

# 压水堆停堆过程活化腐蚀产物源项计算研究

覃川<sup>1\*</sup>, 张竞宇<sup>1#</sup>, 郭润春<sup>2</sup>, 雷星<sup>1</sup>, 晏纪强<sup>1</sup>, 代启银<sup>1</sup>, 祁可世<sup>1</sup>, 巩慧鑫<sup>1</sup>

<sup>1</sup>华北电力大学核科学与工程学院, 北京

<sup>2</sup>中广核工程有限公司, 广东 深圳

收稿日期: 2026年1月12日; 录用日期: 2026年2月21日; 发布日期: 2026年4月8日

## 摘要

压水堆停堆期间, 一回路热工水力与水化学条件的剧烈变化会导致堆芯及回路表面沉积的活化腐蚀产物(ACPs)大量释放, 使冷却剂放射性活度浓度显著升高, 进而增加大修人员受照剂量并可能延误大修进度。本文研究了典型压水堆停堆氧化运行过程, 建立了用于停堆氧化工况ACPs源项计算的数学模型, 并在CATE3.0程序基础上开发了相应功能模块, 实现了CATE程序对于压水堆稳态运行与瞬态停堆工况的全寿期模拟能力。随后采用改进的CATE程序计算了典型压水堆一回路算例, 系统分析了代表性ACPs核素<sup>58</sup>Co和<sup>60</sup>Co的活度浓度随反应堆运行时间和参数的变化。结果表明: 在稳态运行阶段, <sup>58</sup>Co活度浓度先增加后达到平衡, 而<sup>60</sup>Co活度浓度则持续增加; 进入停堆氧化运行阶段, <sup>58</sup>Co和<sup>60</sup>Co的变化趋势类似, 即在注入30% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>后活度浓度迅速上升1至2个数量级, 峰值的计算值与核电厂测量值较为接近; 在净化阶段, <sup>58</sup>Co和<sup>60</sup>Co峰值降低约90%, 显著抑制再沉积。本研究为压水堆停堆工况活化腐蚀产物源项计算提供了可用的仿真工具, 其分析结果可为核电厂的源项控制和辐射防护优化提供参考。

## 关键词

压水堆, 停堆工况, 活化腐蚀产物, 源项计算, CATE3.0程序

# Study on Source Term Calculation of Activated Corrosion Products during the Shutdown Process of Pressurized Water Reactors

Chuan Qin<sup>1\*</sup>, Jingyu Zhang<sup>1#</sup>, Runchun Guo<sup>2</sup>, Xing Lei<sup>1</sup>, Jiqiang Yan<sup>1</sup>, Qiyin Dai<sup>1</sup>, Keshi Qi<sup>1</sup>, Huixin Gong<sup>1</sup>

<sup>1</sup>School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing

<sup>2</sup>China Nuclear Power Engineering Co., Ltd., Shenzhen Guangdong

\*第一作者。

#通讯作者。

文章引用: 覃川, 张竞宇, 郭润春, 雷星, 晏纪强, 代启银, 祁可世, 巩慧鑫. 压水堆停堆过程活化腐蚀产物源项计算研究[J]. 核科学与技术, 2026, 14(2): 25-36. DOI: 10.12677/nst.2026.142003

## Abstract

During pressurized water reactor shutdowns, drastic changes in primary loop thermal-hydraulic and hydrochemical conditions trigger massive release of activated corrosion products (ACPs) deposited on core and loop surfaces. This significantly elevates coolant radioactivity concentrations, thereby increasing radiation exposure for maintenance personnel and potentially delaying overhaul schedules. This study investigates the oxidation process during typical shutdowns of pressurized water reactor. A mathematical model for calculating ACP source terms under shutdown oxidation conditions was established. A corresponding functional module was developed based on the CATE3.0 program, enabling the CATE program to perform full-lifetime simulations for both steady-state operation and transient shutdown conditions of pressurized water reactors. Subsequently, the enhanced CATE program was employed to calculate a typical pressurized water reactor primary loop case study. A systematic analysis was conducted on the activity concentration variations of representative ACPs nuclides  $^{58}\text{Co}$  and  $^{60}\text{Co}$  with respect to reactor operating time and parameters. Results indicate: during steady-state operation, the activity concentration of  $^{58}\text{Co}$  initially increases before reaching equilibrium, while that of  $^{60}\text{Co}$  continues to rise; During the oxidation operation phase after shutdown, both  $^{58}\text{Co}$  and  $^{60}\text{Co}$  exhibit similar trends: activity concentrations rapidly increase by one to two orders of magnitude after 30%  $\text{H}_2\text{O}_2$  injection, with calculated peak values closely matching measured values from nuclear power plants. During the purification phase, peak concentrations of both  $^{58}\text{Co}$  and  $^{60}\text{Co}$  decrease by approximately 90%, significantly suppressing re-deposition. This study provides a viable simulation tool for calculating the source terms of activated corrosion products under shutdown conditions of the pressurized water reactor. Its analytical results offer valuable reference for source term control and radiation protection optimization at nuclear power plants.

## Keywords

Pressurized Water Reactor, Shutdown Condition, Activated Corrosion Products, Source Term Calculation, CATE3.0

Copyright © 2026 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

压水堆活化腐蚀产物源项是核电厂正常运行期间的重要辐射防护分析事项。一回路设备多采用不锈钢及其他合金材料，这些材料与冷却剂接触面积大，在长期运行中不可避免地发生腐蚀。腐蚀产物会溶解进入冷却剂，随流体进入堆芯，其中的金属元素在中子辐照下发生活化反应，转变为具有放射性的活化腐蚀产物(ACPs)。这些活化产物在管道壁面或冷却剂中衰变并释放 $\gamma$ 射线，是辐射场的重要贡献者[1][2]。在众多放射性核素中， $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 对辐射场影响尤为显著。近年来，多台压水堆机组在氧化停堆过程中观测到 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 异常高的释放现象，峰值活度浓度远超设计预期[3]，并且在反应堆停堆后仍会持续存在，对设备检修人员构成辐照风险。此外，若发生冷却剂丧失事故，活化腐蚀产物可能随冷却剂外泄，污染工作区域并带来安全隐患[4]。因此，准确开展一回路活化腐蚀产物源项分析，对辐射剂量评价、防护措施优化和放射性废物管理具有重要意义[5]。

