

◇“辐射防护”专题

【编者按】辐射防护是原子能科学技术的一个重要分支，是一门综合性的边缘学科，基本任务是保护从事放射性工作人员、公众及其后代的健康与安全，保护环境，促进原子能事业的发展。其中，涉及了诸多关键科学问题，具有典型的多学科交叉融合特色，必须充分借鉴前沿科技成果，研究解决辐射防护工作中面临的突出矛盾和现实问题。本专题聚焦辐射防护领域的前沿热点方向，围绕辐射探测、环境保护、剂量估算、安全评价等关键技术问题，诚邀相关基础理论研究、实际工程应用和前沿科学问题探究等方面的国内专家、学者和科研人员积极撰稿。

密闭空间下放射性核素扩散研究及 自主程序开发

李 昂, 汪镇澜, 郝 琛, 董峙豪

(哈尔滨工程大学 核安全与仿真技术国防重点学科实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘 要: 为了评估安全壳完整时发生一回路破口事故后, 放射性核素在封闭空间中扩散时的个人受照剂量, 对放射性核素扩散迁移过程开展模拟计算。采用隔室模型对密闭空间进行物理建模, 使用多参数一阶动力学微分方程描述放射性核素在密闭空间内的迁移过程, 自主开发了放射性核素扩散计算程序DMRC (Diffusion and Migration of Radionuclide Code)。采用DMRC程序计算了TACT (Transport of ACTivity) 基准题中的放射性核素活度和假想个人剂量, 计算结果与基准解结果符合良好。最后, 对某真实核电厂一回路破口事故进行模拟, 计算了事故发生后30天内安全壳和外部环境的放射性活度以及假想个人剂量。结果显示: 该事故发生后公众接受的最大有效剂量及最大甲状腺当量剂量均小于国家规定限值。结果表明: 本文工作可以用于事故工况下的环境安全分析和人员健康评估。

关键词: 破口事故; 放射性核素扩散迁移; DMRC; 假想个人剂量

中图分类号: TL7

文献标志码: A

文章编号: 2097-2741(2024)01-001-11

Research on Radionuclide Diffusion in Confined Spaces and Development of Autonomous Code

LI Ang, WANG Zhenlan, HAO Chen, DONG Zhihao

(Fundamental Science on Nuclear Safety and Simulation Technology Laboratory, Harbin Engineering University, Harbin 150001, Heilongjiang)

ABSTRACT: To assess the personal exposure dose during the diffusion of radionuclides in the confined space after a primary circuit break accident in an intact containment, the diffusion and

收稿日期: 2023-11-27

第一作者: 李昂 (1998—), 男, 硕士研究生, 主要从事反应堆物理计算不确定性分析。E-mail: ang1816@foxmail.com

通信作者: 郝琛 (1986—), 男, 教授, 主要从事核反应堆物理高保真数值计算及计算不确定性分析等研究。E-mail: haochen.heu@163.com

引用格式: 李昂, 汪镇澜, 郝琛, 等. 密闭空间下放射性核素扩散研究及自主程序开发[J]. 火箭军工程大学学报, 2024, 38 (1): 1-11.

migration process of radionuclides were simulated. First, the physics-based modeling of a confined space was carried out by the compartmental model. Subsequently, the migration process of radionuclide within the confined space was described by the multi-parameter first-order dynamic differential equation. Thereby, an independent code, the diffusion and migration of radionuclide code (DMRC), was developed to calculate the activity and hypothetical individual dose of radionuclide in TACT (Transport of ACTivity). Results obtained by DMRC was in accordance with the benchmark solution. Finally, a primary circuit break accident happened in a real nuclear power plant was simulated. The activity and the hypothetical personal dose of the radionuclide within the containment and diffused in external environment 30 days after the accident were calculated respectively. Results showed that the maximum effective dose and maximum thyroid-equivalent dose received by the public after the accident are below the national limits. These demonstrated that the proposed method can be applied into environmental safety analysis and personnel health assessment during accident conditions.

KEYWORDS: break accident; diffusion and migration of radionuclides; DMRC; hypothetical personal dose

随着核电技术的不断完善和发展,核电站整体安全性能得到了显著提升,因此,安全壳在发生事故时通常能够保持完整。但是当发生大破口(Loss of Coolant Accident, LOCA)等导致放射性物质释放的事故时,放射性核素会快速扩散至整个安全壳并泄漏到外界,将对公众健康构成危害并影响生态环境^[1]。为了在发生事故时制定人员撤离路线、评估核电站安全及监测事故后人员健康,有必要对放射性物质在安全壳内部、控制室、隔离区、低人口密度区等区域的放射性活度随时间的变化规律进行计算和分析。

现有针对事故工况下的放射性核素扩散研究大多集中于核电厂的外部释放,如Li^[2]、欧阳可汉^[3]等开展了放射性核素在大气和海洋中的扩散模拟和分析。近年来,核电厂中相关人员的辐射防护逐渐受到重视,也使得封闭环境中的放射性核素活度分布情况开始受到关注,如张彦招^[4]、Zhao^[5]、周静^[6]等模拟了放射性核素在安全壳和厂房的运动轨迹和浓度分布。在此基础上,为了进一步指导放射性释放事故下的人员健康监测,陈迎峰等^[7]开展了³H、²³⁴U在场所内的迁移扩散过程分析,同时评估了人员受照剂量。然而,当前研究并未开展事故工况下释放的主要放射性核素(如卤族元素)的扩散研究。

基于以上内容,本文结合核电厂的空间布局,选择隔室模型进行核电厂不同区域的物理建模,采用核素-空间耦合的常系数微分方程对源项的瞬时/持续释放,以及在不同区域下的衰变、扩散和

吸收等过程进行数学描述,并自主开发了放射性核素扩散计算程序。最后,以典型压水堆核电站一回路破口事故为分析对象,开展了主要核素放射性活度和假想个人剂量的模拟计算,并将假想个人剂量与国家规定限值进行对比,从而验证事故下核电站的安全性及本文提出方法和开发程序的实用性。

1 密闭空间下隔室模型建立

发生事故时能够保持完整的安全壳可以视为密闭空间,开展密闭空间下的放射性核素扩散分析,首先,需要确定对密闭空间下不同区域的物理建模方法。目前,隔室模型^[8-9]是对密闭空间内部和环境区域进行物理建模的主流方法。在核反应堆事故工况下,密闭空间内不同区域的放射性核素会发生扩散、吸收、衰变、沉积和消除等过程,且不同材料的设备和不同系统对每种放射性核素都具有不同的吸收速率,这与隔室模型的特点是一致的。因此,可以按照所需计算的放射性核素活度精度要求,将密闭空间内部空间划分为若干个隔室,对放射性核素在不同隔室之间的扩散过程进行数学描述,动态地描述事故下放射性核素的扩散规律。

