

上海交通大学

---

硕士学位论文

---

大亚湾、岭澳核电站一回路辐射源项调查及控制技术的研究

---

姓名：傅鹏轩

---

申请学位级别：硕士

---

专业：核能与核科学技术

---

指导教师：蒯琳萍;杨俊武

---

20090501

# 大亚湾、岭澳核电站一回路辐射源项调查 及控制技术的研究

## 摘 要

近年来国外在轻水堆核电站有关辐射源项控制方面进行了一些技术创新、应用和发展,新技术通过降低辐射源项的产生、减少辐射源项在堆芯以外的设备表面沉积以及辐射源项的去除等手段,显著的降低了工作人员的辐射剂量。

在此背景下,本文通过对大亚湾、岭澳核电站一回路及相关系统的辐射源项进行调查分析,确定了在一回路中的主要辐射源项。结合系统的运行特性及各种核素的来源及沉积特点,研究了各主要辐射源项在系统中的影响范围及对剂量的贡献。最后对辐射源项的控制技术进行了研究讨论,对大亚湾、岭澳核电站源项控制特点及效果进行分析评价,对后续的源项控制提出了建议。

关键词:核电站,辐射源项,腐蚀,剂量率,核素

STUDY ON CATEGORIES AND CONTROL TECHNOLOGIES  
OF RADIATION SOURCE TERMS  
IN DAYA BAY AND LING AO PWRs PRIMARY SYSTEM

**ABSTRACT**

Recently, the nuclear power industry has developed several new techniques for radiation field control and reduction. The technologies attack the problem by either reducing the radiation source term generated, preventing the deposition of existing active material in the ex-core surfaces of the plant, or removing the source term from the system. The exposure radiological trends have shown an obvious correlation to new techniques for radiation field control.

This thesis outlines the main source terms in the DAYA BAY and LING AO PWRs Primary Coolant system through the investigation and analysis, and then discusses the acquired dose contributed by the radioactive nuclides, presents a review of components that may contribute to source term, and supplements the information with the methods used to eliminate source terms. Finally, the technologies for control the radiation source terms in PWRs are discussed. Based on the features of the technologies carried out in DAYA BAY and LING AO PWRs, the evaluation and suggestions of the radiation source term control are presented.

**KEY WORDS:** nuclear power plant, radiation source terms,  
corrosion, dose rate, nuclide

# 上海交通大学

## 学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的作品成果。对本文的研究做出重要贡献的个人和集体，均已在文中以明确方式标明。本人完全意识到本声明的法律结果由本人承担。

学位论文作者签名：傅鹏轩

日期： 年 月 日

# 上海交通大学

## 学位论文版权使用授权书

本学位论文作者完全了解学校有关保留、使用学位论文的规定，同意学校保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版，允许论文被查阅和借阅。本人授权上海交通大学可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存和汇编本学位论文。

**保密**，在\_\_\_年解密后适用本授权书。

本学位论文属于

**不保密**。

(请在以上方框内打“ ”)

学位论文作者签名：傅鹏轩

指导教师签名：蒯琳萍

日期： 年 月 日

日期： 年 月 日

## 第一章 绪论

### 1.1 核电站辐射源项的简介

#### (1) 中子及裂变产物

中子和裂变产物是在反应堆的运行中直接和必然的产物。其中，中子是维持反应堆正常运行必不可少的条件及产物，但是中子的对人员有辐射危害，因此在反应堆的工程设计中就必须考虑中子对电站工作人员的保护。在压水堆的反应堆厂房内，一般在反应堆厂房的外环廊，因为已经有足够的屏蔽，中子辐射水平极低。但在内环廊区域，中子的辐射水平较高，一般内环廊区域的中子辐射强度与距反应堆堆芯的距离大约呈反比，与反应堆功率呈正比。为保证工作人员免受中子大剂量辐射危害，内环廊区域是核电站功率运行期间限制人员进入的区域。在特殊的情况下，因为设备检查及维修的需要，工作人员还是偶尔会进入功率运行期间的反应堆厂房，因此中子仍是对核电站工作人员辐照危害的不可忽视的来源。在大亚湾及岭澳核电站，在功率运行期间人员极少进入反应堆厂房。即使是因为设备检修等原因而必需进入时，人员的工作范围仅限于中子辐照危害较低的区域。而一旦停堆，中子的辐射风险就几乎不存在了。因此由中子产生的辐射剂量所占电站集体剂量的比例很小。

裂变产物对人员的危害也相对较小，在燃料包壳没有破损的情况下绝大部分裂变产物被包容在燃料组件内，仅有很少部分惰性气体、氙和碘进入一回路冷却剂中，而从一回路泄漏进入反应堆厂房的这类放射性气体和挥发物就更有限。在机组停堆后，裂变产物衰变剩余部分的绝大多数在一回路打开之前要经过相关系统和设备进行处理，只有极少的一部分可能释放到工作环境中，加之在机组功率运行期间人员进入反应堆厂房的人次及滞留时间都有限，因此，它们对人员的外照射风险基本可以忽略不计。

只有当燃料组件有破损时，进入一回路中的裂变产物才会明显增加。但是在根据核电站的运行设计，当燃料破损并使一回路中的惰性气体和碘的比活度达到一定量时，必须将机组运行状态后撤乃至停堆，这样也就限制了裂变产物对工作人员和环境

的影响。而进入一回路的一些裂变产物，如  $^{137}\text{Cs}$  和  $^{134}\text{Cs}$  等很容易被专设的净化装置去除掉，因此，它们对工作人员的影响也是基本可以或略的。

## (2) 腐蚀活化产物

在反应堆运行过程中，一回路材料中的铁、镍、钴等通过腐蚀、磨损等方式进入一回路冷却剂中形成腐蚀产物，腐蚀产物以“溶解—沉积”的动态平衡方式存在于一回路系统设备及冷却剂中。在堆芯中被活化的腐蚀产物在堆芯以外的设备表面沉积就导致了堆芯外设备的辐射场的形成，其中活化产物沉积量决定着辐射水平的高低。图 1-1 简略的表示了活化腐蚀产物的形成及迁移过程。

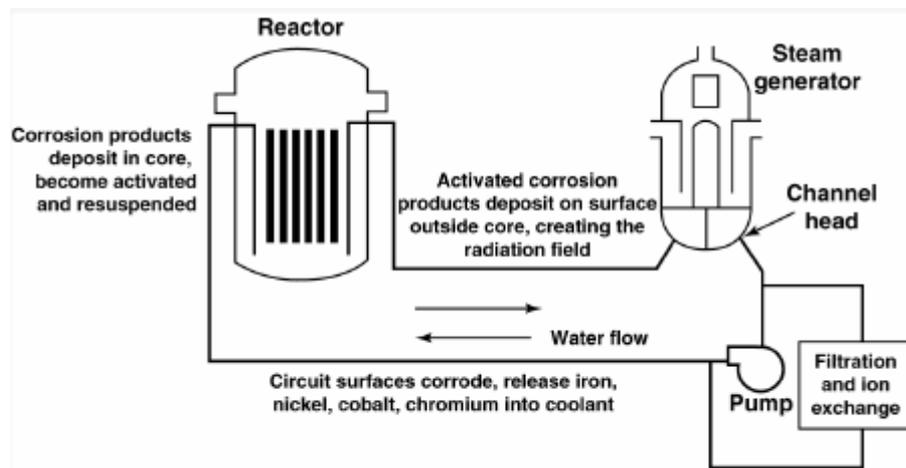


图1-1：PWR一回路腐蚀产物的产生、活化、沉积示意图<sup>[1]</sup>

Figure 1-1: Corrosion Products in PWR Primary Circuit Are Activated in Core and Deposited on Out of Core Surfaces

活化产物种类同反应堆一回路及相关系统和设备材料密切相关。首先，在压水堆核电站一回路系统中大量采用镍基合金材料，其中一回路浸润面积最大的蒸发器 U 型管常用的 Inconel600/690 及 Incoloy800 等合金材料，其主要成分是包括镍、铬、铁等，因此腐蚀产物中必然存在镍、铬、铁等核素。其次，在大多核电站的一回路阀门中，其密封面使用了钴含量约为 60% 的 Stellite 合金，而且钴作为一种杂质普遍存在与一回路的各种合金材料中，因此钴也必然存在于腐蚀产物中。另外，在部分核电站中系统设备中因为工艺的需求，使用了银、铈等金属材料，因此在腐蚀产物中会存在银、铈等核素。

所以，在机组临界后，冷却剂中携带的腐蚀产物在堆芯中被活化，主要活化腐

蚀产物生成的核反应如下： $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ ， $^{60}\text{Co}$ 半衰期为 5.26 a； $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ ， $^{58}\text{Co}$ 半衰期为 71.4 d， $^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$ ， $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 半衰期为 250 d，另外还有 $^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$ 、 $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ 等等。因此在核电站中的活化腐蚀产物一般都有 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 等（见表 1）。

但是每个电站中使用的材料及材料所占比例不尽相同，因此每个电站中活化辐射产物及其比例也就不尽相同。大亚湾及岭澳核电站中因为使用了含有银的控制棒（80%Ag-15%In-5%Cd，简称 AIC），以及表面含 Ag 的 Helicoflex 垫片，因此 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 一直是对集体剂量影响较大的核素之一。德国在 90 年代前生产的主泵，其轴承中使用了金属锑，结果，凡是采用了这类主泵的核电站都会遇到大量的 $^{122}\text{Sb}$ 和 $^{124}\text{Sb}$ 问题<sup>[6]</sup>。我国秦山核电站使用的也是这类主泵，因此 $^{124}\text{Sb}$ 在各种腐蚀活化产物中似乎占了主导地位，成为关键核素。

表 1：压水堆常见活化产物

核素	产生方式	半衰期	主要辐射类型、能量
Co-60	$^{59}\text{O}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	5.26 年	$\gamma$ 0.315(99.7%) 1.173(100%), 1.332(100%)
Co-58	$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	71.4 天	$\beta^+$ 0.474(15.5%) 0.811(99.34%)
Fe-59	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Co}$	45.1 天	$\gamma$ 0.461(51%), $\beta^-$ 0.269(47%) 1.099(56.5%), 1.292(43.2%)
Mn-54	$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	313 天	0.835(100%) X5.415
Cr-51	$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$	27.7 天	0.320(10.2%)
Ag-110m	$^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$	250 天	$\gamma$ 0.529(36%), $\beta^-$ 0.087(61%) 0.658(94.4%), 0.763(22.3%), 0.885(771), 0.937(34.2%), 1.384(24.3%, 1000), 1.505(13.1%),
N-16	$^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$	7.13 秒	$\gamma$ 10.44(26%), $\beta^-$ 4.27(68%) 1.7 6.129(68.8%, 100), 7.115(5%), 2.75(0.76%)
Sb-124	$^{123}\text{Sb}(n, \gamma)^{124}\text{Sb}$	60.2 天	$\gamma$ 0.611 (49%), $\beta^-$ 2.30(21.9%) 0.603 (97.8%)、0.723(11.1%)、1.691(49%)
Sb-122	$^{121}\text{Sb}(n, \gamma)^{122}\text{Sb}$	2.7 天	$\gamma$ 1.417 (67.3%)、 $\gamma$ 1.981 (25.7%) 0.563 (70.6%)

## (2) 核电站的辐射剂量

一般情况下，压水堆核电站 90%左右的辐射剂量是来自活化腐蚀产物。因此辐射剂量同设备内沉积的活化腐蚀产物的种类及量密切相关。同样对于大亚湾及岭澳核电站来说，中子、裂变产物所产生的照射剂量比例较小，它们一般来自机组功率运行时工作人员进入反应堆厂房内进行设备异常处理所受到的辐射，这部分剂量与机组核岛设备的状态密切相关，但一般不超过年集体剂量的 1%，因此大亚湾及岭澳核电站基本上 99%左右的剂量是来自活化产物。因此本文重点是对一回路中的活化产物进行研究讨论。

## 1.2 源项研究的背景

随着辐射防护最优化技术的不断创新和应用，从上世纪末到本世纪初的 20 多年里，世界范围内核电站工作人员的辐射剂量呈明显的下降趋势（见图 1-2）。但由于能源供需矛盾问题日益突出并不断尖锐化，人们对核能发电也提出了更高的要求，例如公众期望核能发电应有更高的能力负荷因子，大修工期应该尽可能地缩短，发电成本应该控制在合理的范围内等等。因此，核电站辐射防护工作者在新形势下将面临更多的挑战，尤其是随着核电站单个换料运行周期的不断延长、堆芯内辐射产物的不断累积、设备老化所带来的安全等级下降等问题日益凸现，以及政府鼓励大力发展核电、环境保护等许多因素的影响下，辐射防护工作者需要不断地积极探索新技术和新方法来降低电站工作人员的辐射剂量，以适应新形势下核能发展的需求。

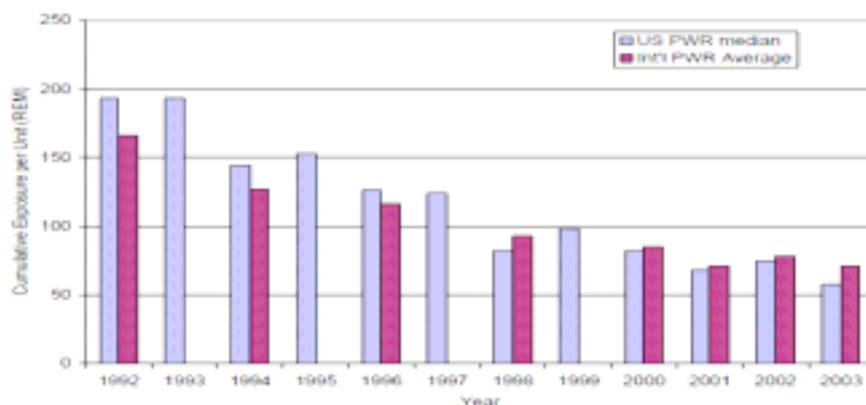


图 1-2：美国及世界平均 PWR 机组的辐射剂量变化趋势<sup>[1]</sup>

Figure 1-2: Comparison of US and International PWR Exposure Data<sup>[1]</sup>

我国国内目前在役运行的大亚湾核电站、岭澳核电站,秦山一期、秦山二期以及田湾核电站均属于压水堆堆型,建设的岭澳二期、阳江核电站以及秦山二期核电站的扩容工程等也都是压水堆核电站。而从上一节可以看到,在压水堆核电站中辐射剂量90%以上来自于一回路系统中的活化腐蚀产物,因此控制人员辐射剂量的方法中最直接有效的方法就是控制一回路系统中腐蚀产物的生成、迁移、活化,以及活化的腐蚀产物的有效去除,而此正是辐射源项控制所研究的重点。

大亚湾、岭澳核电站分别在1994年及2003年投入运行,自投运以来机组的平均辐射剂量也呈现下降趋势,但是对比国际平均水平来看,下降幅度没有国际上压水堆核电站平均幅度那么明显,而且辐射剂量在近几年还略有反弹。另外,大亚湾、岭澳核电站也在辐射源项控制方面付出了很大努力并进行了一些尝试,以求将电站的辐射水平控制在可合理达到的尽可能低的水平。但因为成本、安全等各方面的原因,机组不可能进行大的改造工作及一些冒失的尝试,因此吸收、采用国外的一些成熟经济的源项控制方法来降低辐射源项是电站的首要选择。

但是在不同的核电站中因为系统设备的差异,机组运行状态及运行工艺的或多或少的差别,一回路中辐射源项也就不完全相同,因此对辐射源项的调查研究就成为源项控制技术应用的基础。

### 1.3 源项控制的国外状况

反应堆辐射源项的调查研究最早开始与上世纪六十年代。从上世纪80年代开始,以EPRI、西屋、通用电器(GE)等为代表的机构都陆续加入了核电站源项控制方面的研究。根据不同时间段所研究的重点及取得的成果,大致将核电站源项控制研究分为三个阶段:

第一阶段主要是从在上世纪60年代到80年代,此阶段各机构研究的重点在材料在一回路冷却剂环境中的腐蚀特性研究。该阶段主要的成果一是试验确定了在一回路系统环境的更耐腐蚀的各种设备材料;二是为了控制设备材料的腐蚀而发展的一回路水化学控制技术。其中通过提高一回路冷却剂中氢浓度水平,来抑制因为水的辐照分解,降低因辐照分解产生的氧化物对材料的腐蚀;以及通过在采用pH值控制或添

加稀有金属的方法,来降低氢浓度升高使放射性核素迁移的负效应是该阶段的代表技术。

第二阶段从 80 年代开始到 90 年代,此阶段研究的重点在于腐蚀产物迁移控制及去除技术。研究的方向主要包括材料性能、腐蚀产物的过滤去除、离子交换、设备表面的预处理、双氧水的应用、高温化学控制等。其中为研究腐蚀产物迁移规律及特性,以及不同机组之间的辐射水平的差异及原因辐射监测为例,各研究机构都规定了电站辐射水平的标准测量程序(The Standard Radiation Monitoring Program — SRMP)。特别是以西屋为代表,其在 1978 年就开始在其设计建造的压水堆上推行 SRMP(图 2)。在此阶段一回路 PH 值控制技术、设备表面的电解法抛光等预处理技术、锌注入技术及停堆过程的化学控制技术得到了发展。到 90 年代中期,以数据的收集分析及新技术研究为主的阶段逐渐开始向新技术的使用及推广阶段发展。

