



核科学与工程

取消次级中子源对压水堆氚源项的影响分析*

王 奇

(华龙国际核电技术有限公司, 广东 深圳 518172)

摘 要: 在压水堆正常运行期间, 氚贡献了压水堆液相流出物总活度的 95% 以上, 是反应堆设计和运行中的关键放射性核素之一。通过对美国在运的 8 台堆芯设计非常相似的机组 2000 至 2019 年期间氚排放数据进行较为深度的数据清洗和分析研究, 得出采用不锈钢包壳的 Sb-Be 次级中子源的氚释放是压水堆机组氚源项的重要来源之一, 统计机组中次级中子源产氚贡献平均为 $7.5 \text{ TBq}\cdot\text{a}^{-1}$, 结合理论计算, 符合当前包壳材料发展和运行管理水平下的渗透比例 10%~20%。取消次级中子源约可以降低 20% 的因氚排放造成的公众剂量, 还可以降低氚源项对厂址规划机组数量的制约。此外, 研究还发现, 氚排放量的显著波动受到液态集中排放的显著影响, 特别是在美国压水堆大修之前或期间, 这将有助于优化未来机组放射性排放管理。

关键词: 氚; 次级中子源; 不锈钢包壳; 压水堆

中图分类号: TL75¹

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.230096

Analysis of influence of canceling secondary neutron sources on tritium source terms in pressurized water reactors

Wang Qi

(Hualong Pressurized Water Reactor Technology Corporation, Ltd, Shenzhen 518172, China)

Abstract: During the normal operation of pressurized water reactors, tritium contributes more than 95% of the total activity of liquid phase effluent from pressurized water reactors, and it is one of the key radionuclides in reactor design and operation. Through in-depth data cleaning and analysis of tritium emission data from eight units operating in the United States with very similar core designs from 2000 to 2019, it is concluded that tritium emission from Sb-Be secondary neutron sources using stainless steel cladding is one of the important sources of tritium source terms for pressurized water reactor units. According to statistics, the average contribution of tritium production from secondary neutron sources in the units is $7.5 \text{ TBq}\cdot\text{a}^{-1}$, combined with theoretical calculations, The penetration ratio in line with the current cladding material development and operation management level is 10%~20%. The elimination of secondary neutron sources can reduce the public dose caused by tritium emissions by about 20%, and can also reduce the constraints of tritium source terms on the number of units planned for the plant site. In addition, it also found that significant fluctuations in tritium emissions are significantly affected by concentrated liquid emissions, especially before or during the overhaul of pressurized water reactors in the United States, which will help optimize the management of radioactive emissions from future units.

Key words: tritium, secondary neutron source, stainless steel cladding, pressurized water reactor

氚是压水堆核电厂正常运行期间排放量最大的放射性核素, 不能用常规的三废系统处理手段去除^[1]。氚的半衰期长达 12.3 年, 极易经饮水、呼吸和食入等途径进入人体, 氚排放导致的公众剂量占总剂量的 10% 以上。核电厂的氚排放量评估已成为国内核电安全分析和环境影响评价的关注重点。因此, 氚已被公认为工业中最重要的放射性核素之一^[2]。

在核电厂反应堆的装料和启动过程中, 为了确保临界安全, 整个过程应处于中子探测器的有效监督之下。反应堆初期运行之前或者长期停堆之后, 装料和启动过程中堆芯内中子很少, 堆外探测器可能无法探测到堆芯内的

* 收稿日期: 2023-04-21; 修订日期: 2023-10-20
联系方式: 王 奇, wangqi@hpr.com.cn.

中子注量率水平。为此,堆芯内通常装有中子源组件,它们所产生的中子经次临界增殖后产生足够多的中子数,使得中子探测器能够探测到堆内中子水平以克服测量盲区。反应堆堆芯中有两类的中子源:初级中子源和次级中子源。初级中子源在反应堆首循环中使用,次级中子源在反应堆后续循环中使用。通常初级中子源即为含 1 个 Cf-252 棒和 1 个 Sb-Be 棒的中子源组件,次级中子源即为含 4 个 Sb-Be 棒的中子源组件^[3]。Sb-Be 棒中的铍活化会产生氚,部分会穿透不锈钢包壳释放到压水堆的主回路冷却剂中。现阶段该释放比例业内尚无共识,且该假设的差异必然会给氚产生分析带来极大的不确定性。