隔室模型包括多隔室模型和单隔室模型,模型如图1所示。在放射性核素释放事故发生时,核电厂会启动相应的安全设施来阻止或减缓放射性核素扩散,此时密闭空间内不同区域的放射性核

素扩散速度有所区别。为了更加全面地对放射性核素扩散过程进行描述, 需要以放射性核素扩散速度为条件进行多隔室划分, 即采用多隔室模型进行密闭区域的物理建模并开展计算, 从而保证计算精度满足要求。

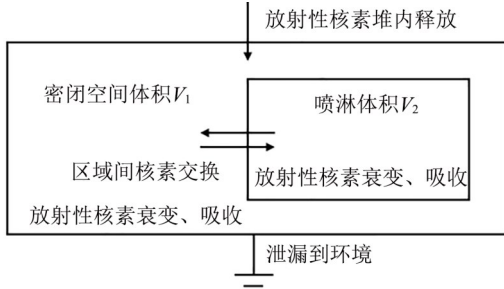


图1 隔室模型

Fig.1 Compartmental model

事故发生后, 冷却剂短时间内大量丧失, 放射性核素瞬时释放并快速扩散至整个密闭空间时, 此过程中放射性核素扩散速度相差不大, 从扩散速度论的角度出发可以将整个密闭空间作为一个隔室, 即采用单隔室模型进行核电厂区域的物理建模。在 Δt_i 时间段内, 密闭空间内部作为一个隔室, 体积为 V 。放射性核素来源为堆内释放, 放射性核素消失过程为自身衰变、内部设备吸收、密闭空间向外环境泄漏, 最后达到动态平衡。

不同于普通节点法对半径、高度、角度等进行网格划分, 隔室模型是根据粒子在不同区域的特性(如扩散速度)进行隔室划分, 这样可以减少方程求解数量, 从而提高计算效率。由于事故发生后放射性核素扩散速度极快, 不同区域内的放射性核素活度及扩散速度差距较小, 因此, 本文针对放射性核素在密闭空间内的扩散过程采用单隔室模型。

2 核素扩散理论模型

2.1 基本假设

放射性核素从堆内释放至安全壳的过程描述有瞬时释放和持续释放2种方式。瞬时释放表示所有放射性核素在事故发生初始阶段全部扩散到安全壳内; 持续释放表示所有放射性核素在事故发生后的一段时间内以恒定的速率释放。将放射性核素扩散过程进行时间离散, 针对每个时间步下的核素扩散、衰变等系数获得当前时间段内的放射性活度。每个小时间步下放射性核素从高浓度

隔室向低浓度隔室扩散, 少量核素释放到外界不会通过自然扩散等机制将核素重新带回安全壳内部。不改变任何抑制放射性核素扩散措施的情况下, 小时间步下放射性核素在隔室之间的扩散速率可视为定值。

2.2 放射性核素活度计算

由于放射性核素的扩散速率与其在各隔室内的浓度成正比, 所以, 可以对每一种放射性核素、每一个隔室、每一个时间步列出一阶动力学下的常系数微分方程。放射性核素活度计算方程为

$$\frac{d}{dt} A_{n,i}^m = \lambda_n \sum_{v=1}^{n-1} \beta_{n,v} A_{v,i}^m - (\lambda_n + \mu_{n,i}^m) A_{n,i}^m + \sum_{j=1, j \neq i}^L K_{n,i,j}^m A_{n,j}^m + P_{n,i}^m \quad (1)$$

式中: $A_{n,i}^m$ 表示在 m 时间步下核素 n 在隔室 i 内的放射性活度(Ci); λ_n 表示核素 n 的衰变系数(h^{-1}); $\beta_{n,v}$ 表示核素 v 衰变为核素 n 分支比; $\mu_{n,i}^m$ 表示在 m 时间步下核素 n 在隔室 i 损失项之和(h^{-1}); $K_{n,i,j}^m$ 表示在 m 时间步下核素 n 由隔室 j 输运到隔室 i 的系数(h^{-1}); $P_{n,i}^m$ 表示在第 m 个时间步下放射性核素 n 向隔室 i 持续释放的平均速率(h^{-1}), 有

$$P_{n,i}^m = \frac{1}{t_m - t_{m-1}} \int_{t_{m-1}}^{t_m} P_{n,i}^0 \exp(-\lambda_n(t - t_s)) dt = \frac{P_{n,i}^0 [\exp(-\lambda_n(t_{m-1} - t_s)) - \exp(-\lambda_n(t_m - t_s))]}{\lambda_n(t_m - t_{m-1})}$$

式中: t_s 为反应堆关停时间(h)。

源项持续释放时, 初始时间步 t_0 无核素释放, 其他时间步下放射性活度等于上个时间步末的释放活度, 即

$$A_{n,i}^1(t_0) = 0 \\ A_{n,i}^{m+1}(t_m) = A_{n,i}^m(t_{m-1})$$

当源项为瞬时释放时忽略 $P_{n,i}^m$ 项, 此时边界条件为

$$A_{n,i}^1(t_0) = R_{n,i}^1 \\ A_{n,i}^{m+1}(t_m) = A_{n,i}^m(t_{m-1}) + R_{n,i}^m$$

式中: 瞬时释放量 R 为

$$\frac{d}{dt} R_{n,i} = \lambda_n \sum_{v=1}^{n-1} \beta_{n,v} R_{v,i} - \lambda_n R_{n,i}$$

将式(1)简化为通式:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{A}^m = \mathbf{C}^m \mathbf{A}^m + \mathbf{P}^m \quad (2)$$

边界条件为

$$\mathbf{A}^m(t_{m-1}) = \mathbf{a}^m$$

式中: $\mathbf{A}^m$ 、 $\mathbf{P}^m$ 、 $\mathbf{a}^m$ 为 $N(L+1) \times 1$ 矩阵; 系数矩阵 $\mathbf{C}^m$ 为 $N(L+1) \times N(L+1)$ 矩阵; N 代表核素

