

放射性水洗研究综述

高圣钦, 付亚茹, 梅其良, 孙大威

上海核工程研究设计院有限公司, 上海
Email: gaoshengqin@snerdi.com.cn

收稿日期: 2020年11月21日; 录用日期: 2020年12月4日; 发布日期: 2020年12月11日

摘要

在核电厂严重事故工况下, 水洗对放射性裂变产物的去除起着重要作用。从20世纪70年代, 国际上关于放射性物质水洗过滤的研究便已逐步开展, 这些研究既包含气泡形成的热工水力学过程和气溶胶去除的试验研究, 也包含水洗效果分析模型的开发等理论研究, 且主要针对的是沸水堆核电站抑压水池的水洗。本文基于大量的文献调研结果, 从试验研究和计算模型开发两个方面, 对放射性水洗的研究现状进行了介绍和总结, 可为后续放射性水洗模型的研究、优化和验证以及气溶胶水洗试验的设计和开展提供参考。

关键词

水洗, 核电厂, 严重事故, 气溶胶

Summary of Research on Radionuclide Pool Scrubbing

Shengqin Gao, Yaru Fu, Qiliang Mei, Dawei Sun

Shanghai Nuclear Engineering Research & Design Institute Co. LTD., Shanghai
Email: gaoshengqin@snerdi.com.cn

Received: Nov. 21st, 2020; accepted: Dec. 4th, 2020; published: Dec. 11th, 2020

Abstract

Pool scrubbing could play an important role in the removal of radioactive fission products under severe accident conditions in nuclear power plants. Since the 1970s research on pool scrubbing has been started, comprising the experimental study of the thermal-hydraulics of bubble formation and of the aerosol retention, as well as the development of pool scrubbing models. Such research mainly focused on BWR suppression pool scrubbing. In this paper, based on a large number of literature reviews, status of research on pool scrubbing was introduced and summarized from

the point of experimental study and model developing, which could provide a reference for studying, optimizing and verifying pool scrubbing models, as well as designing and performing aerosol pool scrubbing experiments.

Keywords

Pool Scrubbing, Nuclear Power Plant, Severe Accident, Aerosol

Copyright © 2021 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

在核电厂严重事故工况下, 水洗对放射性裂变产物的去除起着重要作用, 典型的例子包括 BWR 的抑压水池水洗、PWR 的稳压器卸压箱水洗以及 CAP1400 的乏燃料池水洗等。载有放射性气溶胶的混合气体注入水池后, 会形成许多气泡, 气泡从形成到上升至水池表面, 会发生复杂的热工水力学过程及气溶胶去除过程, 从而达到对放射性气溶胶的去除目的。从 20 世纪 70 年代, 国际上关于放射性物质水洗过滤的研究便已逐步开展, 这些研究既包含气泡形成的热工水力学过程和气溶胶去除的试验研究, 也包含水洗效果分析模型的开发等理论研究。

本文从试验研究和计算模型开发两个方面, 对放射性水洗的研究现状进行了介绍和总结, 可为后续放射性水洗模型的研究、优化和验证以及气溶胶水洗试验的设计和开展提供参考。

2. 水洗试验研究介绍

在水洗试验研究方面, 本节主要介绍了 EPRI 试验、EPSI 试验、GE 试验、JAERI 试验、LACE-Espana 试验、SPARTA 试验、UKAEA 试验、POSEIDON 试验及 ACE 试验等试验研究项目[1] [2]。

2.1. EPRI 试验项目

EPRI 试验项目主要关注的是放射性气溶胶的水洗, 其主要目标如下:

- 得出相应的试验结果用于支持水洗模型的开发;
- 得出适用的试验数据, 来验证不同事故工况下的去污因子计算结果。

EPRI 试验项目包括水力学试验和水洗试验, 该试验项目分为两个阶段: 第一阶段试验所用的注射通道出口类型为单一小孔, 第二阶段试验所用的注射通道出口类型为多孔出口。

1) 水力学试验

EPRI 试验项目在第一阶段和第二阶段都进行了水力学试验。

在 EPRI 试验项目第一阶段的水力学试验中, 试验所用的“水池”是一个直径为 1.8 m, 高为 2.4 m 的水箱, 注射通道出口采用了 0.99 cm、1.27 cm 和 2.02 cm 三种直径的单一小孔。向水池中注射的气体有空气、氮气、氦气等不凝性气体以及水蒸气, 注射通道出口在水池内有不同的朝向; 混合气体的注射速度在 0.24~28.4 m/s 的范围内, 水池的温度在 293~373 K 的范围内变化。该阶段试验测量了注射通道出口的直径和浸没深度、混合气体的分子量、混合气体中水蒸气的份额以及水池温度对气泡尺寸的影响。

第一阶段的水力学试验得出以下结论:

- 当注入水池的气体中全部为不凝性气体时：初始气泡的体积和 Weber 数有关；注射通道出口的浸没深度、直径和朝向、不凝性气体的质量流量和气体组成对最终的气泡尺寸分布没有影响或影响很小；存在一个临界的 Weber 数($We = 15$)，当 Weber 数大于该临界值时，气泡是不稳定的，会发生破裂；水池中最终的气泡尺寸分布近似呈现出对数正态分布；气泡直径分布的标准方差是一个常数，与注射通道出口的浸没深度和直径无关；试验发现小气泡的形状近似为球形，而随着其尺寸的增加，气泡会变成扁圆球形，且其椭圆截面半长轴与半短轴的比值(a/b)会减小，直到减小到 0.68 的限值。
- 当注入水池的气体为不凝性气体和水蒸气的混合气体时：水蒸气的凝结主要发生在气泡从产生到上升至 2~3 个初始气泡直径的距离内，初始气泡在上升 1.22 m 的高度之前，会发生完全破裂；当注入的混合气体中水蒸气份额较低时，气泡的行为和不含水蒸气的情况类似；当混合气体中水蒸气的份额增大到 0.95，气泡的平均直径会缓慢减小；当混合气体中水蒸气的份额从 0.95 增大到 1.0，气泡的平均直径会迅速减小；混合气体的组成对最终的气泡尺寸分布几乎没有影响；水池的温度对气泡平均直径的大小影响并不显著；混合气体中水蒸气的份额对气泡尺寸分布的标准偏差没有影响，几何标准偏差的值和纯不凝性气体的情况相同；当注射的混合气体中水蒸气的份额增大导致气泡的平均直径减小时，最终的气泡尺寸分布会近似呈现出另一种对数正态分布；混合气体中水蒸气的份额对气泡的最终形状没有影响。

