

球床高温气冷堆燃料颗粒中放射性核素的累积释放份额研究*

杨辰²⁾³⁾ 房超^{1)2)3)†} 张建²⁾³⁾ 曹建主²⁾³⁾

1)(低维量子物理国家重点实验室, 北京 100084)

2)(清华大学核能与新能源技术研究院, 北京 100084)

3)(先进反应堆工程与安全教育部重点实验室, 北京 100084)

(2013年5月14日收到; 2013年9月22日收到修改稿)

本文利用Fick扩散定律, 给出经典方法和改进的两种累积释放份额的严格数学表达式, 并分析与之相关的穿透时间的物理内涵, 并分别用以上两种方法计算 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 三种重要放射性核素通过SiC层扩散的累积释放份额. 研究表明, 传统的“穿透时间”概念并非放射性核素释放到SiC层外的时间, 本文提出的改进方法可以更准确的描述放射性核素在燃料元件中的输运和扩散行为.

关键词: 高温气冷堆, 核燃料颗粒, 放射性核素, 累积释放份额

PACS: 28.41.-I, 28.41.Bm, 28.41.Te

DOI: 10.7498/aps.63.032802

1 引言

球床式高温气冷堆被称为具有第四代特征的先进核反应堆, 作为一个有重要国际影响和示范意义的先进反应堆, 其放射性裂变产物释放行为以及由此带来的辐射安全特性显得尤为重要^[1]. 高温气冷堆运行时产生的裂变产物在其球形燃料元件及其燃料包覆颗粒中的扩散行为是所有源项分析、辐射安全性检验、反应堆固有安全性论证的基础之一, 所以这一领域的研究引起了广泛的重视^[2,3].

我国10 MW高温气冷实验堆(HTR-10)是国内第一个球床式高温气冷堆^[3], 它采用我国自行设计、制造的包覆颗粒球形燃料元件(一个燃料球内区镶嵌着近万个燃料包覆颗粒), 具有自主知识产权^[4]. 球床高温气冷堆燃料元件中的核燃料为TRISO型包覆颗粒, 其由核燃料 UO_2 核芯陶瓷颗粒、疏松热解碳层、内致密热解碳层、碳化硅(SiC)层和外致密热解碳层组成. 上述包覆层在设计温度

下可以很好地阻止裂变产物逸出燃料颗粒, 是保证核电站安全的第一道屏障^[4], 其结构如图1所示.

高温气冷堆运行时, 燃料颗粒中的SiC是阻挡放射性核素扩散出颗粒的关键部分, 因此关于SiC层制备、物性的有关研究很多. 有关研究提出“穿透

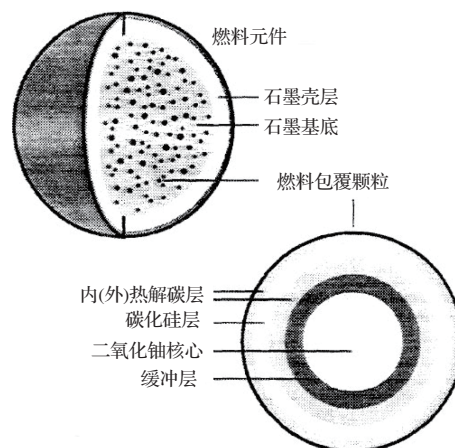


图1 高温气冷堆燃料元件及其燃料包覆颗粒示意图

* 低维量子物理国家重点实验室开放研究基金(批注号: KF201302)、国家重大科技专项(批准号: ZX06901)和国家自然科学基金(批准号: 11104156)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: fangchao@tsinghua.edu.cn

时间”的概念^[5], 认为其放射性核素从燃料颗粒中穿透 SiC 层并大量释放到包覆颗粒外的时间, 并用以考量高温气冷堆的安全性, 引起了广泛关注. 然而这一概念的物理含义并不明确, 也一直缺乏完善的数学推导, 这对于评价高温气冷堆的安全性是不严谨的.