数量; $L+1$ 为隔室数量; $L=1$ 代表环境。有

$$\begin{aligned} \mathbf{A}^m &= [\mathbf{A}_1^m \ \mathbf{A}_2^m \ \cdots \ \mathbf{A}_N^m]^T \\ \mathbf{P}^m &= [\mathbf{P}_1^m \ \mathbf{P}_2^m \ \cdots \ \mathbf{P}_N^m]^T \\ \mathbf{C}^m &= \begin{bmatrix} \mathbf{C}_{1,1}^m & \mathbf{0} & \cdots & \mathbf{0} \\ \mathbf{C}_{2,1}^m & \mathbf{C}_{2,2}^m & \cdots & \mathbf{0} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \mathbf{C}_{N,1}^m & \mathbf{C}_{N,2}^m & \cdots & \mathbf{C}_{N,N}^m \end{bmatrix} \end{aligned}$$

式中:

$$\mathbf{A}_n^m = [\mathbf{A}_{n,1}^m \ \mathbf{A}_{n,2}^m \ \cdots \ \mathbf{A}_{n,L+1}^m]^T \quad (n = 1, 2, \cdots, N)$$

$$\mathbf{P}_n^m = [\mathbf{P}_{n,1}^m \ \mathbf{P}_{n,2}^m \ \cdots \ \mathbf{P}_{n,L+1}^m]^T \quad (n = 1, 2, \cdots, N)$$

$\mathbf{C}_{n,n}^m$ ($1 \leq n \leq N$) 中对角线元素为吸收项, 非对角元素为输运项,

$\mathbf{C}_{n,n}^m =$

$$\begin{bmatrix} -(\lambda_n + \mu_{n,1}^m) & K_{n,1,2}^m & \cdots & K_{n,1,L+1}^m \\ K_{n,2,1}^m & -(\lambda_n + \mu_{n,2}^m) & \cdots & K_{n,2,L+1}^m \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ K_{n,L+1,1}^m & K_{n,L+1,2}^m & \cdots & -(\lambda_n + \mu_{n,L+1}^m) \end{bmatrix}$$

$\mathbf{C}_{n,i}^m$ ($n \neq i$) 为其他核素衰变增加项,

$$\mathbf{C}_{n,i}^m = \lambda_n \beta_{n,i} * \mathbf{E}$$

式中: $\mathbf{E}$ 为单位矩阵。

通过矩阵变换, 对核素-隔室耦合的常系数微分方程进行解耦, 根据系数矩阵的特征值对式(2)进行求解, 即可得到随时间变化的放射性核素活度。

2.3 放射性核素剂量计算

通过以上计算过程, 可以得到隔室中不同核素的放射性活度, 将其对时间积分得到整个时间的放射性核素活度, 再分别乘以不同部位剂量转换因子^[10-11]即可得到: (1) 吸入放射性核素 n 内照射对甲状腺的剂量 D_n^i ; (2) 均匀放射性核素介质 n 中全身吸收的 β 剂量 $D_n^{w,\beta}$; (3) 均匀放射性核素介质 n 中全身吸收的 γ 剂量 $D_n^{w,\gamma}$ 。

$$\begin{aligned} D_n^i &= 0.01 \times (\text{DCF})_n^i B \int \chi_n(t) dt \\ D_n^{w,\beta} &= 0.01 \times (\text{DCF})_n^{w,\beta} \int \chi_n(t) dt \\ D_n^{w,\gamma} &= 0.01 \times (\text{DCF})_n^{w,\gamma} \int \chi_n(t) dt \end{aligned}$$

式中: $(\text{DCF})_n^i$ 为甲状腺剂量转换因子 (Sv/Ci); $(\text{DCF})_n^{w,\beta}$ 和 $(\text{DCF})_n^{w,\gamma}$ 为全身 β 和 γ 浸没剂量转换因子 ($(\text{Sv/s}) / (\text{Ci/m}^3)$); B 为人体呼吸速率 (m^3/s); $\chi_n(t)$ 为人所处位置的放射性核素浓度 (Ci/m^3), 有

$$\int_{t_{m-1}}^{t_m} \chi_n(t) dt = \left(\frac{\lambda}{Q} \right)^m \sum_{i=2}^{L+1} \lambda_{n,i}^m (\text{leak}) \int_{t_{m-1}}^{t_m} \mathbf{A}_{n,i}^m(t) dt$$

式中: λ/Q 为与距离有关的稀释因子。

核素-隔室耦合的一阶动力学微分方程考虑源项瞬时释放和持续释放 2 种情况, 同时描述了隔室之间放射性核素交换、衰变及衰变产物释放的过程, 根据时间积分量, 可以计算出每个时间步下密闭空间内和泄漏到外界的放射性活度和假想个人剂量。

3 DMRC 程序开发及验证

基于以上放射性核素活度和假想个人剂量计算方法, 开发了放射性核素扩散计算程序 DMRC (Diffusion and Migration of Radionuclide Code), 并采用 TACT (Transport of ACTivity)^[12] 基准题对 DMRC 程序的放射性核素活度模块和假想个人剂量模块进行验证。

3.1 程序开发

放射性核素扩散计算程序 DMRC 能够实现从反应堆堆芯释放的放射性核素在密闭空间内和向外界释放的扩散过程模拟。在程序计算时, 放射性核素以建立的隔室模型为传输路径进行扩散, 在安全壳内经过过滤、喷淋等系统处理后泄漏至外部环境。程序整体框架和计算过程如图 2 所示。

执行计算前, 用户根据自定义核素文件选择输入核素种类; 随后, 设置反应堆输出热功率、惰性气体释放份额、碘释放份额、隔室体积、喷淋去除系数、过滤去除系数、泄漏率等物理系统输入参数从而建立计算模型, 并按照规定编写输入文件; 最后, 程序执行输入文件读取、计算结果输出过程。程序有 2 个主要计算模块, 分别为放射性核素活度计算模块和假想个人剂量计算模块。

(1) 放射性核素活度计算模块: 程序进行放射性核素的活度计算。首先, 需要通过 Tpread 函数建立源项和边界条件, 源项可以使用数据库中由 TID-14844^[11] 所计算的源项数据, 也可以通过输入文件由用户自定义输入; 其次, 系数矩阵通过 Coeff 函数建立, 其中对角线元素代表自身核素衰变速率系数、喷淋去除系数、过滤去除系数等减少项之和, 非对角线元素为其他元素衰变为自身核素的衰变速率系数、隔室间核素迁移速率系数; 最后, 调用 EISPACK^[13] 库对系数矩阵进行解耦寻找特征值和特征向量, 再进行拉普拉斯变换得到常系数微分方程组的解, 即得到每个时间步下每个隔室中每个核素的放射性活度值。

