

反应堆安全壳中高精度喷淋去除放射性气溶胶模型的开发及验证

李济深¹, 张斌^{1,2}, 缪凡¹, 杨皓¹, 单建强^{1,2}

(1. 西安交通大学能源与动力工程学院, 710049, 西安;

2. 西安交通大学动力工程多相流国家重点实验室, 710049, 西安)

摘要: 针对 ISAA 程序原有气溶胶模型精度不足的问题, 改进了安全壳喷淋去除模型。基于单液滴气溶胶收集机理, 采用了新的惯性碰撞、拦截模型以准确计算大颗粒收集效率, 采用更符合小颗粒去除机理的布朗扩散模型。加入热泳、扩散泳模型, 以考虑安全壳中蒸汽冷凝过程对收集效率的贡献。选取了 THAI、TOSQAN 和 CSE 实验评估改进代码, 并分别与 COCOSYS、ASTEC 和 MELCOR 程序计算结果对比。改进 ISAA、COCOSYS 计算 THAI 实验喷淋去除常数的最大误差分别为 -28.6%、59.1%; 改进 ISAA、ASTEC 计算 TOSQAN 实验喷淋去除常数的最大误差分别为 -12.3%、50.9%; 改进 ISAA、MELCOR 计算 CSE 实验喷淋去除常数的最大误差分别为 -12.3%、90.3%。计算结果表明, 改进模型能够更加精确模拟气溶胶悬浮质量的衰减趋势, 在一定误差范围内能够准确模拟喷淋去除常数。研究有助于了解安全壳喷淋液滴对气溶胶颗粒清洗机理, 获得模拟精度更高的代码分析手段, 可以发现现阶段 ISAA 程序在气溶胶行为模拟上的不足, 并探索代码未来的改进方向。

关键词: 气溶胶去除; 液滴收集; 核安全; 安全壳喷淋

中图分类号: TL364 **文献标志码:** A

DOI: 10.7652/xjtub202312015 **文章编号:** 0253-987X(2023)12-0146-11

Development and Validation of High-Precision Containment Spray Removal Radioactive Aerosol Model

LI Jishen¹, ZHANG Bin^{1,2}, MIAO Fan¹, YANG Hao¹, SHAN Jianqiang^{1,2}

(1. School of Energy and Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. State Key Laboratory of Multiphase Flow in Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: This paper improves the containment spray removal models in order to address the low accuracy of the original models of the ISAA code. Based on single droplet collection particle mechanism, new inertial impaction and interception models were used to accurately calculate the collection efficiency of large particles. Additionally, a new correlation was used to explain the Brownian diffusion collection mechanism of small particles. Moreover, thermophoresis and diffusiophoresis models were introduced to consider the contribution of steam condensation in the containment to the collection efficiency. In addition, THAI, TOSQAN and CSE experiments were selected to evaluate and improve the model precision, while the calculated results were compared

with the results of COCOSYS, ASTEC, and MELCOR codes. For the THAI experiment, the maximum errors of the improved ISAA and COCOSYS in calculating the spray removal constants are -28.6% and 59.1% , respectively. For the TOSQAN experiment, the maximum errors of the improved ISAA and ASTEC in calculating the spray removal constants are -12.3% and 50.9% , respectively. For the CSE experiment, the maximum errors of the improved ISAA and MELCOR in calculating the spray removal constants were -12.3% and 90.3% , respectively. The calculation results show that the improved model can simulate the attenuation trend of suspended aerosols with higher accuracies and significantly improve the calculation accuracy of the spray removal constants. This work helps to understand the scavenging mechanism of aerosol particle by containment spray droplets, and provides analysis method with higher simulation accuracy. At the same time, it discovers shortcomings in the simulation of aerosol behavior in the current ISAA code and point out the future improvement directions of the code.

Keywords: aerosol removal; droplet collection; nuclear safety; containment spray

核安全是核能发展和利用的生命线。核电厂严重事故下裂变产物的释放对于核安全是一个至关重要的问题^[1]。在核电厂严重事故过程中,反应堆堆芯降级导致裂变产物(FP)释放到压力容器中,可能通过主回路破口排放到安全壳。如果安全壳因超压而失效,裂变产物将被释放到环境中,导致放射性污染。气溶胶是事故期间安全壳中释放的裂变产物的重要形式之一^[2-3]。核电站采用安全壳喷淋系统(CSS)作为一种严重事故缓解措施,以降低安全壳大气的压力和清洗气相悬浮的放射性气溶胶颗粒。研究严重事故中安全壳喷淋对放射性气溶胶颗粒的去除机理和清洗效率具有重要意义。

鉴于对源项后果评估的重要性,许多研究机构开展了安全壳喷淋实验研究,这些实验的研究成果为开发核电站事故分析代码提供了参考依据。在早期,CSE实验作为大规模实验的典型代表,其安全壳设施尺寸采用典型 1 000 MW 功率 PWR 的五分之一^[4]。CSE 采用氧化铀和铯气溶胶颗粒进行了自然沉积实验和安全壳喷淋实验,其中包括新鲜喷淋和再循环喷淋。

近年来的实验研究集中在特定研究目的的小型设施。TOSQAN 实验^[5]最初用蒸汽加压以模拟一回路过破裂,采用碳化硅(SiC)颗粒以模拟核电厂事故后释放的裂变产物。实验结果表明,在机械作用下,水喷淋可显著去除气溶胶颗粒,并且可以通过由喷淋液滴周围的蒸汽质量分数梯度引起的扩散泳去除。THAI 实验^[6]调查各种事故场景,安全壳大气从湍流自由对流到停滞分层,并研究氢气、碘和气溶胶等行为。气溶胶冲刷实验也在 THAI 实验设施中进行,其中使用的可溶性碘化铯(CsI)颗粒作为裂

变产物模拟物,研究碘的喷淋去除和在多室中的传输行为。魏严淞等^[7]使用源项气溶胶行为特性实验平台,研究了喷淋液滴对不同粒径气溶胶去除的影响以及不同喷淋流量下液滴对各粒径气溶胶去除的影响。

上述实验研究为探索喷淋去除气溶胶机理奠定基础,为计算机代码的开发提供数据支撑。喷淋去除模型分为经验模型和机理模型。赵云飞等^[8]比较了 Powers、RTM-96 和 RASCAL 程序的 3 种经验关系式计算方法,通过比较研究,发现喷淋过程各种方法计算结果有较大差异。采用简单的经验关系式作为源项估算方法计算喷淋去除过程的误差非常大,机理模型在应对安全壳复杂热工水力工况方面具有优势。Porcheron 等^[9]基于 TOSQAN 气溶胶去除实验数据开发了一个考虑机械和扩散泳收集机理的气溶胶去除模型,并在 ASTEC 中实施。THAI 实验数据已广泛用于验证和进一步开发传统的集总参数代码 COCOSYS^[10]和具有 3D 功能的计算流体力学(CFD)代码^[11]。