本文将利用 Fick 扩散定律, 给出经典方法和根据物理实际改进的两种累积释放份额的严格数学表达式, 比较其物理意义、前提假设和结论计算的不同之处, 并分析与之相关的“穿透时间”的物理内涵, 进而结合 HTR-10 高温气冷堆等几种气冷堆的设计参数, 用以上两种方法计算 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 三种放射性核素通过 TRISO 包覆颗粒中 SiC 层扩散的累积释放份额, 在分析和比较的基础上, 澄清“穿透时间”的物理内涵和应用范围, 为更准确分析评价放射性核素在燃料元件中的释放提出新的方法.

2 累积释放份额严格表达式的数学推导及其物理内涵

2.1 经典方法的模型构建与数学推导

反应堆运行生成的放射性核素在内的物质扩散遵循 Fick 扩散定律^[6,7], 由于在局域可认为包覆颗粒中的 SiC 层是无限大平板, 因此 Fick 定律可表示为

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}, \quad (1)$$

其中 C 为核素在扩散介质中的浓度 (atom/cm³); t 为时间坐标 (s); x 为空间坐标 (cm); D 为核素在扩散介质中的扩散系数 (cm²/s), 与核素、材料、温度有关. 假设 SiC 层的厚度为 d , 并认为对于 SiC 层及内部核芯区是有一定厚度的空心球体模型, 内部核芯区具有初始浓度分布 $C = f(r)$, 边界条件为

$$C = C_1|_{r=r_i, t>0}, \quad C = C_2|_{r=r_s, t>0}, \quad (2)$$

其中, r 为空间坐标 (cm); r_i 为 SiC 层内侧对应的半径; r_s 为 SiC 层外侧对应的半径. 该空心球体模型的一般解为^[8]

$$C = \frac{r_i C_1}{r} + \frac{(r_s C_2 - r_i C_1)(r - r_i)}{rd} + \frac{2}{r\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{r_s C_2 \cos n\pi - r_i C_1}{n} \times \sin \frac{n\pi(r - r_i)}{d} \exp(-n^2 \pi^2 \tau)$$

$$+ \frac{2}{rd} \sum_{n=1}^{\infty} \sin \frac{n\pi r}{d} \exp(-n^2 \pi^2 \tau) \times \int_0^d r' f(x') \sin \frac{m\pi(r' - r_i)}{d} dr', \quad (3)$$

其中, $d = r_s - r_i$ 为 SiC 层的厚度. 对 (3) 式所满足的条件进一步简化, 最初内部核芯区具有一定的浓度常量 C_0 , 则 (3) 式可进一步简化为

$$C = \frac{r_i C_1}{r} + \frac{(r_s C_2 - r_i C_1)(r - r_i)}{rd} + \frac{2}{r\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{r_s (C_2 - C_0) \cos n\pi - r_i (C_1 - C_0)}{n} \times \sin \frac{n\pi(r - r_i)}{d} \exp(-n^2 \pi^2 \tau). \quad (4)$$

此处引入“累积释放份额”来描述截止时间 t 时, 核素穿透 SiC 层的释放量占初始总量的百分比, 即

$$F(t) = \frac{1}{N} \int_0^t -4\pi r_s^2 D \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_{r=r_s} dt', \quad (5)$$

这里, 认为初始时刻在 SiC 层内的核芯区中含有 N 个核素原子, 则有 $C_0 = \frac{N}{4\pi r_i^3/3}$, 并且考虑最简单的情况, 当 $C_0 = C_2 = 0$ 时, 求得累积释放份额

$$F(t) = 3 \frac{r_s}{r_i} \frac{d}{r_i} \left[\frac{Dt}{d^2} - \frac{1}{6} - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2 \pi^2} \times \exp \left(-\frac{Dn^2 \pi^2 t}{d^2} \right) \right], \quad (6)$$

可以发现, 当 $t \rightarrow \infty$ 时, 上式的指数项趋近于 0, $F(t)$ 最终变为线性方程

$$F(t) = 3 \frac{r_s}{r_i} \frac{d}{r_i} \left(\frac{Dt}{d^2} - \frac{1}{6} \right), \quad (7)$$

其在 t 轴上有一截距

$$t = \frac{d^2}{6D}. \quad (8)$$

式 (6) 的函数图像如图 2 所示.