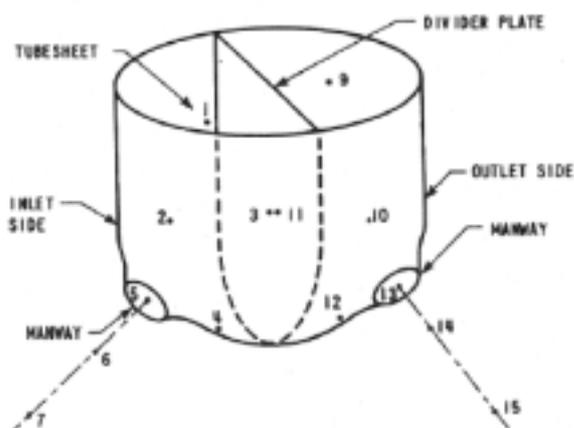


图 1-3: 西屋公司蒸发器一次侧 SRMP 测量点示意图

Figure 1-3: Westinghouse Steam Generator SRMP Location Map

第三阶段是从在 90 年代开始,以 EPRI 为代表正式开始新一代源项控制技术的实际应用试验。其最有代表性的实验技术是一回路冷却剂中注锌以及燃料的超声波去污,控制腐蚀活化产物的产生去除,来达到控制一回路冷却剂中辐射源项的目的。目前在世界范围内已经有较多的电站进行了该类新技术的应用,但大多电站还处于观望状态,整体上处于应用推广阶段。

现阶段,在 NEI、INPO 及 EPRI 的直接支持下,各研究机构正在联合执行一项辐射防护控制的战略计划(RP2020),其目的就是为了使核电站中辐射剂量保持目

前的整体向好的趋势。对于辐射项源项控制，其推进的重点除了在新技术的研究方面外，还致力于成熟控制技术的推广应用及效果评估，其典型源项控制的流程如图 3 所示<sup>[1] [2]</sup>。

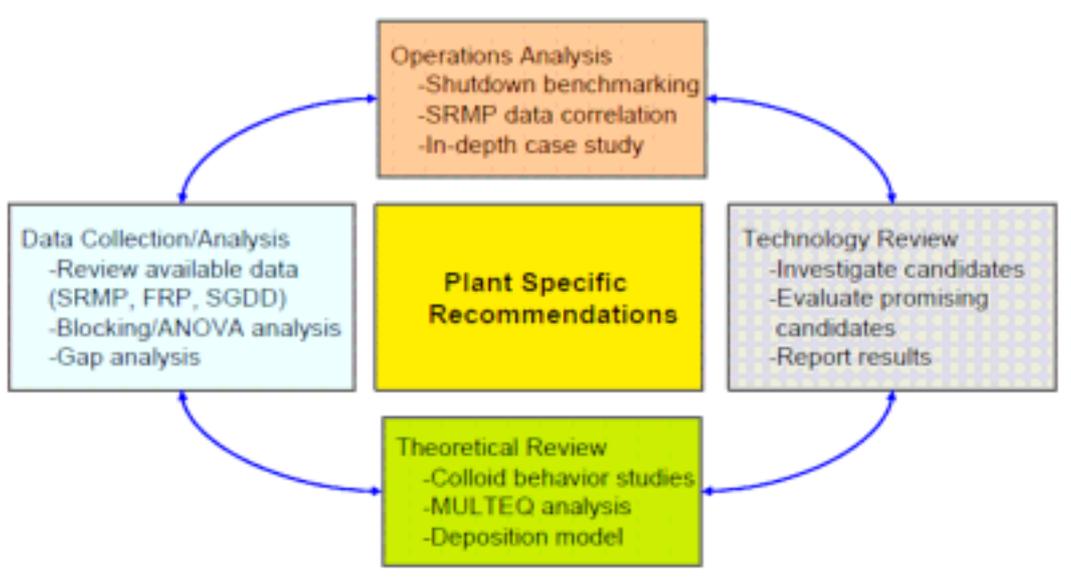


图 1-4：PWR 电站源项控制流程<sup>[2]</sup>

Figure 1-4: Strategy for PWR Source Term Reduction Program<sup>[2]</sup>

#### 1.4 源项控制的国内状况

国内从秦山核电一期 1991 年 12 月 15 日并网发电以来已经有接近二十年的运行历史，但对于国外核电四十多年的发展历史来说，国内在核电的设计、设备的制造等各方面同国外的先进技术都还有一定的差距。就辐射源项的控制研究来说，由于我国核电事业起步较晚，专业技术职业化程度较低，机组类型不统一，辐射防护专业相关最优化技术的研究没有形成专业化和规模化，相关的技术和实验手段也相对落后。

从整体来看国内在源项控制的总体进展特点是：

(1) 同国外源项控制研究相比，国内缺乏专门的研究机构对核电站的辐射源项进行调查研究，电站源项控制技术的应用缺乏理论支持。

(2) 各个核电站堆型不统一，国内同行比较缺乏代表性及动力。

(3) 对国际同行缺乏了解，就比如：大亚湾核电站的 SRMP 测量图直接延用

EDF 的测量图 (如图 5: 大亚湾核电站 RCP 系统辐射指数 SRMP 测量点), 但是测量数据缺乏同核电同行的比较。

(4) 电站缺乏源项控制研究及应用推广的专业人员, 对采取的源项控制措施缺乏评价, 而单独电站缺乏必要的资源及能力。

(5) 数据的采集不规范, 对数据没有进行整体评估, 对辐射源项状态没有深入的调查研究。

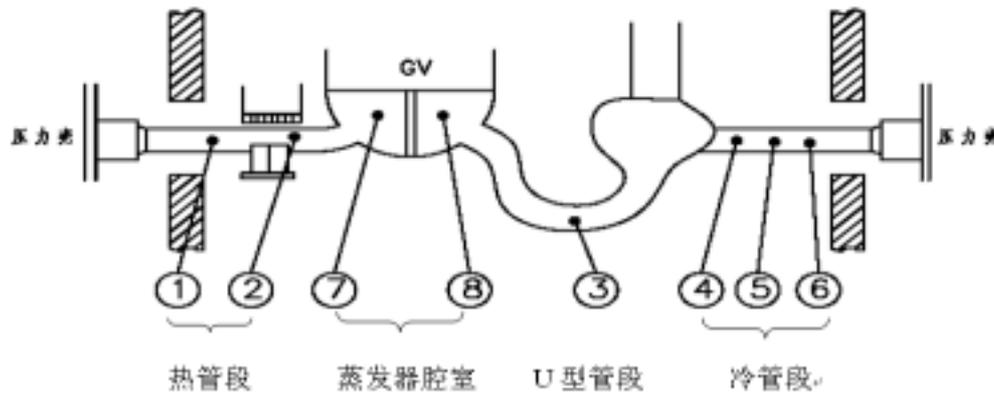


图 1-5 : RCP 系统辐射指数测量点

Figure 1-5: RCP System Radiation Index Measurement Points

因此就目前国外源项控制的几个阶段来说, 国内基本处于国外各阶段源项控制技术应用的消化、应用、吸收、总结阶段, 对国外源项控制新技术还处于调查了解阶段, 对未来的控制技术的发展没有整体的规划。

## 1.5 论文研究的意义

目前国际、国内的核电同行的交流日益密切, 降低核电站的辐射剂量成为各个电站的运行业绩的表现形式之一, 但目前单方面从工作、人员的优化已经难以达到降低剂量的预期效果, 而辐射源项控制正是降低辐射剂量的最佳方法之一。但是因为堆型的不同及使用材料的差异, 辐射源项在电站之间还是有比较明显的差别, 因此对电站辐射源项调查就有现实意义, 一是可以对已经采取的改善源项的措施进行科学合理的评价; 二是对电站可能采纳的或即将采取的措施提供理论及数据的支持; 三是在调查中找到自己的源项特点, 进行针对性的改进。

本论文将从实践调查入手,对大亚湾核电站、岭澳核电站一回路及相关的系统设备的辐射源项进行分析,对辐射源项控制措施进行研究,为改进电站的源项控制,降低核电站运行中的个人及集体剂量提供参考性建议。

## 第二章 辐射源项的调查

### 2.1 辐射源项调查范围、方式及设备

#### (1) 调查的范围：

一般情况下,压水堆核电站中 80—90%左右的辐射剂量来自换料大修,而换料大修的辐射剂量基本上全部来源于一回路相关的系统设备检修。因此本文重点调查了大亚湾核电站及岭澳核电站在机组换料大修期间的一回路及相关系统辐射源项。

对系统设备的材料进行调查,确认活化腐蚀产物的主要来源。

#### (2) 调查方式：

辐射源项调查主要通过如下的几种方式进行,分别是：

a) 环境  $\gamma$  谱分析 :使用便携式 NaI 闪烁体  $\gamma$  谱仪对一回路相关系统所处区域进行测谱分析,确定对人员辐射主要的核素及大致比例。

b) 擦拭取样的  $\gamma$  谱分析 :通过对开口设备的内表面进行擦拭取样,通过高纯锗  $\gamma$  谱仪较为精确的分析设备管线中的腐蚀活化产物的沉积情况及规律。

c) 系统设备管线的辐射剂量率连续测量 :通过在系统管线的固定位置布置剂量率测量仪表,测量设备中放射性物质随机组状态沉积及迁移的规律。

d) 水中放射性核素的测量分析。

e) 辐射指数测量 :对一回路系统通过确定标准测量点,在每次大修的同一机组状态下或者在同一大修不同机组状态进行辐射测量,确认系统辐射水平的变化规律。例如图 2-1 中所示的是 RRA 系统的测量点,测量点基本反映一段管线的辐射水平,通过整体的测量加权计算系统的辐射水平。

f) 区域辐射指数测量 :对厂房内主要的腐蚀区域进行定点测量,通过加权计算,确定厂房内的辐射水平高低。通过区域辐射指数测量可以进行机组之间的比较,也可以大致确定同一机组在不同时段的辐射水平变化趋势。

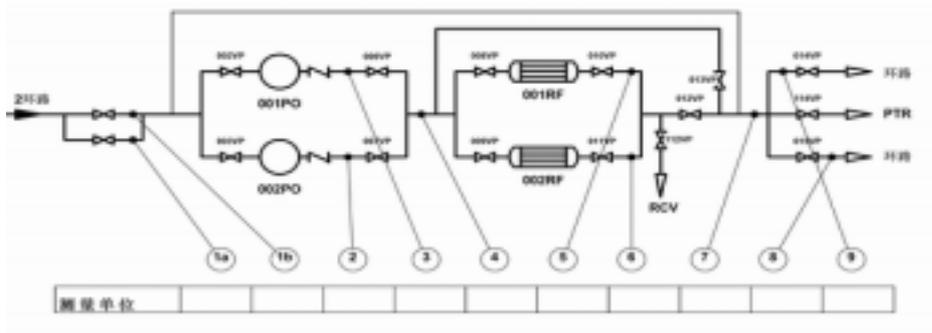


图 2-1：RRA 系统辐射指数测量图

Figure 1-5: RRA System Radiation Measurement Points

### (3) 主要的设备—— $\gamma$ 谱仪说明

用于核素调查的便携式  $\gamma$  谱仪有两种，一种为 NaI 闪烁体  $\gamma$  谱仪，一种为高纯锗  $\gamma$  谱仪，两者均为美国堪培拉公司产品。谱仪的刻度使用混合源，其中 NaI 闪烁体使用  $^{137}\text{Cs}$  和  $^{60}\text{Co}$  源进行刻度，高纯锗  $\gamma$  谱仪使用包含 7 种核素的混合源进行刻度，7 种核素的射线能量覆盖范围 88.03---1332.5keV。

**能量刻度：**通过测量多道谱仪显示的峰道址与相应能量测量，建立道址与能量的对应关系。

**效率刻度：**通过将标准源放置于探头前固定距离处，测量各能量核素的标准活度同谱仪的测量计数的关系并绘制效率曲线。

核素活度指数的估算通过如下公式计算：

$$\text{样品核素的活度} = S / \epsilon$$

其中 S 为核素峰的净面积， $\epsilon$  为根据效率刻度曲线中对应能量的探测效率(%)。

## 2.2 一回路系统设备的材料

大亚湾核电站是法国电力公司 (EDF) 公司建造的最后两台 90 万千瓦机组，在材料的选则上已经考虑了 EDF 的运行经验。岭澳核电站基本上是大亚湾核电站的翻版，因此在一回路的材料使用上两点站基本相同。本节主要的介绍了对辐射源项影响较大的材料及使用范围。

### (1) InconeL600/690 合金材料的使用

在压水堆核电站中，蒸发器 U 型管的浸溶面积约占一回路总面积的 70%，蒸发

器传热管的材料对机组的辐射源项的影响巨大。EDF 试验表明因为 Incone690 合金比 Incone600 型合金提高了铬含量而降低了镍含量，在压水堆电站 PH 值在 6.8-7.5 的硼酸和锂的冷却剂环境中 Incone690 合金比 Incone600 型合金的腐蚀速率要低 1.9-2.3 倍。

EDF 早期的核电站中蒸发器 U 型管曾使用 Incone600 型合金材料，在后来的机组中用 Incone690 对 Incone600 用进行了替代。大亚湾核电站中蒸发器管板和隔板表面堆焊了 Inconel600，U 型管使用了 Incone690。表 2 列举了 U 型管材料的组成。

表 2：U 型管常用材料的组成成分

元素	组成比例		
	Inconel600	Inconel690	Incoloy800
Fe	6.0-10.0	7.0-11.0	balance
Ni	> 72.0	> 58.0	32.0-35.0
Cr	14.0-17.0	28.0-31.0	20-23
Mn	1.0	0.50	0.4-1.0
Cu	0.50	0.50	0.75
Co	0.015-0.10	0.015-0.10	< 0.10
C	0.01-0.05	0.015-0.025	0.03

## (2) Stellite 合金材料的应用

钴在 Stellite 合金中钴的含量约为 60%，Stellite 合金被认为是最合适的耐磨损材料而被大量使用。大亚湾及岭澳核电站平均每台机组一回路及辅助回路上约有 1500 个阀门使用 Stellite 合金作为密封面材料，特别是一回路的安全阀和逆止阀的密封面上，都堆焊了 Stellite 合金。另外主泵轴瓦、轴套以及控制棒导向筒等也使用了 Stellite 合金。

## (3) 含银材料的应用

表面含 Ag 的 Helicoflex 垫片。因为银有良好的延展性、导电性、导热性和化学稳定性，在密封圈上镀银能起到好的密封作用，因而 Helicoflex 垫片在核岛系统得到了广泛的应用。大亚湾核电在一回路相关的系统中经过粗略的统计共有 300 多个含 Ag 的 Helicoflex 垫片。

大亚湾及岭澳核发电机组中的控制黑棒吸收材料为银—铟—镉，重量百分比分别为 80%、15%和 5%Cd (简称 AIC)。

#### (4) 其它材料的应用

除上述的几种主要材料外，大亚湾一回路相关的主要部件材料如下：

- 燃料包壳材料为锆 4 合金。
- 一回路管道、堆内构件，燃料之间的星型架等的主要材料为奥氏体不锈钢 (表 3 列举了反应堆采用的不锈钢的组成)。
- 含锑的材料有：二次中子源使用的锑/铍芯块，锆合金包壳中锑杂质，支座以及泵的轴承。

表 3 反应堆采用的奥氏体不锈钢

ATST 型号	C(最高%)	Cr(%)	Ni(%)	其它元素
304	0.08	18.0 - 20.0	8.0 - 11.0	—
304L	0.03	18.0 - 20.0	8.0 - 11.0	—
309S Nb	0.08	22.0 - 26.0	12.0 - 15.0	Nb(最小 8 × C)
316	0.10	16.0 - 18.0	10.0 - 14.0	Mo(2.0—3.0%)
316L	0.03	16.0 - 18.0	10.0 - 14.0	Mo(1.75—2.5%)
317	0.08	17.0 - 19.0	9.0 - 12.0	Nb(最小 10 × C)

### 2.3 一回路相关系统辐射源项调查结果

从测量的结果来看，每台机组因为系统的状态，设备的检修以及运行条件的不同而略有差别，就是同一台机组在不同的运行周期，源项也会略有不同，但是从四台机组调查结果总的分析来看，腐蚀活化产物种类一致，沉积也具有大致相同的规律。

本文重点选取了(但不限于)岭澳第 1、2 等几个循环周期的大修及大亚湾 1、2 号机组第 8、9、10 个循环大修周期的源项调查数据对 RCP 系统及 RRA 系统的源项进行分析总结。机组的选取主要是考虑了岭澳第一、第二大修代表的是机组在起始循环周期的源项状态，而大亚湾 1、2 号机组代表的是多个循环后的机组源项状态，两者之间的差异在一定程度上反映了机组随着运行周期的延长的变化趋势。对于化容控制系统(RCV)及部分辅助系统来说，大部分系统设备布置在核辅助厂房，也是日常剂量的主要来源，因此对 RCV 系统源项的调查没有限定时间和机组。