在 EPRI 试验项目第二阶段的水力学试验中，试验所用的“水池”是一个直径为 3 m、高为 5 m 的水箱，注射通道出口为多孔出口(共 4 个小孔，每个小孔的直径为 0.99 cm)。向水池中注射的气体为 100% 的空气，不含有水蒸气。通道出口在水池的浸没深度为 3.96~4.11 m，并且有不同的朝向；注入的空气质量流量在 1.16~8.88 g/s 的范围内，水池的温度在 279~281 K 的范围内变化。该阶段试验测量了多孔出口结构以及注射气体的流量对最终的气泡尺寸分布的影响。

第二阶段的水力学试验得出以下结论：当多孔出口结构中，两个小孔之间的距离小于 2 个初始气泡直径的距离时，通道出口产生的气泡之间会互相干扰；对于多孔的出口类型，气泡最终尺寸分布的平均直径和注入气体的流量无关；对于不同的多孔出口结构，气泡最终尺寸分布的标准偏差是常数。

2) 水洗试验

仅在 EPRI 试验项目第一阶段试验中进行了水洗试验。试验中使用的气溶胶是 CsI、 TeO_2 和 Sn 气溶胶，注射所用的混合气体中有空气、氮气、氦气和水蒸气。试验所用“水池”是一个直径为 1.8 m、高为 2.4 m 的水箱，注射通道出口为一个直径为 1.27 cm 的单一小孔，通道出口在水池的浸没深度为 0.152~1.65 m；混合气体的注射速度在 0.24~7.1 m/s 的范围内，CsI 和 TeO_2 气溶胶粒子的空气动力学质量中位直径(AMMD)接近 0.4 μm ，Sn 气溶胶粒子的 AMMD 为 2.7 μm 。

EPRI 试验项目的共进行了 64 个水洗试验，这些试验可分为以下四组：a) 小尺寸气溶胶粒子的试验，携带气溶胶的混合气体中不含有水蒸气，水池温度为环境温度，该组共 25 个试验；b) 小尺寸气溶胶粒子的试验，携带气溶胶的混合气体中含有水蒸气，水池温度为环境温度，该组共 15 个试验；c) 大尺寸气溶胶粒子的试验，水池温度为环境温度，该组共 16 个试验；d) 小尺寸 CsI 气溶胶粒子的试验，水池温度较高(近饱和)，该组共 8 个试验。

该试验项目的水洗试验的结果表明：

- 对水池水洗气溶胶影响最大的参数为气溶胶粒子的尺寸和和注入的混合气体中水蒸气所占份额；
- 对于 CsI 和 TeO_2 气溶胶粒子来说，AMMD 接近 0.4 μm ，随着水蒸气份额的增大，其去污因子显著增大；
- 对于 Sn 气溶胶粒子来说，AMMD 接近 2.7 μm ，由于其粒子尺寸较大，即使注入的混合气体中不含有水蒸气，其去污因子也相对较大。通常，当粒子尺寸从 0.4 μm 增加到 2.7 μm ，去污因子会显著增长。

- 对于 Sn 气溶胶粒子，出口浸没深度对去污因子的影响非常显著；
- 注入混合气体的质量流量对去污因子的影响相对较小；
- 当水池温度较高时，试验得到的去污因子值要高于依据 SUPRA 模型算得的值；而且水池温度较高时，混合气体中水蒸气份额对去污因子的影响没有水池温度较低时显著。

2.2. GE 试验项目

GE 试验项目也分为水力学试验和气溶胶水洗试验，主要包括三个部分：1) 确定单个气泡中气溶胶的去污因子；2) 气体通过抑压水池的水力学研究；3) 对于大的水平出口类型的水洗验证试验。

1) 水力试验

GE 试验项目的水力学试验在一个 $1.22\text{ m} \times 2.44\text{ m} \times 3.66\text{ m}$ 的“水池”中进行，并通过以下四种注射通道出口结构向水池中注入空气：a) 直径为 5.1 cm 的大水平出口；b) 直径为 15.3 cm 的大水平出口；c) 直径为 10.2 cm 的大垂直出口；d) 小型多孔出口。

GE 试验项目的水力学试验得出以下结论：当注射通道的出口为大水平出口或者大垂直出口类型时，通道出口处会形成较大的初始气泡；当注射通道的出口为多孔出口类型时，通道出口处形成的初始气泡相对较小；通道出口形成的初始气泡是不稳定的，在上升过程中会不断地破裂，直到破裂成相对稳定的气泡尺寸，该稳定尺寸直径约为 0.5 cm ；当注射通道的出口为多孔出口类型时，会形成卷流，从而带动水箱内的水做循环运动。

2) 水洗试验

GE 水洗试验中所用的携带气溶胶粒子的混合气体为空气，所使用的气溶胶为 Eu_2O_3 和 CsI 气溶胶。 Eu_2O_3 气溶胶粒子按尺寸分为两组，一组中 10% 的气溶胶粒子直径在 $0.1\sim 1.0\text{ }\mu\text{m}$ 的范围内，另一组中 30% 的粒子直径在 $0.1\sim 1.0\text{ }\mu\text{m}$ 的范围内，两组中 Eu_2O_3 气溶胶粒子的浓度都在 $0.17\sim 4.95\text{ g/m}^3$ 的范围内；而 CsI 气溶胶粒子的直径 80% 都小于 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ ，其浓度在 $0.76\sim 10.17\text{ g/m}^3$ 的范围内。试验所用的水池是一个截面积为 0.028 m^2 、高为 1.83 m 的水箱，水池中的水为过冷水。注射通道出口在水池中的浸没深度在 $0.343\sim 1.677\text{ m}$ 的范围内。

