一回路含氨冷却剂水化学控制策略研究

罗天骏[1] 袁誉坤[1] 周肖元[1] 郭子方[1] 杜颖哲[1] 林 鹏[1] 胡国军[2]

1（中广核研究院有限公司 深圳 518028）

2（中国科学技术大学 核科学技术学院 合肥 230026）

摘要 特定堆型的一回路冷却剂中通过加入氨调控pH，并利用其辐解产物抑制氧化性物质的浓度，从而维持冷却剂的还原性状态。在此过程中，氨浓度与pH调控产生显著的联动影响，需要建立可模拟不同控制策略下水化学行为的模型，实现pH和溶解氢浓度控制。本工作基于RETA反应堆系统分析程序，开发了一个适用于压水堆型冷却剂辐解产物输运的模型，模型预测NH_3和H_2浓度与实验结果的均方误差分别为1.79×10^{-8}和5.69×10^{-8}。以KLT-40S堆型为对象，构建并对比分析了三种加氨调控策略：初始弥散加氨、源恒速加氨及基于除氢优化的源恒速加氨。在模拟过程中，设置了冷却剂初始参数与辐射场条件，逐步调整加氨速率与除氢时机。每种策略均模拟至系统达到准稳态（1.6×10^4 s），以评估其对pH和溶解氢浓度的调控效果。结果显示，初始氨弥散策略简单直接，可维持体系的还原性但对冷却剂pH调控的时间小于5 h；源恒速加氨可长时间有效调节冷却剂pH，但会带来溶解氢浓度过高的问题，需匹配相应的除氢方案。采用基于除氢优化的源恒速加氨策略，能够同时满足稳定控制pH和溶解氢浓度的要求，加氨速率为1.64 g·s^{-1}，加氨开始1 200 s后开启除氢装置，除氢速率0.014 g·s^{-1}，化学状态稳定后冷却剂的pH为6.9，溶解氢浓度为30~35 mL·kg^{-1}（Standard Temperature and Pressure，STP）。本工作有望为新堆型研发和水化学控制策略的优化提供参考。

关键词 冷却剂，反应堆，氨，辐射分解，水化学

中图分类号 TL13

DOI: 10.3724/j.0253-3219.2026.hjs.49.250199

CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2026.49.250199

Water chemistry control strategy of ammonia-containing coolant in the primary circuit

LUO Tianjun[1] YUAN Yukun[1] ZHOU Xiaoyuan[1] GUO Zifang[1] DU Yingzhe[1]
LIN Peng[1] HU Guojun[2]

1(*China Nuclear Power Technology Research Institute Co., Ltd., Shenzhen 518028, China*)

2(*School of Nuclear Science and Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

Abstract **[Background]** In some specific reactors, ammonia is added to regulate the pH of the primary coolant. The oxidizing species is effectively suppressed by radiolytic products of ammonia, thereby the coolant is maintained in a reductive chemical environment. **[Purpose]** This study aims to develop a predictive model capable of simulating water chemistry behavior under various control strategies to achieve coordinated regulation of both pH and dissolved hydrogen concentrations. **[Methods]** Firstly, a transport model for radiolytic species in reactor coolant was developed on the basis of the RETA reactor system analysis code, with applicability to a wide range of reactor types. The model

国家自然科学基金联合基金项目(No.U24B20194)资助

第一作者：罗天骏，男，1997年出生，2022年于哈尔滨工程大学获硕士学位，研究领域为放射化学、反应堆水化学

通信作者：郭子方，E-mail：gzf1212@mail.ustc.edu.cn；林鹏，E-mail：lin_peng@cgnpc.com.cn

收稿日期：2025-05-08，修回日期：2025-06-20

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.U24B20194)

First author: LUO Tianjun, male, born in 1997, graduated from Harbin Engineering University with a master's degree in 2022, focusing on radiochemistry and reactor water chemistry

Corresponding author: GUO Zifang, E-mail: gzf1212@mail.ustc.edu.cn; LIN Peng, E-mail: lin_peng@cgnpc.com.cn