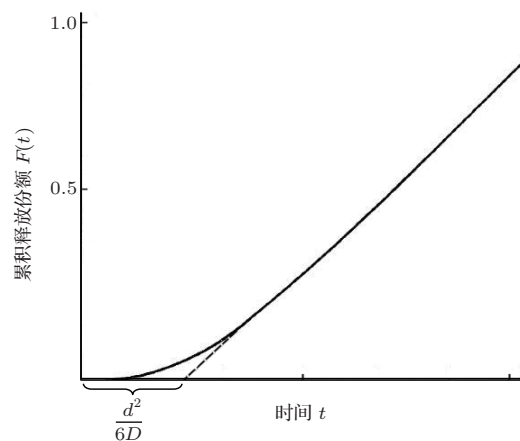


图 2 累积释放份额函数关系图

该截距 $t = d^2/6D$ 的物理意义为扩散物质在实际扩散过程中需经一段时间进入稳态流动, 这与扩散物质直接进入稳态扩散相比, 两者的时间差等于该截距值, 也被称为“时滞”(6) 式中即是要求 $F(t) \geq 0$, 所对应的临界时间 t 所满足的关系为

$$t = \frac{d^2}{D} \left(\frac{1}{6} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \exp(-n^2 \pi^2 D t / d^2)}{n^2 \pi^2} \right), \quad (9)$$

该临界时间即为“穿透时间”的严格数学表达式(在 t 很大时, 可以忽略指数项得到 $t = \frac{d^2}{6D}$). 根据以上推导可知, “穿透时间”其实是度量累积释放份额何时大于 0 的一个量, 在时间到达“穿透时间”时, 意味着开始有核素原子从 SiC 层外侧扩散出来, 但这时释放出的核素浓度仅仅是极微量的, 并非如文献 [5] 中所表述的: 达到“穿透时间”后, SiC 就失去阻挡放射性核素的作用, 造成放射性核素大量释放. 可见, “穿透时间”这一概念仅仅具有抽象意义, 并不能作为考量包覆颗粒中 SiC 层阻挡裂变产物能力的指标, 更不能作为评价反应堆安全性的指标.

文献 [5] 中用 $t = \frac{d^2}{6D}$ 表示穿透时间(即认为近似认为 $F(\tau) = 3 \frac{r_s}{r_i} \frac{d}{r_i} \left(\tau - \frac{1}{6} \right)$), 忽略了后面的级数项, 这造成了对于 $F(\tau) \geq 0$ 的时刻做的估计产生了偏差. 我们设定穿透时间的严格解对应的累积释放份额为 $F_1(\tau)$, 近似解对应的累积释放份额为 $F_2(\tau)$, 取 $D = 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$, $N = 10^{20}$, $d = 35 \text{ } \mu\text{m}$ (其他参数参考 HTR-10 设计参数 [2]), 则可得图 3.

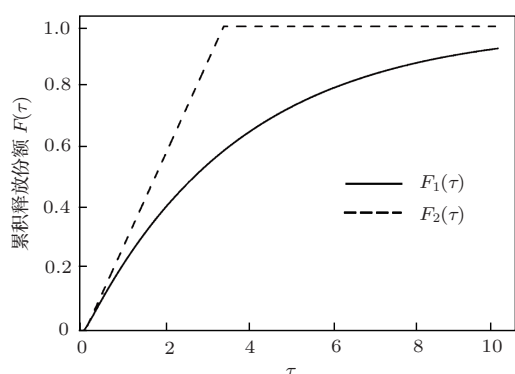


图 3 累积释放份额的严格解 $F_1(\tau)$ 和近似解 $F_2(\tau)$

从图 3 可见, 如果用 $F(\tau) = 3 \frac{r_s}{r_i} \frac{d}{r_i} \left(\tau - \frac{1}{6} \right)$ 代替其严格表达式, 则计算放射性核素的累积释放

份额会有所偏差: 在任意时刻, 其放射性核素累积释放份额都会较高, 而且过早的到达了 100%(即产生的裂变产物完全释放到 SiC 层外), 这明显和实际情况不符合.