(2) 假想个人剂量计算模块: 采用放射性核

素活度计算模块得到的放射性活度值，结合数据库中核素的剂量转换因子和输入文件中的呼吸率等数据，即可实现假想个人剂量的计算。

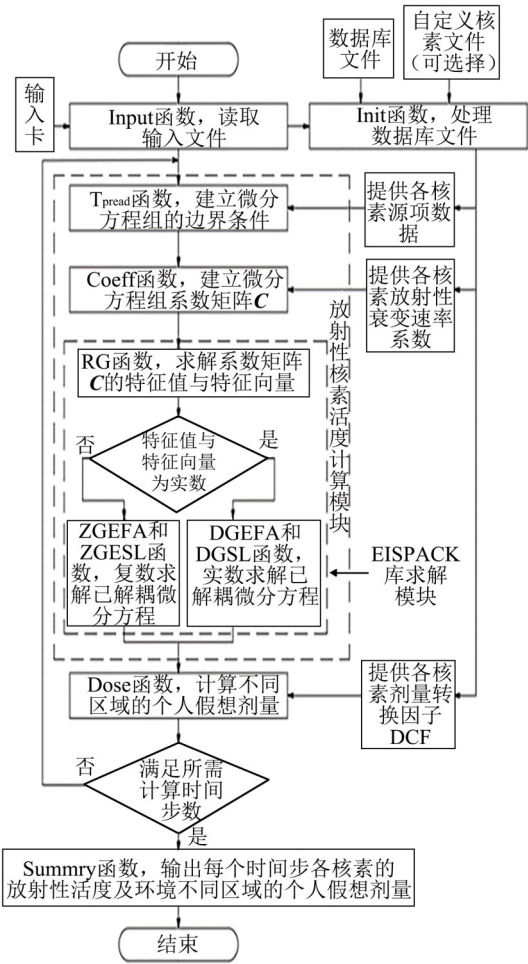


图 2 程序框架

Fig. 2 Framework of DMRC

3.2 程序验证与结果

TACT 是针对反应堆堆芯事故导致放射性核

素释放的事故评估软件验证基准题，该基准题计算了放射性物质在安全壳区域内的迁移浓度分布和在不同区域内对个体造成的辐射剂量影响，给出了反应堆冷却剂释放事故发生后 720 h 内的放射性物质扩散的模拟计算结果。

TACT 基准题中，反应堆的热功率为 1 825 MWt，安全壳体积为 $2.23 \times 10^6 \text{ ft}^3$ 。事故发生后，堆芯放射性核素释放到安全壳之前无衰减情况，即瞬时释放。碘元素释放分数为 25%，惰性气体释放分数为 100%，固体释放分数为 0。其中：释放的碘 91% 以元素形式存在，4% 以有机物形式存在，5% 以颗粒形式存在。假想的个人剂量具体参数如表 1 所示。本文首先计算 8 种主要放射性核素的累积活度，其次计算事故发生后 720 h 内各放射性核素对人体甲状腺和全身产生的累积剂量，将 DMRC 计算结果与 TACT 基准题结果进行对比，验证自主程序 DMRC 开发的可行性和计算结果的正确性。

根据上述输入参数，使用 DMRC 程序计算了事故发生 720 h 后 8 种主要放射性核素释放到安全壳和泄漏到环境的累积活度，最终计算结果与 TACT 基准题结果对比如表 2 所示。

进一步，在考虑放射性核素衰变情况下，基于 TID-14844 源项数据库使用 DMRC 计算 21 种放射性核素产生的人体甲状腺累积剂量和全身累积剂量，与 TACT 基准题结果对比如表 3 所示。

通过表 2 和表 3 计算结果可知，DMRC 程序对于基准题计算结果与 TACT 基准题结果完全一致，表明 DMRC 程序开发的正确性以及对放射性核素活度和对人体甲状腺累积以及全身累积造成的剂量影响计算的可行性。

表 1 假想个人剂量计算输入参数

Tab. 1 Hypothetical personal dose input parameters

参数	参数在不同时间段的取值					
	0~0.233 h	0.233~2 h	2~8 h	8~24 h	24~96 h	96~720 h
元素碘去除系数/ h^{-1}	1.23	3.68	3.68	3.68	3.68	3.68
有机碘去除系数/ h^{-1}	0.41	1.23	1.23	1.23	1.23	1.23
颗粒碘去除系数/ h^{-1}	1.29	3.88	3.88	3.88	3.88	3.88
环境转移率/ $(\% \cdot \text{d}^{-1})$	0.18	0.18	0.18	0.18	0.09	0.09
排除半径稀释系数/ $(\text{s} \cdot \text{m}^{-3})$	8.40×10^{-4}	8.40×10^{-4}	0.00	0.00	0.00	0.00
低人口区稀释系数/ $(\text{s} \cdot \text{m}^{-3})$	7.60×10^{-5}	7.60×10^{-5}	7.60×10^{-5}	5.40×10^{-5}	2.60×10^{-5}	8.00×10^{-6}
低人口区呼吸率/ $(\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$	3.47×10^{-4}	3.47×10^{-4}	3.47×10^{-4}	1.75×10^{-4}	2.32×10^{-4}	2.32×10^{-4}

表 2 放射性核素活度计算结果

Tab. 2 Calculation results of radionuclide activity

核素	释放到安全壳的活度/(10 ⁸ GBq)		泄漏到环境的活度/(10 ⁸ GBq)	
	DMRC	TACT	DMRC	TACT
¹³³ I	4.019	4.015	3.015×10^{-4}	3.011×10^{-4}
¹³³ Xe	6.942×10^3	6.938×10^3	2.926×10^{-1}	2.924×10^{-1}
⁸² Br	4.996×10^{-3}	5.002×10^{-3}	3.747×10^{-7}	3.752×10^{-7}
⁸⁸ Kr	8.665×10^1	8.632×10^{-1}	6.493×10^{-3}	6.468×10^{-3}
⁸⁸ Rb	9.261	9.246	6.937×10^{-4}	6.926×10^{-4}
⁸⁹ Sr	1.567×10^4	1.564×10^{-4}	6.113×10^{-1}	6.101×10^{-1}
¹³⁷ Cs	2.409×10^4	2.443×10^{-4}	9.335×10^{-1}	9.468×10^{-1}
^{137m} Ba	3.679×10^{-3}	3.676×10^{-3}	1.426×10^{-7}	1.425×10^{-7}

表 3 人体接受剂量

Tab. 3 Human accepted dose

时间/h	甲状腺累积剂量/Sv		全身累积剂量/Sv	
	DMRC	TACT	DMRC	TACT
0~0.233	1.269×10^{-1}	1.266×10^{-1}	2.046×10^{-3}	2.087×10^{-3}
0.233~2	1.355×10^{-1}	1.352×10^{-1}	7.923×10^{-3}	7.892×10^{-3}
2~8	2.069×10^{-3}	2.078×10^{-3}	9.942×10^{-3}	9.903×10^{-3}
8~24	3.744×10^{-7}	3.760×10^{-7}	6.817×10^{-3}	6.884×10^{-3}
24~96	2.711×10^{-16}	2.722×10^{-16}	1.937×10^{-3}	1.959×10^{-3}
96~720	0	1.722×10^{-55}	9.436×10^{-3}	9.356×10^{-4}