Received date: 2025-05-08, revised date: 2025-06-20

demonstrated high predictive accuracy, with root-mean-square (RMS) errors of only 1.79×10^{-8} for NH_3 and 5.69×10^{-8} for H_2 concentrations compared with experimental data. Then, the KLT-40S reactor was taken as a research object, three ammonia injection strategies were established and comparatively evaluated: initial dispersion, constant-rate injection, and constant-rate injection optimized with hydrogen removal. The simulations were conducted by defining initial coolant parameters and radiation field conditions, followed by stepwise adjustment of ammonia injection rates and the timing of hydrogen removal. Each strategy was simulated until the system reached a quasi-steady state (1.6×10^4 s), allowing assessment of its effectiveness in controlling pH and dissolved hydrogen levels. **[Results]** The results indicate that the initial dispersed injection strategy, while simple and effective in maintaining a reductive chemical environment, is only able to sustain pH regulation for less than 5 h. Conversely, the constant-rate ammonia injection strategy enables sustained pH control but results in excessive dissolved hydrogen concentrations, necessitating an appropriate hydrogen removal scheme. The hydrogen removal-optimized constant-rate ammonia injection strategy is capable of simultaneously regulating pH and maintaining dissolved hydrogen concentrations. The ammonia injection rate is 1.64 $g\cdot s^{-1}$, and the hydrogen removal system is initiated 1 200 s after the start of ammonia injection, with a controlled removal rate of 0.014 $g\cdot s^{-1}$. When the system is stable, the coolant pH_T stabilizes at 6.9, with dissolved hydrogen concentrations ranging from 30 $mL\cdot kg^{-1}$ to 35 $mL\cdot kg^{-1}$ (Standard Temperature and Pressure, STP). **[Conclusions]** This study is anticipated to provide valuable insights for the development of new reactor types and the optimization of water chemistry control strategies.

Key words Coolant, Reactor, Ammonia, Radiolysis, Water chemistry

小型模块化反应堆(Small Modular Reactor,SMR)因其结构紧凑、重量较轻及部署灵活等特点,在破冰船、浮动核电站等特种领域中展现出广阔的应用前景。然而,SMR回路系统的高度集成与紧凑设计相较于传统反应堆,在辐射防护和材料服役安全性方面提出了更高要求[1−2]。特别是辐射分解产物的生成积累问题,诸如氧气(O_2)和过氧化氢(H_2O_2)等活性物质,可能对系统的化学稳定性及运行安全性产生不利影响[3−5]。因此,为深入理解辐射产物的生成机制及其在冷却剂系统中的迁移与转化行为,亟需获取精确的热工水力参数,并将其与水化学过程紧密耦合,实现对SMR冷却剂系统辐射化学效应的综合分析。

反应堆中的辐照问题由来已久[6−8],Scott[9]的研究表明,除了对材料造成的直接辐照损伤外,冷却剂的辐解也是导致材料腐蚀的关键因素。辐解指的是在高通量中子与γ辐射的作用下,堆芯区域的水产生多种不同的化学产物[10−11]。水化学相关问题主要聚焦于这些辐解产物的生成、传输与反应行为。其中多数产物具有极短的寿命,但仍有一些相对稳定的物质(如H_2O_2和O_2)可以在系统中持续存在,并可能对水质产生不利影响[11−12]。随着这些氧化性物质在主回路中的迁移,可能引发严重的氧化腐蚀,尤其对一些关键的薄壁结构(如不锈钢热交换器管壁等)构成潜在威胁[13]。近期,Sultana等[14]开展了关于超临界水(Supercritical Water,SCW)中辐解效应的实验研究,并指出SMR系统中可能存在类似的问题。

自水化学问题受到广泛关注以来,冷却剂的辐解过程得到了深入研究。Ershov等[15]率先提出并验证了一套适用于纯水辐解的动力学模型,系统描述了H_2、H_2O_2和O_2等主要辐解产物的生成机制。随后,Joseph等[16]通过大量实验进一步探究了纯水中的辐解效应,并构建了可用于预测多种产物生成行为的动力学模型。Elliot等[17]整理并报道了60组关键辐解反应及其速率常数,为水化学模拟计算提供了重要基础。