为系统性研究压水堆一回路中腐蚀产物以及活化腐蚀产物的行为, 华北电力大学研发了活化腐蚀产物源项分析程序 CATE。该程序主要用于模拟压水堆中腐蚀产物与活化腐蚀产物的成分和活度变化及其在一回路冷却剂中和结构表面的分布特性。经过持续改进, 目前已发展至 CATE3.0 版本。该版本对于压水堆稳态运行条件下的活化腐蚀产物源项计算具备较高精度, 但对于瞬态停堆工况下的模拟能力仍有待发展[6]。

压水堆停堆过程中, 热工水力参数(如温度、流速)、水化学参数(如 pH 值、 $H_2O_2$  和  $H_2$  浓度)以及化学与容积控制系统(CVCS)的运行参数(如净化流量、过滤效率与树脂性能)均会发生显著变化, 从而引起活化腐蚀产物源项的剧烈变动。强迫氧化运行技术最初在欧美核电国家得到应用, 我国于 20 世纪末自日本、法国引进相关化学控制策略, 通过在停堆期间向一回路中注入一定量的强氧化物(如  $H_2O_2$ ), 从而可促进堆芯燃料组件及回路表面沉积的腐蚀产物(以镍及其氧化物为主)大量释放至冷却剂中, 致使堆内活化腐蚀产物的活度浓度急剧升高, 其增幅可达 1 至 2 个数量级。图 1 给出了核电厂监测的  $^{58}Co$  和  $^{60}Co$  活度浓度随停堆过程的变化。

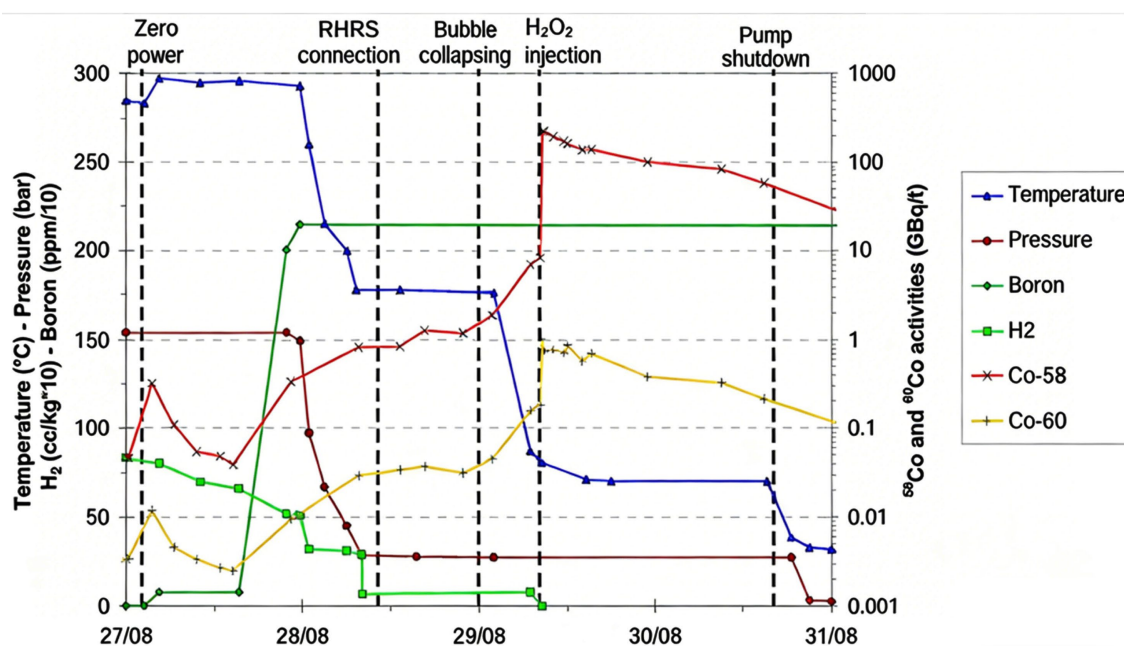


Figure 1. Activity concentration variation of  $^{58}Co$  and  $^{60}Co$  during reactor shutdown [7]

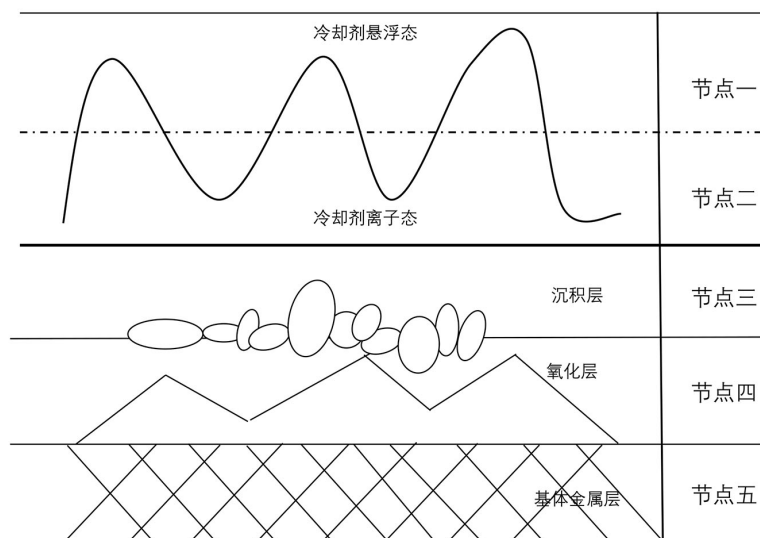
图 1.  $^{58}Co$  和  $^{60}Co$  活度浓度随停堆过程的变化[7]