目前,关于“次级中子源活化产生放射性氚”的相关研究,国内外已开展了大量工作,美国太平洋西北国家实验室 Kim Burns 等通过实验证明次级中子源中铍活化产生的氚可轻易穿透不锈钢包壳然后释放到压水堆的主回路冷却剂中^[4];中广核研究院有限公司付鹏涛等通过理论计算结合核电厂氚排放运行数据分析,识别出中国广核集团运行机组,铍中子活化后的产氚量对氚年排放量的贡献可达到 40%^[5];北京大学杨昭林和生态环境部核与辐射安全中心王亮等,基于二次中子源包壳年渗透率为 15% 的假设建立了压水堆氚排放源项理论计算模型,并结合我国某在役核电机组 2003—2018 年运行经验反馈数据进行了验证^[6];上海交通大学孔亮通过理论计算结合实验验证得到“当次级中子源累积辐照时间为 15 年左右时,次级中子源部分贡献的氚排放量比值约为 20%~25%”,并分析了乏燃料组件替代次级中子源组件的可行性和可操作性^[7]。近年来,国内在运压水堆机组秦山一期、大亚湾 2 号机组已有成功实施无次级中子源启动的实例,且由于铀源采购困难且价格昂贵,首循环取消初级中子源论证也不断深入,取消中子源成为解决中子源采购风险、降低高放废物数量、提升经济性的重要措施。因此,本文收集整理美国 8 台在运且堆芯设计相似的机组 2000—2019 年期间氚排放历史数据,用于分析取消次级中子源对压水堆氚源项的影响,确定次级中子源对压水堆主回路氚源项的贡献。

1 氚的产生和排放

1.1 来源识别

不同类型反应堆主回路中氚的来源是不同的,压水堆中氚的所有来源包括两部分:直接来源和间接来源。直接来源指冷却剂中可溶性硼酸、氢氧化锂和氘的中子活化反应产生的氚,这部分氚会直接进入冷却剂并最终排放到环境。间接来源指燃料棒中易裂变核素通过三元裂变反应产生的氚和次级中子源中 Be-9 经中子辐照产生的氚,这部分产生的氚中大部分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。压水堆中氚生成的所有反应均总结在表 1 中^[5]。

1.2 直接来源的机制

根据中子活化反应的基本理论,主回路中氚的产生可以表述为

表 1 压水堆中氚生产的核反应

Table 1 Nuclear reaction of tritium production in PWR

region	nuclear reactions
fuel	$U/Pu + {}_0^1n \rightarrow FP1 + FP2 + {}_1^3H$
antimony-beryllium (in secondary source)	${}_4^9Be + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_2^5He \xrightarrow{\beta} {}_3^6Li \xrightarrow{\beta} {}_3^6Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_1^3H$ ${}_4^9Be + {}_0^1n \xrightarrow{(n,T)} {}_3^7Li + {}_1^3H \xrightarrow{\beta} {}_3^7Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_0^1n + {}_1^3H$
boric acid (in the primary coolant and control rod)	${}_{10}^5B + {}_0^1n \xrightarrow{(n,2\alpha)} 2{}_2^4He + {}_1^3H$
	${}_{10}^5B + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_3^6Li + {}_0^1n + {}_2^4He \xrightarrow{\beta} {}_3^6Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_1^3H$
	${}_{10}^5B + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_3^7Li + {}_2^4He \xrightarrow{\beta} {}_3^7Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_0^1n + {}_1^3H$
	${}_{11}^5B + {}_0^1n \xrightarrow{(n,T)} {}_4^9Be + {}_1^3H \xrightarrow{\beta} {}_4^9Be + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_2^4He$ ${}_2^6He \xrightarrow{\beta} {}_3^6Li + {}_0^1e \xrightarrow{\beta} {}_3^6Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_1^3H$ ${}_4^9Be + {}_0^1n \xrightarrow{(n,T)} {}_3^7Li + {}_1^3H \xrightarrow{\beta} {}_3^7Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_0^1n + {}_1^3H$
lithium hydroxide (in the primary coolant)	${}_3^6Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_1^3H$ ${}_3^7Li + {}_0^1n \xrightarrow{(n,\alpha)} {}_2^4He + {}_0^1n + {}_1^3H$
	deuterium (in the primary coolant)

$$\frac{d\bar{N}(t)}{dt} = V\bar{N}(t) \sum_{\varepsilon} (\sigma_{\varepsilon}\bar{\phi}_{\varepsilon}) - \lambda\bar{N}(t) \quad (1)$$