4 压水堆事故分析

本文以典型压水堆核电站大破口事故为分析对象,采用自主开发的计算程序DMRC计算主要放射性核素活度和假想个人剂量。将计算得到的全身有效剂量值和甲状腺剂量值与安全评估值对比,以验证所开发程序对实际问题的应用能力,同时评估事故工况下该核电站内人员的安全性。

4.1 事故工况描述

当反应堆冷却剂管道发生破裂后,大量冷却剂丧失,安全壳内压力迅速升高,主系统压力急剧下降,大量气态裂变产物活度释放到安全壳大气中,反应堆因主系统低压而停堆,并随着安注箱的排空而导致堆芯裸露,放射性核素迅速扩散至整个安全壳。

发生破口事故的核反应堆功率为2 895 MW_t。根据反应堆实际运行情况,堆内主要放射性核素及其活度如表4所示。当堆芯失去冷却时,积存的

放射性核素份额分别为:卤族元素释放至安全壳份额占全堆芯的3%;惰性气体(⁸⁵Kr除外)释放至安全壳份额占全堆芯的2%;⁸⁵Kr释放至安全壳份额占全堆芯的30%;其他释放的放射性核素占全堆芯的2%。本文针对卤素、惰性气体开展扩散过程分析。

核素释放到安全壳内,其放射性活度由于核电厂安全系统的处理而降低。其中的主要放射性核素碘90%以元素形式存在,10%以颗粒形式存在,其去除机理包括放射性衰变、安全壳喷淋和安全壳泄漏,元素碘的喷淋去除系数为1 000 h⁻¹,颗粒碘的喷淋去除系数为1 h⁻¹;惰性气体去除机理包括放射性衰变和安全壳泄漏,不考虑喷淋水对其的去除。

具体的事故发展过程如图3所示。其中,前13.8 h为NUREG-1465^[14]中针对破口事故下反应堆内释放源项的假设,分为4个阶段,分别为间隙释放阶段、压力容器早期释放阶段、压力容器外释放阶段和压力容器晚期释放阶段。在事故发生

时, 喷淋系统开启投入工作, 并于第 8 h 关闭。因安全壳内压力变化而导致安全壳泄漏率改变的时间节点为第 2、6、12、24 h。

表 4 燃料-包壳间隙的放射性核素活度

Tab. 4 Activities of radionuclide in fuel-cladding gap

放射性核素	堆芯放射性活度/(10 ⁸ GBq)	放射性核素	堆芯放射性活度/(10 ⁸ GBq)
¹³¹ I	2.86×10 ¹	⁸⁷ Kr	1.86×10 ¹
¹³² I	4.18×10 ¹	⁸⁸ Kr	2.62×10 ¹
¹³³ I	6.01×10 ¹	^{131m} Xe	3.59×10 ⁻¹
¹³⁴ I	6.82×10 ¹	¹³³ Xe	5.96×10 ¹
¹³⁵ I	5.69×10 ¹	^{133m} Xe	1.85
^{83m} Kr	4.18	¹³⁵ Xe	1.45×10 ¹
⁸⁵ Kr	1.92×10 ⁻¹	^{135m} Xe	1.22×10 ¹
^{85m} Kr	9.13	¹³⁸ Xe	5.40×10 ¹

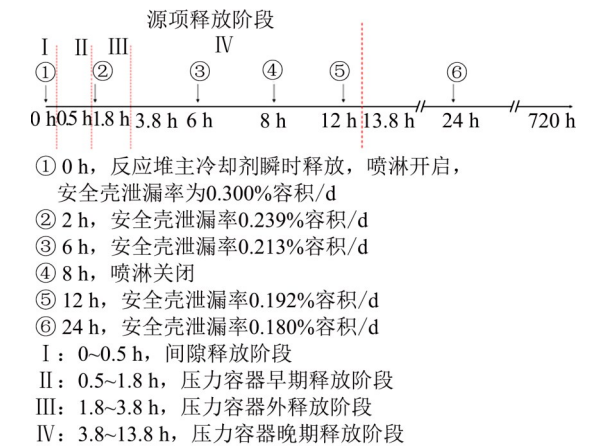


图 3 源项释放时间线

Fig. 3 Source term release timeline

在破口事故发生后, 冷却剂释放时间与整个事故周期相比很短。因此, 一般假设放射性核素释放形式为瞬时释放且扩散速度很快, 可以建立单隔室模型模拟放射性核素在安全壳内的扩散过程, 分析的事故过程总时间为 30 d, 分析内容为环境内放射性核素浓度及假想个人剂量。

4.2 放射性核素活度计算结果

在计算程序的输入文件中设置源项释放的初始数据, 程序执行计算后可以得到本文关注的自定义核素, 如 I、Kr 和 Xe 在每个时间步下在安全壳内和释放到环境中的放射性活度。