为全面模拟压水堆整个运行寿期内(包括稳态运行阶段和停堆氧化运行阶段)一回路活化腐蚀产物源项的动态变化, 本文研究了压水堆的停堆氧化运行过程, 建立了停堆氧化运行阶段的腐蚀产物和活化腐蚀产物计算模型, 开发了相应的程序模块, 集成到了活化腐蚀产物源项分析程序 CATE3.0 中, 并基于典型压水堆算例进行了模拟分析。

## 2. 活化腐蚀产物源项计算模型

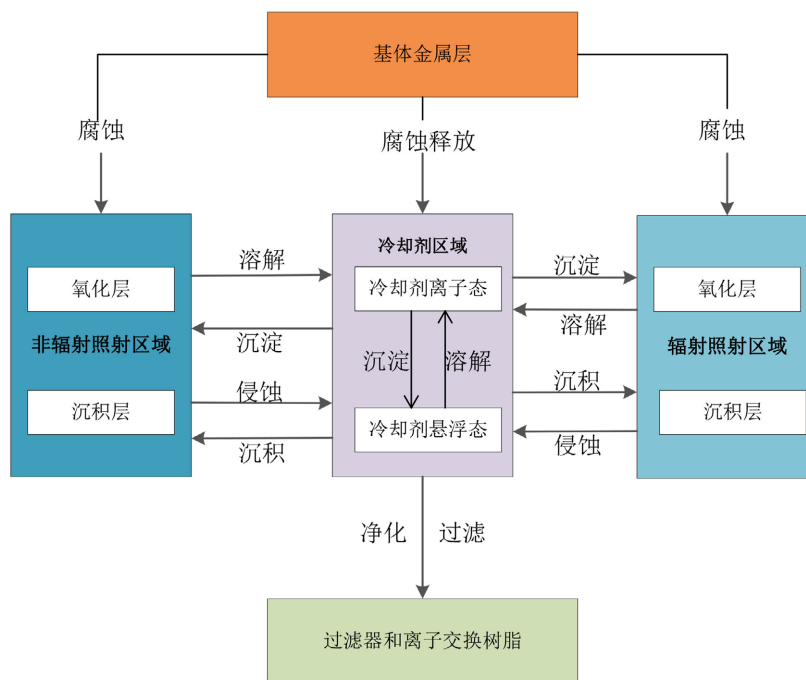
### 2.1. 压水堆一回路 ACPs 输运模型

在 CATE3.0 程序中, 根据腐蚀产物的物质形态不同, 划分为五个节点, 分别为基体金属层、壁面氧化层、壁面沉积层、冷却剂离子态以及冷却剂悬浮态, 如图 2 所示。



**Figure 2.** Schematic diagram of different forms of corrosion products  
**图 2.** 腐蚀产物不同形态示意图

腐蚀产物在五个节点之间发生的主要作用机理包括：基金金属层发生腐蚀，产生的金属元素一部分扩散进入到氧化层，另一部分释放进入到冷却剂中；壁面氧化层与冷却剂离子态之间通过溶解与沉淀作用发生物质传递；壁面沉积层与冷却剂悬浮态之间通过侵蚀与沉积作用发生物质传递；冷却剂离子态与冷却剂悬浮态之间通过溶解与沉淀作用发生物质传递；通过化学和容积控制系统(CVCS)的过滤器和离子交换树脂实现对于冷却剂离子态和悬浮态的净化和过滤；由于贡献份额较小，忽略壁面氧化层与冷却剂悬浮态、壁面沉积层与冷却剂离子态之间的物质传递作用。如图 3 所示。



**Figure 3.** Schematic diagram of mass transfer behaviors of corrosion products  
**图 3.** 腐蚀产物传质行为示意图

此外,根据压水堆一回路壁面区域是否受到中子辐照,将其分为辐射照射区域以及非辐射照射区域,同时将冷却剂作为第三个区域[8]。通常以蒸汽发生器为代表的非辐射照射区域会产生大量的腐蚀产物,部分腐蚀产物进入冷却剂后,随冷却剂流动到以堆芯为代表的辐射照射区域,并且通过沉淀和沉积作用附着在燃料包壳外表面,在此经受中子辐照成为活化腐蚀产物(ACPs)。堆芯区域产生的 ACPs,有一部分会通过同位素交换作用进入到冷却剂中,并随冷却剂的流动扩散到蒸汽发生器、泵、阀门等非辐射照射区域,形成堆外辐射场。在此过程中, ACPs 的物质形态划分和不同形态之间的传质作用机理,与腐蚀产物的一致。

## 2.2. 停堆氧化运行阶段 ACPs 计算模型

在停堆氧化运行阶段,由于堆芯中子辐射场消失,使得不再有腐蚀产物活化为新的 ACPs,原来一回路累积的 ACPs 由于衰变会持续减少。此外,在停堆氧化运行阶段,随着温度、pH 值等参数的变化,会影响腐蚀率、溶解沉淀系数、侵蚀沉积系数等关键计算参数,特别是  $H_2O_2$  的加入会带来额外的壁面 ACPs 氧化去除效果。本文根据停堆氧化运行阶段的特点,对 CATE 程序原有稳态运行阶段的 ACPs 计算方程进行了调整,得到了停堆氧化运行阶段 ACPs 计算模型。

在停堆氧化运行阶段,对于一回路 ACPs 核素  $k$  建立的浓度平衡方程如下所示:

区域  $i$  壁面氧化层平衡方程:

$$\frac{dA_{OXY,i,k}}{dt} = ASPO_{i,k} + CR_{i,k} - RRO_{i,k} \quad (1)$$

区域  $i$  壁面沉积层平衡方程:

$$\frac{dA_{DEP,i,k}}{dt} = V_{DEP,i,k} - V_{Ero,i,k} - RRD_{i,k} - RDO_{PART,i,k} - RDO_{ION,i,k} \quad (2)$$

冷却剂离子态平衡方程:

$$\frac{dA_{ION,k}}{dt} = \sum_{i=1}^{Node} ASPO_{i,k} + \sum_{i=1}^{Node} RDO_{ION,i,k} + \sum_{i=1}^{Node} COR_{i,k} - ASPP_k - FIL_{ION,k} - RRI_k \quad (3)$$