从累积释放份额的推导中还可以看到, 其假设前提为 $C = C_1|_{r=r_i, t>0}$, 即 SiC 层内侧的浓度始终为常量, 但在本研究中, 认为浓度应随核素的持续扩散而不断降低更符合物理实际. 因此, 按照经典方法推导出的累积释放份额是与物理实际不相符合的, 按此计算出的值必定存在误差. 下文将对此前提假设进行修正, 提出根据物理实际改进后的物理模型和数学推导.

2.2 根据物理实际改进后的模型构建与数学推导

反应堆运行时, 需考虑裂变产物的产生机理, 因此对应的裂变产物的扩散可描述成

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathbf{J}) - \lambda C + \dot{Q}, \\ \mathbf{J} &= D \nabla C, \end{aligned} \quad (10)$$

其中 $\mathbf{J}$ 为核素的流密度 ($\text{atom}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$); $\dot{Q}$ 为核素产生率 ($\text{atom}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$); λ 为核素的衰变常数 (s^{-1}); 其他字母含义同 (1) 式. 对于在反应堆安全中比较关注的长寿命放射性核素 (如 Cs, Sr, Ag 等), 可认为 $\lambda \approx 0$, 且由于 $\dot{Q}$ 是常数, 所以亦可通过坐标变换消掉. 综上, 球坐标下核素在燃料颗粒的 SiC 层中的扩散方程可写为

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (rC). \quad (11)$$

所满足的初始条件 (r_i 为 SiC 层内侧对应的半径, r_s 为 SiC 层外侧对应的半径):

$$C = 0|_{r_i \leq r \leq r_s, t=0} \quad (12)$$

和边界条件:

$$\frac{4\pi r_i^3}{3} \frac{dC}{dt} \Big|_{r=r_i, t>0} = 4\pi r_i^2 D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=r_i, t>0}, \quad (13)$$

$$C = 0|_{r=r_s, t>0}, \quad (14)$$

认为初始时刻在核芯区的球体体积中有 N 个核素原子, 则有 $C_i(t=0) = \frac{N}{4\pi r_i^3/3}$, 所有的核素原子只能通过 SiC 层进行扩散, 假设内部核芯区和 SiC 层内侧之间的浓度相同, 使用拉普拉斯变换, 由方程 (11) 和初始条件 (12) 可得 (s 为与 t 对应的拉普

拉斯变换后的自变量, $\bar{C}$ 为 C 经过拉普拉斯变换后的函数):

$$s\bar{C} = D \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (r\bar{C}). \quad (15)$$

SiC 层内侧边界条件为

$$(s\bar{C} - C_0)|_{r=r_i, t>0} = \frac{3}{r_i} D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=r_i, t>0}. \quad (16)$$

结合边界条件可以得到

$$\begin{aligned} \bar{C}(r, s) = \frac{C_0}{D^*} \cdot \frac{1}{(q^2 + 3\gamma^2) \sin q + 3\gamma q \cos q} \\ \times \frac{r_i}{r} \cdot \sin \left(q \frac{R-r}{d} \right), \end{aligned} \quad (17)$$

其中, $d = r_s - r_i$ 为 SiC 层的厚度, C_0 为 SiC 层内的初始浓度, $\gamma = d/r_i$, $D^* = D/d^2$, $q = \sqrt{s/D^*}$. 累积释放份额可以解得

$$\bar{F}(s) = \frac{1+\gamma}{s} \left[\left(\frac{q^2}{3\gamma} + \gamma \right) \frac{\sin q}{q} + \cos q \right]^{-1}. \quad (18)$$