于汇宇等^[12]通过拉格朗日粒子追踪方法计算喷淋液滴的运动,考虑液滴与周围空气相互作用产生的夹带气流的影响,建立了喷淋去除气溶胶的计算模型。西安交通大学自主开发的 ISAA 程序中的原始喷淋去除模型^[13-14]考虑了惯性碰撞、拦截和布朗扩散。原始模型定性上能够模拟气溶胶沉积行为,但在定量上存在误差。ISAA 中采用的惯性碰撞、拦截模型低估了大颗粒的收集效率,随着颗粒半径增大,原始模型计算布朗扩散收集效率先减小后增大,高估了布朗扩散对大颗粒的作用。此外,原始模型没有考虑安全壳中蒸汽冷凝过程对收集效率的

贡献。

为了满足先进核电厂安全壳源项后果评估的需求,本文针对 ISAA 程序原有气溶胶模型精度不足的问题,基于单液滴气溶胶收集机理改进安全壳喷淋去除模型。为了验证改进的 ISAA,选取了 THAI、TOSQAN 和 CSE 实验评估改进代码,并分别与 COCOSYS、ASTEC 和 MELCOR 程序计算结果对比。这项工作有助于了解安全壳喷淋液滴对气溶胶颗粒清洗机理,获得模拟精度更高的分析手段,发现现阶段 ISAA 程序在气溶胶行为模拟上的不足,并探索代码未来的改进方向。

1 高精度喷淋去除放射性气溶胶模型的开发

1.1 模块计算框架

ISAA 是西安交通大学开发的一体化系统级严重事故分析程序,主要用于描述核电站严重事故的过程^[15-18]。ISAA 采用模块化结构,使用多个模块来模拟严重事故期间的物理现象,包括热工水力行为、堆芯加热、降级和迁移、可燃气体的产生、裂变产物的释放和运输。主要模块间的调用关系和功能如图 1 所示。

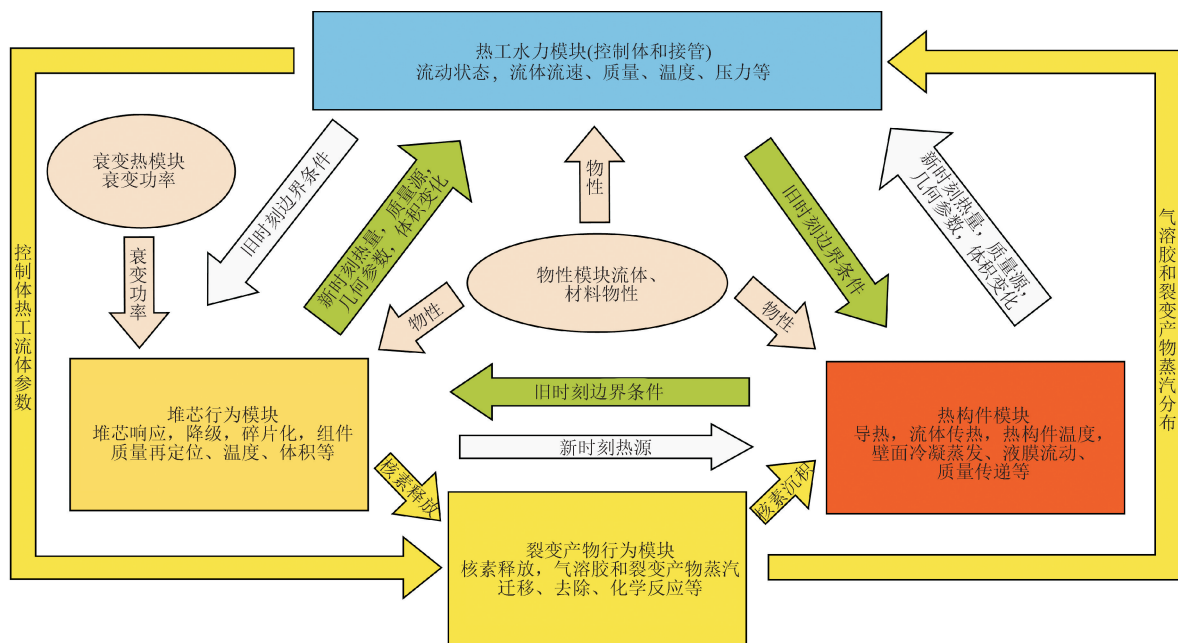


图 1 ISAA 主要模块功能和关系

Fig. 1 Relations and functions of main modules of ISAA

安全壳喷淋的模拟耦合了气溶胶颗粒的收集和喷淋液滴与大气之间的热工水力作用。ISAA 热工水力(TH)模块计算与喷淋系统相关的传热和传质,同时裂变产物行为(FPB)模块计算喷淋液滴对气溶胶颗粒的清洗。安全壳喷淋计算流程如图 2 所示。

首先,初始化数组并将初始变量设置为 0;然后,由 FPB 模块计算喷淋液滴对各种尺寸和组分的气溶胶颗粒收集效率,并将结果以数组形式传递给 TH 模块;随后,由 TH 模块计算气溶胶去除常数和一阶速率方程的质量微分,并联立传热和传质方程求解。在求解出液滴的热量和质量传递后,将喷淋过程中导致气溶胶的质量变化传回 FPB 模块;最后,由 FPB 模块气溶胶动力学模型更新各种尺寸和组分的气溶胶在控制体的质量分布。在一个时间步