### 2.3.1 反应堆冷却剂系统(RCP)中的辐射源项

从环境及擦样样品的  $\gamma$  能谱测量的结果来分析,应堆冷却剂系统中的辐射源项沉积具有如下的规律:

- 在设备及管线内表面进行取样测量分析,沉积物主要以  $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$  为主,两者所占的比例达到 80%—90%,其它可测到核素主要有  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{58}\text{Fe}$  等。
- 在机组的最初换料周期中,沉积活化产物的取样样品中以  $^{58}\text{Co}$  为主,份额最高可达到 95%左右。
- 机组在多个换料循环周期后  $^{60}\text{Co}$  份额有增加,从大亚湾电站第八、九、十次大修取样测量数据来看, $^{60}\text{Co}$  在管线中的份额占到了 10%-20%左右, $^{58}\text{Co}$  比例约在 70%—80%,其它核素的比例约 10%。
- 但是在阀门等设备管线较为复杂的位置的测量显示  $^{60}\text{Co}$  所占份额更高,平均达 40%—60%左右。 $^{58}\text{Co}$  的比例在 30%—50%,其它核素的比例平均在 10% 以内。例如图 2-2 测量谱为 D210 阀门检修研磨取样测量谱。其中  $^{60}\text{Co}$  份额占到了约 65%, $^{58}\text{Co}$  份额占到了 15%左右, $^{54}\text{Mn}$  份额约 16%左右,而  $^{51}\text{Cr}$  等其它核素所占比例约为 3%。

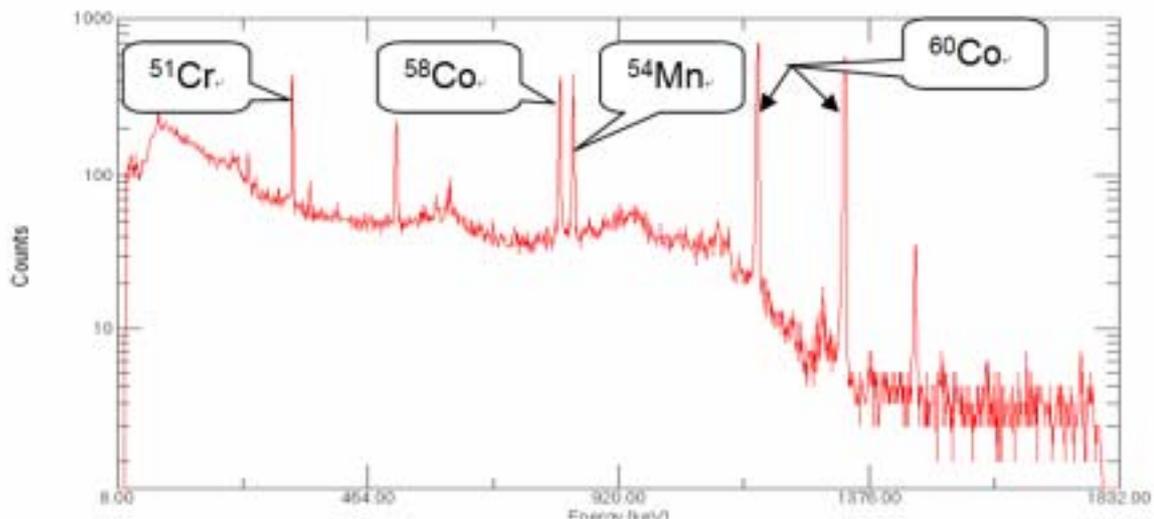


图 2-2 : D210 大修阀门研磨样品  $\gamma$  能谱图

Figure 2-2: Sample's spectral of the valves grinding debris during D210 outage

- 从环境的测量来看对人员剂量影响较大的也是  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{58}\text{Co}$ ，其中  $^{60}\text{Co}$  因为易沉积在管线复杂区域，主要影响为大修的阀门检修及相关的活动。
- 从 D210 大修一回路氧化净化的数据来看(图 2-3)，一回路水中有最大份额的核素为  $^{122}\text{Sb}$  及  $^{124}\text{Sb}$ ，但从后续低水位期间设备的擦拭样品中测量中几乎没有  $^{122}\text{Sb}$ 、 $^{124}\text{Sb}$  两种核素的踪迹。从其它的大修中擦拭样也证实， $^{122}\text{Sb}$  及  $^{124}\text{Sb}$  几乎没有沉积，在大修中对人员剂量的影响有限。

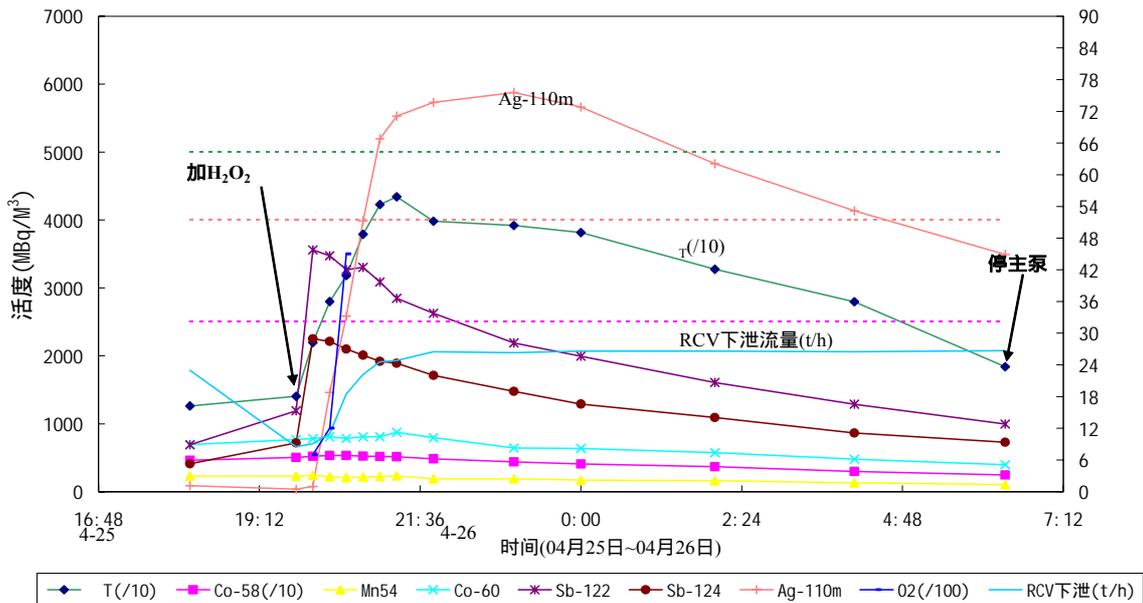


图 2-3 : D210 大修氧化峰核素浓度变化

Figure 2-3: Radiological trends during forced oxidation in D210 outage

### 2.3.2 余热排出系统(RRA)中的核素沉积

余热排出系统因为只有在蒸发器退出运行后用于堆芯的余热排出，其运行时直接连接 RCP 系统，腐蚀活化产物的沉积规律同 RCP 系统类似。其中在 L101 大修时对 RRA005VP 阀门取样测量，结果发现主要核素为  $^{58}\text{Co}$ （见图 2-4）。在 D209/109 大修 RRA 管线改造期间，对两机组的管线内部进行擦样分析表明  $^{58}\text{Co}$  比例约为 80%， $^{60}\text{Co}$  的比例约 10%，另外 10%为  $^{110m}\text{Ag}$ 。

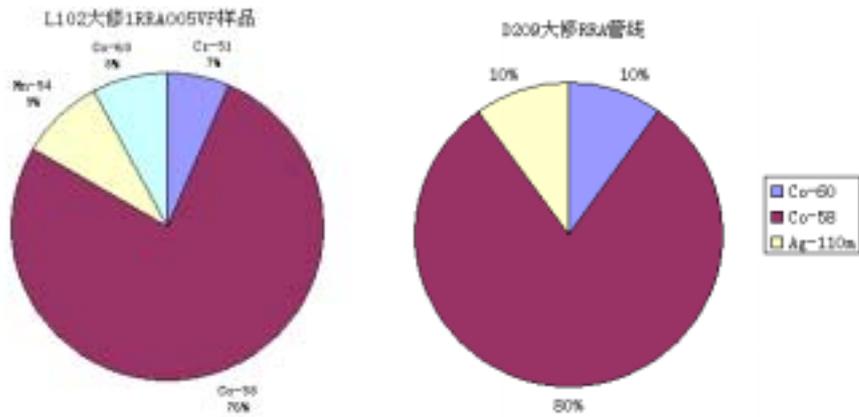


图 2-4：不同大修 RRA 取样的测量谱

Figure 2-4: nuclides of the RRA samples during different outage

但同样对管线比较复杂区域取样直接测谱，结果也同 RCP 系统类似，主要为  $^{60}\text{Co}$ ，有少量的  $^{58}\text{Co}$ ，因为测量时 RRA 管线内有水，在能谱中可以看到  $^{124}\text{Sb}$ ，典型的能谱见图 2-5：

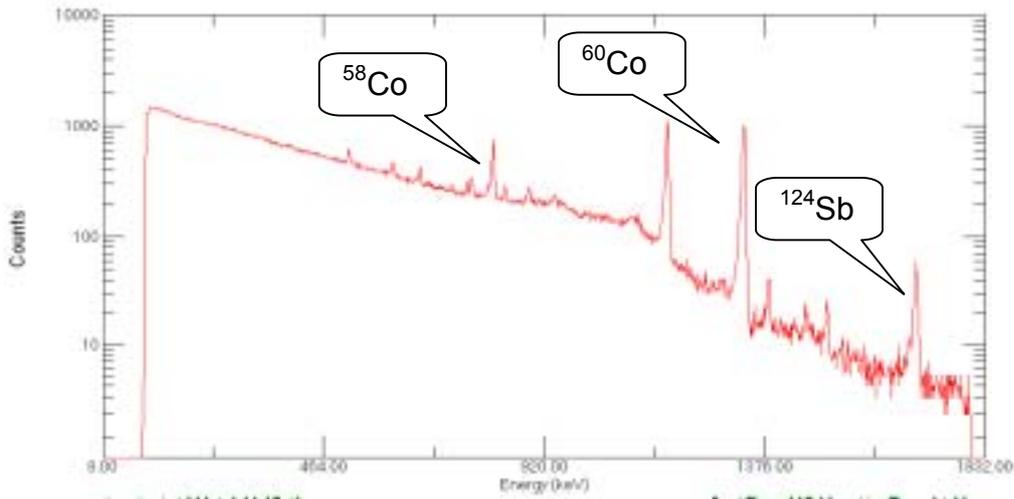


图 2-5：R184 RRA 热交换器间环境谱

Figure 2-5: Energy spectral of the RRA heat exchanger room (R184)

### 2.3.3 化容控制系统 (RCV) 中的核素沉积

大亚湾、岭澳四台机组 RCV 系统目前主要沉积核素为  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ，其中一些低温区域  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  对剂量率的贡献大于 80%，特别是主泵轴封水供应管线等的剂量贡献率几乎达到 100%，而下泄管线等一些温度较高部分  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  对剂量率的贡献也一般大于 50% (见图 2-6)。

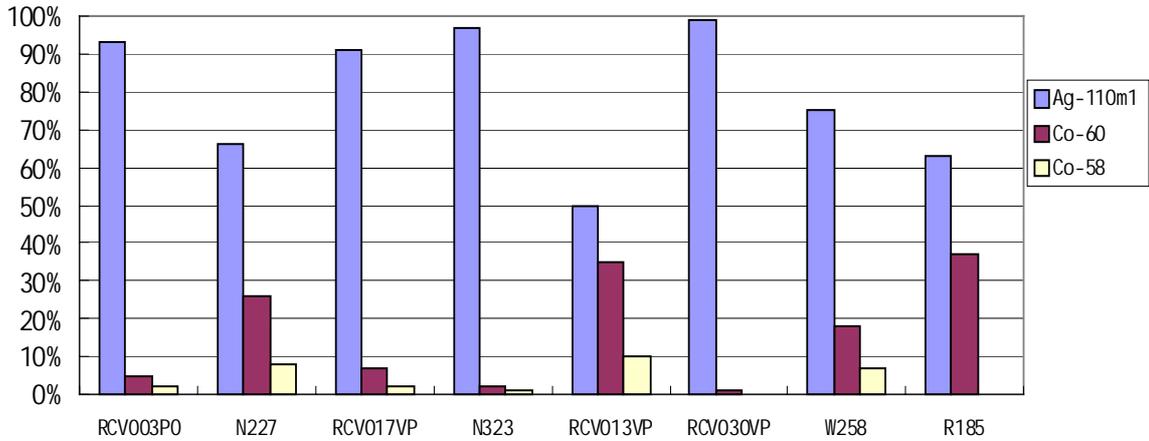
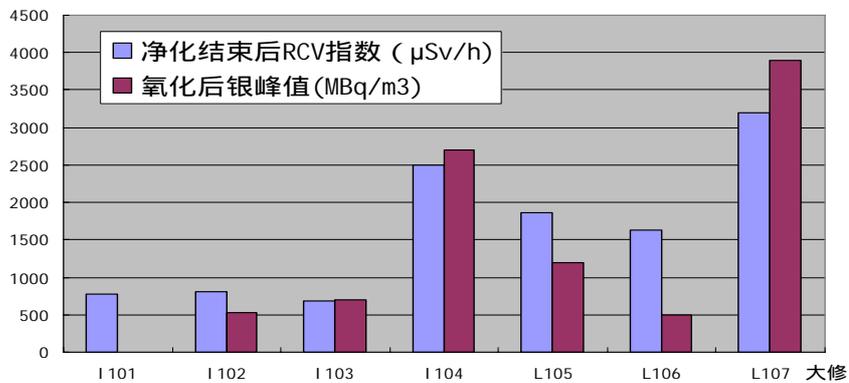


图 2-6 : D209 大修后 RCV 系统能谱测量结果

Figure 2-6: Energy spectral of the RCV samples during D209 outage

从多年的运行经验来看，一般  $^{110m}\text{Ag}$  沉积在管线上后就不再脱落，现场剂量率只有通过衰变降低。图 2-7 以岭澳一号机组为例，从图中可以看出，RCV 的辐射指数同氧化净化中的银的浓度峰值密切相关，但因为  $^{110m}\text{Ag}$  沉积后不再脱落，因此在下一个换料周期中尽管银的浓度已经较低，但 RCV 的辐射指数还是维持在较高水平。

图 2-7 : RCV 辐射指数同氧化中银  $^{110m}\text{Ag}$  浓度的变化关系Figure 2-7: relationship between the RCV radiation and  $^{110m}\text{Ag}$  in the water

### 2.3.4 其它辅助系统

其它辅助系统如 PTR、TEU 等系统，目前也多是受  $^{110m}\text{Ag}$  的影响。原因是因为多次发生 9TEP006DE 银释放而导致系统受到  $^{110m}\text{Ag}$  污染的影响，目前管线中的  $^{110m}\text{Ag}$  基本还没有消除。例如：D209 大修后因为 9TEP006DE 银释放导致

2PTR001PO 受到  $^{110m}\text{Ag}$  的污染。(见图 2-8)。

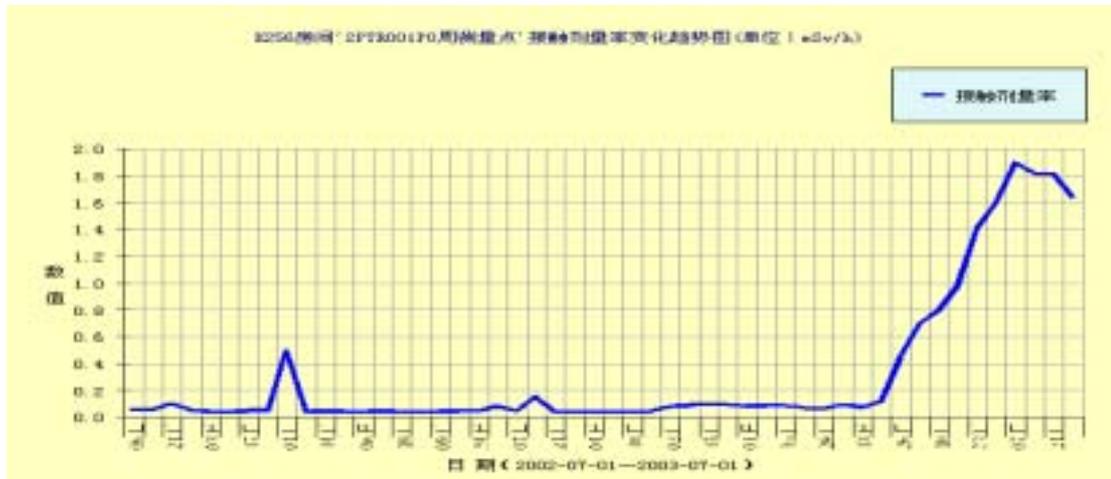


图 2-8 : D209 大修后 PTR001PO  $^{110m}\text{Ag}$  污染后剂量率变化趋势

Figure 2-8: Radiation trend of the PTR001PO contaminated by  $^{110m}\text{Ag}$  after D209 outage