根据留数定理, 上式可展开为 m 个简单部分形式的和

$$\begin{aligned} \bar{F}(s) = \frac{c_1}{s-s_1} + \frac{c_1}{s-s_1} + \cdots + \frac{c_m}{s-s_m} \\ = \sum_{i=1}^m \frac{c_i}{s-s_i}, \end{aligned} \quad (19)$$

c_i 为待定常数, 为 $\bar{F}(s)$ 在 s_i 处的留数, 由 $c_i = \lim_{s \rightarrow s_i} (s-s_i) \bar{F}(s)$ 求得. 根据拉氏变换性质, 可求得原函数

$$\begin{aligned} F(t) = L^{-1} [\bar{F}(s)] = L^{-1} \left[\sum_{i=1}^n \frac{c_i}{s-s_i} \right] \\ = \sum_{i=1}^n c_i e^{-s_i t}. \end{aligned} \quad (20)$$

观察 $\bar{F}(s)$, 显然其具有一个一级极点 $s=0$, 在此极点处的留数为

$$\begin{aligned} c_1 = \lim_{s \rightarrow 0} s \cdot \frac{1+\gamma}{s} \left[\left(\frac{q^2}{3\gamma} + \gamma \right) \frac{\sin q}{q} + \cos q \right]^{-1} \\ = 1. \end{aligned} \quad (21)$$

其他极点应由下式确定:

$$\left(\frac{q^2}{3\gamma} + \gamma \right) \frac{\sin q}{q} + \cos q = 0. \quad (22)$$

可以解得

$$\tan q = 3\gamma q / (q^2 + 3\gamma^2). \quad (23)$$

由于 $\tan q$ 具有周期性, 故其对应了无穷多个极点, 根据留数定理, 并为了求解和表达的方便, 令 $q = y_i$, 有

$$s_i = -D^* y_i^2, \quad (24)$$

且

$$\tan y_i = 3\gamma y_i / (y_i^2 + 3\gamma^2). \quad (25)$$

那么, $s = s_m$ 处的留数为

$$\begin{aligned} c_i = \lim_{s \rightarrow s_i} (s-s_i) \bar{F}(s) = \lim_{s \rightarrow s_i} (s-s_i) \cdot \frac{1+\gamma}{s} \\ \times \left[\left(\frac{y_i^2}{3\gamma} + \gamma \right) \frac{\sin y_i}{y_i} + \cos y_i \right]^{-1} \\ = - \frac{(1+\gamma)y_i}{\left(\frac{y_i^2}{6\gamma} + \frac{1}{2} + \gamma + \frac{6\gamma^2 + 9\gamma^3}{2y_i^2 - 6\gamma^2} \right)}. \end{aligned} \quad (26)$$

为简便表达, 我们令

$$T_i = \frac{(1+\gamma)y_i}{\left(\frac{y_i^2}{6\gamma} + \frac{1}{2} + \gamma + \frac{6\gamma^2 + 9\gamma^3}{2y_i^2 - 6\gamma^2} \right)}, \quad (27)$$

由上最终可得累积释放份额的表达式

$$\begin{aligned} F(t) = \sum_{i=1}^n c_i e^{-s_i t} \\ = 1 - \sum_{i=1}^{\infty} T_i \exp(-D^* y_i^2 t), \end{aligned} \quad (28)$$

其中 y_i 由 (25) 式决定, T_i 由 (27) 式决定. 累积释放份额的函数曲线如图 4 所示, 其中 $\gamma = 0.11$.

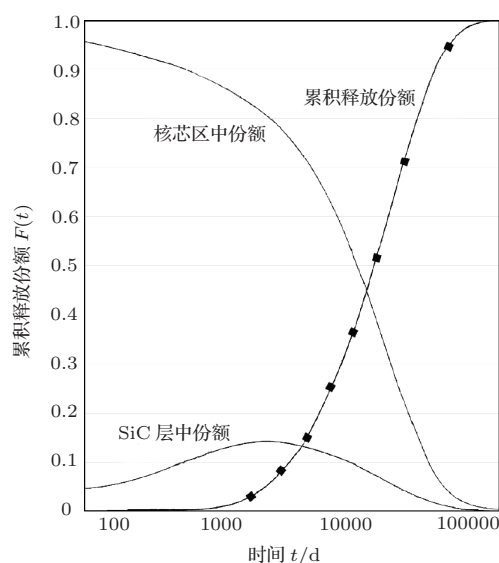


图 4 累积释放份额函数曲线图

核素初期在SiC层中扩散, 1000 d左右开始有核素“穿透”SiC层的外侧, 这时累积释放份额从0开始增加, 最终一直上升到1; 核芯区由于核素原子不断向外扩散, 其对应的内部份额不断下降, 直到最后为0; 而SiC层中对应的份额在最初是呈上升趋势, 期间达到峰值后, 开始持续下降, 最终接近为0.