长计算完后,判断气溶胶质量变化是否收敛:如果不收敛,返回重新计算;如果收敛,则继续推进下一步。

1.2 安全壳喷淋去除气溶胶模型

安全壳喷淋液滴对气溶胶的去除过程与热工水力学行为紧密相关。具体而言,首先在整个液滴下落高度上进行热工水力积分,然后通过适当间隔的简单梯形积分计算去除过程。在代码计算过程中,将气溶胶按颗粒直径大小分为若干个颗粒组,同理也将喷淋按液滴直径大小分为若干个液滴组。喷淋去除气溶胶用一阶速率方程模拟

$$\frac{dM_k}{dt} = -\lambda_{k,i} M_k \quad (1)$$

式中: M_k 为组分 k 的质量; $\lambda_{k,i}$ 为液滴组 i 对组分 k 的去除常数。

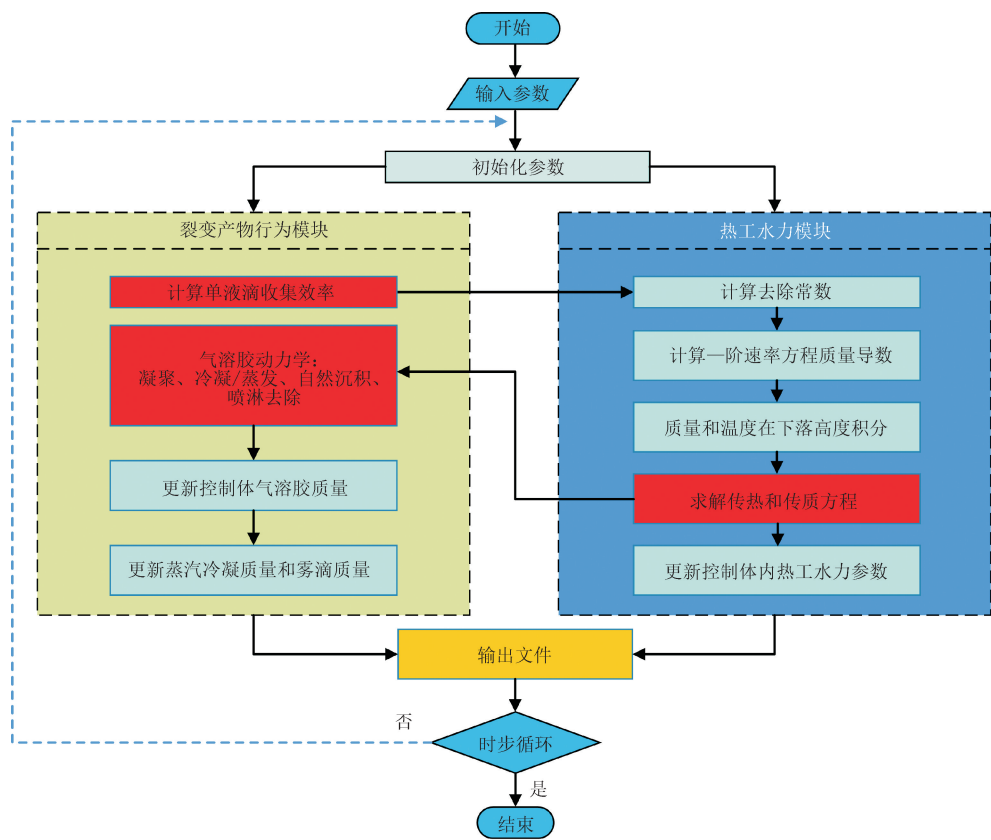


图 2 安全壳喷淋计算流程

Fig. 2 Calculation flow of containment spray

去除常数的表达式^[19]为

$$\lambda_{k,i} = \frac{3F_i h E_{i,j}}{4V r_i} \tag{2}$$

式中: F_i 为液滴组 i 的体积流速; h 为液滴的下落高度; V 为大气体积; $E_{i,j}$ 为液滴组 i 对颗粒组 j 的收集效率。气溶胶收集效率考虑惯性碰撞、拦截、布朗扩散、热泳和扩散泳。

图 3 为单液滴气溶胶收集机理示意图。空气中气溶胶的消耗率定义为收集效率乘以单位时间内被喷淋液滴扫除体积分数,收集效率与液滴下落时间、液滴尺寸、气溶胶尺寸,以及温度、压力等热工水力条件相关。

气溶胶颗粒通过惯性导致其质心的轨迹穿过液滴周围的流线,从而与液滴表面相交。为了提高模型计算精度,采用以下关系式^[20]计算惯性碰撞收集效率,即

$$\epsilon_{\text{IM}} = \left(\frac{St}{St + 1} \right)^n \tag{3}$$

式中: $n = 0.759St^{-0.245}$, St 为斯托克斯数。

即使质心位于不与液滴相交的轨迹上,气溶胶

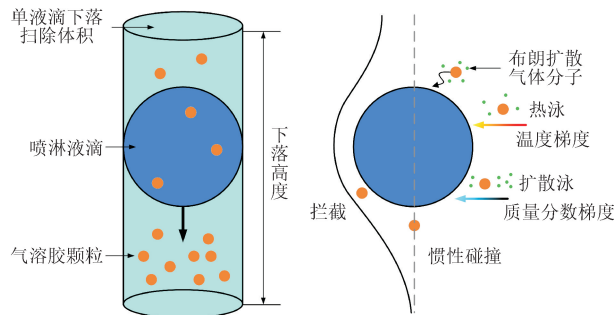


图 3 单液滴气溶胶收集机理

Fig. 3 Collection mechanism of aerosol by single droplet

颗粒也可以通过与液滴表面接触从而被收集。为了提高模型计算精度,基于 Park 模型^[21],拦截收集效率为

$$\epsilon_{\text{IN}} = \frac{1 - \alpha_L}{J + \sigma K} \left[\left(\frac{I}{I + 1} \right) + \frac{1}{2} (3\sigma + 4) \left(\frac{I}{I + 1} \right)^2 \right] \tag{4}$$

$$J = 1 - \frac{6}{5} \alpha_L^{\frac{1}{2}} + \frac{1}{5} \alpha_L^2 \tag{5}$$

$$K = 1 - \frac{9}{5} \alpha_L^{\frac{1}{2}} + \frac{1}{5} \alpha_L^2 \tag{6}$$

式中: α_L 为填充密度; $I = r_p/r_d$ 为颗粒与液滴的半径比; $\sigma = \mu_d/\mu_g$ 为液滴和气体黏度之比。

布朗扩散由气体分子轰击导致气溶胶颗粒穿过液滴周围的流动边界层产生, 原始布朗扩散模型是关于颗粒与液滴半径比 I 的二次函数, 随着颗粒半径增大, 布朗扩散收集效率先减小后增大。因此, 原始模型高估了气体分子对大颗粒的布朗扩散作用。基于 Slinn 模型^[22], 布朗扩散收集效率为

$$\epsilon_{BD} = \frac{4}{ReSc} [1 + 0.4Re^{1/2}Sc^{1/3} + 0.16Re^{1/2}Sc^{1/2}] \quad (7)$$