式中： \bar{N} 是辐照区中氙靶原子的平均数； t 是操作时间； V 是辐照区中水的总体积； σ_{ε} 是中子能量 ε 的的微观截面； $\bar{\phi}_{\varepsilon}$ 是辐照区中能量为 ε 的平均中子通量； λ 是氙的衰变常数。

方程(1)的解可以表示为

$$\bar{N}(t) = V\bar{N}(0) \sum_{\varepsilon} \sigma_{\varepsilon}\bar{\phi}_{\varepsilon}(1 - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

与氙的半衰期相比，氙在1个燃料循环中的衰变可以忽略不计。时间 t 处氙的活度可以简化为

$$\bar{A}(t) = \lambda V \sum_{\varepsilon} \sigma_{\varepsilon}\bar{\phi}_{\varepsilon} t \quad (3)$$

因此，氙的生产率为

$$R(t) = \frac{d\bar{A}(t)}{dt} = \lambda V \sum_{\varepsilon} \sigma_{\varepsilon}\bar{\phi}_{\varepsilon} \quad (4)$$

中子通量 $\bar{\phi}_{\varepsilon}$ 与反应堆功率 P 之间的关系为

$$P = \bar{\phi}_{\varepsilon} N_f \sigma_f E_f V_a \quad (5)$$

式中： N_f 是活性区裂变核素的原子数密度； σ_f 是活性区中裂变核素的微观截面； E_f 是每次裂变的平均能量； V_a 是反应堆堆芯中活性区的体积。

然后可以分别得到氙的生产率

$$R = \lambda V \sum_{\varepsilon} \sigma_{\varepsilon} \frac{P}{N_f \sigma_f E_f V_a} \quad (6)$$

当参考反应堆的堆芯体积和燃料管理与 AP1000 反应堆相似时，反应堆中中子通量的分布、可溶性硼酸浓度和氢氧化锂浓度相当。因此，将参考反应堆的氙排放量作为 AP1000 反应堆中直接来源的氙产生是合理的。

1.3 间接来源的机制

燃料棒和次级中子源(SNS)是压水反应堆中氙排放的最重要间接来源，因为其中积累了大量的氙。根据氙的裂变产额，燃料棒中三元裂变产生的氙高达 500 TBq·GW⁻¹·a⁻¹ 的数量级，但次级源中的氙产量不能简单评估，因为它取决于次级源的包壳设计和中子通量。从间接来源释放到主冷却剂中的氙的量可以表示为

$$A = \eta_i A_{ID} \quad (7)$$

式中： A 是燃料棒和次级中子源的主回路中氙的活度； η_i 是氙通过燃料棒和次级中子源包层的释放率； A_{ID} 是燃料棒和次级中子源中产生的氙的量。

反应堆主回路中可燃吸收体的释放和氙的中子活化可以忽略不计，因为与其他来源相比，它对总氙的贡献很小。

在过去几十年里，氙的扩散机理和实验得到了广泛的研究，并且由于包层的外部氧化层，在压水堆中通过锆合金包壳的燃料棒的扩散释放比例被证明非常低，例如在 Belgian-3 反应堆中为 0.81%^[8]，通过渗出和渗透实验得到扩散释放比例低至 3×10⁻⁵^[9]。次级中子源中铍活化产生的氙可轻易穿透不锈钢包壳，然后释放到压水堆的主回路冷却剂中，这已通过实验^[4]、测量^[10]以及世界上许多压水堆弃用次级中子源前后的氙排放比较^[5]得到验证。尽管当前对燃料棒和次级源中产生的氙已经非常清楚，但对于这些间接来源中氙的释放比例，业界尚无共识。这些释放比例假设的差异必然会给氙生产分析带来极大的不确定性。因此，本文收集整理了除有无次级中子源外两组堆芯设计相似的机组，用来确定 Sb-Be 次级中子源对压水堆主回路氙源项的贡献，也可以用于优化压水堆氙排放计算程序。

2 统计分析讨论

2.1 数据清洗

当前美国有 64 个在运压水堆机组，收集整理的 8 个机组的反应堆功率、平均线功率密度、燃料包壳材料和堆芯总有效活跃体积^[11]相似，并分成两组，第一组无次级中子源，第二组有次级中子源，相关信息已列在表 2 中。这些机组的燃料棒材料是锆合金，虽然堆芯几何形状不同，但堆芯的有效体积非常接近，相对差异只有 4.9% 左右。