不同时间下卤族核素碘的放射性活度计算结果如图 4 所示。

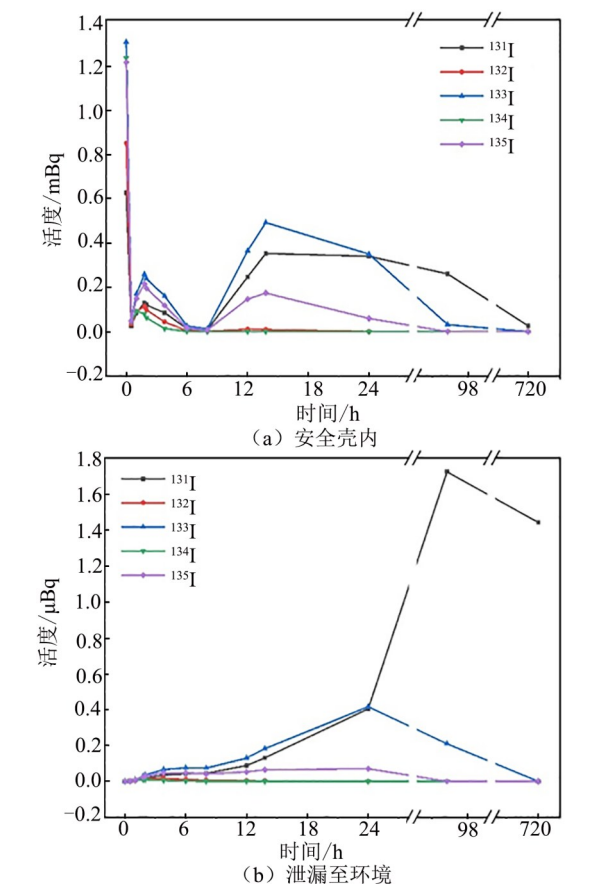


图 4 I 及其同位素的放射性活度

Fig. 4 Radioactivity of iodine and its isotopes

从图中可以发现, ¹³¹I 和 ¹³³I 是对环境造成影响的主要核素。在前 0.5 h 内, 堆芯释放的卤族核素较少, 喷淋强度很大, 堆芯内气体瞬时释放导致安全壳内气压升高, 泄漏率较高, 致使冷却剂内释放的卤族核素被快速消除; 随着时间推移, 反应堆内的卤族核素释放量增加, 喷淋系统消除效果有限, 安全壳内短时间出现卤族核素活度上升; 压力容器经过早期释放后, 反应堆内释放的卤族核素减少, 安全壳内的放射性活度也相应减少; 在第 8 h, 喷淋系统关闭, 反应堆仍在压力容器晚期释放阶段, 所以, 卤族元素的放射性活度再一次升高, 直到不再释放, 活度由于安全壳泄漏和自身衰变减小。到事故发生后的第 30 d, ¹³¹I 在安全壳内的放射性活度为 2.6×10⁻⁵ Bq 左右, 其他卤族核素在安全壳内的放射性活度均降至 3.0×10⁻¹⁴ Bq 以下。

环境中的卤族核素来源为安全壳泄漏, 消失原因为自身衰变。由于 ¹³¹I 和 ¹³³I 的半衰期较长 (分别为 8.02 d 和 20.8 h), 所以 ¹³¹I 和 ¹³³I 在环境中的份额较大。

不同时间下惰性气体氙、氪的放射性活度计算结果如图 5 和图 6 所示。

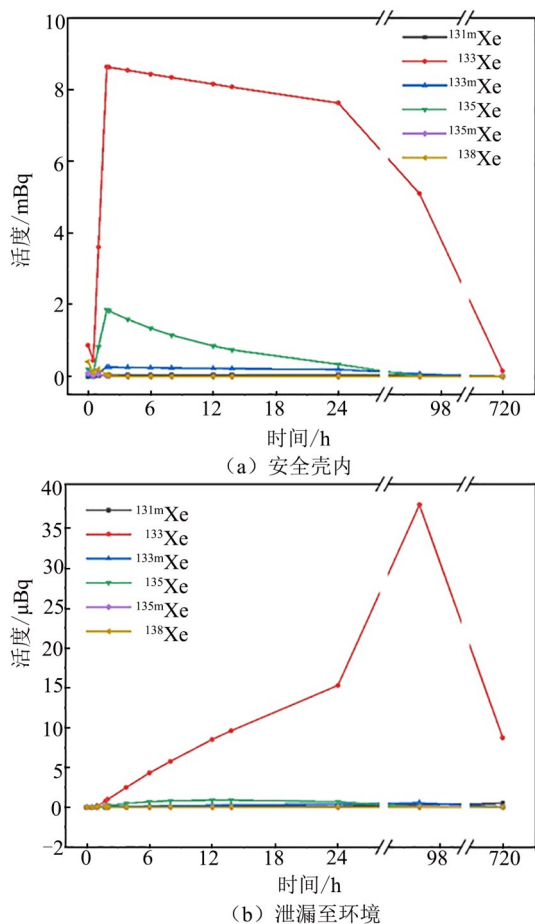


图 5 Xe 及其同位素的放射性活度

Fig. 5 Radioactivity of xenon and its isotopes

可以看出, 由于在压力容器早期释放阶段, 惰性气体释放份额高达 95%, 几乎所有的惰性气体在这一阶段释放, 导致氙和氙的放射性活度急剧上升。由于反应堆主冷却剂的惰性气体含量很少, 而喷淋对惰性气体的去除几乎没有影响。所以, 在此阶段后惰性气体由于泄漏和自身衰变, 导致其放射性核素活度缓慢下降。

由于 ^{85}Kr 和 ^{133}Xe 的半衰期分别为 10.7 a 和 5.2 d, 同时, ^{85m}Kr 和 ^{133m}Xe 分别向 ^{85}Kr 和 ^{133}Xe 衰变, 导致这 2 种核素在安全壳内具有较高的活度。在事故发生 30 d 后, ^{85}Kr 在安全壳内的放射性活度为 $3.97 \times 10^{-4} \text{ Bq}$, ^{133}Xe 放射性活度为 $1.56 \times 10^{-4} \text{ Bq}$, 其余惰性气体核素的放射性活度均降至 10^{-20} Bq 以下。环境中的惰性气体来源同样为安全壳泄漏, 消失原因为自身衰变。在事故发生的 30 d 内, 大部分惰性气体的半衰期都小于 1 d, 因此, 气体放射性活度都保持在较低水平。但 ^{85}Kr 由于其半衰

期很长 (10.756 a), 安全壳的泄漏导致其放射性活度在环境中不断增加, 在事故发生 30 d 后, ^{85}Kr 的放射性活度仍有 $2.21 \times 10^{-5} \text{ Bq}$, 并且安全壳泄漏量多于自身衰变量。所以, 长时间内放射性活度不会下降, 需要采取必要的措施来消除 ^{85}Kr 导致的放射性, 从而保障公众健康安全。