我们将(28)式进一步简化, 令 $\tau = D^*t$, 可得

$$F(\tau) = 1 - \sum_{i=1}^{\infty} T_i \exp(-y_i^2 \tau). \quad (29)$$

当使用(29)式的累积释放份额表达式进行计算时可根据 τ 的大小分为两种情况来考虑. 当 τ 比较大时, 可以简单地只取级数项的前几项, 即可进行比较准确的近似; 当 τ 比较小时, 级数收敛性较差, 这是由于 T_m 的符号在交替变换, 奇数项为上界, 偶数项为下界. 这里我们使用拟合的方法给出累积释放份额的参考两个近似计算公式.

当 $\tau < 0.07$ 时, 累积释放份额为

$$F_{\text{small}} \approx \frac{24\gamma(1+\gamma)}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{1}{4\tau}\right) \tau^{1.5} [1 - 6\tau(1+\gamma) + 12\tau^2(5 + 6\gamma + 6\gamma^2)]. \quad (30)$$

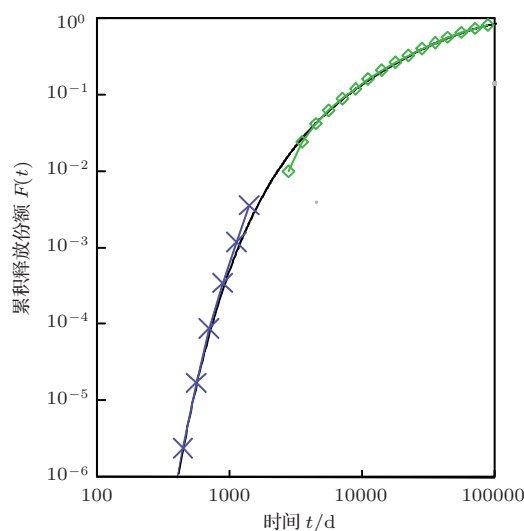


图5 累积释放份额的近似解与准确解

当 $\tau > 0.07$ 时, 累积释放份额为

$$F_{\text{big}} \approx 1 - (1 + \gamma/2) \exp(-3\gamma\tau). \quad (31)$$

近似计算曲线如图5所示, 可见近似解的精度比较好的符合(30)式的准确解.

2.3 两种方法的误差比较

我们将2.1和2.2节中两种累积释放份额做如下比较(取 $D = 10^{-17} \text{ m}^2/\text{s}$, $d = 35 \text{ }\mu\text{m}$).

如图6所示, 经典方法得到的红色曲线仅有4%—5%的部分与实际曲线相符合, 这再次说明经典方法因其前提假设与物理实际不符, 导致其最终的累积释放份额与真实值存在误差, 因此经典方法得到的结论不能直接用于反应堆的实际计算.

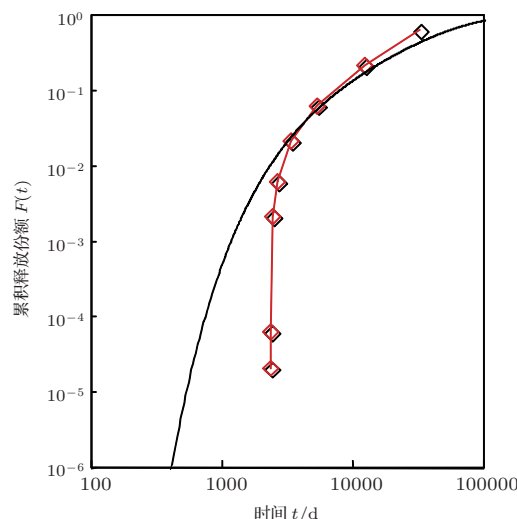


图6 两种累积释放份额的误差比较

3 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 三种放射性核素的累积释放份额分析

我们选取以下三种高温气冷堆来具体分析, 分别是中国HTR-10高温气冷堆、德国AVR高温气冷堆和THTR-300原型堆. 三种高温气冷堆燃料元件的最高设计温度如表1[4].