冷却剂悬浮态平衡方程:

$$\frac{dA_{PART,k}}{dt} = \sum_{i=1}^{Node} V_{Ero,i,k} + \sum_{i=1}^{Node} RDO_{PART,i,k} + ASPP_k - \sum_{i=1}^{Node} V_{DEP,i,k} - FIL_{PART,k} - RRP_k \quad (4)$$

式中,

$A_{OXY,i,k}$ : 区域  $i$  壁面氧化层核素  $k$  的浓度( $m^{-2}$ );

$A_{DEP,i,k}$ : 区域  $i$  壁面沉积层核素  $k$  的浓度( $m^{-2}$ );

$A_{ION,k}$ : 冷却剂离子态核素  $k$  的浓度,  $m^{-3}$ ;

$A_{PART,k}$ : 冷却剂悬浮态核素  $k$  的浓度,  $m^{-3}$ ;

$ASPO_{i,k}$ : 区域  $i$  壁面氧化层与冷却剂离子态核素  $k$  之间的溶解沉淀速率:

$$ASPO_{i,k} = K_n \cdot SA_i \cdot \left( \frac{A_{ION,k} \cdot C_{s,n}}{m_{ION,n}} - \frac{A_{DEP,i,k}}{m_{DEP,i,n}} \cdot S_n(T_i) \right) \quad (5)$$

$CR_{i,k}$ : 区域  $i$  的基体金属层腐蚀生成氧化层核素  $k$  的速率:

$$CR_{i,k} = x_{i,k} \cdot m_{i,cr,k} \quad (6)$$

$COR_{i,k}$  : 区域  $i$  的基体金属层腐蚀释放生成冷却剂离子态核素  $k$  的速率:

$$COR_{i,k} = x_{i,k} \cdot m_{i,cor,k} \quad (7)$$

$RRO_{i,k}$  : 区域  $i$  壁面氧化层核素  $k$  的衰变消失速率:

$$RRO_{i,k} = \lambda_k \cdot A_{OXY,i,k} \quad (8)$$

$V_{DEP_{i,k}}$  : 冷却剂悬浮态核素  $k$  沉积到区域  $i$  壁面沉积层的沉积速率:

$$V_{DEP_{i,k}} = D_i \cdot A_{PART,k} \quad (9)$$

$V_{Ero_{i,k}}$  : 区域  $i$  壁面沉积层核素  $k$  被冷却剂侵蚀形成冷却剂悬浮态的侵蚀速率:

$$V_{Ero_{i,k}} = E_i \cdot A_{DEP,i,k} \quad (10)$$

$RRD_{i,k}$  : 区域  $i$  壁面沉积层核素  $k$  的衰变消失速率:

$$RRD_{i,k} = \lambda_k \cdot A_{DEP,i,k} \quad (11)$$

$RDO_{PART,i,k}$  : 区域  $i$  壁面沉积层核素  $k$  与  $H_2O_2$  发生反应形成冷却剂悬浮态的速率:

$$RDO_{PART,i,k} = RE_{PART,i,k,H_2O_2} \cdot A_{DEP,i,k} \quad (12)$$

$RDO_{ION,i,k}$  : 区域  $i$  壁面沉积层核素  $k$  与  $H_2O_2$  发生反应形成冷却剂离子态的速率:

$$RDO_{ION,i,k} = RE_{ION,i,k,H_2O_2} \cdot A_{DEP,i,k} \quad (13)$$

$ASPP_k$  : 冷却剂离子态核素  $k$  与悬浮态之间的沉淀溶解速率:

$$ASPP_k = K_n \cdot SA_p \cdot \left( \frac{A_{ION,k}}{m_{ION,n}} C_{s,n} - \frac{A_{PART,k}}{m_{PART,n}} S_n (T + \Delta T) \right) \quad (14)$$

$FIL_{ION,k}$  : 冷却剂离子态核素  $k$  的净化消失速率:

$$FIL_{ION,k} = \frac{Q\omega_{ION}}{V_F} \cdot A_{ION,k} \quad (15)$$

$RRI_k$  : 冷却剂离子态核素  $k$  的衰变消失速率:

$$RRI_k = \lambda_k \cdot A_{ION,k} \quad (16)$$

$FIL_{PART,k}$  : 冷却剂悬浮态核素  $k$  的过滤消失速率:

$$FIL_{PART,k} = \frac{Q\omega_{PART}}{V_F} \cdot A_{PART,k} \quad (17)$$

$RRP_k$  : 冷却剂悬浮态核素  $k$  的衰变消失速率:

$$RRP_k = \lambda_k \cdot A_{PART,k} \quad (18)$$

### 3. 算例描述

#### 3.1. 停堆氧化运行过程

典型压水堆的停堆过程大致可以分为五个阶段, 它们分别为: 停堆第一阶段、停堆第二阶段、停堆第三阶段、氧化运行阶段、净化阶段。各个阶段的具体情况为: 停堆第一阶段为热停堆至双相停堆的运行阶段, 此阶段冷却剂的温度、压力会逐渐降低, 水中氢气浓度会下降, 并且在硼锂协调的操作下, 硼浓度会逐渐增大; 停堆第二阶段为双相停堆阶段, 此阶段会保持堆内冷却剂的温度、压力以及硼浓度不

变，同时会继续降低氢气浓度；停堆第三阶段为双相停堆至单相停堆的运行阶段，此阶段冷却剂的温度会持续降低至 80℃，同时维持堆内冷却剂的压力、氢气浓度、硼浓度不变；氧化运行阶段是实现氧化停堆的关键步骤，此阶段冷却剂的温度以及氢气浓度会持续降低，而冷却剂的压力以及硼浓度会保持不变；净化运行阶段为过滤净化冷却剂中活化腐蚀产物的运行阶段，此阶段的温度、压力会降低至符合压力容器开盖的条件，最终实现停堆换料。每一个阶段具体的热工水力参数可见表 1。