GE 试验项目的结果表明：试验中 Eu_2O_3 气溶胶粒子的去污因子在 68 到 2900 的范围内，CsI 气溶胶粒子的去污因子在 7 到 10 的范围内；测得的去污因子随气溶胶粒子尺寸的增大而增大；水洗过程的总去污因子随出口浸没深度的增大而增大(气泡和水池的接触时间和出口在水池中的浸没深度成正比)；水洗过程的总去污因子受气泡尺寸($0.45\sim 1.4\text{ cm}$)的影响较小。

2.3. EPSI 试验项目

EPSI 试验项目探究的是水池处于高温和高压条件下对气溶胶水洗效率的影响。试验所用的气溶胶是可溶性的 CsI 和 CsOH。试验所用的“水池”直径为 19.1 cm ，高为 4.3 m ，水池的初始温度为 $273\text{ }^\circ\text{C}$ ，水池上方的初始压力分别设定为 1.1 MPa 、 3.1 MPa 和 6.1 MPa 。注射通道出口为一个直径为 1 cm 的单一喷嘴，通道出口在水池的浸没深度为 1 m 、 2 m 和 3 m 。CsOH 气溶胶的相关试验资料非常有限，CsI 气溶胶的试验数据相对较全。所用的 CsI 气溶胶的质量中位直径(MMD)为 $4.5\text{ }\mu\text{m}$ ，CsI 气溶胶的质量流量为 $0.011\sim 0.013\text{ g/s}$ ，携带气溶胶粒子的混合气体仅为水蒸气，水蒸气的质量流量为 30 g/s 。

试验测得的 CsI 气溶胶的去污因子在 $2100\sim 3300$ 的范围内。试验得出气溶胶水洗的去污因子和出口在水池的浸没深度无关，气溶胶粒子的水洗发生在距离注射出口 1 m 的高度以内，这可能是由于试验所使用的 CsI 气溶胶粒子尺寸较大造成的。试验估计，大约 $1/4$ 的气溶胶粒子是通过蒸气凝结机制去除的，剩下的气溶胶粒子则是通过其他机制去除。此外，试验还得出，当水池上方压力较高时，水洗过程能够更高效地去除可溶的气溶胶粒子。

2.4. JAERI 试验项目

JAERI 的小规模水洗试验[1] [2]是为了测得严重事故工况下,发生在稳压器、压水堆的卸压箱或沸水堆的抑压水池中的水洗过程的水洗效率。试验中所用的气溶胶为不溶性的 DOP 气溶胶,其粒子尺寸在 0.3~10 μm 的范围内。携带气溶胶粒子的混合气体是空气,体积流量在 70~245 cm^3/s 的范围内。试验所用的“水池”是一个直径 50 mm,高为 4 m 的盛水容器,注射通道出口是一个直径为 9 mm 的单一小孔,通道出口在水池的浸没深度为 1 m 和 2 m。试验在环境压力和温度下进行。

JAERI 试验项目的结果表明:当注射通道出口的浸没深度为 1 m 时,水洗去污因子的值在 1~5 的范围内;而当通道出口的浸没深度为 2 m 时,去污因子的值在 1.5~40 的范围内,通道出口的浸没深度越深,去污因子越大;水洗过程的去污因子随着气流流量的增大而增大,该效应对尺寸较大的气溶胶粒子影响较大;随着气泡的上升,气泡中尺寸较大的气溶胶粒子的浓度也不断增大(可能是由于气泡摆动使气溶胶粒子发生凝聚造成的);水洗过程的去污因子并没有随着入口处气溶胶粒子浓度的增大而增大。

2.5. LACE-Espana 试验项目

LACE-Espana 试验项目的主要目的是通过小规模和中等规模的试验来确定抑压水池水洗可溶性的 CsI 气溶胶粒子的去污因子,除此之外,该试验项目还有以下目标:1) 研究特定试验参数对去污因子的影响;2) 模拟水洗过程中的某些现象,同时验证、开发和完善相关的模型和关系式;3) 将该试验测得的试验结果和利用水洗计算程序算得的结果进行比较。

该试验所使用的气溶胶为 CsI 气溶胶,由于试验中使用了 3 种气溶胶发生装置,会产生以下三组不同尺寸范围的气溶胶粒子:1) 粒子的平均截面面积直径为 0.21~5.1 μm ,几何标准偏差为 0.27~2.9;2) 粒子的 AMMD 为 0.55~7.2 μm ,几何标准偏差为 1.4~5.4;3) 粒子的粒数中位直径为 0.72~1.12 μm ,几何标准偏差为 1.32~1.80。

携带该气溶胶的混合气体使用的是氮气和水蒸气的混合气体,混合气体中氮气的质量流量在 0.104~7.182 g/s 的范围内,水蒸气的质量流量在 0.075~0.704 g/s 的范围内,混合气体中水蒸气的体积份额在 0.11~0.90 的范围内变化。试验所用的水池直径为 1.5 m,高为 3 m;注射通道出口有两种,一种是一个直径为 9 mm 的单一小孔,另一种是多孔出口类型,通道出口在水池的浸没深度为 2.5 m。水池的初始温度为 110 $^{\circ}\text{C}$,水池上方空气的温度也为 110 $^{\circ}\text{C}$,水池上方的压力为 3 bar。

LACE-Espana 试验项目的试验结果表明:气溶胶粒子在水池中的水洗受粒子尺寸影响很大,气溶胶粒子的尺寸越大,水池对其的去除效率越高;水洗去污因子随着混合气体中水蒸气份额的增大而增大(前提是水蒸气的份额要大于气泡内部的饱和比);通过 SPARC 程序计算得到的水洗过程的去污因子小于相同工况下的试验值,这从源项分析的角度看,SPARC 程序的计算结果是相对保守的。

2.6. SPARTA 试验项目

SPARTA 试验项目在意大利的 ENEA-CRE Casaccia 试验室进行,其主要目的是为了评估释放到水池中的裂变产物在水洗过程中的总去污因子,该试验在评估去污因子的同时,也扩大了水洗研究的试验数据库,还可为计算程序的验证提供相关依据。