式中: Re 为雷诺数; Sc 为施密特数。

此外, 在喷淋去除模型中引入热泳和扩散泳收集模型, 以考虑安全壳中蒸汽冷凝过程对收集效率的贡献。由于微分分子的影响, 气溶胶颗粒沿温度梯度向液滴表面迁移, 热泳收集效率^[23]为

$$\epsilon_{TH} = 2C_{TH} \frac{(2 + 0.6Re^{1/2}Pr^{1/3})}{v_d r_d} (T_g - T_d) \quad (8)$$

$$C_{TH} = \frac{2.294\mu_g C_n (C_t Kn + k_g/k_p)}{\chi\theta_g T_g (1 + 3C_m Kn)(1 + 2C_t Kn + 2k_g/k_p)} \quad (9)$$

式中: Pr 为普朗特数; T_g 、 T_d 分别为气体、液滴表面温度; C_{TH} 为热泳系数; k_g 、 k_p 分别为气体、颗粒的热导率; χ 为颗粒形状因子; C_n 为 Cunningham 滑移校正因子; $C_m = 1.146$ 为滑移系数; $C_t = 2.2$ 为热调节系数。

当液滴上发生冷凝时, 气溶胶颗粒沿质量分数梯度向液滴表面迁移, 扩散泳收集效率^[18]为

$$\epsilon_{DF} = 2D_g \frac{(2 + 0.6Re^{1/2}Sc^{1/3})}{v_d r_d} \ln\left(\frac{P_g - P_{v,d}}{P_g - P_v}\right) \quad (10)$$

式中: D_g 为气体扩散系数; P_g 为大气压力; $P_{v,d}$ 为蒸汽在液滴表面的压力; P_v 为蒸汽压力。

在蒸发条件下, 扩散泳效应变为负值, 在液滴比大气更热的情况下, 热泳效应也是负值。然而, 核电厂大多数是温度较低的喷淋水冷凝安全壳蒸汽的情况, 因此假设两种效应非负。

使用以下表达式组合 5 种过程的收集效率, 即

$$\epsilon_T = 1 - (1 - \epsilon_{IM})(1 - \epsilon_{IN})(1 - \epsilon_{BD}) \cdot (1 - \epsilon_{TH})(1 - \epsilon_{DF}) \quad (11)$$

2 模型验证及计算结果分析

为了验证改进的喷淋去除模型, THAI、TOSQAN 和 CSE 实验被选择评估改进代码, 并分别与 COCOSYS、ASTEC 和 MELCOR 程序计算结果进行比较。实验直接测量的结果是气溶胶颗粒质

量分数, 在安全壳气相中, 颗粒质量分数变化为

$$\frac{dC_g}{dt} = \frac{\dot{S}}{V} - \frac{\lambda_T M}{V} - \frac{vA_f}{V} C_g \quad (12)$$

式中: $\dot{S}$ 为气溶胶质量源速率; v 为自然沉积速率; A_f 为自然沉积的壁面面积。

式(12)右侧分别代表气溶胶体积源项、喷淋液滴去除项、自然沉积去除项。对于一般实验过程, 喷淋启动前已经完成了气溶胶注入, 喷淋期间颗粒质量分数变化服从指数衰减规律, 即

$$\frac{C_g(t)}{C_g(0)} = \exp(-\lambda_T t) \quad (13)$$

式中: $C_g(0)$ 为喷淋启动时颗粒质量分数; λ_T 为全局去除常数, 可通过实验直接测得。

2.1 THAI 实验

THAI 实验装置用于开展核反应堆安全壳相关的实验研究, 旨在解决严重事故期间轻水反应堆安全壳内气体分布、氢气、碘和气溶胶行为等问题^[24], 如图 4 所示, 该装置的主要部件是一个 60 m³ 的不锈钢容器, 高为 9.2 m, 直径为 3.2 m, 实验容器通过壁面加热控制温度。THAI 装置拆除了内筒和 4 个侧面冷凝液盘, 以便在 AW-4 实验中为气溶胶分布提供自由无障碍的环境, THAI 实验装置的技术参数如表 1 所示。

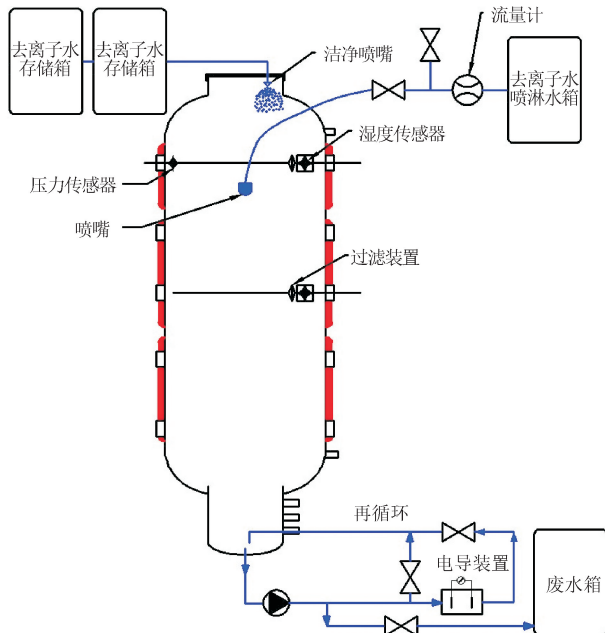


图 4 THAI 容器和 AW-4 实验配置^[24]

Fig. 4 THAI vessel and test configuration of AW-4^[24]

对于 AW-4 实验, 通过从 8.4 m 的容器顶部注入可溶性 CsI 气溶胶。具有 30° 喷淋角的喷嘴与中心线对齐, 高度为 7.4 m, 并由外部泵操作。为了比较没有喷淋作用的气溶胶沉降和喷淋对气溶胶质量

分数的影响,AW-4 实验分两部分进行,都是从 0.15 MPa、90 ℃和 60%的相对湿度(RH)的初始条件开始。A 部分测量了注入 CsI 颗粒 10 min 后的气溶胶自然沉降行为,在 B 部分的实验中进行了两次间歇喷淋。喷淋细节如表 2 所示,喷淋液滴尺寸分布如表 3 所示。在喷淋间隔之前、之间和之后都进行了过滤器和冲击器的测量,以评估喷淋对气溶胶质量分数和相应的颗粒大小分布的影响。

表 1 THAI 实验技术参数表

参数	数值
总体积/m ³	60
地坑体积/m ³	1.7
主室体积/m ³	17.7
最大承压/MPa	1.4
运行温度/K	453.15
总表面积(不含内部构件)/m ²	100