表1 三种高温气冷堆燃料元件的最高设计温度

堆型	表面(一期运行)/ $^{\circ}\text{C}$	中心(一期运行)/ $^{\circ}\text{C}$	事故工况(一期工程/二期工程)/ $^{\circ}\text{C}$
HTR-10	877	919	1230/1600
AVR	1250	1350	
THTR-300	1170	1230	

计算累积释放份额时所用的扩散系数根据以下公式求得^[4]:

$$D = \sum_i D_{0,i} \exp(-Q_i/RT), \quad (32)$$

其中, D_0 为指前因子 (m^2/s); Q 为活化能 (J/mol);

R 为摩尔气体常量, $R = 8.3143 \text{ (J/(mol}\cdot\text{K))}$; T 为绝对温度 (K). 其取值参考文献^[4]. 鉴于许多温度值较接近故每个堆型计算时只取最高的正常运行温度值(即中心温度)HTR-10再另取两个事故工况温度值每种高温气冷堆中三种核素的“穿透时间” t_B 和累积释放份额 $F(\tau)$ 见表2和表3.

表2 HTR-10中的三种核素的累积释放份额

核素	运行温度 919°C			一期工程事故工况温度 1230°			二期工程事故工况温度 1600°		
	t_B/d	$F_1(\tau)$	$F_2(\tau)$	t_B/d	$F_1(\tau)$	$F_2(\tau)$	t_B/d	$F_1(\tau)$	$F_2(\tau)$
^{137}Cs	9323.1	0.012	0.001	680.9	0.012	0.001	24.1	0.012	0.001
^{90}Sr	1910.3	0.012	0.001	26.4	0.012	0.001	0.97	0.012	0.001
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	1747.3	0.012	0.001	19.6	0.012	0.001	0.65	0.012	0.001

表3 AVR和THTR-300中的三种核素的累积释放份额

核素	AVR 运行温度 1350°			THTR-300 运行温度 1230°		
	t_B/d	$F_1(\tau)$	$F_2(\tau)$	t_B/d	$F_1(\tau)$	$F_2(\tau)$
^{137}Cs	307.7	0.012	0.001	680.9	0.012	0.001
^{90}Sr	7.85	0.012	0.001	26.4	0.012	0.001
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	5.49	0.012	0.001	19.6	0.012	0.001

比较累积释放份额的计算结果, 我们首先发现温度变化对于核素的“穿透时间”影响很大, 对于单种核素来说, 温度越高, “穿透时间”越短, 但参照累积释放份额可以发现, 经典方法和改进方法绝对值都很低, 尤其是改进方法得到的累积释放份额仅为0.1%, 可见, 在达到“穿透时间”的时候, 放射性核素刚刚开始扩散出SiC层外侧, 远远没有达到大量释放的程度, 更不意味着SiC层的失效. 比较三种元素的在达到相同累积释放份额所用的“穿透时间”, ^{90}Sr 和 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 基本为同一量级且时间较短, 而 ^{137}Cs 的“穿透时间”明显长一些, 尤其在温度很高时, ^{137}Cs 的“穿透时间”比另外两种元素大两个量级, 可见 ^{137}Cs 的释放速率比 ^{90}Sr 和 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 低. 对比两种累积释放份额的相对计算结果, 经典方法 $F_1(\tau)$ 结果为1.2%, 改进方法 $F_2(\tau)$ 结果为0.1%, 可见经典方法与真实情况相比, 在相对值上有较大的误差, 且偏于保守.