为有效控制压水堆停堆期间活化腐蚀产物(ACPs)所致辐射风险，“氧化运行”已成为当前广泛采用的工程技术手段，其操作的最终目的在于将沉积于一回路内表面的活化腐蚀产物尽可能清除。该方法的实施基于对一回路冷却剂化学环境的调控，促进腐蚀产物的溶解与迁移。工程实践中通常选用双氧水(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)作为氧化剂，因其仅含氢、氧元素，可在不引入外来杂质的前提下实现氧化过程。上述过程具体执行的操作为，当反应堆内的冷却剂温度降低至 80℃时，立即向一回路内注入浓度为 30%的过氧化氢。即便在主回路中溶解氢反应殆尽后，双氧水仍可持续分解，使溶解氧浓度维持在 5 mg/L 以上，从而实现冷却剂从还原态向氧化态转变，显著加速系统内沉积 ACPs 的溶解。

从材料优化角度而言，采用低钴或无钴合金替代高钴钨铬钴合金，是降低一回路中 ACPs 源强的根本途径。然而，在当前阶段全面更替结构材料尚难以实现。因此，氧化运行作为一项成熟可靠的工程措施，仍是现阶段降低停堆大修期间工作人员受照剂量的主要手段，具有重要的辐射防护实践意义。

**Table 1.** Thermal-hydraulic parameters variation during shutdown phase of a typical pressurized water reactor

**表 1.** 典型压水堆停堆阶段热工水力参数变化表

阶段名称	温度(°C)	压力(MPa)	氢气浓度(ml/kg)	硼浓度(ppm)
停堆第一阶段	291~177	15.5~2.7	5.0~2.5	2200~2400
停堆第二阶段	177~177	2.7~2.7	2.5~0.5	2400~2400
停堆第三阶段	177~80	2.7~2.7	0.5~0.5	2400~2400
氧化运行阶段	80~60	2.7~2.7	0.5~0.0	2400~2400
净化阶段	60~25	2.7~0.1	0.0~0.0	2400~2400

### 3.2. 典型压水堆算例描述

本文以典型压水堆一回路为研究对象，模拟其在运行一定周期后进入停堆换料的操作过程。通过在此停堆工况中引入停堆氧化运行工艺，CATE3.0 程序模拟了该阶段活化腐蚀产物活度浓度随时间的演变规律，并进一步从水化学环境的角度，分析了其对源项计算结果的影响。表 2 列出了典型压水堆核电站通用一回路的运行参数。

**Table 2.** Operating parameters of the primary circuit in a typical pressurized water reactor

**表 2.** 典型压水堆一回路运行参数表

参数	单位	数值
非辐照区温度	°C	2.93E+02
辐照区温度	°C	3.26E+02
冷却剂平均密度	kg/m <sup>3</sup>	7.05E+02
冷却剂动力粘度	Pa·s	8.83E-05
主回路冷却剂体积	m <sup>3</sup>	2.06E+02
快中子通量密度	n/(m <sup>2</sup> ·s)	1.86E+18

续表

热中子通量密度	n/(m <sup>2</sup> ·s)	3.50E+17
辐照区管壁表面积	m <sup>2</sup>	4.74E+03
非辐照区管壁表面积	m <sup>2</sup>	1.04E+04
过滤器质量流量	kg/s	3.11
颗粒过滤因子	%	50
离子过滤因子	%	50

在压水堆停堆过程中，热工水力参数、水化学参数(如 pH 值、元素平衡浓度等)会发生显著变化。冷却剂中的 pH 值是通过硼锂协调曲线得出具体数值(pH 值控制方案是参考了典型压水堆核电厂的运行方式，前四个运行周期采用定 Li 运行模式，后两个周期采用 B 和 Li 协调定 pH 模式运行，程序对于这两种典型的 pH 值控制策略的模拟都是适用的)，对于元素平衡浓度则通过专门的水化学计算软件得到不同元素在不同工况下的平衡浓度。对于冷却剂中的离子扩散系数、颗粒传质系数以及壁面传质系数则可通过具体的传质公式计算得到。表 3 列出了典型压水堆核电厂停堆过程各个阶段一回路的通用水化学参数。

Table 3. Water chemistry parameters of the primary circuit during reactor shutdown

表 3. 停堆过程中一回路的水化学参数表

阶段名称	冷却剂 pH	Ni 元素平衡浓度(mol/kg)	Co 元素平衡浓度(mol/kg)	Fe 元素平衡浓度(mol/kg)	离子扩散系数 (cm <sup>2</sup> /s)	冷却剂离子传质系数(cm/s)	壁面离子传质系数(cm/s)
停堆第一阶段	5.1073	7.24E-08	1.37E-08	7.26E-07	1.79E-04	9.23E-04	6.23E+00
停堆第二阶段	4.7194	5.02E-06	1.57E-07	1.22E-05	8.59E-05	5.01E-04	3.30E+00
停堆第三阶段	4.7194	5.02E-06	1.57E-07	1.22E-05	8.59E-05	1.64E-04	1.17E+00
氧化运行阶段	4.6188	3.16E-05	3.10E-07	1.52E-04	2.92E-05	1.15E-04	8.39E-01
净化阶段	4.5828	3.11E-06	4.17E-08	2.88E-09	2.09E-05	9.23E-04	6.23E+00

#### 4. 计算结果及分析

为了验证 CATE 3.0 程序对于停堆氧化运行阶段活化腐蚀产物源项的计算能力，本文基于典型压水堆一回路算例，计算分析了冷却剂中 <sup>58</sup>Co 与 <sup>60</sup>Co 的活度浓度，这也是核电厂重点监测的活化腐蚀产物核素。

国内核电站运行实践表明，在停堆氧化期间，一回路冷却剂中钴系放射性核素的活度浓度显著高于其他核素，可高出 1 至 2 个数量级，其释放峰值在某些情况下甚至超过上百 GBq/t。尤为值得关注的是，我国部分压水堆机组在氧化停堆过程中，已实际观测到 <sup>58</sup>Co 的释放峰值超出了设计预期值。这种异常高的活度释放会导致相关系统或区域剂量率在短期内急剧上升[9]，不仅可能突破原有辐射防护限值，也显著增加了工作人员的受照风险。基于此，本文选取 <sup>58</sup>Co 与 <sup>60</sup>Co 作为代表性核素，重点分析其在冷却剂中的活度浓度变化行为。