试验本来要分别在一个大水池和一个小水池中进行,但目前仅在小水池中进行了一次试验。该小水池直径为 2.5 m,高为 4 m;试验装置中注射通道的出口类型是大的水平出口,出口直径 15 cm,通道出口在水池的浸没深度为 2.5 m。水池的初始温度为 90 $^{\circ}\text{C}$ ~95 $^{\circ}\text{C}$,水池上方的压力为大气压。试验中所用的 CsI 气溶胶粒子的 AMMD 为 0.67 μm ,粒子分布的几何标准偏差为 0.318,携带该气溶胶粒子的混合气体为 N_2 、Ar 和 He 的混合气体,质量流量在 80~90 g/s 的范围内,其中水蒸气的份额接近 0。该试验并没有

得出重要的结论, 只是表明 SPARC 程序算得的 DF(去污因子)和试验结果呈现相同的趋势, 从而证明试验测得的数据可以用于计算程序的开发。

2.7. UKAEA 试验项目

UKAEA 试验项目在 Winfrith 蒸气发生重水堆(SGHWR)的蒸气抑压系统内进行, 通过一系列试验来研究裂变产物的水洗去除。试验项目分为气溶胶粒子的水洗试验和元素碘的水洗试验两大部分。

1) 气溶胶水洗试验

该试验项目中使用的气溶胶为 Ni-Cd 气溶胶, 气溶胶粒子的平均尺寸约为 $0.06\ \mu\text{m}$, 携带该气溶胶粒子的混合气体为空气和水蒸气的混合气体, 空气的质量流量在 $0.044\sim 3.402\ \text{kg/s}$ 的范围内, 水蒸气的质量流量在 $1.134\sim 4.082\ \text{kg/s}$ 的范围内。试验所用的水池截面积为 $1.27\ \text{m}^2$, 高为 $6.1\ \text{m}$; 试验装置中注射通道的出口直径为 $10\ \text{cm}$, 方向朝下, 通道出口在水池的浸没深度为 $61\ \text{cm}$ 。试验过程中水池的温度为 $0^\circ\text{C}\sim 10^\circ\text{C}$, 池水的 pH 值为 6.8 。

UKAEA 气溶胶试验得出的试验结果如下: 水洗去污因子 DF 受混合气体中的水蒸气份额影响较小, 在低水蒸气份额时, 去污因子仍然可能很高, 出现这种现象的原因可能是当饱和蒸汽和冷空气混合时, 蒸汽在气溶胶粒子表面凝结会导致其尺寸增长, 但由于没有详细说明注射气体温度, 故这一点也很难确认; 而且在注射的混合气体中水蒸气的质量流量较高时, 去污因子 DF 会显著减小。

2) 碘蒸气(元素碘)的水洗试验

UKAEA 碘蒸气水洗试验得出如下结果: a) 注入的混合气体中水蒸气所占的摩尔份额越大, 水洗的去污因子 DF 越大; b) 注入的碘蒸气的质量流量对去污因子 DF 几乎没有影响, 减小注射通道出口的浸没深度或升高水池初始温度也不会对去污因子 DF 产生较大的影响。

2.8. POSEIDON 试验项目

1987 年, 瑞士的 PSI 进行了 POSEIDON 试验项目, 试验研究了蒸气碘的水洗。该试验项目主要有两个目的: 一个是弄清水洗过程碘的去除现象, 包括其中的水力学过程; 另一个目的是在可控的边界条件下, 为水洗程序 BUSCA 的开发和验证提供碘水洗的数据库。

该试验项目中携带该气溶胶粒子的混合气体为空气和水蒸气的混合气体, 试验中所用的水池直径为 $1\ \text{m}$, 高为 $5\ \text{m}$; 试验装置中注射通道的出口为单一小孔, 小孔的直径有 $0.5\ \text{mm}$ 、 $1.0\ \text{mm}$ 、 $5.0\ \text{mm}$ 、 $9.0\ \text{mm}$ 和 $12\ \text{mm}$ 五种, 通道出口在水池的浸没深度为 $1\sim 4\ \text{m}$ 。试验过程中水池的温度分别设定为 21°C 、 40°C 和 60°C 。

POSEIDON 试验项目得到如下结论: 注射通道出口的小孔面积越小, 水洗过程的去污因子 DF 越高; 注射通道出口的浸没深度越深, 水洗的去污因子越大; 水池的温度对水洗去污因子 DF 的影响较小, 这可能是因为碘在 40°C 或者很低的温度下就能够升华, 以至于所测得试验数据并不可靠。

2.9. ACE 试验项目

ACE 试验项目由 EPRI 执行, 共分为三个阶段, 该试验项目的目的之一就是为开发和验证水洗分析模型提供试验数据。ACE 试验项目的 A 阶段包括 AA1~AA4 四个试验, 旨在评估气溶胶和不凝性气体的混合物通过多孔出口类型的排气口进入水池时, 水池对气溶胶的水洗效果。

试验中使用的气溶胶种类为 CsI、MnO 和 CsOH 气溶胶的混合物, 气溶胶的载气为氦气和水蒸气的混合气体。试验所用的“水池”是一个直径为 $1.5\ \text{m}$ 、高为 $6.1\ \text{m}$ 的水箱, 注射通道出口的类型为多孔排气口, 孔数为 51, 单个小孔的直径为 $0.925\ \text{cm}$, 通道出口在水池的浸没深度为 $1.38\sim 4.61\ \text{m}$; 注入的混合气体质量流量在 $76.7\sim 109.6\ \text{g/s}$ 的范围内; CsI 气溶胶的 AMMD 在 $1.93\sim 2.56$ 的范围内, 几何标准偏差在 $1.87\sim 2.79$ 的范围内; CsOH 气溶胶的 AMMD 在 $1.58\sim 2.43$ 的范围内, 几何标准偏差在 $1.75\sim 2.89$ 的范围

内；MnO 气溶胶的 AMMD 在 1.49~2.27 的范围内，几何标准偏差在 1.90~2.33 的范围内。

ACE 试验项目得到如下结论：混合气体中水蒸气份额越高，注射通道出口在水池的浸没深度越深，水洗去污因子 DF 越大；气溶胶粒子通过水池后，其粒子尺寸会大大减小，表明水洗对大尺寸气溶胶粒子的去除效率更高；尽管每次水洗试验前三种气溶胶粒子的尺寸比较接近，但 CsI 和 CsOH 气溶胶的水洗去污因子要大于 MnO 气溶胶，这暗示着可溶性气溶胶粒子在通过水池时可能会由于其吸湿性发生尺寸的增长。