## 2.4 各辐射核素主要影响范围分析

### 3.3.1 $^{60}\text{Co}$ 的主要影响

从测量结果来看,  $^{60}\text{Co}$  较少均匀沉积在设备的管线上, 而主要是以杂质的形态存在, 较容易沉积在排污管线、阀门等在杂质容易沉积区域, 而且  $^{60}\text{Co}$  的射线能量高, 照射率常数大, 显著的特点是对其沉积区域管线的屏蔽效果差。大亚湾及岭澳核电站主回路管线的布置基本上完全相同, 因此杂质容易沉积区域也基本相同, 通过电站多年的运行经验, 基本确定了每次大修中都有杂质沉积的固定区域, 为此电站在每次大修中都制定相关管线冲洗计划, 以去除当中的杂质。

根据取样测量结果, 通过不同核素的 $\gamma$ 照射率常数进行估算, 1 克  $^{60}\text{Co}$  的放射性活度可达 1,132 居里, 如果作为点源来计算的话(直径约为 6 毫米小球), 1 米远距离的辐射水平可达到 15 Sv/h。另外  $^{60}\text{Co}$  的半衰期为 5.26 年, 具有明显的累积效果。而且其活化主要以检修“碎屑”形式活化, 因此极易形成辐射“热点”, 在阀门检修中剂量的 60%—80%是由  $^{60}\text{Co}$  贡献。从 EPRI 的报告中可知, 在世界范围内 PWR 电站  $^{60}\text{Co}$  的剂量贡献在 70%左右<sup>[1]</sup>。而对于大亚湾及岭澳核电站因为  $^{110m}\text{Ag}$  剂量贡献比较大, 使  $^{60}\text{Co}$  剂量贡献比例略小, 但从电站总的剂量中估算  $^{60}\text{Co}$  剂量贡献约

50%。

而 $^{60}\text{Co}$ 的另外一种存在形式是“热粒子”，其主要是由一回路设备的司特立合金腐蚀、磨蚀或研磨的碎屑，经过堆芯活化产生。这种合金的颗粒以任何方式（腐蚀脱落、维修研磨碎屑残留在系统中等）进入堆芯， $^{59}\text{Co}$ 与一个中子结合将产生活化产物 $^{60}\text{Co}$ 。

在2002年D108大修卸料结束，反应堆水池排水后，在水池底部放射性“热粒子”，仪表的测量结果显示仍达到4Sv/h。在去除热粒子的过程中，工作人员付出了不小的剂量代价。特别是在放入水泥桶进行固化处理时，在铺了10层铅皮，加入的铅屏蔽量高达1.2吨，才基本达到水泥桶表面2 mSv/h的要求。

### 3.3.2 $^{58}\text{Co}$ 的主要影响

从测量结果来看， $^{58}\text{Co}$ 一般是均匀的沉积在设备的管线上，广泛存在于各系统设备中，其中在管线平直不易腐蚀产物沉积的区域， $^{58}\text{Co}$ 所占的比重较大。

根据取样测量结果，尽管 $^{58}\text{Co}$ 比例不小，但是因为 $\gamma$ 照射率常数比较小，半衰期只有71.4天，在反应堆中的生成量同衰变量很快会达到平衡，总量不会积累很高，另外经过管线本身的屏蔽作用后，对工作人员的辐射剂量影响不及 $^{60}\text{Co}$ ，另外在检修现场通过屏蔽，比较容易降低 $^{58}\text{Co}$ 的 $\gamma$ 射线影响，通过对剂量的粗略估算目前两电站 $^{58}\text{Co}$ 剂量贡献率约在20%—30%左右。

### 3.3.3 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 的主要影响

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ 胶体（在0.02-0.06 $\mu\text{m}$ ）似乎是污染回路的主要形态。目前电站的过滤器（孔径约0.45 $\mu\text{m}$ ）和对其去除的效率极低。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 往往都是在一回路的氧化过程中产生后，只能在净化过程中通过冷却剂流经过滤器、除盐床和沿途的设备时通过机械截留的方式来消化这些 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 胶体。特别是回路温度较低的RCV、REN热交换器等是 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 吸附的主要区域。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 沉积在回路的温度较低部分以后，就会较稳定地存在于设备管道中，在以后的机组运行中通过核素的正常衰变来减少放射性影响。从测谱结果的对比分析可看到，相同状态下RRA管线的主要辐射核素是 $^{58}\text{Co}$ 而RCV管线的主要辐射核素是 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 也说明 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 较易沉积在温度较低区域管线中<sup>[16]</sup>。

但在 D209 大修中及大修后  $^{110m}\text{Ag}$  沉积规律是逐渐积累式的增长，周期长达三至四个月（增长曲线参照图 6），增长幅度也是前所未有的。在机组的正常运行期间，一回路状态较为稳定，回路中不大可能大量释放  $^{110m}\text{Ag}$ ， $^{110m}\text{Ag}$  产生的最可能的原因可能是 TEP006DE 投运时因水质状态改变导致除盐床中机械吸附  $^{110m}\text{Ag}$  的释放。像 EDF 就有在 TEP 除盐床效率试验时，因入口水 pH 的变化而释放出  $^{110m}\text{Ag}$  的事件。大亚湾核电站在这方面也是有经验教训的。

例如在 D208 大修中，除盐床 9TEP006DE 切换运行时，大量释放  $^{110m}\text{Ag}$ ，造成主回路、化容系统、余热导出系统以及废液系统放射性水平大幅上升，平均增幅 2 倍左右。同样在 D208 大修期间，在投入硼回收系统除盐床 9TEP006DE 对主回路净化前，运行人员例行对该除盐床进行硼饱和处理，硼饱和冲洗水进入硼回收系统罐 9TEP008BA 回收后，该罐中水的放化分析发现放射性水平高，其中主要是  $^{110m}\text{Ag}$ 。 $^{110m}\text{Ag}$  多次释放事件也从侧面说明  $^{110m}\text{Ag}$  在除盐床存在形态特殊性，当回路的状态变化时， $^{110m}\text{Ag}$  就可能大量释放。

目前  $^{110m}\text{Ag}$  释放沉积的机理还不是很清楚，特别是在大修氧化过程中，银的峰值出现时间较晚且规律性不强。初步判断释放同水质环境、PH 值等的变化有关，目前这方面的研究还在进行中。

在 D211 大修中选择了 RCP、RCV、RRA 和 N215 场所进行了连续监测，结果见图 2-9。N215 主要设备为 RCV 热交换器（D1RCV002RF 和 D1RCV003RF），可以看出该房间的峰值较 RCV 下泄管线以及 RCP、RRA 的峰值晚出现约 8 个小时，从加双氧水开始到其后的约 11 个小时，N215 房间的剂量率在快速上升（为开始的 3 倍），说明  $^{110m}\text{Ag}$  在此期间快速沉积。

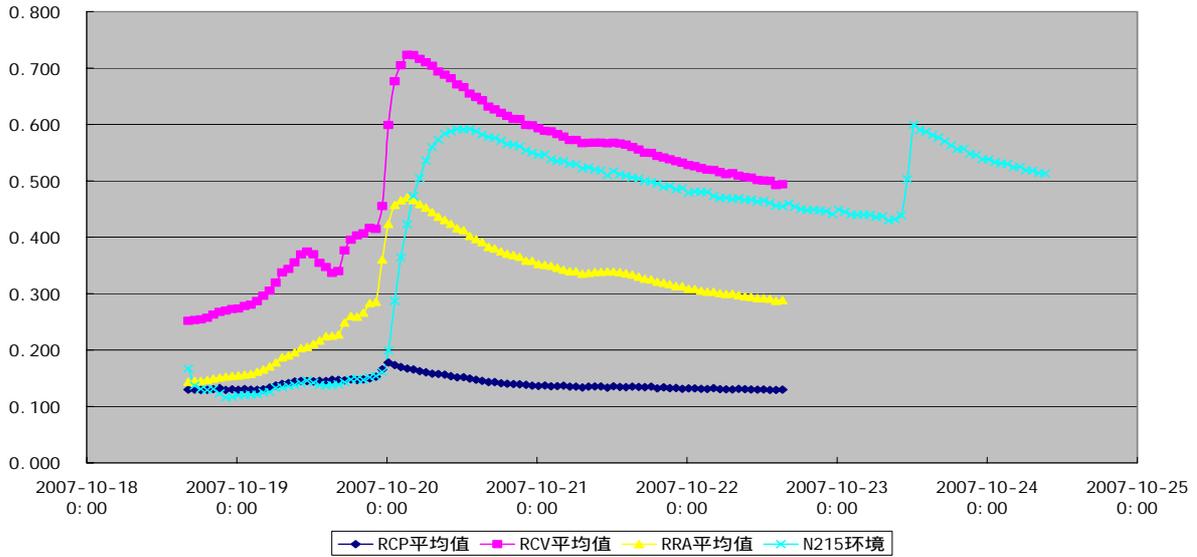


图 2-9 : D211 大修 RCP、RCV、RRA 和 N215 场所连续监测

Figure 2-9: Radiation trend of the RCP/RCV/RRA/N215 during D211 outage

$^{110m}\text{Ag}$  因为在 RCP、RRA 中的沉积量很少，对大修 RCP、RRA 等系统的设备检修影响不大，但对于 RCV 系统，在人员经常活动的区域  $^{110m}\text{Ag}$  剂量贡献比例在 90% 以上。对于 PTR、TEU 等系统，因为受  $^{110m}\text{Ag}$  的污染，剂量贡献率也在 50%-90% 之间。总体来说目前大亚湾、岭澳核电站中  $^{110m}\text{Ag}$  剂量贡献率在 10%—20% 左右。

### 3.3.4 其它核素的影响

相对于前面的三种活化核素外，其它种类的活化产物对辐射剂量的影响就比较小。其中  $^{51}\text{Cr}$  在设备中含量较高，但因为其  $\gamma$  射线能量低，极易被阀门或管线自身屏蔽，对工作人员的辐射剂量也就比较小，其他的核素如  $^{124}\text{Sb}$ ，在设备种沉积的量很少，对检修工作影响也较小。经粗略的统计，大亚湾、岭澳核电站中由  $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{124}\text{Sb}$ 、 $^{54}\text{Mn}$  等的剂量贡献小于 10%。

## 2.5 本章小结

本章通过对系统设备的取样测量数据进行分析，研究了大亚湾、岭澳核电站中辐射源项主要的种类、影响范围及在系统设备中的沉积规律，并探讨了各种辐射源项对集体剂量的影响。在下一章中，我们将从源项控制的实际应用出发，研究辐射源项控制主要方法及技术。

## 第三章 辐射源项控制的研究及应用

### 3.1 辐射源项的源头控制

#### 3.1.1 减少材料中的钴含量

##### (1) 方法

$^{60}\text{Co}$  的活化源头有两方面：一是一回路设备中钴基合金 Stellite 的使用，二是一回路不锈钢等材料中的钴杂质。而 Stellite 合金的的腐蚀、磨蚀、检修研磨等是一回路  $^{60}\text{Co}$  的主要源头。控制系统设备中的钴含量是降低  $^{60}\text{Co}$  产生的根本，在核电站中主要从两方面来控制设备中的钴含量，分别是：

a、减少一回路材料中的钴杂质。EPRI 推荐建议在一回路不锈钢管材中钴杂质要小于 500ppm，蒸发器 U 型管材料 Inconel 等合金中钴杂质要小于 200ppm，燃料组件等使用的锆合金材料中钴杂质要小于 50ppm。

b、减少一回中钴基 Stellite 合金的使用。使用低钴含量材料用作阀门密封面，EPRI 从上世纪 80 年代中期开始与法国 EDF 等单位联合研发 Stellite 合金的替代材料。经过大量的研究与试验，EPRI 确定使用 NOREM 合金替代 Stellite 合金可以适用于核电厂的截止阀、止回阀、蝶阀，但 EDF 试验发现该材料用在合金用于大口径闸阀时泄漏率超标；

##### (2) 同行电站的实施效果

西门子公司早期核电机组的辐射场与美国西屋相差无几。但在 80 年末，该公司对其早期设计和建造的核电站产品进行了减钴改造。对运行机组其主要是将含钴杂志较高的燃料格架用不含钴的锆合金替代，在蒸发器更换时使用低钴含量的 690 合金作为 U 型管材料。在新机组的设计中，使用铁基合金 (Antinit DUR 300) 替代钴基合金作为阀门的密封面材料。改进设计后其标准的四回路机组中 Stellite 合金同冷却剂的接触面从  $11.46\text{m}^2$  降低到了  $1.8\text{m}^2$  左右 (见表 4)，其阀门的 Stellite 合金密封面更是从  $5.8\text{m}^2$  降低到了  $0.56\text{m}^2$ 。改进后，一回路中  $^{60}\text{Co}$  不再是辐射场的主要贡献者，从其测量的数据来看，辐射场降低在 50% 以上，其新建造的机组中，主管道的辐射水

平一般在几十个  $\mu\text{Sv/h}$  的范围，只有大亚湾核电站的 1/10 左右<sup>[3]</sup>。

表 4：西门子公司 PWR 中 Stellite 合金同冷却剂的接触面积<sup>[1]</sup>

Component	3-loop units GKN-1, KKG CNT	4-loop units (standard) KKG-BAG KWG	4-loop units (Stellite reduced) KKP-2	4-loop units (Stellite reduced) KBR	KONVOI KKI-2 KKE GKN-2
Control rod drive assemblies	Y	1.22	1.22	1.22	1.22
In-vessel components	Y	1.52	0.02	0.02	0.02
Main coolant pumps (a)	Y	2.92	1.04	0	0/0.3 (b)
Valves	Y	5.8	5.8	1.2	0.56
TOTAL	variable	11.46	8.08	2.44	1.80/2.10

## (2) 大亚湾的情况

大亚湾及岭澳核电站一回路不锈钢管材中钴杂质含量标准是 2000ppm，但在后续机组建造中可参考 EPRI 的建议降低到 500ppm。

在 Stellite 合金的应用替代方面，大亚湾从 2002 年开始了 Stellite 合金阀门的替代调研，调研认为可使用 ALSTOM 公司生产的不含 Stellite 合金的 RAMA 阀逐渐替代原 SEREG 与 SERSEG 公司生产的小口径截止阀，目前替代工作在推进中。

### 3.1.2 含 Ag 材料的应用控制

从上一章中可知，核电站一回路中银主要有两方面的应用，分别是 AIC 的控制棒及含 Ag 的 Helicoflex 垫片，因此控制一回路中银应从两方面进行，一是防止控制棒中的银泄漏，二是用其他的垫片更换 Helicoflex 垫片。

大亚湾在银控制主要改进为：

#### (1) 改进控制棒设计

A. 要减少  $^{110m}\text{Ag}$  的来源，首先要考虑减少控制棒吸收材料中 Ag 的含量。法国 1300MW 机组控制棒吸收材料全部采用了  $\text{B}_4\text{C}$ ，但下部仍用 AIC，因而只含有少量的 Ag，与 900MW 机组控制棒 AIC 含 Ag 量高达 80% 相比，大大降低了控制棒吸收材料中的 Ag 含量。

B. 增加控制棒不锈钢包壳的厚度。大亚湾、岭澳核电站的机组控制棒不锈钢包

壳的厚度，已由法国 900MW 机组采用的 0.17mm 增加至 0.47mm，使包壳的强度得到了提高。但从实际的运行效果来看，在控制棒 15 年的寿期内还是有包壳破损的情况。

C. 采用表面离子渗氮工艺提高包壳的抗腐蚀能力。大亚湾核电站机组起初采用的控制棒为冷加工的 304 不锈钢，1995 年发生落棒事件后采用了冷加工的 316 型渗氮不锈钢，岭澳核电站机组也采用了冷加工并表面渗氮的 316 型不锈钢。

### (2) 改善控制棒的维修政策

1993 年以后，EDF 开始对 900MW 机组进行每 3 年一次控制棒检查工作，对 1300MW 机组每 2 年检查一次控制棒，对发现包壳破损的控制棒禁止继续使用，目的都是为了发现和减少控制棒包壳的穿孔，阻止  $^{110m}\text{Ag}$  从控制棒中溶解到一回路冷却剂中。

在大亚湾 D113 大修中，由于有四组 R 棒卡棒，进行人工过插棒试验，在试验期间辐射连续监测结果和化学水中的测量结果显示有放射性物质脱落（见图 3-1），主要贡献为  $^{110m}\text{Ag}$ ，因此怀疑控制棒外表面磨损时，下插导致  $^{110m}\text{Ag}$  泄漏进入水中，但因这几组控制棒无法再进行检查，推测无法证实。因此控制棒的检查周期有进一步优化的必要。