表 2 AW-4 喷淋细节

状态	质量流速/(kg·s ⁻¹)
0 s	0
40 min,第 1 次喷淋启动	1
40 min 40 s,第 1 次喷淋停止	0
85 min,第 2 次喷淋启动	1
85 min 40 s,第 2 次喷淋停止	0

表 3 AW-4 喷淋液滴尺寸分布

液滴尺寸/mm	体积分数/%
0.139	20
0.415	27
0.691	22
0.967	17
1.243	14

表 4 THAI 实验去除常数计算值与测量值的比较

喷淋期	测量值	计算值			误差/%		
		COCOSYS	ISAA	改进 ISAA	COCOSYS	ISAA	改进 ISAA
第 1 次	2.51×10 ⁻²	3.79×10 ⁻²	1.35×10 ⁻²	2.34×10 ⁻²	50.9	-46.2	-6.8
第 2 次	1.54×10 ⁻²	2.4×10 ⁻²	7.72×10 ⁻³	1.10×10 ⁻²	59.1	-49.8	-28.6

2.2 TOSQAN 实验

IRSN 开展的 TOSQAN 实验计划用于模拟压水堆安全壳中的典型事故热工水力流动条件,

用 COCOSYS^[24]、ISAA 和改进 ISAA 计算得出的 THAI-AW4 实验安全壳大气中的气溶胶质量分数如图 5 所示。将 A 部分的自然沉积消耗与 B 部分的喷淋去除比较,可观察出两次喷淋运行的净去除量。在气溶胶停止注入时,质量分数达到峰值 1.3 g/m³,随后气溶胶质量分数因自然沉积过程消耗,在第一次喷淋启动前降低至 0.6 g/m³。ISAA 模拟第一次喷淋运行后质量分数为 0.349 g/m³,而改进 ISAA 为 0.236 g/m³。ISAA 模拟第二次喷淋运行后质量分数为 0.154 g/m³,而改进 ISAA 为 0.099 g/m³。

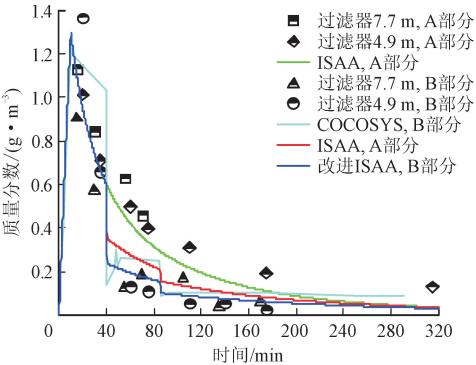


图 5 AW-4 实验中气相 CsI 质量分数

Fig. 5 Airborne concentration of CsI in AW-4

AW-4 实验 COCOSYS、ISAA 和改进 ISAA 计算的全局去除常数如表 4 所示。ISAA 低估了两次间歇喷淋的去除常数,因此 ISAA 模拟喷淋后的气溶胶质量分数相比实验值偏大。相反地,COCOSYS 高估了两次间歇喷淋的去除常数。COCOSYS 低估了气溶胶自然沉积,导致喷淋前的气溶胶质量分数远高于测量值。改进 ISAA 计算出的第一次喷淋期间的去除常数与实验测量结果符合更好,证明了改进的惯性碰撞和拦截模型计算大颗粒去除常数的准确性。然而,改进 ISAA 依然低估了第二次喷淋期间的去除常数,这可能是由于改进模型不能很好地计算较小颗粒的去除常数。

(容积为 7 m³,高为 4 m,内径为 1.5 m),蒸汽从顶部注入其中,容器壁由热油循环进行恒温控制,热电偶用于测量整个容器的壁温和气体温度,内喷淋系统位于垂直轴上的外壳顶部,它由一个可沿垂直轴移动的喷嘴组成,以便在距其不同距离处进行测量。蒸汽可以通过位于 TOSQAN 容器中下部位的垂直管道注入,用于模拟裂变产物释放的碳化硅(SiC)气溶胶颗粒在加热后从容器圆顶的顶部注入,TOSQAN 实验装置参数和实验条件^[25]如表 5 所示。

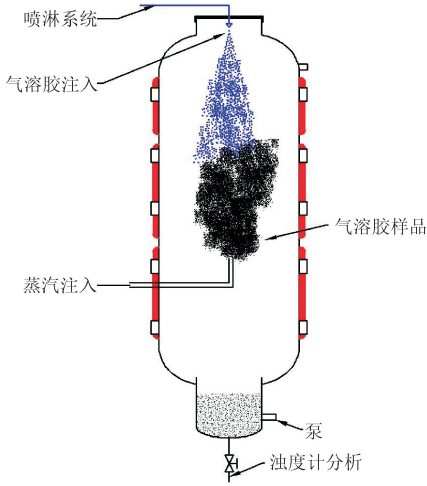


图 6 TOSQAN 容器布置^[25]

Fig. 6 TOSQAN vessel arrangement^[25]

表 5 TOSQAN 设施和实验条件

Table 5 Facility and experimental conditions of TOSQAN

条件	参数	数值
容器尺寸	总体积/m ³	7.0
	主容器直径/m	1.5
	地坑直径/m	0.68
	主容器高度/m	4.0
	地坑高度/m	0.8
实验条件	初始压力/MPa	0.03
	初始温度/K	353.15
	蒸汽注入速率/(g·s ⁻¹)	10
喷淋特性	Sauter 平均直径/μm	199
	最大下落速度/(m·s ⁻¹)	21
	喷角/(°)	19
	喷淋水温度/K	298.15
	质量流速/(g·s ⁻¹)	10

首先,容器被注入模拟裂变产物释放的气溶胶,当压力达到 0.03 MPa 时,空气/气溶胶混合物的喷射停止,短时间后,达到稳定状态,使气溶胶均匀化,之后开始蒸汽喷射,以模拟核反应堆主回路断裂,达到预定压力水平后停止蒸汽喷射并开始喷淋,水的质量流速为 10 g/s;落入容器地坑的喷淋液滴被清除,以避免积聚和再蒸发。

在大气压和等温条件下,用相位多普勒分析仪(PDA)对喷淋液滴进行测量和表征。将喷淋液滴分布结果离散为 5 个尺寸,每个尺寸的平均直径和体积分数如表 6 所示。

表 6 TOSQAN 喷淋液滴尺寸分布

Table 6 Size classes of spray droplet of TOSQAN

平均直径/mm	体积分数/%
0.054	2.3
0.127	61.3
0.186	28.9
0.274	5.7
0.365	1.8

ASTEC^[25]、ISAA 和改进 ISAA 计算得出的 TOSQAN 实验安全壳大气中的气溶胶质量如图 7 所示,图中给出了无喷淋运行条件下气溶胶自然沉积消耗,与喷淋结果比较得到喷淋净去除量,时刻 0 表示喷淋系统开始运行,喷淋持续运行 3 500 s 后,测量残余质量为 0.251 g。ASTEC 模拟残余质量为 0.128 g,ISAA 模拟残余质量为 0.457 g,而改进 ISAA 为 0.303 g。