2.10. 水洗试验小结

上文提到了关于放射性物质水洗的九个试验项目，这些试验项目涵盖了许多种不同的边界条件，包括气溶胶参数、携带气溶胶的混合气体、混合气体中水蒸气的份额等变量的多种取值，表 1 所示的是不同试验项目所研究的影响水洗效率的主要参数，表 2 总结的是各个试验项目中测得的参数对气溶胶水洗去污因子的影响与理论模型预测结果之间的对比。上述关于水洗的试验项目所获得的试验数据，看似已经足够充分来得出关于放射性水洗的某些确定的结论或者足以来验证理论模型预测结果的正确性，然而并非如此，由于各个试验系统设置和参数取值之间差异较大，在一个试验项目中所重点考虑的参数，在另一个试验中可能却没有考虑到，这甚至会导致两个试验中出现恰好相反的试验结果；同时，水洗的去污因子是由很多参数共同决定的，这也会对通过理论预测水洗的去污因子带来很大的困难。

通过对比可知，在这九个试验项目中：

- 1) EPRI 试验项目是所有试验中最综合和全面的，相对来说，最适合用来验证水洗的计算模型；
- 2) ACE 试验项目能够为计算程序输入提供充分的输入数据，但其没有测量气泡体积等重要参数，仅适合验证程序输出结果中的去污因子 DF 及气溶胶粒子尺寸；
- 3) 从已出版的 GE 试验报告看，GE 的试验数据并不适合用于水洗计算模型的验证。
- 4) SPARTA 试验项目可用于除气泡水力学方面以外的气溶胶水洗模型验证；
- 5) 至于 POSEIDON 试验项目，从出版的试验报告看，试验数据不够充分，但是由于其重点关注了碘蒸气水洗的去污因子，因此应该通过搜集关于该试验更全面的数据，并将其用于碘蒸气水洗模型的验证；
- 6) UKAEA 和 JAAERI 试验项目均不适用于水洗计算程序的验证；
- 7) 还需要开展更多的试验对以下方面进行研究：池水饱和沸腾工况下水洗去污因子的测定以及水蒸气在气溶胶粒子表面冷凝造成的粒子尺寸增长现象。

Table 1. Main variables studied in different experimental programs

表 1. 各试验项目所研究主要参数

试验项目名称	所研究的主要参数变量
EPRI	注入的总的混合气体质量流量、水蒸气的份额，气溶胶的种类以，注射通道出口在水池中的浸没深度
EPSI	注射通道出口在水池中的浸没深度，水池上方的压力
GE	气溶胶粒子的尺寸、浓度，注射通道出口小孔的直径，注射通道出口在水池中的浸没深度
JAERI	注入的总的混合气体质量流量，气溶胶粒子的浓度、尺寸，注射通道出口在水池中的浸没深度
LACE-Espana	气溶胶粒子的尺寸，注入的总的混合气体质量流量、水蒸气的份额
SPARTA	—
UKAEA 气溶胶试验	注入的总的混合气体质量流量、水蒸气的份额
UKAEA 碘蒸气试验	注入的总的混合气体质量流量，注入的混合气体中水蒸气的份额
POSEIDON	注射通道出口小孔的面积，注射通道出口在水池中的浸没深度，水池的温度
ACE	注入的总的混合气体质量流量、水蒸气的份额，注射通道出口在水池中的浸没深度，水池温度

Table 2. Influence of variables on pool scrubbing DF in different experimental programs
表 2. 各试验项目测得的参数对水洗 DF 的影响

试验项目	气溶胶粒子在水中的溶解性	气溶胶粒子尺寸	气溶胶密度	注入的混合气体的质量流量	混合气体中水蒸气的份额	通道出口在水池的浸没深度	通道出口类型(多孔和单孔)	水池温度	水池上方压力影响
EPRI	否	是	-	是/否	是	是	-	是/否	-
EPSI	-	-	-	是/否	-	是/否	-	-	是
GE	否	是	否	-	-	是	-	-	-
JAERI	-	是	否	否	-	是	-	-	-
LACE-Espana	-	是	-	是/否	是	-	是	-	-
SPARTA	-	-	-	-	-	-	-	-	-
UKAEA	-	-	-	是	否	-	-	-	-
ACE	是	-	-	是/否	是	是	-	否	-

注: 1) 表中“是”表示试验结果与理论模型的预测相一致; 2) “否”表示试验结果与理论模型预测相反; 3) “-”表示试验项目没有关注该参数的影响; 4) “是/否”表示试验测得的该参数的影响并不显著。

3. 水洗模型介绍

针对放射性水洗现象, 国际上也开发了相应的水洗模型来模拟水洗过程, 计算水池水洗放射性的去污因子。目前国际上已开发了如下五种水洗模型: 1) 日本原子能研究机构(JAERI)开发的 ART 模型; 2) 欧洲多家机构联合开发的 BUSCA 模型; 3) 美国 EPRI 开发的 SUPRA 模型; 4) 美国核管会(NRC)的 SPARC-90 模型; 5) Battelle/GRS 联合开发的 SPARC-B/98 模型。

这五种水洗计算模型均由三大部分组成, 分别是水洗过程的热工水力模型、气溶胶的去除模型以及元素碘和有机碘(放射性裂变气体)的去除模型。水洗过程的热工水力模型主要计算初始气泡及上升过程中气泡的尺寸、气泡的速度、气泡相界面上发生的质量、动量和能量传递、气泡上升过程中的气溶胶粒子尺寸的增长等; 而气溶胶的去除模型则针对不同区域发生的一系列气溶胶去除机制计算水洗过程的去污因子; 元素碘和有机碘(放射性裂变气体)水洗的热工水力过程和气溶胶类似, 但其去除模型和气溶胶有较大区别。五种水洗模型在上述三个方面都不尽相同, 具体如下。