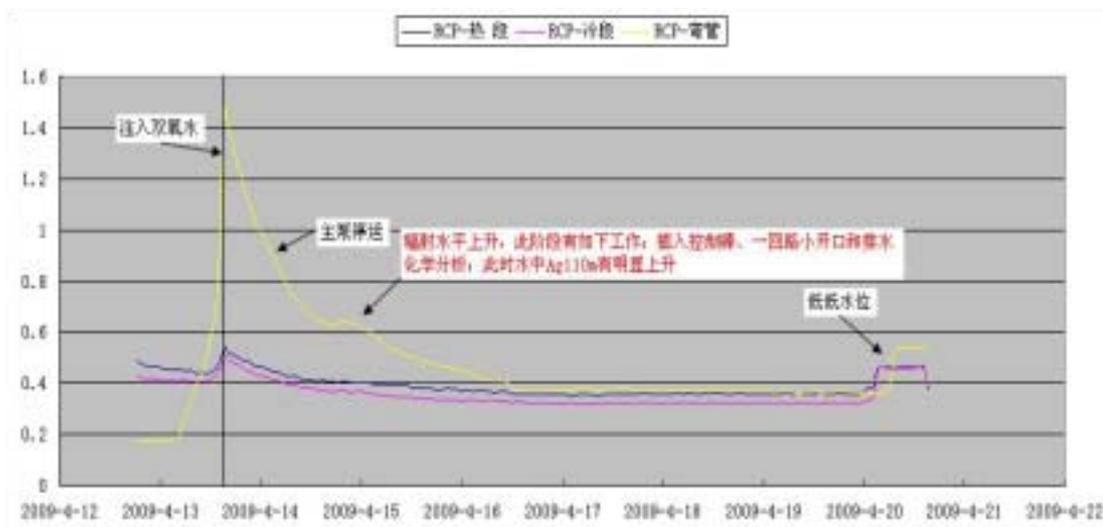


图 3-1：D113 大修卡棒的 R 棒下插过程中水中  $^{110m}\text{Ag}$  引起的剂量率变化

Figure 3-1: The change of radiation field when the blocked control rod inserting

### (3) 含 Ag 的 Helicoflex 垫片的替代

表面含 Ag 的 Helicoflex 垫片是一回路中 Ag 的主要来源之一，大亚湾在 2001 年开始在核辅助系统开始使用石墨材质垫片进行 Helicoflex 垫片的替代，到 2008 年底，替代工作已进行了大部分，300 多个 Helicoflex 垫片已经只剩不到 30 个，目前替代工作还在逐步进行中<sup>[11]</sup>。

下图为大亚湾一号机组大修氧化后 Ag-110m 峰值数据图，从图 3-2 中可以看出  $^{110m}\text{Ag}$  大致还是呈下降趋势（D110 大修中 D9TEP006DE 银有异常释放），与长期坚持更换含 Ag-110m 垫片有一定关系。

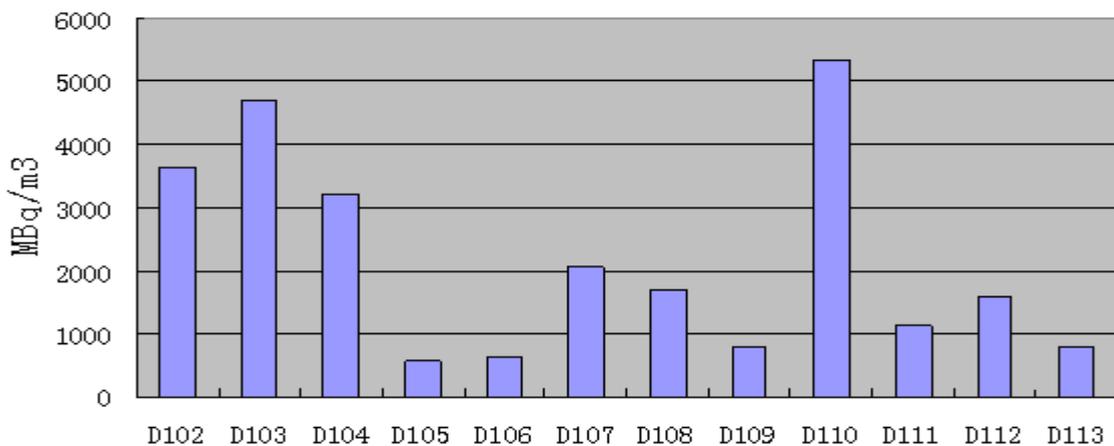


图 3-2：大亚湾一号机组大修氧化后  $^{110m}\text{Ag}$  峰值数据图

Figure 3-2: Concentration of the  $^{110m}\text{Ag}$  during forced oxidation for unit D1

## 3.2 腐蚀活化产物沉积与迁移控制

### 3.2.1. 设备表面的预处理

**抛光及预氧化**：通过机械的或电解抛光的方法对新安装的设备或更换的部件内表面进行抛光，降低同介质的接触面，然后通过预氧化处理，使其内表面形成致密的氧化层。经过预处理后设备的优点有：一是降低了设备内表面的腐蚀速率，二是腐蚀活化产物不易沉积，EPRI 的研究表面通过抛光及预氧化处理的设备在运行中内表面的活化产物沉积量要降低 30-70%。

**铬稳定处理 (SCrP)**：在通过电解抛光处理的基体材料表面电镀一层  $\sim 3,000-10,000 \text{ \AA}$  的铬，然后再高湿环境中预氧化，目前在核电站中该处理技术已经在泵、阀门、大盖等设备有成功应用。图 3-3 为卡托巴核电站一号机组蒸发器更换

通过 SCrP 处理后的剂量率变化趋势图。

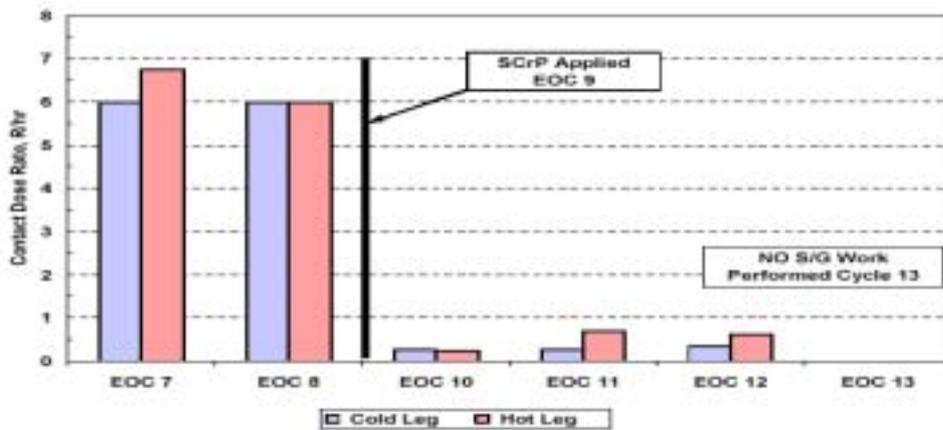


图 3-3：卡托巴核电站一号机组通过 SCrP 处理后蒸发器的剂量率变化趋势图<sup>(1)</sup>

Figure 3-3: Dose Rate Comparison of Catawba-1 DiapHragms (I-690T) Before and After Stabilized Chromium Pretreatment

目前大亚湾及岭澳并没有开展相关工作，但两电站可以考虑在更换备件上实施。据 EDF 统计，进行表面预处理只会增加不到 5% 的成本。

### 3.2.2. 减小一回路过滤器孔径

#### (1) 国外的实践效果

一般认为一回路冷却剂中通常 50% 左右的粒子型腐蚀产物的粒度要小于  $0.4 \mu\text{m}$ ，最早减小一回路过滤器孔径的是德国 Obrigheim 核电站，其在 1960~1975 年间使用的过滤器标准孔径为  $10 \mu\text{m}$ 。从 1976 年开始逐渐减小孔径，到 1988 年换  $0.2 \mu\text{m}$  绝对孔径的过滤器，蒸发器水室的剂量率从原来的  $130\text{mGy/h}$  下降到  $60\text{mGy/h}$ ，一回路水的比放从  $3.7 \times 10^{11}\text{Bq/m}^3$  下降到  $3.7 \times 10^6\text{Bq/m}^3$ 。一回路冷却剂的放射性浓度下降了 5 个数量级。目前在美国也已经将所有与一回路相关的过滤器孔径减小到了  $0.1 \mu\text{m}$ 。

由于小孔经过滤器不仅过滤活化后的腐蚀产物，同时过滤了更多的还没有活化的腐蚀产物，从而减少了在运行过程中被活化的机会。因此刚开始过滤器的使用数量会有增加，经过一段时间后应能稳定。另外由于使用小孔径的过滤器，可延长除盐床的寿命、减少浓缩液和废树脂的比放。

## (2) 大亚湾的实际应用

大亚湾核电站 RCV001FI 过滤器原设计绝对孔径为  $23\ \mu\text{m}$  ,投产后 3 年根据法国核电站的经验反馈将其减小为  $6\ \mu\text{m}$  ,其后一直维持在  $6\ \mu\text{m}$  运行。在实际运行中使用  $6\ \mu\text{m}$  过滤器的辐射水平上升很慢,基本在一个运行周期中并不需要更换过滤器,在有的运行周期中更有辐射水平逐渐下降的现象,这就是说该过滤器对大部分腐蚀活化产物是无效的。

在 2007 年开始将  $6\ \mu\text{m}$  过滤器更换为  $2\ \mu\text{m}$  过滤器,岭澳核电站在 08 年 9 月将 L1RCV001FI 过滤器孔径从  $2\ \mu\text{m}$  降低到  $0.45\ \mu\text{m}$  并于 L107 大修前将 L1PTR001FI、L9PTR003/004FI 过滤器孔径也从  $6\ \mu\text{m}$  降低到  $0.45\ \mu\text{m}$ 。下图为 L1RCV001FI 过滤器孔径同剂量率之间的关系曲线,从中可以看出过滤器孔径降低后过滤效率有明显上升。

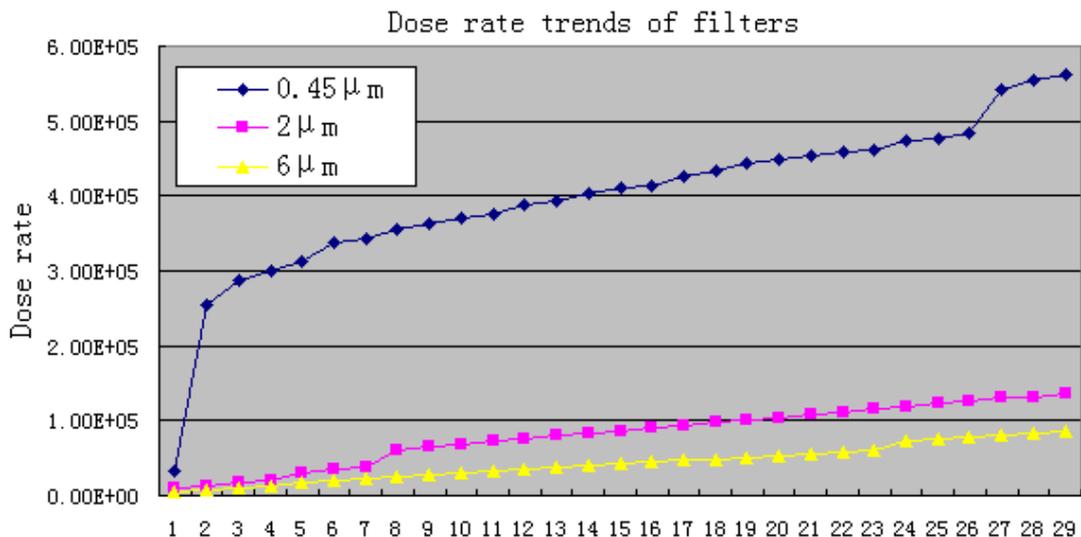


图 3-4 : 不同过滤器孔径在运行中剂量率的上升趋势

Figure 3-4: Dose rate trends of different filters

### 3.2.3. 净化标准的提高

#### (1) 提高氧化净化停主泵的标准

假设一回路冷却剂中的放射性核素经过 RCV 的过滤器 (FI) 和除盐床 (DE) 后被 100%净化。则： $Vdc=cQdt$ ，式中  $V$  是 RCP 充满水的体积 (约  $300\text{m}^3$ )， $c$  是一回路

冷却剂中放射性核素的比活度， $Q$  是 RCV 下泄流的流量 ( $27\text{m}^3/\text{h}$ )， $t$  是 RCV 的净化时间。

$$\text{因此: } \int_{C_0}^{C_t} \frac{1}{c} dc = \frac{Q}{V} \int_0^t dt \quad , \text{ 则: } Ct = Coe^{-0.09t}。$$

由上式可以看出，冷却剂中的放射性比活度将随着 RCP-RCV 液相净化时间呈指数减弱。因为停运主泵后，一回路 U 型管段净化不畅形成“死水”管段，可能导致 Co 的沉积形成辐射热点，因此一般情况下，主泵运行时净化效果较好，在不影响其他作业时应尽可能长地维持主泵的运行时间以降低一回路的放射性水平。目前大亚湾、岭澳电站的停运主泵的期望值如下表所示。

表 5：一回路停堆过程水中放射性活度控制期望值

停堆过程	停运主泵	水池充水前	水池充水后
指标 (MBq/m <sup>3</sup> )	Co-58<25000	Co-58<2000	Co-58<400
	总 <50000	总 <4000	总 <800

## (2) 提高 PTR001BA 净化标准

大修过程中打开反应堆大盖后，水池充水水源来自于 PTR001BA，因此 PTR001BA 中水放射性水平越低，稀释作用就越强，水池满水后的放射性水平就越低，重新进入一回路的腐蚀产物就越少，从图 3-5 中可以看出 PTR01BA 同水池表面的剂量率关系。

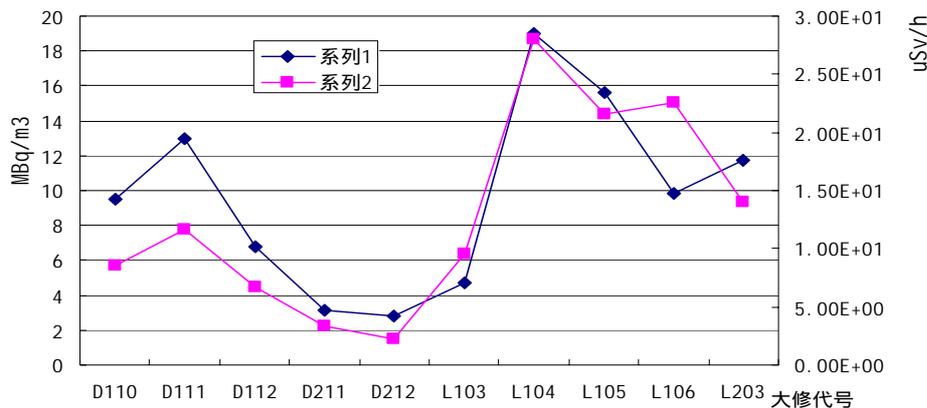


图 3-5、反应堆水池表面 KRT011MA 测量剂量率同 PTR01BA 净化的关系图

Figure 3-5: Relationship between the dose rate of the water surface and the radioactive concentration in the water of PTR01BA

### 3.2.4. 净化流量的运行优化

图 3-6 为双孔板加大净化流量后 RCV001FI 剂量率变化曲线，从图中可以明确的看到净化流量加大后，过滤效率的明显提高。因此在实际运行中应根据机组的 PH 值、水中活化腐蚀产物的量优化控制净化流量。

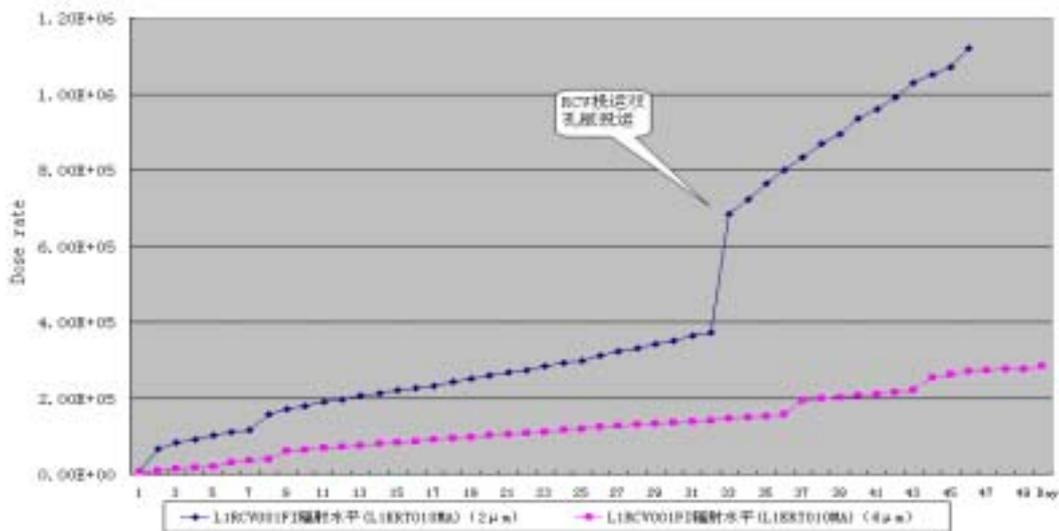


图 3-6：净化流量加大后过滤器放射性水平变化趋势

Figure 3-6: Radiation trend of the filter under the different purifying flow

### 3.2.5. 机组启动阶段中的腐蚀产物的控制

在换料大修中，燃料首先从堆芯卸除到燃料装入堆芯，在装卸料的过程中燃料不可避免的会受到机械的作用或中受到水流的冲击，在燃料表面的沉积的腐蚀产物不可避免的会有部分脱落，其中一部份会沉积到压力容器的底部，一部分会沉积在传输池、构件池等水池底部。因此假设有更多的腐蚀产物已经松脱但是还附着在组件的表面；另外在大修中一回路相关的阀门等设备的开口检修会有部分的研磨碎屑进入一回路。这两部分的产物在主泵启动的冲击下，可能有相当大部分会从组件上或设备管线中脱落而进入一回路系统冷却剂中。如果此时通过净化将该部分物质去除，将在很大程度减少腐蚀产物的活化。