表 2 机组信息

Table 2 Information of the reactors

reactor	thermal capacity/MW	number of assemblies	active height/cm	fuel configuration	secondary neutron source (SNS)	period of discharge	
group 1	A	3411	193	12	17×17	N	2000—2019
	B	3411	193	12	17×17	N	2001—2019
	C	3438	193	12	17×17	N	2001—2011
	D	3438	193	12	17×17	N	2001—2011
group 2	E	3459	193	12	17×17	Y	2001—2019
	F	3468	193	12	17×17	Y	2000—2019
	G	3455	193	12	17×17	Y	2001—2019
	H	3455	193	12	17×17	Y	2001—2019

此外,第二组次级中子源组件的设计使用了相同的双层不锈钢包壳。

研究中,收集整理了参考机组每年氙排放量的历史数据^[12],并通过反应堆年平均负荷因子的数据^[11]将其归一化为满功率运行结果。图 1 显示了每个反应堆的年平均负荷因子。

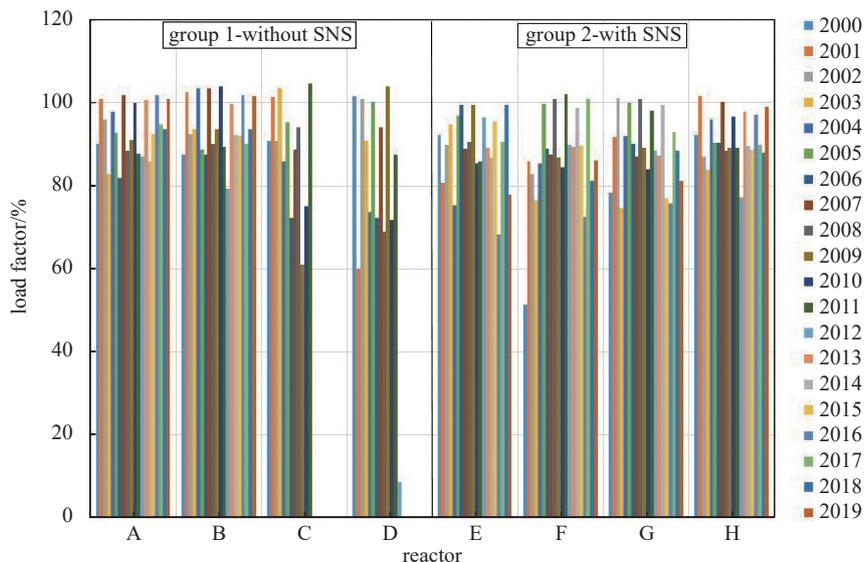


Fig. 1 Annual average load factor of reference unit

图 1 参考机组年平均负荷因子

参考机组氙排放的统计结果如图 2 所示。从氙产生的角度来看,两组参考机组之间的最大区别在于反应堆堆芯中是否使用了次级中子源组件。对比第 1 组反应堆和第 2 组反应堆的平均氙排放量,第 2 组反应堆的平均氙排放量明显高于第 1 组反应堆的平均氙排放量。这证明次级中子源是反应堆中氙产生的重要来源之一,在确定氙排放量时应考虑次级中子源的影响。

氢(氙)通过锆和不锈钢的扩散行为不同,一些研究表明,氙通过锆的渗透率比不锈钢低几个数量级^[13]。芯块中的部分氙可以通过扩散和渗透到达芯块间隙及燃料包壳。与不锈钢相比,这些氢原子中的大多数可以被锆捕获,然后以氢化锆的形式存在。氢在锆中的溶解度(通常大于 150×10^{-6})远高于在不锈钢中的溶解度(小于 5×10^{-6})^[14]。此外,锆的氧化物层还可以防止氢原子进一步扩散到主回路冷却剂中^[15]。因此,次级中子源中的很大一部分氙可以穿透不锈钢包壳,但燃料棒中产生的大多数氙很难穿透锆合金包壳进入主回路冷却剂。

大多数在运压水堆有两种放射性排放,即集中排放和连续排放,其对氙排放的贡献是不同的,大修过程中集中排放液态氙是导致氙排放极大值的重要原因之一。美国压水堆机组运行中普遍存在大修过程中集中排放液氙的情况,但如果放射性流出物的管理得到优化和限制(例如制定严格的季度和月度氙排放限制),则这种集中排放导致的极大值情况可以得到很好的控制。为了避免这种排放管理策略造成对自然年中实际氙产生量分析的影响,当用箱形图发现极大的“离群值”后,会对连续年份进行了滚动平均处理,这在一定程度上可适当降低集中排放氙引入的保守性。处理离群值后各机组氙年排放量统计结果见表 3。