3.1. ART 模型

在水洗过程的热工水力模型方面, ART [2]由用户自己来定义注射通道出口的初始气泡的体积大小, 且 ART 水洗模型假设气泡从产生到上升至水池表面发生破裂的整个过程, 一直保持该体积(用户定义)不变, 气泡的形状自始至终为球形。气泡在水池的上升过程中, ART 水洗模型允许用户自己来定义气泡的上升速度, 或者也可从热工水力学程序 THALES 的计算结果中获得, 并假设该上升速度为定值, 保持不变。ART 实际是 THALES/ART 程序系统的一部分, THALES 负责事故过程中的热工水力计算, 而 ART 负责的是裂变产物的迁移计算, 由 THALES 为 ART 提供气泡热工水力方面的输入。也就是说, ART 水洗模型中是不含有气泡的热传递和质量传递模型以及水蒸气在气溶胶粒子表面的凝结等热工水力模型的, 也没有模拟由于气泡中水蒸气的蒸发和凝结而造成的气泡体积改变。

而在气溶胶粒子的去除模型方面, ART 水洗模型仅仅考虑了重力沉降、布朗扩散等气溶胶去除机制, 并考虑了气泡界面处水蒸气向气泡内部的蒸发速率对气溶胶粒子去除的阻碍作用, 没有考虑水蒸气在气泡界面的冷凝去除, 相对来说比较简单。

ART 模型中放射性气体的去除模型比较简单, 考虑到了水池中和气泡中可溶放射性裂变气体的量的不同, 通过两者之间质量传递来去除气泡中的放射性气体, 但该模型中没有考虑到 Henry 定律的限制。

3.2. BUSCA 模型

在水洗过程的热工水力模型方面, BUSCA [2] [3] 允许用户自己定义初始气泡的体积, 也耦合了 Eam Krishnan *et al.* 理论模型、EPRI 的大水平出口和竖直出口关系式、SPARC-90 模型的大水平出口和竖直出口以及多孔出口类型的相关关系式等计算初始气泡体积的关系式, 用户可以根据需要自行选择相应的关系式来计算初始气泡的体积。

至于气泡的形状, BUSCA 模型为用户提供了五种选择, 一种是根据算得的 Re 数和 Eo 数来判断气泡的形状, 除此之外, 用户还可以从以下四种气泡形状中自主选择: 1) 球形气泡; 2) 扁圆球形气泡; 3) 球冠形气泡(球冠半角由通道出口气体的 Eo 数决定); 4) 球冠形气泡(球冠半角固定为 55°)。BUSCA 模型对于初始气泡破裂后的气泡大小分布采用了对数正态分布, 该分布中气泡的平均直径为 0.716 cm 。BUSCA 水洗模型在求解气泡上升过程中相对于水池中水的相对速度时, 提供了四种选择, 一种是根据 Wallis 的 5 区域关系式, 剩下的三种则是根据球形、扁圆球形、球冠形这三种气泡形状分别求解; 而气泡在水池中上升的绝对速度(用于求气泡在水池中的停留时间), 用户可以自行选择 GEC 群集模型、Colder 群集模型或者 Sjoen 股流模型进行计算。

BUSCA 水洗模型假设气泡在水池上升的过程中, 水池的温度保持不变, 同时认为水池的温度与气泡界面的温度相同, 没有考虑通入水池的气体和水池之间会达到热力学平衡, 仅在气泡的气体侧采用了不同的关系式来计算气泡与水池之间的质量传递和热传递, 由于有水蒸气进入气泡内, 气泡内总的焓会发生变化, 可通过焓变的方程进而计算气泡内温度的改变。除此之外, BUSCA 水洗模型还利用修正的 Mason 方程计算了气泡内水蒸气在气溶胶粒子上的凝结, 即气泡内气溶胶粒子尺寸的增长。

在气溶胶的去除模型方面, BUSCA 程序在注射通道出口区域仅考虑了惯性碰撞这一种气溶胶去除机制; 而在气泡上升区域, 该模型考虑了热泳、扩散泳、重力沉降、离心沉积、布朗扩散等气溶胶去除机制, 并额外考虑了气泡破裂对气溶胶去除的影响。在放射性气体的去除方面, BUSCA 考虑的主要是碘蒸气通过扩散机制的去除, 考虑了 Henry 定律的影响。

3.3. SUPRA 模型

在水洗过程的热工水力模型方面, SUPRA [2] [4] 提供了三种决定通道出口初始气泡体积的方式: 1) 用户自己定义初始气泡的体积; 2) 通过 Eam Krishnan *et al.* 理论模型进行计算; 3) 根据表面张力和浮力之间平衡的关系式进行计算。在气泡上升区域, SUPRA 提供了三种气泡形状供用户选择, 分别是球形、扁圆球形和球冠形。初始气泡破裂后形成的气泡体积, SUPRA 通过 LEIBSON 关系式进行计算, 根据通道出口处气体的 Re 数来决定破裂后形成的气泡的体积。在求解气泡上升过程中相对于水池的速度时, SUPRA 提供了两种选择, 一种是根据 Haberman 和 Morton 关系式进行计算; 另一种是依据气体 Re 数的不同, 根据 Wallis 的 5 区域关系式进行求解。至于气泡群在水池中上升的绝对速度, 由于缺少相关资料, 其求解方法不详。SUPRA 分别计算了气泡液体侧和气体侧的质量传递和热传递系数, 假设水池温度、气泡界面的温度和气泡内气体的温度不尽相同, 计算了气泡界面处的冷凝/蒸发速率, 通过质量守恒、蒸气守恒和能量守恒方程来计算热平衡和质量平衡。SUPRA 没有考虑气泡在水池的上升过程中水蒸气在气溶胶粒子上的冷凝。

在气溶胶的去除模型方面, SUPRA 模型在注射通道出口区域仅考虑了惯性碰撞和离心沉积这两种气溶胶去除机制; 而在气泡上升区域, 该模型考虑了热泳、扩散泳、重力沉降、离心沉积、布朗扩散等气