图 3-7 为 L106 大修机组启动阶段的一回路冷却剂中  $^{58}\text{Co}$  及  $^{60}\text{Co}$  浓度变化曲线，从图中的可以看出，在主泵点动时，一回路冷却剂中的  $^{60}\text{Co}$  及  $^{58}\text{Co}$  显著升高，活度浓

度甚至超过停堆过程中的氧化峰值，而且对比氧化过程，主泵点动时  $^{60}\text{Co}$  含量更高。在主泵再次启动时，又一次出现峰值，实际现象同上面的假设相符。

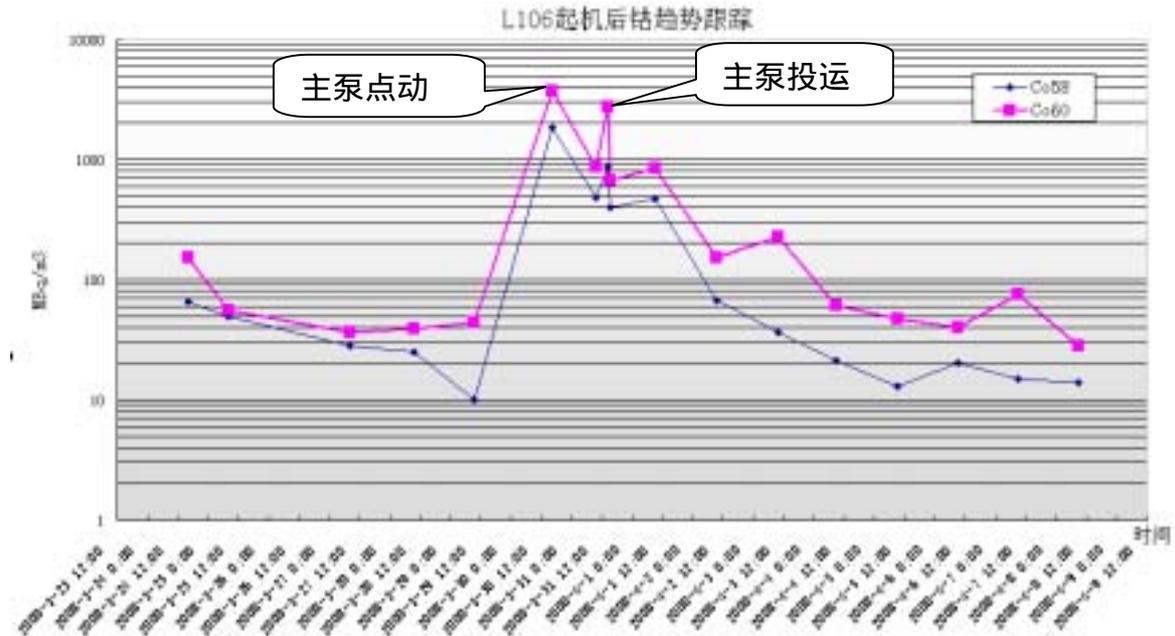


图 3-7 : L106 大修机组启动过程中的钴变化趋势

Figure 3-7: Trends of the  $^{58}\text{Co}$  and  $^{60}\text{Co}$  during startup period after L106 outage

因此在 L107 大修启机阶段，采取了如下的运行方式：

(1) 动排气后增加一次主泵点动，搅动更多的腐蚀产物到冷却剂中通过净化系统过滤去除，降低在堆芯活化的机会。

(2) 在启机阶段，三台主泵再鉴定结束后化学加药之前，增加一个源项净化平台（保持 60 左右较低温度以及偏酸性 PH 条件），尽可能多的去除腐蚀产物。

在岭澳 L107 大修中该方法成功应用：大修计划的净化时间为 6.5 小时。但在实施过程中由于 RCV001FI 过滤器压差高被旁路（说明过滤了更多的没有被活化的产物），主回路失去净化（此时 RCV 除盐床未投运），因此实际净化平台时间只有约 3.5 小时。但在主泵点动和源项净化平台前后，因为主回路水中的杂质浓度较高，L1RCV001FI 更换了 3 个过滤器，而在停机氧化净化过程中只更换了一个过滤器，滤芯的辐射水平见下表。从过滤器的辐射水平来看，说明启机阶段过滤了更多的颗粒物。

表 6 : L107 大修更换 RCV001FI 的辐射水平

2-26 (氧化前)	3-22 13:49(主泵点动后)	3-23 6:12(主泵点动后)	3-23 17:47(净化平台)
4.9Sv/h	3.3Sv/h	11.6Sv/h	15Sv/h

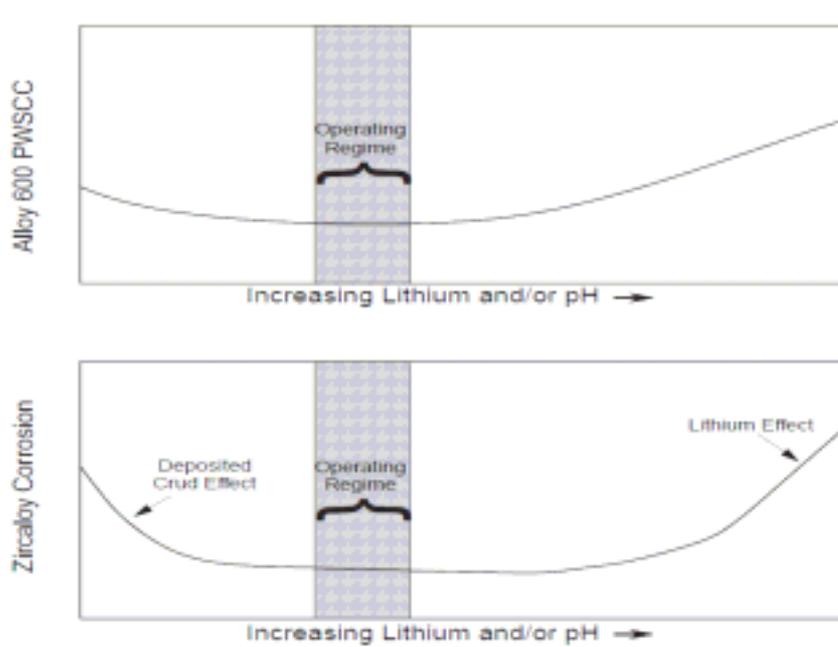
从实际的效果来看，在机组启动阶段应当考虑机组启动阶段在不影响硫酸根的情况下，尽早投运 RCV 除盐床，去除冷却剂中的腐蚀活化产物。

### 3.3 一回路的水化学控制

#### 3.3.1. pH 的值控制及影响

##### (1) 机组运行期间 pH 值控制

在一定的温度、pH 值的介质环境下，冷却剂中腐（磨）蚀产物浓度未达到平衡时，设备内表面的外层氧化膜将不断溶解，并随冷却剂转移到堆芯内外的设备表面。一旦冷却剂的 pH 值或温度发生了变化，使腐蚀产物浓度超过该条件下的平衡值，已溶解或呈离子态的腐蚀产物就会变成悬浮粒子随冷却剂流动，最后沉积在堆芯外的设备金属表面。导致辐射水平的升高。一回路 pH 值得控制就是为了控制非预期的沉积或活化现象。



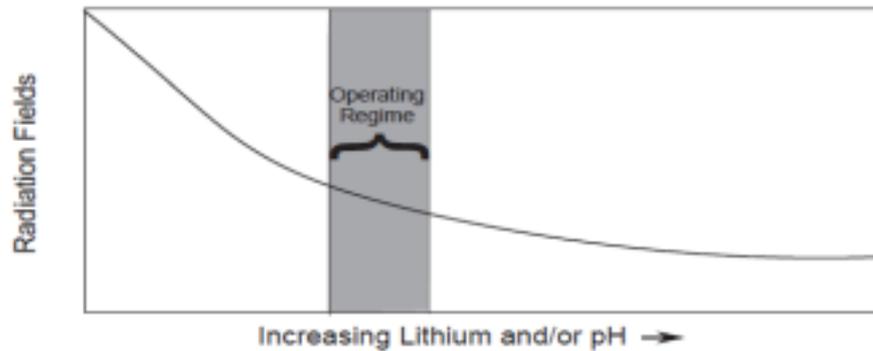
图 3-8 : pH 值同辐射场及材料腐蚀的关系<sup>[4]</sup>

Figure 3-8: Schematic Representation of the PWR Primary Chemistry Optimization Problem

从图 3-8 中可以看出，随着 pH 值的升高，一回路中辐射水平逐渐降低，但随锂浓度的增加到一定程度后蒸发器 U 型管及燃料包壳的锆合金的碱腐蚀风险会增加。同时对于燃料组件来说，在低的 pH 条件下，腐蚀产物倾向于从低温区转移出来并沉积在堆芯高温区，导致一回路活化产物生成量的增加，同时大量的腐蚀产物沉积于燃料表面，可能导致燃料组件的损坏的几率增加。因此 pH 值控制要综合三方面的考虑，将 pH 值选定在合理的范围。

对于压水堆机组一回路的 pH 值多选择在 6.9~7.4 (300°C) 范围内，冷却剂为中性或弱碱性，在此环境下，堆芯内沉积的腐蚀产物不易迁移到堆外的设备上，同时辐射产物也不易沉积在燃料表面，导致活化产物的增加，这对保持这些设备的“清洁”和低辐射场是有利的。

pH 的上限值主要为保护燃料组件包壳和蒸发器换热管束而设。经多年的摸索与实践，越来越多的电站将 pH 值定在 7.2。但是一些近期的研究认为 pH 升高对燃料包壳和蒸发器换热管束腐蚀的影响并没有想象的大，有一些电站从开始的 6.9 上调至 7.3~7.5 并一直维持至今。

将 pH 上调后，一回路设备，如主管道和蒸发器水室的辐射场会有明显的下降，一般在 15~30%。但对于过去一直用低的 pH 值而后来上调的机组，效果有时会在上调后 2~3 个运行周期后才能显现出来。据统计分析，由于提高了 pH 值，美国的压水堆机组平均每次大修可节省 660 人·毫希的照射剂量。

大亚湾核电站由于考虑 Li 浓度过高会增加燃料元件包壳碱腐蚀风险，机组启动

初期在硼浓度确定的情况下, Li 的浓度不能超过 3.5 mg/L, 这使得主回路水的 pH 较低。因此水中的活化腐蚀产物容易迁移(见图 3-9), 因此从腐蚀产物去除的角度出发, 应该在电站启动后的 4-5 个月内维持最大的净化流量, 对腐蚀产物进行去除。

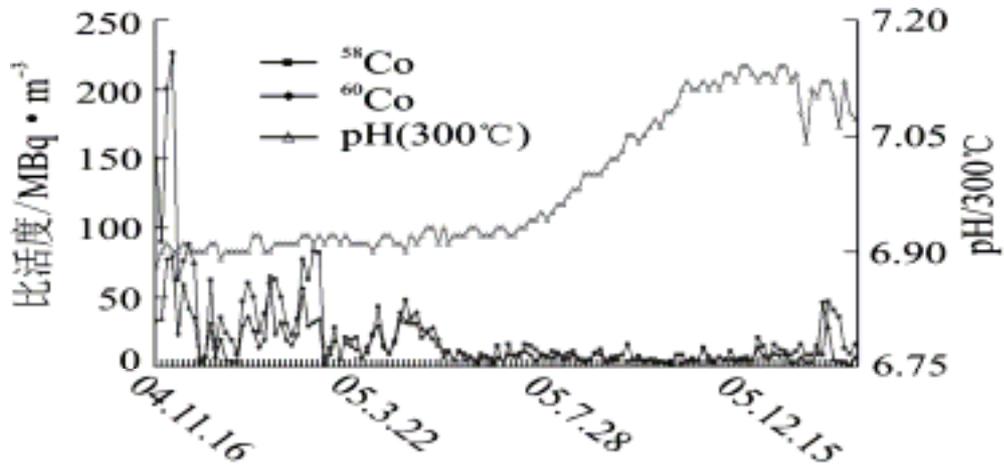


图 3-9: 活化腐蚀产物 Co 与 pH 关系图<sup>(11)</sup>

Figure 3-9: relationship between the concentration of corrosion product Co and the pH

## (2) 机组停堆期间 pH 的控制

与功率运行阶段相比, 机组大修期间的化学控制同样重要。从上面一节可知, pH 值的降低有利于活化腐蚀产物的释放, 但低 pH 对活化腐蚀产物净化效率提高的同时也加大了临界阶段对主回路设备的腐蚀风险。鉴于此, 目前大亚湾核电站采取次临界到硼化到 1 200 mg/L 阶段, 通过硼化稀释和投运 TEP1~4 号除盐床, 以除 Li 的方式降低 pH; 在进一步硼化到 1 700 mg/L 的过程中, 尽快投运 TEP006DE 除盐床, 结合硼化进一步降低 pH; 在次临界后 2~3 d, 主回路水中的 Li 被完全去除, 主回路水的 pH 降到 4.7 (80 ) 以下。过程中 TEP006DE 维持最大流量净化的方式, 该措施有利于钴的释放和净化。

### 3.3.2. H<sub>2</sub> 的控制

主回路水加 H<sub>2</sub> 的目的是为了与水辐射分解形成的氧基结合, 以限制水的辐射分解和氧化剂的产生, 从而能减少对材料的腐蚀<sup>[8]</sup>。另外加 H<sub>2</sub> 还能抑制氮与氧在水中

生成硝酸 ( $2\text{N}_2 + 5\text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 4\text{HNO}_3$ )，使 pH 值降低而加速材料腐蚀，但是  $\text{H}_2$  的含量又不能太高，否则会增加蒸汽发生器传热管一回路侧产生应力裂纹腐蚀 (Primary Water Stress Corrosion Cracking, PWSCC) 的风险， $\text{H}_2$  含量再进一步升高还会增加锆合金氢脆的风险。一般认为主回路水中的溶解  $\text{H}_2$  在 20-50mL/kg 是比较恰当的。但是在停堆过程中为节省大修工期和防止氢爆的发生，停堆过程中主回路水中溶解氢控制应在可接受范围的低限附近。

前大亚湾核电站在氧化停堆过程中主回路水中溶解  $\text{H}_2$  的控制方法如下<sup>[11]</sup>：

- (1) 距离反应堆次临界时间大于 24h，控制主回路水中的溶解  $\text{H}_2$  20mL/kg，但尽量接近 20mL/kg。
- (2) 反应堆次临界前 24h 至次临界，控制主回路水中的溶解  $\text{H}_2$  5mL/kg，但尽量接近 5mL/kg。
- (3) 氧化前务必控制溶解  $\text{H}_2$  的浓度，让溶解  $\text{H}_2$  浓度 3mL/kg。

另外在  $\text{H}_2$  控制的同时在正常运行期间，对 REA 系统的除氧水箱采取连续监测其氧含量的办法，严格控制超标含氧水进入一回路，避免一回路放射性氧化腐蚀产物增多。

### 3.3.3. 停堆过程的氧化

停堆过程中，一回路的温度从 300°C 逐步下降，pH 值也通过除 Li 的方式逐渐下降至 4.7 以下。随着冷却剂温度和 PH 值的下降，活化产物的溶解不断增大。温度降到 170 °C 以下，堆芯内活化产物的溶解度，特别是  $^{58}\text{Co}$  的溶解度可能达到甚至超过“溶解——沉积”动态平衡的饱和溶度，此阶段 RCP-RCV 连线的净化能按一定比例降低冷却剂中的活化产物，但净化量抵偿不了溶解出来的量。为避免由于活化产物的溶解量大于被净化量，活化产物在冷却剂中形成过饱和状态而再次沉积在一回路内管壁形成“辐射热点”，一方面保持最大的一回路降温速率来维持活化产物在冷却剂中有较大的溶解度（从 170 °C 向 45 °C 过渡时，应按运行规范以 28 °C/h 快速降温），此过程要求以尽可能快的降温速率来控制  $^{58}\text{Co}$  等活化产物的溶解度，以维持活化产物在 RCP 冷却剂中处不饱和状态；另一方面采取向一回路冷却剂加氧化剂的办法来缩短由于一