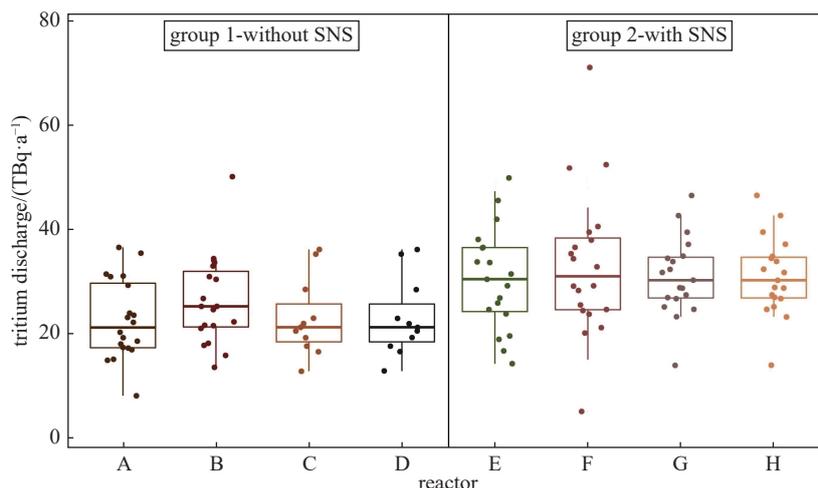


Fig. 2 Distribution of tritium emissions

图 2 氚排放量的分布

表 3 氚排放量统计结果

Table 3 Statistical results of tritium emissions

unit	average tritium emission/(TBq·a ⁻¹)			maximum tritium emission/(TBq·a ⁻¹)			
	gaseous	liquid	total	gaseous	liquid	total	
group 1	A	3.8	18.2	22.0	4.8	32.4	37.1
	B	3.0	22.2	25.2	4.8	33.5	38.3
	C	2.1	21.5	23.6	2.6	33.8	36.4
	D	2.2	22.6	24.8	2.5	34.3	36.8
	All	2.8±0.7	21.1±1.7	23.9±1.2	4.8±1.1	34.3±1.6	38.3±1.2
group 2	E	3.9	26.9	30.8	5.4	36.5	44.0
	F	3.9	29.3	33.2	4.6	37.7	41.9
	G	2.6	28.8	31.4	3.6	39.1	41.9
	H	2.5	27.6	30.1	3.2	37.1	38.8
	All	3.2±0.7	28.1±0.9	31.4±1.1	5.4±0.8	39.1±1.0	44.0±1.8

2.2 取消次级中子源对氚源项影响

根据氚总排放量的统计分析,第1组的氚年排放量在最佳估算条件下为23.9 TBq·a⁻¹,在保守条件下为38.3 TBq·a⁻¹,第2组的氚排放量在最佳估算条件下为31.4 TBq·a⁻¹,在保守条件下为45.8 TBq·a⁻¹。考虑从氚产生的角度来看,两组参考机组之间的最大区别在于反应堆堆芯中是否使用了次级中子源组件。因此可以认为,在这些参考机组中次级中子源产氚贡献平均为7.5 TBq·a⁻¹,次级来源的氚排放量取决于辐照条件,例如,反应堆中次级源棒的中子通量和辐照时间。结合理论计算,考虑一个次级中子源组件有4根次级中子源棒,每根次级中子源棒Sb-Be芯块的质量约为0.53 kg,累计辐照15年,此时对应的渗透比例约为15%,考虑计算和统计不确定度,符合当前包壳材料发展和运行管理水平下的渗透比例为10%~20%。

综上,取消次级中子源可以使机组氚排放量降低约7.5 TBq·a⁻¹,可以降低接近20%的因氚排放造成的公众剂量。IAEA和国家标准GB6249-2011^[16]对核动力厂中氚年排放量的控制值做出了具体规定,目前氚源项成为制约厂址规划机组数量的重要因素,因此取消次级中子源降低机组氚年排放量,不仅可以降低因氚排放造成的公众剂量,还可以降低氚源项对厂址规划机组数量的制约。