此后的研究工作围绕与实验结果更好地拟合和更广泛模拟范围开展。Yakabuskie[18]在Joseph工作的基础上引入两相界面间的质量传递过程,对模型进行了修正与完善。Pálfi[19]通过实验和计算相结合的方法,研究了水溶液在脉冲辐照条件下瞬态产物的生成过程和产率。Karditsas[20]针对国际热核聚变实验堆(International Thermonuclear Experimental Reactor,ITER)中的辐解过程进行了研究,提出了时间相关的传输模型并给出了计算实例。Yousefi[21]则将辐解模型的应用范围扩展至高温高压条件下,为更复杂工况下的辐解行为分析提供了理论基础。

另一类研究聚焦于辐解产物的影响因素及其控制策略。Roth等[22]和Daub等[23]分析了pH对H_2O_2生成及碳钢腐蚀行为的影响。Dey[24]对辐照条件下水溶液中含氮物质的转化过程进行了综述,提出NH_3具有调控氧化性物质的潜力,为腐蚀控制提供了新的可能的手段。在此基础上,Yakabuskie等[25]对NO_3^-和NO_2^-溶液辐解行为的研究,Guo等[26]针对

不同影响因素下氨水的辐解过程进行了分析。Kumar 等[27]评估了 N_2H_4 在腐蚀控制中的作用，Iwamatsu 等[28]研究了 H_2 在抑制 H_2O_2 积累方面的效果。

上述工作主要集中在零维系统的均相体系，忽略空间分布效应，缺乏回路分析的指导。考虑到辐解产物是在堆芯生成并在一回路中传输，可以结合质量、动量和能量方程来计算产物的浓度演化。本工作中结合辐射化学、热工水力学以及数值计算等研究，开发了用于模拟 SMR 中的热工水力学和水化学耦合效应的模型。该模型基于 RETA 系统分析代码，增加了一个用于水化学反应和传输的子模块。随后对模型的可靠性和性能进行了验证评估，并对 KLT-40S 反应堆的一回路进行了建模计算，分析了两种加氨策略的调控效果及其优缺点。本工作有望为含氨水化学控制策略的优化提供参考。

1　模型建立与验证

1.1　辐解过程

辐解过程可以概括成三个阶段：1）射线在冷却剂中沉积能量，并导致一系列激发产物产生，如 H_2O^*、H_2O^+ 和 e^-；2）激发产物发生反应并生成中间产物，如 •H 和 •OH 自由基；3）激发产物和中间产物相互反应并生成最终辐解产物扩散出云团，例如 H_2O_2、O_2 和 H_2 等，如式（1）所示。

$$H_2O \rightarrow H_2, H_2O_2, e_{aq}^-, \cdot H, \cdot OH, H_3O^+, HO_2\cdot \quad (1)$$

对于冷却剂辐解过程的零维计算，可通过引入 G 值将射线的剂量率转换为辐解产物生成的源项，定义如下：

$$S_{i,\mathrm{rad}} = \frac{\rho G_i D_\mathrm{r}}{100 e N_\mathrm{A}} \quad (2)$$

式中：$S_{i,\mathrm{rad}}$ 是物种 i 的辐解产生速率，mol·L·s^{-1}；ρ 表示冷却剂的密度，kg·L^{-1}；G_i 表示 i 的辐射化学产额，/100 eV；D_r 为吸收剂量率，Gy·s^{-1}；e 是电子电荷量，1.9×10^{-19} C；N_A 是阿伏伽德罗常数，6.02×10^{23} mol^{-1}。

持续照射的情况下，各物种间相互反应，对物种 i 而言，在辐解过程中不断生成和被消耗，其净生成速率 R_i^c 可由式（3）表示：

$$R_i^c = \sum_{j=1}^{N}\sum_{m,s=1}^{M} k_j \times c_s \times c_m - c_i \sum_{j=1}^{N}\sum_{s=1}^{M} k_j \times c_s + S_{i,\mathrm{rad}} \quad (3)$$

式中：k_j 为物种 s 与 m 之间（生成 i 的反应）或 s 与 i 之间反应（消耗 i 的反应）的速率常数；c_s、c_m 和 c_i 分别为物种 m、s 和 i 的浓度；N 为反应方程式总数；M 为反应涉及的物种数。