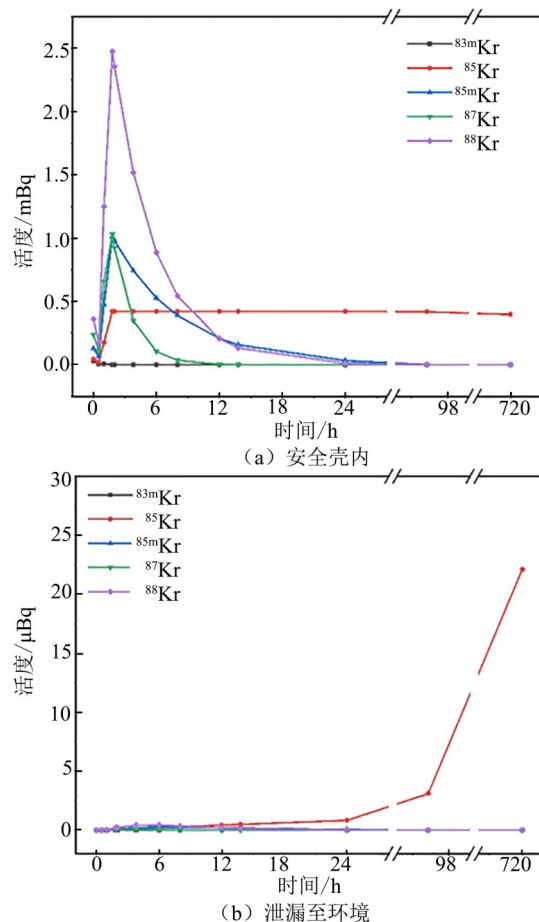


图 6 Kr 及其同位素的放射性活度

Fig. 6 Radioactivity of krypton and its isotopes

4.3 不同区域的假想个人剂量计算结果

本文计算了隔离区 (EAB, 距离核电站约 500 m) 和低人口密度区 (LPZ, 距离核电站约 5 000 m) 的假想个人剂量, 计算结果如表 5 和表 6 所示。根据表中内容, 可以进行事故发生后不同时间下的受照人员安全剂量评估。

根据以上计算结果, 结合对放射性释放事故的实际安全评估值, 可以进行该核电站反应堆一回路冷却剂破口事故发生后的受照射人员安全评价。安全评估值给出了事故发生后 2 h 距离厂房 500 m, 以及 30 d 时距离厂房 5 000 m 的规定限值。计算结果与规定限值的对比情况如表 7 所示。

表 5 隔离区假想个人剂量计算结果

Tab. 5 Calculation results of EAB hypothetical personal dose

开始时间/h	结束时间/h	每个时间步内接受 甲状腺剂量/Sv	甲状腺累积剂 量/Sv	每个时间步内全 身接受剂量/Sv	全身累积剂 量/Sv
0.00	1.00	2.740×10^{-3}	2.740×10^{-3}	1.269×10^{-4}	1.269×10^{-4}
1.00	1.80	6.425×10^{-3}	9.165×10^{-3}	3.181×10^{-4}	4.450×10^{-4}
1.80	2.00	1.779×10^{-3}	1.094×10^{-2}	9.686×10^{-5}	5.419×10^{-4}
2.00	3.80	7.504×10^{-3}	1.845×10^{-2}	5.184×10^{-4}	1.060×10^{-3}
3.80	6.00	3.271×10^{-3}	2.172×10^{-2}	5.232×10^{-4}	1.583×10^{-3}
6.00	12.00	6.766×10^{-3}	2.848×10^{-2}	8.215×10^{-4}	2.405×10^{-3}
12.00	13.80	5.532×10^{-3}	3.402×10^{-2}	1.910×10^{-4}	2.596×10^{-3}
13.80	24.00	3.048×10^{-2}	6.450×10^{-2}	9.170×10^{-4}	3.513×10^{-3}
24.00	96.00	8.316×10^{-2}	1.477×10^{-1}	3.181×10^{-3}	6.694×10^{-3}
96.00	720.00	6.505×10^{-2}	2.127×10^{-1}	1.055×10^{-2}	1.724×10^{-2}

表 6 低人口密度区假想个人剂量计算结果

Tab. 6 Calculation results of LPZ hypothetical personal dose

开始时间/h	结束时间/h	每个时间步内接受 甲状腺剂量/Sv	甲状腺累积剂 量/Sv	每个时间步内全 身接受剂量/Sv	全身累积剂 量/Sv
0.00	1.00	1.013×10^{-4}	1.013×10^{-4}	4.692×10^{-6}	4.692×10^{-6}
1.00	1.80	2.375×10^{-4}	3.388×10^{-4}	1.176×10^{-5}	1.645×10^{-5}
1.80	2.00	6.577×10^{-5}	4.046×10^{-4}	3.581×10^{-6}	2.003×10^{-5}
2.00	3.80	2.270×10^{-4}	6.316×10^{-4}	1.568×10^{-5}	3.571×10^{-5}
3.80	6.00	9.892×10^{-5}	7.305×10^{-4}	1.582×10^{-5}	5.154×10^{-5}
6.00	12.00	1.873×10^{-4}	9.178×10^{-4}	2.345×10^{-5}	7.499×10^{-5}
12.00	13.80	1.517×10^{-4}	1.070×10^{-3}	5.237×10^{-6}	8.022×10^{-5}
13.80	24.00	8.360×10^{-4}	1.906×10^{-3}	2.515×10^{-5}	1.054×10^{-4}
24.00	96.00	1.843×10^{-3}	3.749×10^{-3}	7.050×10^{-5}	1.759×10^{-4}
96.00	720.00	1.056×10^{-3}	4.805×10^{-3}	1.712×10^{-4}	3.470×10^{-4}

表 7 假想个人剂量与规定限值对比

Tab. 7 Hypothetical personal dose vs prescribed limits

事故	距离/m	全身有效 剂量/mSv		甲状腺 剂量/mSv	
		安全 评估值	剂量 计算值	安全 评估值	剂量 计算值
LOCA	500(2 h)	0.92	0.54	12.90	10.94
	5 000(30 d)	0.42	0.35	5.96	4.81

可以看到, 本文对假想个人剂量的计算结果均小于安全评估的规定限值。GB 6249—2011^[15]规定, “在发生一次稀有事故时, 隔离区边界上公众在事故后 2 h 内以及低人口密度区外边界上公众在

整个事故持续时间内可能受到的有效剂量应控制在 5 mSv 以下, 甲状腺当量剂量应控制在 50 mSv 以下”。本文计算结果得到的公众所接受最大有效剂量为 0.54 mSv, 最大甲状腺当量剂量为 10.94 mSv, 均满足 GB 6249—2011 的规定要求。

5 结论

本文采用隔室模型对安全壳和外部环境进行物理建模, 使用一阶动力学下的常系数微分方程进行放射性核素扩散过程的数学描述, 自主开发

了放射性核素扩散计算程序,并采用 TACT 基准题对程序进行了验证。最后,以典型压水堆核电站大破口事故为研究对象,计算了主要放射性核素的活度及假想个人剂量。主要结论如下:

(1) 使用自主开发程序 DMRC 计算了事故工况下放射性核素扩散造成的累积活度和对人体造成的甲状腺和全身吸收剂量,计算结果与 TACT 基准题结果完全一致,证明了自主开发程序的可行性和正确性很强。