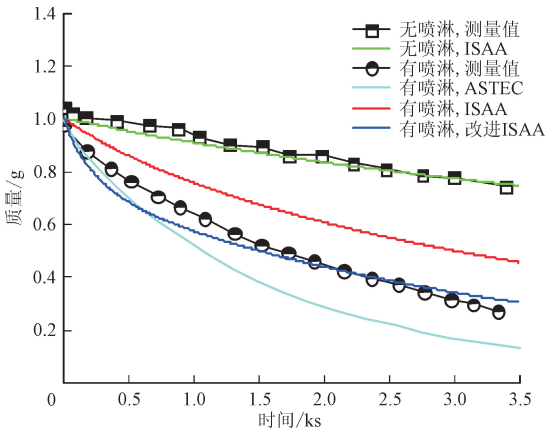


图 7 TOSQAN 实验 SiC 气相质量

Fig. 7 Airborne mass of SiC in TOSQAN

表 7 给出了 TOSQAN 实验 ASTEC、ISAA 和改进 ISAA 计算的全局去除常数,去除常数按喷淋

运行 3 500 s 时的残余质量计算。ISAA 低估了连续喷淋对气溶胶颗粒的去除常数,因此 ISAA 模拟喷淋后的气溶胶残余质量相比实验值偏大。相反地,ASTEC 大大高估了连续喷淋对气溶胶颗粒的去除

常数,相比之下,改进的惯性碰撞、拦截和布朗扩散模型计算去除常数与实验测量的误差较小,这使得改进 ISAA 计算连续喷淋下悬浮气溶胶质量衰减曲线与实验测量趋势一致。

表 7 TOSQAN 实验去除常数计算值与测量值比较

测量值	计算值			误差/%		
	COCOSYS	ISAA	改进 ISAA	COCOSYS	ISAA	改进 ISAA
3.89×10^{-4}	5.87×10^{-4}	2.24×10^{-4}	3.41×10^{-4}	50.9	-42.4	-12.3

2.3 CSE 实验

在 20 世纪 70 年代,太平洋西北实验室开展了安全壳系统实验(CSE)计划,进行了一系列喷淋实验,开展这些实验是为了评估安全壳喷淋工程安全系统从安全壳大气中清除裂变产物的性能。测量结果为验证各种数学模型、预测大型核电站喷淋性能的能力提供了依据。本文选取了 CSE 系列实验中 A9 实验^[26],对 ISAA 中的喷淋模型进行了验证。

CSE 安全壳系统由一个 585.6 m³ (直径 7.62 m,高 20.33 m)的外部安全壳容器,一个内部干井容器和一个湿井容器组成,如图 8 所示。湿井容器体积占干井和安全壳之间环形空间的 4/5,所有内表面都涂有改性酚醛涂料。安全壳喷淋系统包括溶液储罐、喷淋泵、再循环管道和再循环泵,喷嘴位于安全壳顶部附近。

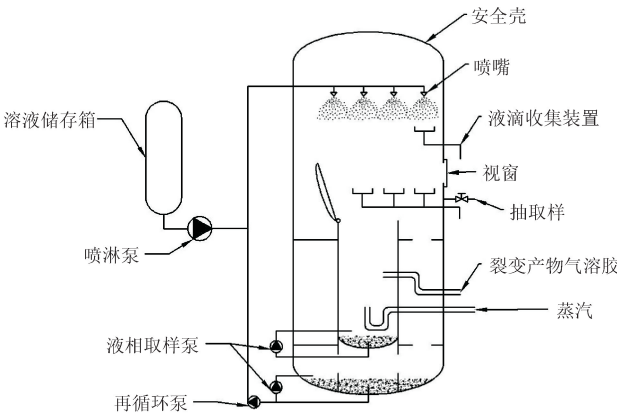


图 8 CSE 安全壳容器^[26]
Fig. 8 CSE containment vessel^[26]

在外部不锈钢储罐中配制新鲜的室温喷淋溶液,安全壳容器罐圆形顶部附近的喷淋歧管以均匀的间距布置了 12 个喷嘴,主腔室中约 80% 的气体空间可以被喷淋清洗。表 8 给出了 CSE 实验的物理和实验条件。

表 8 CSE 实验物理和实验条件

Table 8 Physical and experimental conditions of CSE test		
条件	参数	数值
物理条件	总体积/m ³	751
	中室体积/m ³	59
	总表面积/m ²	888
	横截面积/m ²	45.5
	面积与体积比/m ⁻¹	0.958
	下落高度/m	15.4
实验条件	温度/K	394
	压力/kPa	303.36
	液滴质量中值直径/μm	1 220
	液滴几何标准偏差	1.5
	喷嘴数	12
	喷淋水 pH	9.5

实验利用锅炉房蒸汽在安全壳内建立理想的大气条件,大气最初是饱和蒸汽-空气混合物(约 2/3 蒸汽和 1/3 空气),蒸汽供给速率降低到维持热平衡的程度。在 CSE 实验中,采用了两种气溶胶颗粒,以模拟在假定的事故中可能释放出的颗粒。UO₂ 燃料元件被感应加热到足够高的温度,以形成数量可观的氧化铀气溶胶,这种氧化铀气溶胶具有极低的蒸汽压和极低的水中溶解度,碳酸铯(Cs₂CO₃)通过电阻加热器加热,该物质在较低的温度下挥发,并在潮湿的大气中形成 CsOH,这种 Cs 气溶胶模拟挥发性裂变产物,并且高度溶于水。实验开始时注入气溶胶颗粒,持续 10 min,在充分混合 30 min 后,喷淋系统间歇性地启动。表 9 给出了 CSE-A9 实验喷淋系统运行参数。

表 9 CSE-A9 实验喷淋系统喷淋特性

Table 9 Spray characteristic of CSE-A9				
喷淋特性	第 1 次	第 2 次	第 3 次	第 4 次
流速/(L·s ⁻¹)	9.34	9.53	9.40	8.71
喷淋压力/kPa	352	359	352	338
喷淋类型	新鲜	新鲜	新鲜	再循环
开始时刻/s	1 800	3 300	5 400	12 600
停止时刻/s	1 980	3 480	6 000	16 200
运行时间/s	180	180	600	3 600