1.2　热工水力模型

对于工程应用而言，零维辐解的计算是不够的，至少应该扩展到一回路及其内的主要设备，这意味着除辐解反应之外还需进行热工水力传质的耦合计算，本文中一回路简化模型及网格划分如图 1 所示。

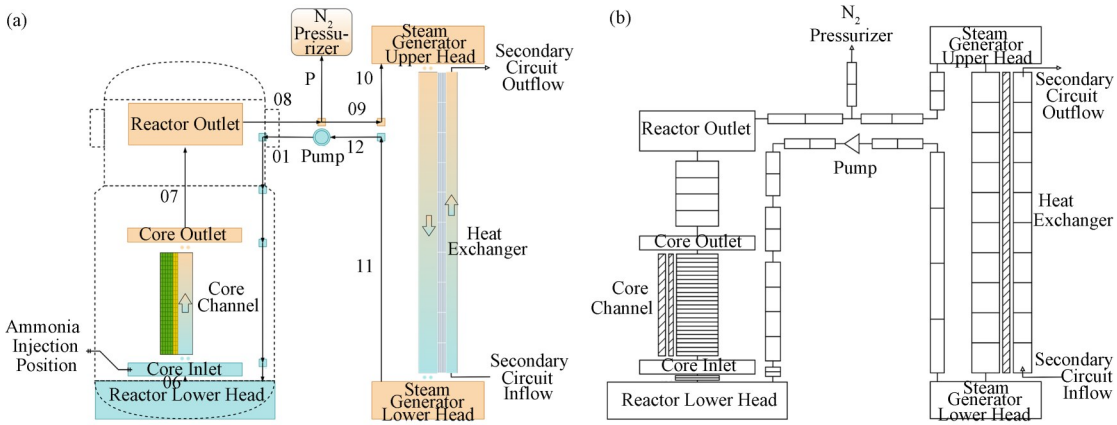


图 1　一回路简化模型及计算网格划分

Fig.1　Diagram of the simplified primary loop and computational mesh division

为了对方程进行数值求解，并将辐射化学引入反应堆分析过程，基于中国科学技术大学的 RETA 软件进行了编程，采用有限体积法（Finite Volume Method，FVM）的全隐式数值离散方法，控制方程采用预处理雅可比自由牛顿-克雷洛夫（Preconditioned Jacobian-Free Newton-Krylov，PJFNK）算法求解。基于 RETA，开发了 R-WRC（RETA-Water Radiolysis Chemistry）的附加模块，专注于辐解过程的计算，并可与 RETA 的核心功能系统热工水力学耦合。在 R-WRC 中的实现涉及直接编程以包括传输项：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \boldsymbol{C}) + \nabla(\rho u \boldsymbol{C}) = \nabla^2(D\boldsymbol{C}) + \mathbb{A}\cdot\boldsymbol{C} + b \quad (4)$$

式中：ρ是密度；$\boldsymbol{C}$是物种浓度向量；u是局部速度矢量；D是不同物种的扩散系数；$\mathbb{A}$代表化学反应的集合；b则是辐射导致的产物源项。

热工水力计算中ρ、u和温度T等参数至关重要，将辐解过程与热工水力结合时，为了简化计算，我们采用了以下假设：

1）仅考虑一维方程，对应于RETA系统热工水力模拟中的一维网格，这一点与RELAP类似；

2）忽略扩散项，主回路中的速度足够高，可以忽略物种的扩散过程。

基于这两个假设，简化后的方程如式（5）所示：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \boldsymbol{C}) + \frac{\partial}{\partial x}(\rho u \boldsymbol{C}) = 0 + \mathbb{A}\cdot\boldsymbol{C} + b \qquad (5)$$

由于求解过程中需要考虑的网格节点数量众多，处理难度极大，因此设定如下编程结构：1）在所有网格节点上分别处理每个物种；2）将所有物种合并为一个统一的向量；3）使用一个大型稀疏矩阵进行计算。