回路降温而不可避免的活化产物的溶解过程<sup>[5][6][15]</sup>。

目前压水堆核电站已广泛采用了氧化运行工艺技术，其方法是在一回路冷却剂降温过程中，向一回路内注入一定量的氧化剂，使设备的内表面上形成新的氧化膜，这时腐蚀活化产物基本上不再溶解和释放，而水中的腐蚀活化产物在化容控制系统的净化作用下快速下降。

若一回路不进行氧化，由于化容控制系统的净化能力小于腐蚀产物的释放速率，冷却剂的比活度随着温度和 pH 的下降而上升，当一回路开口时必然要引入一定量的氧，这时的溶解氧还会造成腐蚀产物释放率的进一步增加，即自然氧化过程。秦山核电站第一次停堆大修时没有采用氧化运行工艺，结果发现冷却剂的放射性一直持续上升，尽管化容控制系统的净化回路一直在线。但在打开反应堆上盖时，空气进入一回路并产生自氧化现象，然后冷却剂的放射性才开始下降。

根据核电站的运行经验，有无氧化运行工艺对从一回路内表面上溶解和释放的放射性总量影响不大，引入氧化主要是为了提高净化的速率，从而缩短对一回路冷却剂的净化时间（见图 3-10），降低了堆外设备被沾污的风险。这对大修关键路径工期及人员剂量的控制十分有利。

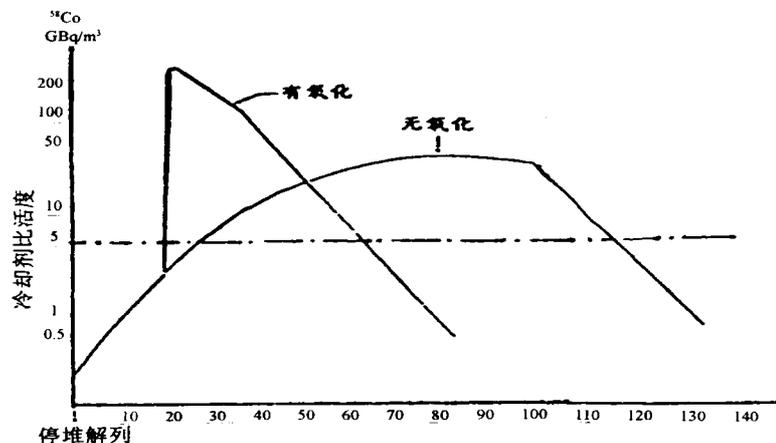


图 3-10：有无氧化冷却剂比活度变化示意图

Figure 3-10: Comparison of the radiation trends after forced oxidation or not

向一回路注入的氧化剂一般有空气和  $H_2O_2$  两种。法国核电站在 1993 年前采用的是注入空气的方法，后来改为注入一定量的  $H_2O_2$ 。后者的特点是氧化速度快，一般在注入  $H_2O_2$  后不到半小时一回路冷却剂中的溶解氧浓度达到 1ppm 时即可认为完

成了氧化并确保出现了氧化膜。

目前大亚湾核电站采用的  $H_2O_2$  加入量原则为： $H_2O_2$  将主回路水中的溶解氢消耗完后，依靠自身分解至少还能保证主回路水中的溶解氧维持在 1ppm 以上。

### 3.4 腐蚀活化产物去除

#### 3.4.1. 设备去污

在检修前对设备或部件进行去污可降低其剂量率，从而减少对人员外照射的风险，另一方面也可减小人员体表和体内的沾污几率，这一技术早已为核工业广泛采用。

相对来讲核电站对系统（一个或若干个）或无法拆除的大型设备进行去污是较困难的，一是需要专门的设备和去污技术；二是要耗费一定的时间，而时间对商业核电站来讲是十分宝贵的。为了核电站的长期安全运行和保障工作人员的辐射安全，不少核电站已经进行了许多有益的尝试，相当一些去污技术也已经成熟并列为电站检修活动的内容之一。对沸水堆核电站的去污，在技术和实际操作上相对容易得多，特别是全系统的去污也已不再是新鲜事。但对压水堆来讲，尽管对一些大型设备如蒸发器和主泵都做过去污，一回路全系统的去污还较为困难，主要是担心对设备的影响面较大。

1995 年，美国印第安角 2 号机组做了首次全范围去污，取得了显著的效果。从一回路内表面上共去除了约 400Ci (16TBq) 的腐蚀活化产物，55 个对比辐射测量点的数据表明整体的辐射水平平均下降了 87%。据估计，由此可在今后的 10 年中减少 30 人.Sv 的照射剂。

大亚湾核电站在 1998 年对两个机组的 3 台上充泵进行了检修。泵在被解体检修前，利用外加去污装置和去污剂对泵内各部件的表面进行循环去污，也收到了较好的效果，去除了约 0.5Ci (20GBq) 的腐蚀活化产物的放射性，部件的表面接触剂量率分别下降了 10~90%，有效控制了人员的辐射照射和体表沾污。

大亚湾在近期的换料大修中，多次通过 RPE 排污管线对有热点沉积阀门及管线进行冲洗去污，从实施效果来看基本上可以将管道内辐射热点冲洗掉，为后续的工作

节约了不少剂量。

### 3.4.2. 阀门检修研磨物的控制

一回路阀门检修中产生的碎屑是相对可观的，其来源一般是阀座的研磨。在典型的阀门检修中，Stellite 合金阀门密封面被研磨掉厚度在 25—250 微米之间，但是如果是因为阀门泄露的纠正性维修的极端情况下，研磨厚度可达到 500 微米。对于一个 2 英寸的阀门研磨掉的 Stellite 合金重量在 0.5 克左右，但对于一个 24 英寸阀门来说，在极端情况下可研磨掉 50 克左右。研磨的产生的微粒尺寸一般在 4-40 微米之间，平均在 10 微米左右。如果研磨的这些碎屑进入堆心活化，一是极有可能产生高的辐射“热粒子”，二是增加  $^{60}\text{Co}$  的活化量，因此碎屑的去除就至关重要。EPRI 建议核岛阀门检修要控制每一个细节，建议如下：

(1) 准备工作：阀门水排空后要擦除腔室内的各种沉积物；阀门内部要进行干燥；阀门进出口要进行封堵，防止研磨物的进入。

(2) 检修后要去污的结果要符合 ANSI N45.2.1 Class B 的标准，其建议一是使用吸尘器进行吸尘，试验表明可以除去 60% 的研磨碎屑。二是采用一定材质的抹布加清洁剂进行清洁去污。

(3) 清洁后要以 ANSI N45.2.1 Class B 的标准进行检查。

大亚湾、岭澳核电站目前的阀门检修目前的控制标准与 EPRI 的建议标准有一定的差距。首先，大亚湾、岭澳核电站目前的阀门为铸造阀门，阀门内表面比较粗糙，用擦拭的方法很难去污研磨碎屑，而吸尘器使用很少，另外在检修工作研磨碎屑控制力度不足，没有严格的检查措施，因此在这方面有一定的改进空间。

### 3.4.3. 动力排水装置的应用

原理：在一回路系统的管线、阀门等的疏水管线一般是腐蚀活化产物极易沉积的区域，一般在每次大修中会通过打开疏水进行冲洗的方法去除沉积的活化腐蚀产物，但是因为疏水流量的不足，在很多现场冲洗的效果不甚理想，因此制作专门的设备，设备装过滤器及抽水泵，在管线冲洗时将该设备接入冲洗回路，通过泵的动力增大水对管线的冲击作用，使活化腐蚀产物有效的脱落并通过过滤器捕获。该装置的使用

用避免了冲洗出的活化腐蚀产物在下游管线的二次沉积,导致后续工作的辐射剂量的增加。

图 3-11 所示区域在多次使用常规冲洗无效的情况下,采用动力排水装置收到了预期的效果。

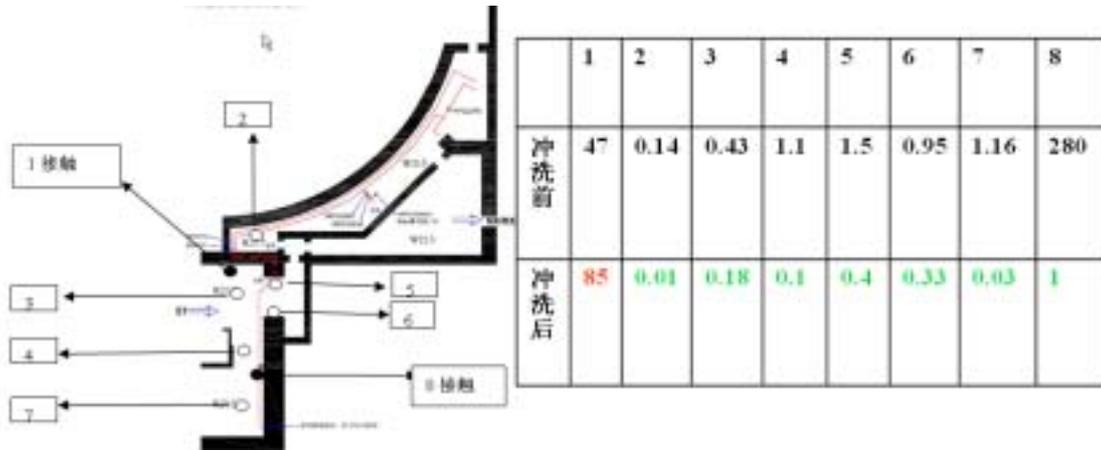


图 3-11：动力排水装置使用效果

Figure 3-11: Hot spots flushing before and after the use of portable high volume water jets Unit

#### 3.4.4. 水下吸尘及其它

- 在燃料操作过程中对水池底部进行水下吸尘,及时消除燃料脱落的放射性热粒子。目前在准备必要的设备,准备在后续大修期间执行,秦山核电已经有过实际应用。
- 定期对反应堆堆芯底部进行吸尘,清除沉积在其底部的腐蚀活化产物。
- 恢复在堆水池及构件水池底部滤网 L1PTR011/012FI 使用 25 $\mu$ m 滤芯(原设计为 25 $\mu$ m,2002 年由于影响排水速度改为 2mm,但对减少源项控制不利,大量的活化产物进入下游输水管线,导致下游管线剂量率的异常升高而无法去除。
- 提高反应堆水池和构件水池去污标准,在反应堆主泵停用后,因为缺乏搅动的动力,水中的部分腐蚀产物会比较容易沉积并附着在系统表面,因此提高反应堆水池和构件水池去污标准,以更多的去除沉积物,避免再次进入堆芯活化。

## 3.5 源项控制相关的改造

### 3.5.1. RCV 低压下泄改造

在大修停堆后，RRA 系统投入使用后，由于下泄孔板两端的压差太小而妨碍正常下泄管线的使用，RRA 与 RCV 系统的连接管线提供了一条低压下泄途径。正是利用这条途径，才使得 RCP 处于单项状态时进行一回路压力的调节和冷却剂的净化成为可能。但时大亚湾核电站在最初的设计中，与 RRA 连接的 RCV 低压下泄管线连接在 RRA 热交换器的后面，实际运行中因为压差的不足导致净化流量约为  $10\text{m}^3/\text{小时}$ ，因此大亚湾核电站在其第五、六个运行周期中实施了增加大修停堆后机组的下泄流量改造，改造将管线连接点从 RRA 热交换器的下游改在热交换器的上游，改造后可增加到  $20\text{m}^3/\text{小时}$ ，在满足防化控制标准的前提下大大缩短了缩短大修时对一个回路冷却剂的净化时间，降低了腐蚀活化产物对一个回路的沾污风险。

### 3.5.2. 净化系统除盐床树脂的换型

原来从法国引进的除盐处理工艺使用的树脂是凝胶型树脂，凝胶型树脂的特点是：离子交换处理能力强，但对胶体态存在的  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  核素处理效率差，容易从树脂上脱落，这已成为困扰大亚湾核电站多年的问题。电站首先将 TEU 系统除盐床所用的凝胶型树脂更改为吸附能力强的大孔树脂。通过对  $300\text{m}^3$  的放射性废液处理试验表明，大孔树脂比凝胶型树脂对  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  处理的效率从 50% 提高到了 90%。

将硼回收系统 TEP06 号除盐床的阴树脂换成混床树脂，在停堆净化期间替代化学和容积控制系统除盐床，其目的是提高净化效率（树脂体积大）和降低成本（树脂单价低）。TEP 与 RCV 除盐床由表 7 可见，对比 RCV 除盐床，TEP6 号除盐床的净化效率明显要高，特别是对在  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  的净化方面。

表 7 除盐床对  $^{58}\text{Co}$  和  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  的净化效率<sup>[12]</sup> (MBq/m<sup>3</sup>)

$^{58}\text{Co}$				$^{110\text{m}}\text{Ag}$			
TEP6号除盐床		RCV除盐床		TEP6号除盐床		RCV除盐床	
进水比活度	效率/%	进水比活度	效率/%	进水比活度	效率/%	进水比活度	效率/%
4 180	98.0	2 340	97.1	53	86.5	21	57.1
19 300	98.7	9 510	97.7	101	90.2	285	57.5
137 000	99.8	18 100	98.5	2 410	96.1	379	64.4

另外停机氧化净化期间，降低主回路水的 pH 对提高  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  的净化效率大有帮助。与原来 RCV 除盐床中的 Li 型阳树脂比较，目前 TEP6 号除盐床使用的 IRN9882 型树脂中的阳树脂是 H 型树脂，在净化期间基本可以把主回路水中的 Li 完全除去，主回路水的 pH 降到 4.7 (80 ) 以下，大大提高了  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  的净化效率。

目前大亚湾、岭澳核电站 TEP06 号除盐床树脂并没有进行定期的检查更换，结果发生过多起  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  的大量释放事件，事件每次释放都导致了部分硼回收系统 (TEP)、废液处理系统 (TEU)、核岛排气和疏水系统 (RPE) 管线房间剂量率升高，部分房间达到橙区水平；另外含  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  高放射性水导致 TEP 系统正常运行困难，同时导致产生大量固体废物。因此为了避免污染的发生以及保证对系统的净化能力，在 TEP006DE 除盐床还未失效的前，需要对 TEP006DE 除盐床树脂效能进行评价，在其失效前更换<sup>[13]</sup>。

### 3.5.3. 其它改造

#### (1) 燃料倾翻机底部改造，防止热点沉积。

在原先的设计中，换料倾翻机底部是实底模式，在换料过程中因为燃料的移动及水的冲击，燃料组件上的部分活化产物容易沉落在倾翻机底部，当倾翻机倾到过程中，沉落的活化产物极易沉落在倾翻位置形成“热点”，导致人员的异常辐射，因此通过改造，将倾翻机底部镂空，使活化产物更多的落在堆芯通过净化系统或吸尘的方法去除。

#### (1) PTR601/602VB 改造，防止热点沉积。

图 3-12 为改造前后的对比。因为 PTR601/602VB 处于人员主要通道中，水池底部的放射性杂质极易沉积，导致区间的辐射水平升高。改造后解决了沉积的问题。

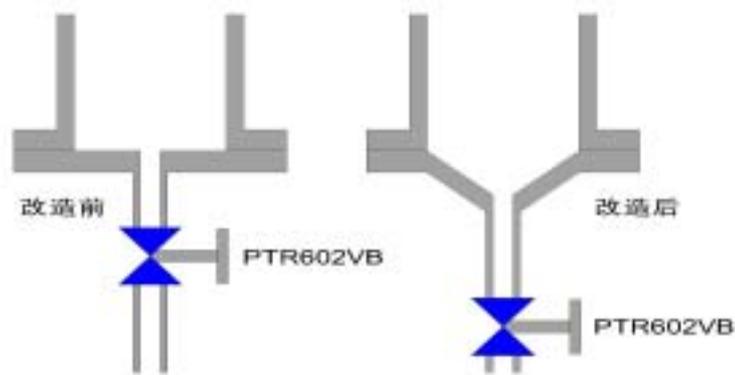


图 3-12 : PTR601/602VB 改造前后的对比

Figure 3-12: Modification of the PTR601/602VB

### 3.6 源项控制的相关新技术

#### 3.6.1 锌注入技术

锌注入技术的核心思想是锌元素比钴等元素具有较强的丢失电子的能力。因此在一回路冷却剂中注入锌后,在设备材料的氧化层内,锌离子会置换在一回路设备管道上氧化层中的钴、镍等离子,以后不断在设备内表面形成含有锌离子的保护层,而腐蚀产物中钴、镍等离子不易在含有锌离子的保护层沉积,于是在运行周期中,一回路冷却剂中的钴元素不断的被锌元素代替。

锌注入开始的初衷是通过锌的这种形成保护层的作用,降低一回路水压力腐蚀作用(Primary Water Stress Corrosion Cracking, PWSCC),但在实际的应用中却发现设备表面的 $^{60}\text{Co}$ 和 $^{58}\text{Co}$ 被逐渐替代,而锌活化产生的 $^{65}\text{Zn}$ 产生的放射射线的能量远低于 $^{60}\text{Co}$ 和 $^{58}\text{Co}$ ,因此间接的实现了降低辐射效应的效果。