3 总结

本研究中收集整理美国8台同类运行机组的氚排放历史数据并进行了分类统计分析。结果表明,采用不锈钢包壳的Sb-Be次级中子源的氚释放是压水堆机组氚源项的重要来源之一,统计机组中次级中子源产氚贡献平均为7.5 TBq·a⁻¹,结合理论计算,符合当前包壳材料发展和运行管理水平下的渗透比例为10%~20%。取消次级中子

源可以降低因氚排放造成的公众剂量,还可以降低氚源项对厂址规划机组数量的制约。此外,研究还发现,氚排放量的显著波动受到液态集中排放的显著影响,特别是在美国压水堆大修之前或期间,这将有助于优化未来机组放射性排放管理。

致 谢 本研究得到了中广核研究院有限公司研究员级高级工程师付鹏涛的指导和帮助,在此表示衷心的感谢。

参考文献:

- [1] 上官志洪, 黄彦君, 陶云良, 等. 内陆核电厂排放氚的辐射环境影响评价[J]. 辐射防护, 2012, 32(2): 65-71. (Shangguan Zhihong, Huang Yanjun, Tao Yunliang, et al. Radiological environmental impact assessment for tritium discharged from inland NPPs[J]. Radiation Protection, 2012, 32(2): 65-71)
- [2] Peterson H T, Baker D A. Tritium production, releases and population doses at nuclear power reactors[J]. Fusion Technology, 1985, 8(2): 2544-2550.
- [3] 苏耿华, 包鹏飞, 韩嵩. 反应堆二次中子源源强计算及验证[J]. 强激光与粒子束, 2017, 29: 036023. (Su Genghua, Bao Pengfei, Han Song. Calculation and verification of secondary neutron source intensity of nuclear reactor[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2017, 29: 036023)
- [4] Andrieu C, Ravel 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.
- [5] 付鹏涛, 代明亮, 祝兆文, 等. 基于运行反馈的压水堆氚排放量研究[J]. 强激光与粒子束, 2022, 34: 026009. (Fu Pengtao, Dai Mingliang, Zhu Zhaowen, et al. Study of annual tritium discharge in pressurized water reactor based on historical data[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2022, 34: 026009)
- [6] 杨昭林, 王亮, 周永海, 等. 压水堆核电厂氚排放源项的计算及验证[J]. 核科学与工程, 2020, 40(3): 359-366. (Yang Zhaolin, Wang Liang, Zhou Yonghai, et al. Calculation and verification of tritium release for PWR nuclear power plants[J]. Nuclear Science and Engineering, 2020, 40(3): 359-366)
- [7] 孔亮. 压水堆换料循环取消次级中子源组件的研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2018: 20-29. (Kong Liang. Study on cancelling secondary source assemblies during refueling cycles[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2018: 20-29)
- [8] Charlier A, Gubel P, Vandenberg C, et al. Experimental study of the tritium inventory in the BR3 and extrapolation to a P.W.R. of 900 MWe[R]. Luxembourg: Commission of the European Communities, 1982.
- [9] Burns K, Love E, Elmore M. Tritium production in secondary neutron sources in pressurized water reactors[J]. Fusion Science and Technology, 2017, 71(4): 544-548.
- [10] Shaver M W, Lanning D D. Secondary startup neutron sources as a source of tritium in a pressurized water reactor (PWR) reactor coolant system[R]. Richland: Pacific Northwest National Lab., 2010.
- [11] IAEA. Power reactor information system (PRIS)[EB/OL]. 2022 [2023-10-19]. <https://www.iaea.org/resources/databases/power-reactor-information-system-pris>.
- [12] U. S. NRC. Radioactive effluent and environmental reports[EB/OL]. 2022 [2023-10-19]. <https://oriseapps.orau.gov/Effluent/Reports/Common/YearSiteReports>.
- [13] Austin J H, Elleman T S, Verghese K. Surface effects on the diffusion of tritium in 304-stainless steel and zircaloy-2[J]. Journal of Nuclear Materials, 1973, 48(3): 307-316.
- [14] Kearns J J. Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4[J]. Journal of Nuclear Materials, 1967, 22(3): 292-303.
- [15] Andrieu C. Étude de la perméation du tritium à travers les gaines de crayons combustibles type R. E. P[D]. Grenoble: Grenoble INPG, 1998.
- [16] GB 6249-2011, 核动力厂环境辐射防护规定[S]. (GB 6249-2011, Regulations for environmental radiation protection of nuclear power plant[S])