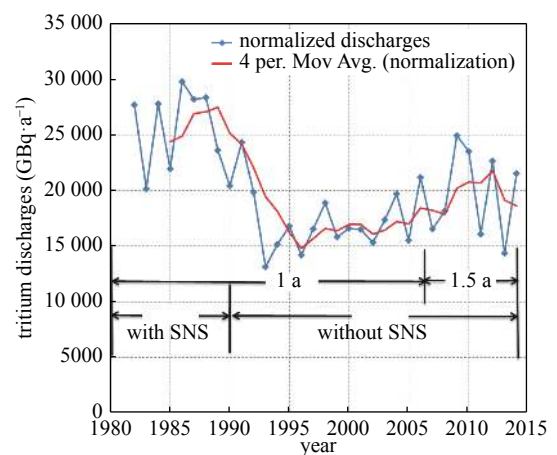


Fig. 6 Variation of tritium discharge from French 900 MWe PWR

图 6 法国某 900 MWe 机组的氚排放量变化

- [4] Jacobs D G. Sources of tritium and its behavior upon release to the environment[R]. TID-24635, 1968: 21-22.
- [5] 杨茂春. 压水堆核电站氚的辐射风险分析[J]. 辐射防护通讯, 2000, 20(3): 1-6. (Yang Maochun. Radiation risk analysis of tritium in PWR nuclear power plants[J]. Radiation Protection Bulletin, 2000, 20(3): 1-6)
- [6] Locante J. Tritium in pressurized water reactors[J]. Transactions of the American Nuclear Society, 1971, 14(1): 161-162.
- [7] Phillips J E, Easterly C E. Sources of tritium[R]. ORNL/TM-6402, 1980: 4-8.
- [8] Hussey D, Saunders P, Morey D, et al. Modeling tritium life cycle in nuclear plants[C]//Proceedings of the Waste Management 2006 Symposium. 2006.
- [9] Jones G. Tritium issues in commercial pressurized water reactors[J]. Fusion Science and Technology, 2008, 54(2): 329-332.
- [10] 单陈瑜, 石秀安, 蔡德昌, 等. 大亚湾和岭澳一期核电站氚年排放量计算分析[J]. 核科学与工程, 2013, 33(1): 31-37. (Shan Chenyu, Shi Xiuan, Cai Dechang, et al. Analysis and calculation of annual emissions of tritium for Daya Bay and Ling Ao nuclear power plants[J]. Nuclear Science and Engineering, 2013, 33(1): 31-37)
- [11] 付鹏涛, 蔡德昌, 李志军. 基于CPR1000的压水堆氚排放量研究[C]//第十七届反应堆数值计算与粒子输运学术会议CORPHY暨2018年反应堆物理会议(CORPHY-2018). 2018. (Fu Pengtao, Cai Dechang, Li Zhijun. Study of tritium production based on CPR1000 discharge[C]//CORPHY-2018.2018)
- [12] 彭思涛, 王超, 赵焱, 等. 中广核自主燃耗计算软件PALM研发[C]//第十七届反应堆数值计算与粒子输运学术会议CORPHY暨2018年反应堆物理会议(CORPHY-2018). 2018. (Peng Sitao, Wang Chao, Zhao Yan, et al. Development of the CGN burnup code PALM[C]//CORPHY-2018.2018)
- [13] 刘鹏, 史敦福, 李康, 等. JMCT与子通道程序耦合方法研究及验证[J]. 强激光与粒子束, 2018, 30: 016010. (Liu Peng, Shi Dunfu, Li Kang, et al. Research and validation on coupling method of JMCT and subchannel code[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2018, 30: 016010)
- [14] Bouhrizi S. GDA UK EPR-BAT demonstration[R]. UKEPR-0011-001 Issue 06, 2012.
- [15] U. S. NRC. Westinghouse AP1000 design control document rev. 19[R]. ML11171A500, 2011.
- [16] Zamani M, Tafakkorbari S, Rostami H, et al. Release assessment of tritium in liquid effluents of Bushehr nuclear power plant (BNPP) in 2013[C]//Proceedings of LXIV International conference NUCLEUS 2014. 2014: 261-262.
- [17] van der Stricht S, Janssens A. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing sites in the European Union, 1999-2003[R]. Radiation Protection 143, 2005.
- [18] van der Stricht S, Janssens A. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing sites in the European Union, 2004-08[R]. Radiation Protection 164, 2010.
- [19] 广东大亚湾核电站岭澳核电站生产运行年鉴(1994-2015)[M]. 北京: 原子能出版社, 1994-2015. (GNPS & LNPS operation yearbook (1994-2015)[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1994-2015)
- [20] 付鹏涛. 压水堆氚源项研究[R]. 中广核研究院有限公司, 2018. (Fu Pengtao. Study of PWR tritium production[R]. CNPRI, 2018)