##### (1) 稳态运行阶段一回路冷却剂 <sup>58</sup>Co 活度浓度变化

如图 4 所示，采用所开发程序的计算结果表明：在稳态运行阶段，冷却剂中 <sup>58</sup>Co 的活度浓度随运行时间先是快速增大，随后逐渐趋于饱和。其原因在于，稳态运行阶段开始时，冷却剂中离子态腐蚀产物处于欠饱和状态，使得氧化层不断溶解扩散到冷却剂中，此外，沉积层受到侵蚀不断地向冷却剂中释放悬浮态腐蚀产物，并且这些悬浮态腐蚀产物也会溶解为离子，使得冷却剂中离子态 <sup>58</sup>Co 的活度浓度快速

上升, 随着运行时间的积累, 冷却剂中离子态腐蚀产物的浓度逐渐达到饱和, 并且  $^{58}\text{Co}$  较短的半衰期会导致较大的衰变速率, 使得冷却剂中离子态  $^{58}\text{Co}$  的产生速率与消失速率达到基本一致, 因此在稳态运行阶段后期, 冷却剂中离子态  $^{58}\text{Co}$  的活度浓度会逐渐达到平衡状态。

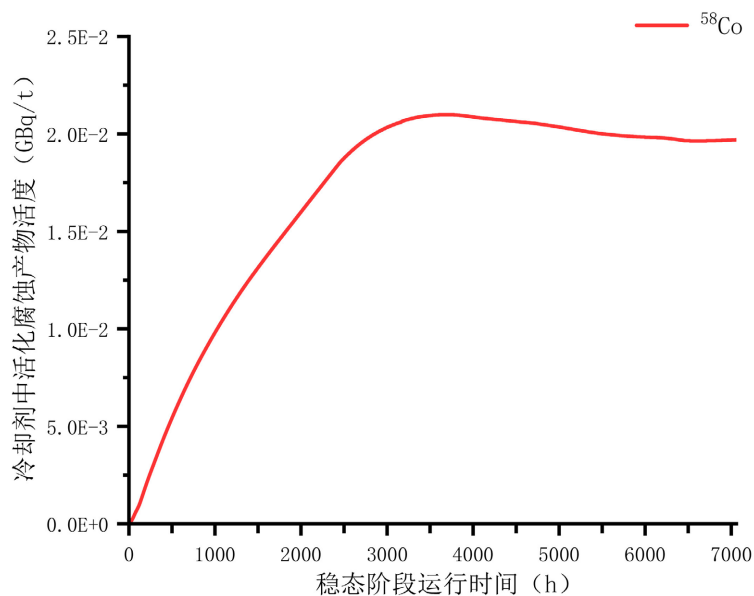


Figure 4. Activity concentration variation of  $^{58}\text{Co}$  in the coolant during steady-state operation phase

图 4. 稳态运行阶段冷却剂  $^{58}\text{Co}$  的活度浓度变化

(2) 稳态运行阶段一回路冷却剂  $^{60}\text{Co}$  活度浓度变化

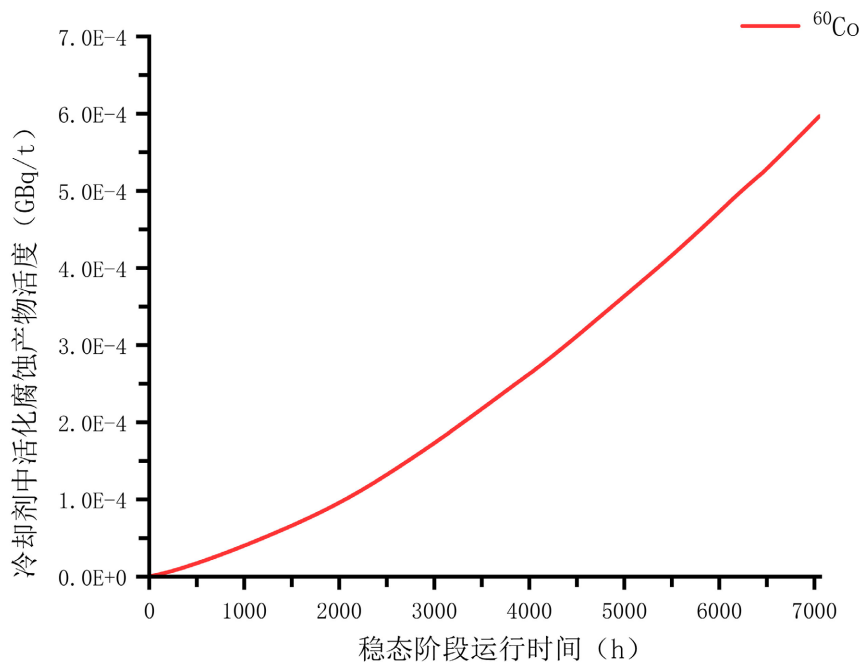


Figure 5. Activity concentration variation of  $^{60}\text{Co}$  in the coolant during steady-state operation phase

图 5. 稳态运行阶段冷却剂  $^{60}\text{Co}$  的活度浓度变化

如图 5 所示, 采用所开发程序的计算结果表明: 在稳态运行阶段, 冷却剂中  $^{60}\text{Co}$  的活度浓度随运行时间一直逐渐增大, 没有饱和趋势出现, 这与  $^{58}\text{Co}$  先增大后饱和的趋势有显著差异。其主要原因在一下三个方面, 其一:  $^{60}\text{Co}$  的半衰期远大于  $^{58}\text{Co}$  的半衰期, 这意味着其衰变导致的消失速率较小, 其二: 由于  $^{58}\text{Co}$  半衰期短, 更多分布在表面沉积层中, 易通过溶解或颗粒剥离再释放回冷却剂, 有效释放率较高。而  $^{60}\text{Co}$  半衰期长, 有充足时间通过扩散或氧化层生长过程“埋入”更深的内层晶格, 甚至成为晶格固定成分。一旦进入内层, 释放需要更强烈的溶解条件, 日常运行中释放率显著低于  $^{58}\text{Co}$ 。其三:  $^{58}\text{Co}$  的母核为  $^{58}\text{Ni}$ , 丰度高, 主要来自镍基合金/不锈钢的腐蚀, 化学行为以  $\text{Ni}^{2+}$  形式释放。Ni 在氧化层中易形成  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , 但该结构相对不稳定, 溶解度较高。而  $^{60}\text{Co}$  的母核为  $^{59}\text{Co}$ , 以  $\text{Co}^{2+}$  形式释放,  $\text{Co}^{2+}$  离子半径和电荷与尖晶石晶格位更匹配, 形成  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  (钴铁氧体) 稳定性高于  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , 溶解度相对较低。使得在稳态阶段的运行过程中,  $^{60}\text{Co}$  的产生速率一直远大于自身的消失速率, 因此在整个稳态运行阶段  $^{60}\text{Co}$  的活度浓度始终为上升趋势。