(2) 堆内主要放射性核素在间隙释放阶段和压力容器早期释放阶段大量释放。释放到安全壳内的放射性核素去除机理包括自身衰变、安全壳喷淋和安全壳泄漏;释放到环境中的放射性核素去除机理为自身衰变。 ^{85}Kr 由于其半衰期很长达 10.756 a,随安全壳泄漏导致其放射性活度在环境中不断增加。因此,为了保障公众健康安全,需要采取必要的措施来消除 ^{85}Kr 导致的放射性。

(3) 事故发生后,2 h 内隔离区公众所接受的全身有效剂量为 0.542 mSv,甲状腺有效剂量为 10.94 mSv;30 d 内低人口密度区全身有效剂量为 0.347 mSv,甲状腺有效剂量为 4.81 mSv。结果均小于 GB 6249—2011 的个人剂量规定限值。

(4) 本文开发的放射性核素扩散计算程序成功实现了对真实核电站大破口事故的计算和分析,可以用于事故工况下的环境安全分析和人员健康评估。

参考文献:

- [1] KOO Y H, YANG Y S, SONG K W. Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences: A review[J]. Progress in Nuclear Energy, 2014, 74: 61-70.
- [2] LI Z, ZHOU T, ZHANG B, et al. Research on radionuclide migration in coastal waters under nuclear leakage accident[J]. Progress in Nuclear Energy, 2020, 118: 103114.
- [3] 欧阳可汉, 陈文振, 商学利. 小型动力堆海上核事故后放射性核素在大气和海洋中扩散研究[J]. 核动力工程, 2020, 41(1): 154-158.
OUYANG K H, CHEN W Z, SHANG X L, Research on dispersion of radionuclides in atmosphere and ocean after nuclear accident of small power reactors at sea[J]. Nuclear Power Engineering, 2020, 41(1): 154-158.
- [4] 张彦招, 张帆, 赵新文, 等. 船用堆大破口失水叠加全船断电严重事故源项分析[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(9): 1565-1571.
- [5] ZHANG Y Z, ZHANG F, ZHAO X W, et al. Source term analysis in severe accident induced by large break loss of coolant accident coincident with ship blackout for ship reactor[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2013, 47(9): 1565-1571.
- [6] ZHAO F, ZOU S L, XU S L, et al. A novel approach for radionuclide diffusion in the enclosed environment of a marine nuclear reactor during a severe accident[J]. Nuclear Science and Techniques, 2022, 33(2): 1-13.
- [7] 周静, 邱海峰, 汪细河. 压水堆核电厂事故后厂房内气载放射性源项计算[J]. 核科学与工程, 2015, 35(4): 682-687.
ZHOU J, QIU H F, WANG X H. Calculation of accidents gaseous source term in building of PWR[J]. Nuclear Science and Engineering, 2015, 35(4): 682-687.
- [8] 陈迎锋, 张奎, 商学利, 等. 某场所放射性核素场内扩散规律分析[J]. 哈尔滨工程大学学报, 2022, 43(11): 1572-1578.
CHEN Y F, ZHANG K, SHANG X L, et al. An analysis of the radionuclide diffusion rule at a radioactive site[J]. Journal of Harbin Engineering University, 2022, 43(11): 1572-1578.
- [9] 袁炜烨. 放射性核素内污染所致人员辐射剂量估算模型应用研究[D]. 苏州: 苏州大学, 2020: 7-18.
YUAN W Y. Application research on the model of radiation dose calculation caused by radionuclide in-ternal pollution[D]. Suzhou: Soochow University, 2020: 7-18.
- [10] 种毅敏, 石雪垚, 杨志义, 等. 严重事故下开启双层安全壳环形空间通风过滤系统对缓解放射性向环境释放影响研究[J]. 核科学与工程, 2016, 36(4): 504-509.
CHONG Y M, SHI X Y, YANG Z Y, et al. Annulus ventilation and filtration system mitigate analysis of FPs release[J]. Nuclear Science and Engineering, 2016, 36(4): 504-509.
- [11] International Commission on Radiological Protection. Report of Committee II on permissible dose for in-ternal radiation[J]. Annals of the ICRP / ICRP Publication, 1960, 2: 3-5.
- [12] DINUNNO J J, ANDERSON F D, BAKER R E, et al. Calculation of distance factors for power and test reactor sites: TID-14844[R]. Washington D. C., USA: U.S. Atomic Energy Commission. 1962: 1-5.
- [13] KILLOUGH G G, BEGOVICH C L, SJOREEN

- A L, et al. Guide for the TACT III computer code: Final report[R]. Oak Ridge, TN, USA: Oak Ridge National Lab, 1983: 56-90.
- [13] GARBOW B S, BOYLE J M, DONGARRA J J, et al. Matrix eigen system routines EISPACK guide extension[M]. Berlin, Heidelberg: Springer Verlag, 1977.
- [14] SOFFER L, BURSON S B, FERRELL C M, et al. Accident source terms for light-water nuclear power plants NUREG-1465[R]. Washington D. C., USA: Nuclear Regulatory Commission: 1995: 6, 10, 13.
- [15] 环境保护部, 国家质量监督检验检疫总局. 核动力厂环境辐射防护规定: GB 6249—2011[S]. 北京: 中国标准出版社, 2011.
- Ministry of Environment Protection, General Administration for Quality Supervision Inspection and Quarantine of RPC. Regulations for environmental radiation protection of nuclear power plant: GB 6249—2011[S]. Beijing: Standards Press of China, 2011.

通信作者及其团队介绍

郝琛, 男, 1986年3月出生, 教授, 博士生导师, 哈尔滨工程大学校团委书记、本科生院党委书记。担任科技部“核安全与仿真技术”国家级国际联合研究中心副主任、黑龙江省核学会秘书长等, 任《原子能科学技术》《核技术》等3部期刊青年编委。

从事先进核反应堆高保真物理分析研究15年, 担任国家重点研发计划“政府间国际科技创新合作”重点专项首席科学家、国际原子能机构(IAEA)国际协调研究计划首席科学研究员, 主持科技部、国家自然科学基金委、IAEA、国防科工局、中核集团等项目, 突破了先进核反应堆物理分析的高保真计算、高计算代价、大不确定度三大挑战难题, 支撑了我国四代堆、先进小堆、数字化反应堆物理设计能力提升和软件自主可控。第一作者出版专著2部(1部获批国家科学技术学术著作出版基金资助), 第一通讯作者发表SCI/EI检索论文51篇, 授权及公开发明专利11项, 授权软件著作权14项。获中国核能行业协会青年优秀创新人物奖(全国每年奖励5位), 科技进步二等奖(排名第一)等。

团队目前主要研究方向包括: 高保真核反应堆物理数值计算方法、加速算法、先进计算不确定性分析方法、物理热工耦合计算方法、堆外探测堆芯功率分布方法等。