- [21] 付鹏涛. 压水堆氚排放量计算模型及参数的优化研究[R]. 中广核研究院有限公司, 2017. (Fu Pengtao. Study of PWR tritium production calculation model and parameter[R]. CNPRI, 2017)
- [22] Chretien V, Le Guen B. Rejets de tritium et impact autour des centrales EDF[C]//Proceedings of Tritium Conference in Paris France. 2009: 23-24.
- [23] 欧阳俊杰, 陈跃. 大亚湾核电站1994-2002年放射性流出物监测总结[J]. 辐射防护, 2004, 24(3/4): 162-172. (Ouyang Junjie, Chen Yue. Summarization of radioactive effluent monitoring in Daya Bay nuclear power station 1994-2002[J]. Radiation Protection, 2004, 24(3/4): 162-172)
- [24] Elleman T S, Austin J H, Verghese K. Tritium diffusion in Zircaloy-2 and stainless steels[J]. Transactions of the American Nuclear Society, 1972, 15(1): 229-230.
- [25] Abraham P M, Chandra D, Mintz J M, et al. Diffusion of gases in solids: rare gas diffusion in solids; tritium diffusion in fission and fusion reactor metals[R]. ORO-3508-10, 1976.
- [26] Gilbert E R, Allen R P, Baldwin D L, et al. Tritium permeation and related studies on barrier treated 316 stainless steel[R]. PNL-SA-19113, 1991.
- [27] Dollè L, Houdaille B, Leger D, et al. Tritium in fission reactors, production and management[J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1980, 31: 463.
- [28] Yario W R. Tritium inventory and release from core materials[J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1980, 31: 462.
- [29] Andrieu C, Rave S, Ducros G, et al. Release of fission tritium through Zircaloy-4 fuel cladding tubes[J]. Journal of Nuclear Materials, 2005, 347(1/2): 12-19.
- [30] Westinghouse Electric Company. Secondary sources-double encapsulated secondary source assemblies (SSAs)[R]. NFCM-0013, 2013.
- [31] Meyer G, Stokke E. Description of Sizewell B nuclear power plant[R]. NKS/RAK-2(97)TR-C4, 1997: 1-3.
- [32] Crouail P, Jeannin B, Lefaure C, et al. Organisation of radiation protection at Sizewell nuclear power plant in the UK[R]. Contract N°647/EDF, 2004: 35-47.
- [33] 陈忠宇, 张勇. 秦山核电厂大修期间辐射源项分析[J]. 辐射防护, 2009, 29(2): 65-71. (Chen Zhongyu, Zhang Yong. Analysis of source terms during refueling outage at Qinshan nuclear power plant[J]. Radiation Protection, 2009, 29(2): 65-71)
- [34] Homyk W A, Peters J, Quan B, et al. Antimony/beryllium neutron source leakage at Indian Point 2[J]. Radiation Protection Management, 1992, 9(3): 65-80.
- [35] The Committee on the Safety of Nuclear Installations of the OECD Nuclear Energy Agency. Leaking secondary neutron source in reactor coolant system[R]. 2002: 29-35.
- [36] 章安龙. 反应堆无二次中子源装料和启动[J]. 核科学与工程, 2019, 39(3): 345-349. (Zhang Anlong. Reactor reloading and startup without secondary neutron source[J]. Nuclear Science and Engineering, 2019, 39(3): 345-349)
- [37] 费罗杰, 勒瑞. 取消阳江核电厂二次中子源的理论探究[J]. 设备管理与维修, 2015(s2): 13-16. (Fei Luojie, Le Rui. Theoretical research of abandon of secondary neutron source in Changjiang nuclear power plant[J]. Plant Maintenance Engineering, 2015(s2): 13-16)