(3) 停堆氧化运行阶段一回路冷却剂  $^{58}\text{Co}$  活度浓度变化

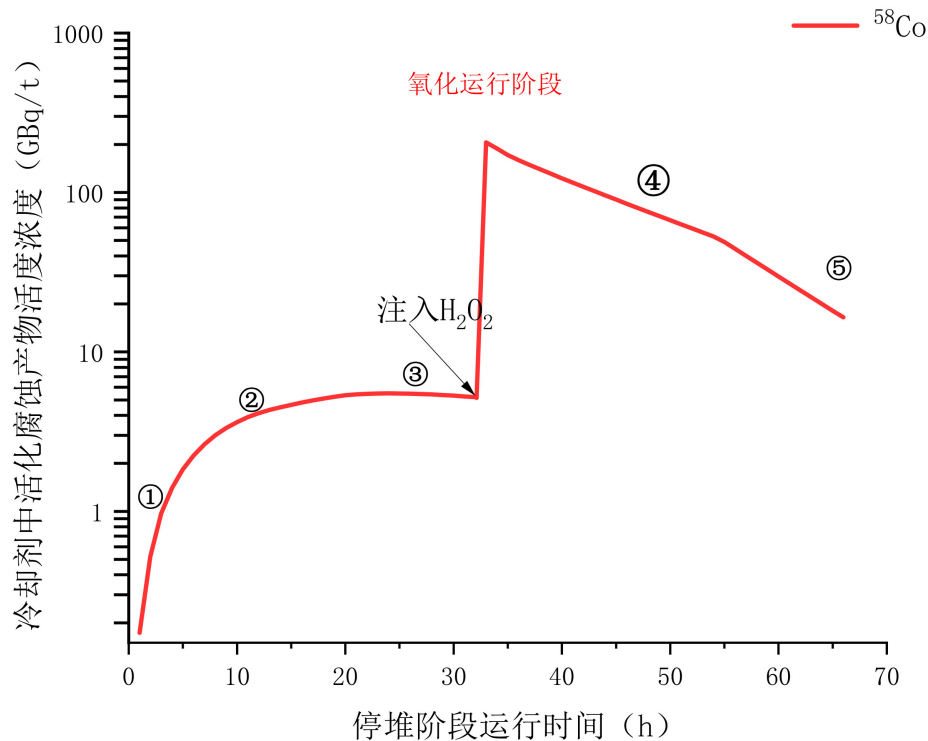


Figure 6. Activity concentration variation of  $^{58}\text{Co}$  in the coolant during shutdown oxygenation operation phase  
 图 6. 停堆氧化运行阶段冷却剂  $^{58}\text{Co}$  的活度浓度变化

图 6 展示了 CATE 程序对停堆氧化运行阶段一回路冷却剂  $^{58}\text{Co}$  活度浓度变化趋势的模拟结果。从停堆开始到注入  $\text{H}_2\text{O}_2$  前, 随着回路降温、膨胀及空气混入, 管壁沉积物在自然氧化与钴溶解度随温度下降而升高的共同作用下,  $^{58}\text{Co}$  活度浓度缓慢上升。注入  $\text{H}_2\text{O}_2$  后, 水化学环境由还原性迅速转为强氧化性, 且  $\text{H}_2\text{O}_2$  使沉积层结构变得疏松, 在流体剪切力作用下, 大量颗粒物以及离子态腐蚀产物被侵蚀释放至冷却剂中, 导致  $^{58}\text{Co}$  活度浓度急剧上升, 增幅达 1 至 2 个数量级, 其峰值活度浓度计算值为 205.99 GBq/t, 与图 1 展示的核电厂测量值[9]较为接近, 证明本文所开发程序模块在停堆氧化工况下具有较高的预测准确性。此后, 在净化阶段, 通过化学和容积控制系统的过滤净化作用, 可迅速降低冷却剂中的放射性活度。

#### (4) 停堆氧化运行阶段一回路冷却剂 $^{60}\text{Co}$ 活度浓度变化

由图 7 所示,使用 CATE 程序计算停堆氧化运行阶段一回路冷却剂  $^{60}\text{Co}$  活度浓度变化趋势与  $^{58}\text{Co}$  的变化趋势基本一致,都是停堆氧化的前期先缓慢上升,当注入  $\text{H}_2\text{O}_2$  后迅速上升达到峰值,然后活度浓度又迅速下降,两者存在的区别是加入  $\text{H}_2\text{O}_2$  后  $^{60}\text{Co}$  的峰值活度浓度远低于  $^{58}\text{Co}$  的峰值活度浓度(约低了 2 个数量级),这些都与图 1 所展示的文献结果基本吻合。此外,停堆氧化工况  $^{60}\text{Co}$  峰值活度浓度计算值为 5.233 GBq/t,与文献展示的核电厂实测值[9]基本接近,两者变化趋势也较为一致,验证了所开发程序模块对于停堆氧化工况 ACPs 源项分析的可靠性与准确性。