上世纪 80 年代中期,锌注入技术就已经在沸水堆电站进行以降低电站的辐射水平。但对于压水堆电站,EPRI 在 1994 年才首次在 Faley 核电站开始锌注入实验,随后又在德国和德国的多座压水堆核电站也进行了不同浓度的锌注入实验。实验结果表明:向一回路冷却剂中注入 5 - 10 ppb 的锌,主要的作用是降低一回路中辐射水平。而注入 15 - 40 ppb 的锌可以有效的降低一回路水压力腐蚀作用。

Faley 核电站 2 号机组在第 10 个燃料循环周期实施 35 ppb 锌注入后,蒸汽发生器水室的整体剂量水平下降了 24%。对蒸汽发生器内的放射性核素进行取样分析,其

中大约含有不到 10% 的  $^{65}\text{Zn}$ ，由于  $^{65}\text{Zn}$  同  $^{60}\text{Co}$  相比较，其射线能量相对较低，因此对整体的辐射场贡献可以忽略不计。Farley 核电站 2 号机组在实施了 5 个换料周期的锌注入后，平均每个换料周期集体剂量减少了 400 人 mSv。

到 2004 年在全世界范围内已经有 19 台机组实施了锌注入，另外有 15 台机组在实施计划中。在通过对实施机组的效果统计，在注入 20-40 ppb 的锌，平均在每个运行周期中剂量率会下降 20—25%，在注入 5-15 ppb 的贫化锌后，平均在每个运行周期中剂量率会下降 10—15%。而且无论是注入那种锌，从多个运行周期的效果来看，剂量率呈现下降趋势。同样以 Farley 电站为例，该电站在进行连续 10 个循环的锌注入后，整体的辐射水平大大降低，其蒸汽发生器水室的剂量率水平在 10 mSv/h 以下，而国内目前大亚湾核电站 1、2 号机组蒸汽发生器水室的剂量率水平却达到了 50~70 mSv/h 之间<sup>[1][3][7][10]</sup>。

### 3.6.2 燃料组件的超声波净化技术

燃料组件的超声波净化技术发展是因为近年来压水堆核电站换料周期的逐渐延长，燃料富集度提高，燃料组件停留在堆芯的时间延长，于是在燃料组件表面因为局部区域沉积较多的腐蚀产物，导致燃料组件出现局部的冷却不均匀，热应力和水压力的作用会导致燃料组件上表面产生微小沸腾，由此就出现了“燃料组件轴向不均衡沉积物分布”现象。这种轴向的变化分布是导致燃料组件局部流量下降的主要原因，即所谓的“轴向异常偏移(Axial Offset Anomaly, AOA)”。因此为消除这种现象，国外电站的实验对燃料组件进行超声波净化可以有效的去除 PWR 核电站燃料组件上的腐蚀沉积物，减轻 AOA 现象的发生。最初引用该技术的目的是为了减轻 AOA 问题，但结果同时发现，电站的辐射场水平也明显下降。2000 年，在美国的 Callaway 核电站，首次对 16 组燃料组件进行了超声波净化，没有发生任何燃料受损情况。在随后的两个换料周期里，对所有的燃料组件进行超声波净化，也没有发现任何受损现象。在 Callaway 核电站的 12 次换料大修中，监测数据显示，燃料组件超声波净化不但显著的控制了 AOA 问题，而且还有有效的降低了电站的整体辐射水平。监测结果表明，大部分场所的辐射水平下降了 50%。截止 2004 年，该技术已经在美国 3 座压水堆核电站中实施，欧洲等国家的一些压水堆核电站也筹备使用该项技术。

目前,西屋公司和 GE 公司分别建立了压水堆和沸水堆核电站燃料组件超声波净化的数学模型,以准确计算燃料组件腐蚀产物的去除与预期的剂量水平下降关系<sup>[1][10][12][14]</sup>。

### 3.6.3 大亚湾核电站的应用预期

目前大亚湾、岭澳核电站相对于国际同行来说,目前的机组平均的剂量水平只能处于世界平均的中间水平,目前再进行大范围的例如钴基合金阀门的更换,从电站安全及成本上考虑是不太现实。因此,利用锌注入技术及燃料超声波去污技术对电站来说是不错的选择。

## 3.7 本章小结

本章根据第二章辐射源项调查的结果,对辐射源项控制的相关技术进行研究,结合大亚湾及岭澳核电站自身源项控制的特点,推进实施了具有自身特色的源项控制技术和手段,并对各种源项控制技术的实施效果进行了总结评价。最后结合国际上比较成熟通用的源项控制技术,找出了目前源项控制方面的不足,对后续改进提出了建议。

## 第四章 结论与展望

### 4.1 结论

本文通过对大亚湾、岭澳核电站一回路及相关系统的辐射源项进行取样分析调查,并结合系统的运行特性及各种核素的来源及沉积特点,研究确定了各主要的辐射源项在系统中的影响范围、方式及对剂量的贡献。最后结合大亚湾、岭澳核电站运行特点对源项控制技术进行了研究,对取得的效果进行了分析评价,并对可能使用在电站的最新源项控制技术进行了总结分析。

本文取得的研究结果有:

- (1) 通过取样调查,研究确定了大亚湾、岭澳核电站中辐射源项主要的种类包括 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 为主。其中 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 在RCP、RRA及RIS系统中所占的比例达到80%—90%, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 主要存在与RCV系统的低温管段,平均比例大于80%。
- (2) 其它可测到核素主要有、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{58}\text{Fe}$ 、 $^{124}\text{Sb}$ 等、在系统中的平均比例在10%左右。
- (3)  $^{60}\text{Co}$ 会随着机组运行周期的延长而逐渐增加,其容易沉积在系统中设备管线比较复杂的区域,极易形成辐射热点,影响主要为阀门检修等相关活动。
- (4)  $^{58}\text{Co}$ 比较均匀的沉积在一回路系统设备的内表面,对检修工作有广泛的影响。
- (5)  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 容易沉积在系统设备管线的低温部分,主要影响的为RCV及TEU等辅助系统。
- (6) 经对剂量的统计分析,在多各运行周期后, $^{60}\text{Co}$ 剂量贡献约占总剂量的50%, $^{58}\text{Co}$ 的剂量贡献约为20—30%,因为大亚湾及岭澳RCV及其它辅助系统普遍受到 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 的沾污而剂量贡献在10—20%,而其它核素剂量贡献小于10%。
- (7) 从源项控制的实际应用出发,研究了辐射源项控制的主要方法及技术,对大

亚湾及岭澳实施的源项控制方法进行探讨，对应用的效果进行了总结分析，主要有：

- 从材料的应用优化对辐射源项的影响方面进行了分析讨论；
- 腐蚀活化产物沉积与迁移规律及控制技术方面进行研究，讨论了腐蚀产物同过滤器、净化流量等的相关关系；
- 从一回路水化学控制的对腐蚀产物的生成、溶解的等方面的影响进行讨论研究，阐明了水化学同辐射源项的关系；
- 讨论了腐蚀活化产物去除方法和手段，对大亚湾及岭澳电站在源项控制相关的改造进行了探讨。

(8) 对电站可能采纳的或即将采取的源项控制措施进行了调查研究。

## 4.2 展望

随着我国核电在快速发展，会有越来越多核电运营者面临辐射剂量的控制问题，特别是在目前同一核电运营者运营多电站的运营模式下，对剂量特别是个人剂量的控制要求会逐步提高，源项控制技术的应用可以说是剂量控制的最直接有效的方法及手段。本文中讨论的辐射源项控制技术对核电的建设及运营具有一定的指导意义。但考虑到大亚湾及岭澳的实际辐射源项的状态，有几方面需要我们在以后工作中重点研究，分别是：

- 1、系统管线的在线去污技术。目前因为担心系统的化学污染，该项工作的进展滞后，在将来可能面临设备管线严重污染导致设备无法检修的情况。
- 2、机组运行工艺对辐射源项的影响研究。特别是大修停堆阶段，目前国外有部分电站进行中间停堆酸性还原条件下 150-170 停留以去除镍、铁、钴，以及在 80 以上氧化的技术，而目前大亚湾的现实情况是中间停堆达到 170 后，会以最快的降温速率将回路温度降低至 80，在 80 加双氧水氧化。
- 3、去污及过滤技术的研究。一是研究  $^{110m}\text{Ag}$  的过滤去污技术尽快消除目前  $^{110m}\text{Ag}$  污染带来的高剂量问题，二是对现有的 RCV 除盐床研究改进，调研抗氧化能力强的树脂，以满足在机组启动阶段氧含量较高阶段的净化需求。
- 4、辐射测量的优化，特别是机组在运行周期内的连续测量。目前的辐射测量

随意性较大，规范性不强，给源项控制技术的数据支持不足，有研究改进的必要。

- 5、积极进行锌注入技术及燃料超声波去污等技术的研究，推进电站的尽快实施。

总之，源项控制是一项涉及多部门，多专业的系统工程，需要电站各部门的通力合作，但相信在大家的共同努力下，系统设备会越来越干净，越来越安全。

## 参考文献

- [1] *Radiation Field Control Manual*, EPRI, Palo Alto, CA: 2004. 1003390.
- [2] *Dose Rate Impacts of Activity Transport in Primary Coolant Systems*, EPRI, Palo Alto, CA: 2005, 1011736.
- [3] *Impact of Zinc Chemistry on PWR Primary Shutdown Dose Rates and Releases Following Steam Generator Replacement at Farley 1 and 2 (MRP-136)*, EPRI, Palo Alto, CA: 2005. 1011313.
- [4] *PWR Primary Water Chemistry Guidelines: Volume 1, Revision 4*, EPRI, Palo Alto, CA 1999. TR-105714-V1R4.
- [5] 张绮霞, 等, 压水反应堆化学化工问题[M], 北京: 原子能出版社, 1984
- [6] 张勇, 核电站氧化运行及效果分析[J], 辐射防护, 2003(01), 55~59
- [7] *Highlight of EPRI Radiation Exposure Management Program*. EPRI, Sean Bushart, Dennis Hussey, 2004.
- [8] *PWR Water Chemistry Guidelines*, EPRI, Palo Alto, CA: 1999. TR-105714-V2R4
- [9] *Pressurized Water Reactor Primary Water Zinc Application Guidelines*. EPRI, Palo Alto, CA: 2006. 1013420.
- [10] 王皓宇, 关于轻水堆核电站辐射源项控制几项新技术的讨论[J], 辐射防护通讯, 2006(01), 12~16
- [11] 秦卫东, 张朝文, 大亚湾核电站<sup>110m</sup>Ag的形成原理及处理对策[J], 大亚湾核电, 2005(3), 56~60
- [12] 高惠斌, 张乐福, 停堆氧化运行中主回路活化腐蚀产物的迁移与控制[J], 大亚湾核电, 2008(01), 6~9
- [13] 邓才远, 叶永东, 大亚湾及岭澳核电站TEP006DE除盐床树脂更换工艺改进[J], 大亚湾核电, 2008(01), 33~36
- [14] *Application of Ultrasonic Fuel Cleaning at Two Pressurized Water Reactors*, EPRI, Palo Alto, CA: 2003. 1007856.
- [15] 顾景智, 停堆时活化腐蚀产物的变化及氧化运行[J], 核动力运行研究, 1997(1)
- [16] Vessieres G, *Retour D'experience Parc Pollution Des Circuits Par L 110mAg*.

1992

- [17] 陈济东, 主编, 大亚湾核电站系统及运行[M], 北京: 原子能出版社, 1994
- [18] EDF, 法国电力公司运行核电站辐射防护手册[M], 北京: 原子能出版社, 2004
- [19] 李星洪, 等, 辐射防护基础[M], 北京: 原子能出版社, 1982
- [20] 潘自强, 程建平等 电离辐射防护和辐射源安全[M], 北京: 原子能出版社, 2006
- [21] 顾景智, 核电站主泵停运控制核素的选择[J], 辐射防护, 2000(03), 185~188
- [22] 樊治国, 问清华, 李睿容等, 大亚湾核电站1994~2002年职业性照射个人剂量监测和评价[J], 辐射防护, 2004 (Z1), 206~210
- [23] Takumi TERACHI, *Influence of Dissolved Hydrogen on Structure of Oxide Film on Alloy 600 Formed in Primary Water of Pressurized Water Reactors*, NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol.40, No.7, p.509-516 (July 2003)
- [24] 杨俊武, 等, 换料期间发生燃料组件破损时的辐射剂量估算、相关系统控制要求和防护方案[J], 辐射防护, 2007(1)
- [25] Kazushige ISHID, *A Low Corrosive Chemical Decontamination Method Using pH Control*, NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol.39, No.9, p.941-949, (September 2002)
- [26] 杨俊武, 杨茂春, 顾景智等, 大亚湾核电厂弱贯穿辐射监测评价[J], 辐射防护, 2006(03), 137~142
- [27] 马吉增, 法国核电站运行辐射防护动向[J], 辐射防护通讯, 2001(04).
- [28] 杨茂春, 当前我国核电站辐射防护需要重点考虑和解决的问题[J], 辐射防护, 2004(Z1)
- [29] 杨茂春, 陈德淦, 大亚湾核电站大修中职业照射控制的实践与经验[J], 辐射防护, 2004 (Z1), 144~154
- [30] 陈德淦, 贺禹, 杨茂春等, 大亚湾核电站辐射防护和最优化(ALARA)管理体系十年的实践和经验[J], 辐射防护, 2004,(Z1)

- [31] 杨茂春, 核电站辐射防护的现状和趋势[J], 辐射防护通讯, 2000,(Z1)
- [32] 张钧, 马吉增, 张延生, 关于辐射防护最优化的几点讨论[J], 辐射防护通讯, 2002,(04)
- [33] 夏益华, 甘霖, 李旭彤, 陆文纲, 核电站辐射防护最优化评价准则及检查技术[J], 中国原子能科学研究院年报, 1999,(00)
- [34] 潘自强, IRPA-10与辐射防护新动向[J], 辐射防护通讯, 2000,(Z1).
- [35] 杨茂春, 大亚湾核电站工作人员体表放射性沾污的控制[J], 辐射防护, 1997,(01)
- [36] 顾景智, 大亚湾核电站贯彻ALARA原则的实践[J], 核科学与工程, 2001,(S1)
- [37] 吉长余, 张东果, 大亚湾核电站1994 ~ 2003年环境辐射监测结果与分析[J], 辐射防护, 2004,(Z1)
- [38] 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,(Z1)
- [39] 黄乃明, 陈志东, 宋海青等, 大亚湾和岭澳核电站外围辐射环境监督性监测[J], 辐射防护, 2004,(Z1).
- [40] 黄来喜, 何文新, 陈德淦, 大亚湾核电站放射性固体废物管理[J], 辐射防护, 2004,(Z1).
- [41] 杨茂春., “工作管理”思想在大亚湾核电站辐射防护的尝试[J], 辐射防护, 2004,(Z1)

## 致 谢

本文在研究过程中得到导师蒯琳萍教授的悉心指导，导师具有渊博的学识，严谨的治学态度及丰富的实践经验，在完成本文过程中得到了她的许多指导和帮助，导师对我在学术上的指导及教诲将使我终生受益。在此，谨向导师表示诚挚的敬意和衷心的感谢！

感谢杨俊武高工在平时工作、生活上的悉心指导，杨俊武高工作为我的第二导师在论文选题、工作开展、研究手段、技术路线上倾注了大量的心血，给予了很有价值的建议和帮助，杨俊武高工其渊博的知识，精湛的学术将永远是我学习和工作的榜样，请允许我向杨俊武高工及家人表示衷心的感谢。

感谢关心、爱护我的朋友，他们在精神上的无微不至的关怀，给了我战胜困难的勇气。

最后，感谢在百忙之中抽出时间评阅本论文和参加答辩会的各位老师。

在硕士论文即将完成之际，谨向在我攻读硕士学位期间关心帮助过我的各位老师、同学、好友和亲人表示衷心的感谢。

## 攻读硕士学位期间发表的学术论文目录

1. 傅鹏轩，杨俊武，蒯琳萍，核电站辐射监测系统常见设计缺陷分析和改进，大亚湾核电，已录取，2009.3 期；
2. 傅鹏轩，Operation and Maintenance Summarization of Plant Monitoring System in LING AO and DAYA BAY Nuclear Power Station，The Second Asian and Oceanic Congress for Radiation Protection，2006

作者: [傅鹏轩](#)  
学位授予单位: [上海交通大学](#)

## 相似文献(1条)

1. 期刊论文 [王皓宇, Wang Haoyu](#) 关于轻水堆核电站辐射源项控制几项新技术的讨论 -辐射防护通讯2006, 26(1)

介绍了美国电力研究协会近年来在轻水堆核电站有关辐射源项控制技术所进行的一些创新、应用和发展情况,阐述了诸如一回路冷却剂稀有金属化学添加方法、锌注入技术、燃料超声波净化技术等的研究和应用,同时结合我国目前在役运行的大亚湾核电站、秦山核电站辐射源项的特点,提出了在国内核电站采用新技术尝试的建议.

本文链接: [http://d.g.wanfangdata.com.cn/Thesis\\_D053900.aspx](http://d.g.wanfangdata.com.cn/Thesis_D053900.aspx)

下载时间: 2010年6月15日