溶胶去除机制。在放射性气体的去除方面, SUPRA 程序考虑了元素碘、甲基碘和碘化铯气体的去除, 计算了放射性气体通过气泡界面的流动, 并利用 Henry 数来决定气泡界面的哪一侧(液体侧还是气体侧)主导着放射性气体的质量传递。

3.4. SPARC-90 模型

SPARC 模型到目前共经历了四个版本, 分别是 SPARC-87、SPARC-90、SPARC-B/96 和 SPARC-B/98, 其中 SPARC-87 是最初的版本, SPARC-90 相较 SPARC-87 进行了大幅度的更新, 并得到了广泛的应用, 直至现在, MELCOR 程序的最新版本中耦合的仍然是 SPARC-90 水洗模型。随后, Battelle 试验室进一步研究了放射性物质的水洗过程, 在 SPARC-90 的基础上, 进一步开发了 SPARC-96/B 水洗模型, 加入了对许多新的过程的模拟以及新的气溶胶去除机制, 并将该水洗模型应用于 GRS 的 FIPLOC 程序。而目前 SPARC 程序的最终版本为 SPARC-B/98, 代表了国际上关于水洗研究的最新成果, GRS 的安全壳分析程序 COCOSYS 就耦合了 SPARC-B/98 水洗模型。

在水洗过程的热工水力模型方面[5][6], SPARC-90 水洗模型中的出口类型涵盖了大的水平出口、大的竖直出口以及多孔出口三种, 注射通道的出口处形成的初始气泡的大小与通道出口的类型以及气流的流速有关。初始气泡在上升了“12 个初始气泡直径的距离”后会完全破裂成大小稳定的小气泡, 这些小气泡在上升过程中大小保持不变, 这些小气泡的直径与通入的混合气体中水蒸气的摩尔份额有关; SPARC-90 假定这些气泡的形状均为扁椭球形。SPARC-90 水洗模型在 Haberman 试验数据的基础上, 采用了两个关系式求解气泡相对与水池中水的上升速度, 该速度的大小和气泡的直径有关; 而气泡群在水池中上升的绝对速度和气流的流量以及在气泡在水池中上升的距离有关, SPARC-90 最后使用的气泡上升的绝对速度为一定值, 即气泡在通道出口的速度和到达水面处速度两者的平均值。

SPARC-90 模型假定, 在注射通道出口区域, 注入的混合气体一进入水池, 就立即和水池中的水达到热力学平衡, 气泡中混合气体的温度变为水池温度, 气泡中的水蒸气分压变为水池中水的饱和蒸汽压。在气泡的上升过程中, 由于气泡中压力的减小, 气泡中的气体会膨胀做功, 气泡内温度降低, 此时水池中水的温度要大于气泡界面的温度, 而气泡界面温度又大于气泡内气体的温度; 同时由于水池中水的饱和蒸汽压大于气泡内的蒸汽分压, 气泡界面会发生蒸发现象, 从而导致有水蒸气不断进入到气泡内。若气泡内部水蒸气的饱和度大于粒子表面的饱和度, 气泡内会有水蒸气凝结到气溶胶粒子上, SPARC-90 利用修正的 Mason 方程来计算气泡内气溶胶粒子的增长。

在气溶胶去除模型方面, SPARC-90 在注射通道的出口区域, 考虑了蒸汽冷凝、惯性碰撞、重力沉降、布朗扩散和离心沉积等气溶胶去除机制, 而在气泡上升区域, SPARC-90 考虑了重力沉降、离心沉积、布朗扩散、扩散泳等气溶胶去除机制, 并考虑了初始气泡破裂对气溶胶去除的影响。值得注意的是, SPARC-90 的水洗模型没有考虑热泳这一气溶胶去除机制。在放射性气体的去除方面, SPARC-90 程序考虑了元素碘、甲基碘气体的去除, 在注射通道出口区域, 模型仅考虑了蒸汽冷凝去除机制对元素碘和甲基碘等裂变气体的去除作用; 而在气泡上升区域, 模型假定元素碘和甲基碘的去除主要是靠气泡内这些裂变气体的扩散作用, 并考虑了 Henry 定律的限制。

3.5. SPARC-B/98 模型

相比于 SPARC-90, SPARC-B/98 做出了几个重要的改变[7][8]: 1) SPARC-B/98 模型考虑了对注射通道出口处“射流”的模拟, 模型假定当气流注射速度较高, 且高于最小夹带速度时, 对于多孔出口或者单一小孔的出口类型, 模拟了浸没的“射流”过程, 在这种情况下, 初始气泡形成于射流区域的末端。在射流内, 也考虑了相应的质量和能量传递过程及多种气溶胶去除机制; 2) 在气泡上升区域,

SPARC-B/98 对气泡上升区域气泡尺寸分布的考虑更加复杂和精细，首次对气泡尺寸分布定义为两个对数正态分布的叠加，而不是像 SPARC-90 那样假定气泡在上升过程中大小保持不变；3) 加入了被 SPARC-90 忽略的“热泳”这一气溶胶去除机制；4) 由于在一个有限大小的水池内，气泡上升时，水池中的水本身也会循环运动，SPARC-B/98 考虑了水的扰动对气泡群上升的绝对速度的影响。

3.6. 水洗模型小结

五种水洗模型的在热工水力模型方面的区别如表 3 所示，在气溶胶去除模型方面的区别如表 4 所示。从两表中可以看出，ART 水洗模型相对于其他模型明显过于简化；对于 BUSCA 模型，目前无法获得相关程序，且其在每个区域内考虑的热工水力学过程和气溶胶去除机制也不如 SPARC-B/98 模型精细；对于 SUPRA 模型，已经有资料显示，其对于不可溶性气溶胶粒子的水洗效果预测结果不够保守；而作为 SPARC-90 模型的下一版本，SPARC-B/98 水洗模型相较于 SPARC-90 做出了许多改进，代表了目前国际上水洗研究最新、最全的研究成果，使 SPARC-90 的热工水力模型和气溶胶去除模型都得到了极大的完善。