由此, 根据 $t_B = \frac{d^2}{6D}$ 计算出反应堆燃料元件“穿透时间”, 反算出此时燃料元件的累积释放份额, 证明了达到“穿透时间”时放射性核素并不会出现大量释放的情况, 也因此, “穿透时间”这一概念的本身就存在着问题, 更不应该用它来衡量SiC层的

有效性和放射性核素穿透SiC层的情况.

4 结 论

本文利用Fick扩散定律, 给出经典方法和根据物理实际改进的两种累积释放份额的严格数学表达式, 比较其物理意义、前提假设和结论计算的不同之处, 并分析与之相关的“穿透时间”的物理内涵, 进而结合HTR-10高温气冷堆等几种堆型的数据, 分别用以上两种方法计算 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, 三种放射性核素通过SiC层扩散的累积释放份额, 通过分析其绝对值, 论证了达到所谓的“穿透时间”时, 放射性核素的累积释放份额极小, 并未大量释放到SiC层之外, 这一物理量不能作为评估高温气冷堆安全与否的标准. 通过分析累积释放份额的相对值, 证明本文提出的改进方法可以更准确衡量放射性核素在燃料元件中的释放情况, 可以减少降低不必要的保守性.

参考文献

- [1] Fang C, Liu M L 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 097802 (in Chinese)[房超, 刘马林 2012 物理学报 **61** 097802]

- [2] Wu Z X, Zhang Z Y 2004 *Advanced Nuclear Power System and High-temperature Gas-cooled Reactor* (First Edition) (Beijing: Tsinghua University Press) p22 (in Chinese) [吴宗鑫, 张作义 2004 先进核能系统和高温气冷堆 (第1版) (北京: 清华大学出版社) 第22页]
- [3] Cao Y, Cao J Z 2007 *Atom. Ene. Sci. & Tec.* **41** 555 (in Chinese)[曹玥, 曹建主 2007 原子能科学技术 **41** 555]
- [4] IAEA-TECDOC-978 1997 *International Atomic Energy Agency* p446
- [5] Moormann R 2009 *Kerntechnik.* **74** 8
- [6] Crank J 1956 *The mathematics of diffusion* (London: Oxford University Press) p24
- [7] Jost W 1960 *Diffusion in solids, liquids, gases* (3rd printing with addendum) (New York: Academic Press) p42
- [8] Carslaw H S, Jaeger J C 1959 *Conduction of heat in solids* (Oxford: Clarendon Press) p246

Study on cumulative fractional release of radionuclides in HTGR fuel particles^{*}

Yang Chen²⁾³⁾ Fang Chao^{1)2)3)†} Zhang Jian²⁾³⁾ Cao Jian-Zhu²⁾³⁾

1) (the State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, Beijing 100084, China)

2) (Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

3) (the Key Laboratory of Advanced Reactor Engineering and Safety, Ministry of Education, Beijing 100084, China)

(Received 14 May 2013; revised manuscript received 22 September 2013)

Abstract

During high-temperature gas refrigeration reactor (HTGR) operation, SiC in the fuel particles is the key structure for stopping radionuclides diffusing from the particles. Researchers put forward the concept of breakthrough time, which is the time of a large amount of radionuclides released through SiC from the particles, for the consideration of HTGR safety. However, this concept is not so accurate. This paper gives a strict expression of cumulative fractional release interims of classic and improved methods, and also analyses the relevant physical content of breakthrough time in the use of Fick's law of diffusion. By computing the cumulative fractional release of three kinds of important radionuclides ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{110\text{m}}\text{Ag}$, and using the above two methods, we find that the traditional meaning of the physical quantity is not the time of radionuclides released from SiC. The improved method is more accurate for describing the release and transport condition of radionuclides in nuclear fuel particles.

Keywords: HTGR, nuclear fuel particles, radionuclide, cumulative fractional release

PACS: 28.41.-I, 28.41.Bm, 28.41.Te

DOI: 10.7498/aps.63.032802

^{*} Project supported by the Open Research Fund Program of the State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics (Grant No. KF201302), the National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. ZX06901), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11104156).

[†] Corresponding author. E-mail: fangchao@tsinghua.edu.cn