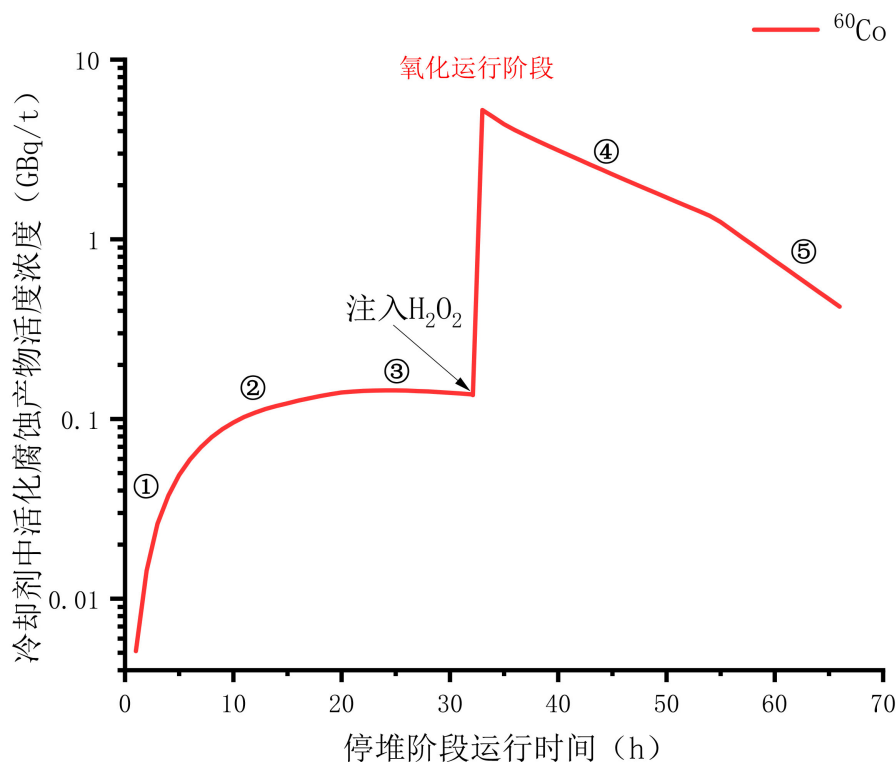


Figure 7. Activity concentration variation of  $^{60}\text{Co}$  in the coolant during shutdown oxygenation operation phase  
图 7. 停堆氧化运行阶段冷却剂  $^{60}\text{Co}$  的活度浓度变化

## 5. 结论

本文研究了典型压水堆停堆氧化运行过程,建立了用于停堆氧化工况活化腐蚀产物源项计算的数学模型,在 CATE3.0 程序基础上开发了相应的功能模块,实现了压水堆稳态运行与瞬态停堆工况的全寿期活化腐蚀产物源项模拟能力,并基于典型压水堆算例进行了计算分析。主要结论如下:(1) 在稳态运行阶段,一回路冷却剂的  $^{58}\text{Co}$  活度浓度先增加后达到平衡,而  $^{60}\text{Co}$  活度浓度则持续增加,进入停堆氧化运行阶段,两者的变化趋势类似,即在注入 30%  $\text{H}_2\text{O}_2$  后,冷却剂中  $^{58}\text{Co}$  和  $^{60}\text{Co}$  活度浓度迅速上升约 2 个数量级并在 1~3 h 内达到峰值;(2) CATE 程序对于停堆氧化运行阶段冷却剂的  $^{58}\text{Co}$  和  $^{60}\text{Co}$  峰值活度浓度的计算值与实测值较为接近,并且  $^{58}\text{Co}$  和  $^{60}\text{Co}$  的变化趋势与文献结果较为一致,说明 CATE 程序的计算结果具有较高的准确性和可靠性;(3) 在净化阶段,可将  $^{58}\text{Co}$  和  $^{60}\text{Co}$  峰值活度浓度降低约 90%,并明显缩短高放射性持续时间,同时加强下泄后过滤器和离子交换树脂的辐射监测,可有效控制活化腐蚀产物源项。

## 基金项目

中央高校基本科研业务费专项(2024MS050), 国家磁约束核聚变能发展研究专项(2019YFE03110003)。

## 参考文献

- [1] 韩啸, 巫小明. 核电厂停堆过程中活化腐蚀产物的迁移与控制[J]. 设备管理与维修, 2020(19): 128-130.
- [2] Lee, C.B. (1990) Modeling of Corrosion Product Transport in a Simulated PWR Environment. Ph.D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology.
- [3] Dacquait, F., Nguyen, F., Marteau, H., *et al.* (2008) Simulations of Corrosion Product Transfer with the PACTOLE V3.2 Code. *NPC 2008—International Conference on Water Chemistry of Nuclear Reactors Systems*, Berlin, 15-18 September 2008, 60-72.
- [4] 李璐, 张君南, 张竞宇, 等. 典型压水堆运行工况下活化腐蚀产物及剂量率计算分析[J]. 核科学与工程, 2018, 38(4): 540-545.
- [5] You, W., Li, Z.R., Wang, X.X. and Liu, S. (2017) Effect of Oxygenation during Cold Shutdown on Source Term for Radiation Shielding Design of RHR System. In: Jiang, H., Ed., *Proceedings of the 20th Pacific Basin Nuclear Conference*, Springer, 309-315. [https://doi.org/10.1007/978-981-10-2311-8\\_28](https://doi.org/10.1007/978-981-10-2311-8_28)
- [6] 张竞宇, 李璐, 宋文, 等. 水冷聚变堆活化腐蚀产物源项分析程序开发[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(S1): 68-74.
- [7] Christophe, P., Laurent, T., Etienne T., *et al.* (2006) Overview of CEA Research in the Fields of Radionuclides Migration. French Alternative Energies and Atomic Energy Commission, R-6111.
- [8] Guo, Q., Zhang, J., Fang, S. and Chen, Y. (2018) Activation Analysis of Coolant in a Water-Cooled Loop of China Fusion Engineering Test Reactor. *Fusion Engineering and Design*, 136, 694-698. <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2018.03.059>
- [9] 张丽莹, 邢继, 毛亚蔚. 压水堆核电站氧化停堆过程一回路冷却剂中  $^{58}\text{Co}$  活度浓度分析[J]. 辐射防护, 2016, 36(4): 206-210.