Table 3. Comparison of thermohydraulics in five different pool scrubbing models

表 3. 五种气溶胶水洗模型所考虑的热工水力学过程差异

	ART	BUSCA	SUPRA	SPARC-90	SPARC-B/98
射流区域模型	未考虑	未考虑	未考虑	未考虑	当气流注射速度较高，且高于最小夹带速度时，对于多孔出口或者单一小孔的出口类型，模拟了浸没的“射流”过程
初始气泡的体积	用户定义	1) 用户定义；2) Ramakrishnan 理论模型；3) EPRI 的大的水平出口和竖直出口关系式；4) SPARC 模型的大的水平、竖直及多孔出口类型的相关关系式	1) 用户定义；2) Ramakrishnan 理论模型；3) 根据表面张力和浮力之间平衡的关系式进行计算。	SPARC 模型的大水平出口和竖直出口以及多孔出口类型的相关关系式	SPARC 模型的大水平出口和竖直出口以及多孔出口类型的相关关系式
气泡在上升过程中的直径	和初始气泡相同	对数正态分布，平均直径 0.716mm	LEIBSON 关系式	单一尺寸，和通入的混合气体中水蒸气的份额有关	两个对数正态分布的叠加
气泡的形状	球形	球形、椭球性和球冠形	球形、椭球形和球冠形	椭球形	椭球形
气泡相对水池中水的相对上升速度	用户定义或由 THALES 算得	1) Wallis 的 5 区域关系式；2) 针对球形、扁椭球形和球冠形分别求解	1) Haberman 和 Morton 关系式；2) Wallis 的 5 区域关系式	依据 Haberman 实验数据，采用两个关系式	和 SPARC-90 相同
气泡群在水池中的绝对上升速度	用户定义或由 THALES 算得	GEC 群集模型、Colder 群集模型、Sjoen 股流模型	不详	根据 Paul 等人和 GE 公司试验数据所得关系式	新的关系式，考虑了有限大小的水池尺寸的影响
水蒸气在气溶胶粒子上的凝结	未考虑	修正的 Mason 方程	未考虑	修正的 Mason 方程	修正的 Mason 方程
气泡相界面处的温度	不详	假设相界面温度和水池温度相同	和水池、气泡内气体温度不同，要额外计算	和水池、气泡内气体温度不同，要额外计算	和水池、气泡内气体温度不同，要额外计算

Table 4. Comparison of aerosol removal mechanisms in five different pool scrubbing models
表 4. 五种气溶胶水洗模型所考虑的气溶胶去除机制差异

	ART	BUSCA	SUPRA	SPARC-90	SPARC-B/98
注射通道出口区域射流处	未考虑	未考虑	未考虑	未考虑	气溶胶粒子和液滴相互作用时有碰撞去除、拦截去除以及分子和湍流扩散去除等机制；粒子和射流区域界面相互作用时有蒸气凝结/扩散泳、热泳、布朗扩散等机制
注射通道出口区域初始气泡的形成过程	未考虑	惯性碰撞	惯性碰撞 离心沉积	蒸汽凝结 惯性碰撞 离心沉积 重力沉降 布朗扩散	蒸气凝结/扩散泳 惯性碰撞 离心沉积 重力沉降 布朗扩散 热泳
气泡上升区域	重力沉降 布朗扩散	重力沉降 离心沉积 布朗扩散 扩散泳 热泳	重力沉降 离心沉积 布朗扩散 扩散泳 热泳	重力沉降 离心沉积 布朗扩散 扩散泳	重力沉降 离心沉积 布朗扩散 扩散泳

总的来说，通过比较 ART、BUSCA、SUPRA、SPARC-90 和 SPARC-B/98 五种水洗模型所考虑的热工水力学过程和气溶胶去除机制，得出 SPARC-B/98 模型是五种模型中对水洗过程考虑最全面和最精细的，故推荐后续以 SPARC-B/98 模型为基础对放射性水洗模型进行深入研究和优化。

4. 总结与建议

本文主要对国内外放射性水洗的试验研究和主要计算模型进行了调研和总结，调研结果表明，在所有试验项目中，EPRI 试验项目是所有试验中最综合、最全面的，最适合用来验证水洗计算模型；而在所有计算模型中，SPARC-B/98 水洗计算模型是目前考虑最全面的，推荐后续以 SPARC-B/98 模型为基础对放射性水洗模型进行深入研究和优化。调研结论可为后续放射性水洗模型的研究、优化和验证以及气溶胶水洗试验的设计和开展提供参考。

基金项目

本研究由国家科技重大专项“大型先进压水堆及高温气冷堆核电站”课题“CAP1400 核电厂安全增强措施研究”(2017ZX06002003)资助。

参考文献

- [1] Berzal, M.E., Crespo, M., *et al.* (1995) State-of-the-Art Review on Fission Products Aerosol Pool Scrubbing under Severe Accident Conditions, EUR 16241, CIEMAT.
- [2] Ramsdale, S.A., Bamford, G.J., *et al.* (1992) Status of Research and Modelling of Water-Pool Scrubbing, EUR 14566, AEA Technology.
- [3] Ramsdale, S.A., *et al.* (1995) BUSCA-JUN91 Reference Manual, Paul Scherrer Institut.
- [4] Wassel, A.T., Oehlberg, R.N., *et al.* (1985) Analysis of Radionuclide Retention in Water Pools. *Nuclear Engineering and Design*, **90**, 87-104. [https://doi.org/10.1016/0029-5493\(85\)90033-0](https://doi.org/10.1016/0029-5493(85)90033-0)
- [5] Owczarski, P.C. and Burk, K.W. (1991) SPARC-90: A Code for Calculating Fission Product Capture in Suppression Pools, NUREG/CR-5765, Pacific Northwest Laboratory. <https://doi.org/10.2172/6120360>
- [6] Gauntt, R.O., Cole, R.K., *et al.* (2000) MELCOR Computer Code Manuals Vol.2: Reference Manuals Version 1.8.5, NUREG/CR-6119, Sandia National Laboratories.

-
- [7] Hebling, W.K., Arndt, S., *et al.* (2013) COCOSYS V2.4 User's Manual, GRS.
 - [8] Schmitz, B.M. (2000) Further Development of ATHLET-CD Pool Scrubbing Module SPARC-B/98 for SOPHAEROS V2mod0_1-Model Description, TN-SMZ-00-1, GRS.