图 9、10 分别显示了 MELCOR^[27]、ISAA 和改进 ISAA 计算 CSE-A9 实验主室大气中的 Cs、U 气溶胶质量分数,在 CSE-A9 实验中,第 1 次喷淋之后的 U 气溶胶质量分数测量数据缺失,因此给出了预测结果,空气中 Cs、U 气溶胶的计算质量分数定性上与测得质量分数一致。计算结果显示,在每个新鲜喷淋周期,主室大气中的质量分数会逐步降低,而在 CSE-A9 的后期再循环周期中,则非常缓慢地下降。在定量上,MELCOR、ISAA 低估了气溶胶质量分数的下降幅度。

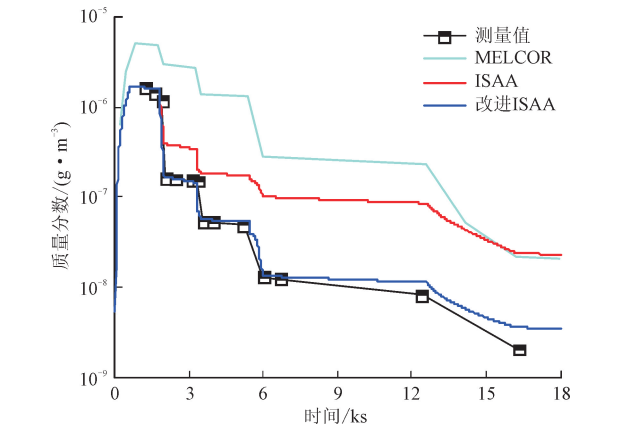


图 9 CSE-A9 实验 Cs 气溶胶气相质量分数
Fig. 9 Airborne concentration of Cs aerosol in CSE-A9

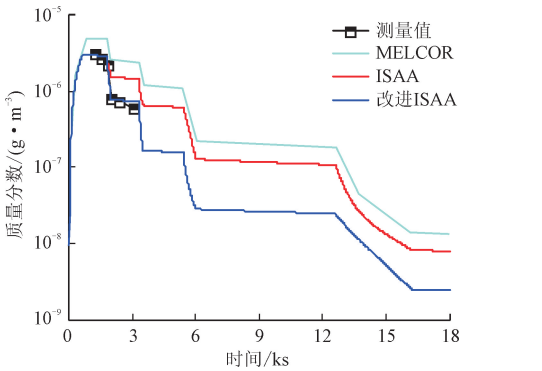


图 10 CSE-A9 实验 U 气溶胶气相质量分数
Fig. 10 Airborne concentration of U aerosol in CSE-A9

表 10 给出了 CSE-A9 实验 MELCOR、ISAA 和改进 ISAA 计算的全局去除常数。观察到第 1 次新鲜喷淋的去除效率最高,随后依次减少,这是因为喷淋冲刷导致气溶胶质量中值直径降低。改进 ISAA 在定性上能正确模拟出这种依次减少的规律,然而 MELCOR 在模拟 3 次新鲜喷淋的去除常数大致相同。在定量上,MELCOR、ISAA 计算的去除常数与实验值存在很大误差。改进 ISAA 计算安全壳蒸汽环境下的喷淋去除效率在一定误差范围内与实验值符合较好,这是因为改进喷淋去除模型中引入了热泳和扩散泳模型,能够考虑了 CSE 安全壳蒸汽冷凝对气溶胶颗粒的去除作用,使得改进 ISAA 计算的气溶胶质量分数变化与实验测量结果一致。

表 10 CSE-A9 实验去除常数计算值与测量值的比较
Table 10 Comparing calculated and measured removal constant of CSE-A9

喷淋阶段	气溶胶	测量值	计算值			误差/%		
			COCOSYS	ISAA	改进 ISAA	COCOSYS	ISAA	改进 ISAA
第 1 次	Cs	1.07×10^{-2}	2.72×10^{-3}	7.69×10^{-3}	1.23×10^{-2}	-74.6	-28.1	15.0
	U	5.70×10^{-3}	3.42×10^{-3}	3.37×10^{-3}	7.12×10^{-3}	-40.0	-40.9	24.9
第 2 次	Cs	5.67×10^{-3}	3.68×10^{-3}	3.38×10^{-3}	5.17×10^{-3}	-35.1	-40.4	-8.8
第 3 次	Cs	2.17×10^{-3}	2.58×10^{-3}	8.95×10^{-4}	2.30×10^{-3}	18.9	-58.8	6.0
第 4 次	Cs	3.50×10^{-4}	6.66×10^{-4}	4.00×10^{-4}	3.24×10^{-4}	90.3	14.3	-7.43

3 结 论

本文针对 ISAA 程序原有气溶胶模型精度不足的问题,改进安全壳喷淋去除模型。基于单液滴气溶胶收集机理,采用了新的惯性碰撞、拦截模型以准确计算大颗粒收集效率,采用更符合小颗粒去除机理的布朗扩散模型。在喷淋去除模型中引入热泳和扩散泳模型,以考虑安全壳中蒸汽冷凝过程对收集效率的贡献。选取了 THAI、TOSQAN 和 CSE 实

验评估改进代码,并分别与 COCOSYS、ASTEC 和 MELCOR 程序计算结果对比。改进 ISAA 与 COCOSYS 计算 THAI 实验喷淋去除常数的最大误差分别为-28.6%、59.1%,改进 ISAA、ASTEC 计算 TOSQAN 实验喷淋去除常数的最大误差分别为-12.3%、50.9%,MELCOR、改进 ISAA 计算 CSE 实验喷淋去除常数的最大误差分别为 90.3%、-12.3%。计算结果表明,改进模型计算的悬浮气溶胶衰减趋势和喷淋去除常数与实验值符合较好,证

明改进模型精度更高,能够更准确模拟安全壳喷淋清洗气溶胶行为。该工作有助于预测事故后喷淋液滴对气溶胶的清洗效果,还可以为核电厂喷淋系统进行优化设计。未来将针对当前气溶胶模型中发现的问题做进一步优化,研究各收集效率之间的相互影响和耦合机理。

参考文献:

- [1] 袁显宝,魏靖宇,张永红,等. 百万千瓦级压水堆严重事故下裂变产物释放分析 [J]. 核科学与工程, 2021, 41(5): 1075-1083.
YUAN Xianbao, WEI Jingyu, ZHANG Yonghong, et al. Analysis of fission product release of 1000 MWe PWR under sever accident [J]. Nuclear Science and Engineering, 2021, 41(5): 1075-1083.
- [2] FERNANDJIAN J. Aerosols behavior in reactor containment [EB/OL]. [2023-06-06]. [http://refhub.elsevier.com/S0029-5493\(22\)00069-3/h0035](http://refhub.elsevier.com/S0029-5493(22)00069-3/h0035).
- [3] KISSANE M P. On the nature of aerosols produced during a severe accident of a water-cooled nuclear reactor [J]. Nuclear Engineering and Design, 2008, 238(10): 2792-2800.
- [4] HILLIARD R K, POSTMA A K. Large-scale fission product containment tests [J]. Nuclear Technology, 1981, 53(2): 163-175.
- [5] PORCHERON E, LEMAITRE P. Analysis of aerosol collection by droplets: application to fission products removal in case of severe accident [C]//16th International Conference on Nuclear Engineering. New York, NY, USA: ASME, 2008: 707-716.
- [6] GUPTA S, SCHMIDT E, VON LAUFENBERG B, et al. THAI test facility for experimental research on hydrogen and fission product behaviour in light water reactor containments [J]. Nuclear Engineering and Design, 2015, 294: 183-201.
- [7] 魏严淞,田林涛,谷海峰,等. 气溶胶的喷淋去除特性实验研究 [J]. 节能技术, 2020, 38(3): 217-220, 234.
WEI Yansong, TIAN Lintao, GU Haifeng, et al. Experimental study on the removal characteristics of aerosol by spray system [J]. Energy Conservation Technology, 2020, 38(3): 217-220, 234.
- [8] 赵云飞,童节娟,张立国,等. 轻水堆核电厂事故工况下安全壳内气溶胶去除因子计算方法比较研究 [J]. 原子能科学技术, 2015, 49(6): 1095-1100.
ZHAO Yunfei, TONG Jiejuan, ZHANG Liguang, et al. Comparative study of aerosol decontamination factor in containment during light water reactor plant accident [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, 49(6): 1095-1100.
- [9] PORCHERON E, LEMAITRE P, MARCHAND D. Aerosol removal by emergency spray in PWR containment [J]. Journal of Energy and Power Engineering, 2011, 5(7): 600-611.
- [10] ALLELEIN H J, ARNDT S, KLEIN-HEBLING W, et al. COCOSYS: status of development and validation of the German containment code system [J]. Nuclear Engineering and Design, 2008, 238(4): 872-889.
- [11] KALTENBACH C, LAURIEN E. CFD simulation of aerosol particle removal by water spray in the model containment THAI [J]. Journal of Aerosol Science, 2018, 120: 62-81.
- [12] 于汇宇,谷海峰,孙中宁,等. 喷淋去除气溶胶的模型及实验研究 [J]. 哈尔滨工程大学学报, 2023, 44(5): 815-822.
YU Huiyu, GU Haifeng, SUN Zhongning, et al. Model and experimental study of aerosol removal by spray [J]. Journal of Harbin Engineering University, 2023, 44(5): 815-822.
- [13] FUCHS N A. The mechanics of aerosols [M]. New York, USA: Dover Publications, 1964.
- [14] POSTMA A K, SHERRY R R, TAM P S. Technological bases for models of spray washout of airborne contaminants in containment vessels: NUREG/CR-0009 [R]. United States: NUREG, 1978.
- [15] 李济深,张斌,高鹏程,等. 反应堆安全壳高精度气溶胶自然沉积模型的开发及验证 [J]. 核技术, 2023, 46(5): 114-126.
LI Jishen, ZHANG Bin, GAO Pengcheng, et al. Development and validation of high-precision aerosol models for natural deposition processes in reactor containment [J]. Nuclear Techniques, 2023, 46(5): 114-126.
- [16] 高鹏程,张斌,单建强. 燃料棒破损热力学模块开发及在严重事故分析程序中的应用 [J]. 原子能科学技术, 2022, 56(7): 1300-1307.
GAO Pengcheng, ZHANG Bin, SHAN Jianqiang. Development of fuel rod rupture thermal-mechanical module and application in severe accident analysis code [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2022, 56(7): 1300-1307.
- [17] GAO Pengcheng, ZHANG Bin, LI Jishen, et al. Development of mechanistic cladding rupture model for integrated severe accident code ISAA. Part I: module verification and application in CAP1400 [J]. Annals of Nuclear Energy, 2021, 158: 108305.

- [18] LI Jishen, ZHANG Bin, GAO Pengcheng, et al. Improvement and validation of aerosol models for natural deposition mechanism in reactor containment [J]. Nuclear Engineering and Technology, 2023, 55 (7): 2628-2641.
- [19] GRIST D R. Spray removal of fission products in PWR containments, SRD-R-267 [R]. United Kingdom: SRD, 1982.
- [20] WANG Simin, WANG Jiarui, SONG Chen, et al. Optimization investigation on operating parameters of a scrubbing tower using a genetic algorithm [J]. Chemical Engineering & Technology, 2020, 43(10): 2109-2117.
- [21] PARK S H, JUNG C H, JUNG K R, et al. Wet scrubbing of polydisperse aerosols by freely falling droplets [J]. Journal of Aerosol Science, 2005, 36 (12): 1444-1458.
- [22] NAGARE B, MARCOLLI C, STETZER O, et al. Comparison of measured and calculated collision efficiencies at low temperatures [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15(23): 13759-13776.
- [23] MURATA K K, WILLIAMS D C, GRIFFITH R O, et al. Code manual for CONTAIN 2.0: a computer code for nuclear reactor containment analysis; NUREG/CR-6533 [R]. United States: NUREG, 1997.
- [24] FREITAG M, GUPTA S, BECK S, et al. Experimental and analytical investigations of aerosol processes—wash-out and wash-down [J]. Nuclear Science and Engineering, 2019, 193(1/2): 198-210.
- [25] MARCHAND D, PORCHERON E, LEMAITRE P, et al. Characterization of the washout of aerosols by spraying water for thermal hydraulic conditions representative of a severe accident in nuclear reactor containment [EB/OL]. [2023-06-06]. <http://www.ilas-seurope.org/ICLASS/ICLASS2006/DATA/PDF/D1-03-049.pdf>.
- [26] HILLIARD R. Effect of spray flow rate on washout of gases and particles in the containment systems experiment, BNWL-1591 [R], 1971.
- [27] KMETTYK L N. MELCOR 1.8.3 assessment: CSE containment spray experiments; SAND-94-2316 [R]. United States: SAND, 1994.

(编辑 赵炜)