1.3 模型验证

为验证R-WRC模块在辐解过程计算中的可靠性，将其计算结果与辐射化学专用软件FACSIMILE的模拟数据进行了对比，如图2所示。分别采用R-WRC和FACSIMILE对25 ℃下初始氨浓度为1~3 mmol·L^{-1}氨水溶液的辐解行为进行了模拟，比较分析了H$^+$浓度（pH）、氨浓度及N_2浓度随辐照时间的变化规律。结果表明，R-WRC能够较准确地描述辐解过程，其模拟结果与FACSIMILE之间的差异极小，具有良好的计算精度和可靠性。

为进一步验证模型的可靠性，采用初始氨浓度为30 mg·L^{-1}的氨水溶液开展辐解实验，并对溶液进行连续72 h辐照处理。实验测得的NH_3和H_2浓度变化与模拟结果进行了对比，结果如图3所示。可以看出，NH_3和H_2的模拟值与实验数据拟合良好，两者的均方误差（Mean Square Error，MSE）分别仅有1.79×10^{-8}和5.69×10^{-8}，表明模型在描述主要反应路径和辐解产物生成方面具有较高准确性。pH的模拟结果与实验结果存在一定偏差，但MSE也仅有0.03，推测可能源于实验过程中CO_2的持续溶解，对体系酸碱度产生影响。

综上所述，本工作中建立的模型可以有效预测氨水溶液辐解过程中主要辐解产物的演化规律，具有较高的可靠性。

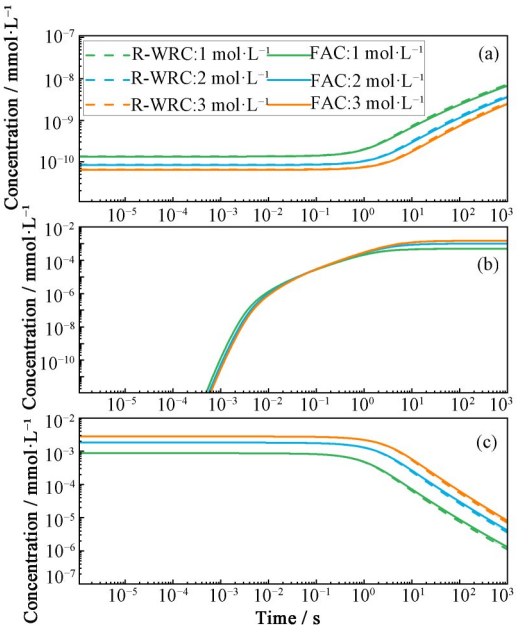


图2 本工作中R-WRC与FACSIMILE计算结果对比（彩图见网络版） (a) H^+，(b) N_2，(c) NH_3

Fig.2 Comparison between the R-WRC in this study and FACSIMILE simulation results (color online) (a) H^+, (b) N_2, (c) NH_3

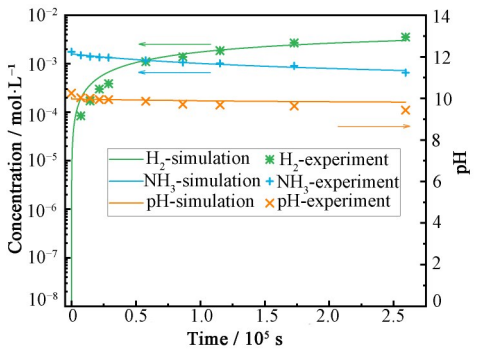


图3 氨水溶液辐解模拟结果与实验值的比较（彩图见网络版）

Fig.3 Comparison of simulated and experimental results for ammonia solution radiolysis (color online)

2 模型应用和结果分析

一回路水化学控制的目标是保障一回路系统压力边界的完整性、燃料包壳的完整性与燃料设计性能的实现，并尽可能降低堆芯外辐射场水平。其核心控制策略是将冷却剂的pH与溶解氢浓度维持在可接受范围内，从而确保冷却剂处于碱性还原性的环境中。对于采用硼-锂协同控制的常规压水堆，其运行状态下的pH通常控制在6.9~7.2之间，对应OH^-离子的浓度为10^{-5}~10^{-6} mol·L^{-1}；溶解氢的浓度则通常维持在2~4.5 mg·L^{-1}。

2.1 初始弥散加氨策略模拟

初始弥散加氨策略是指在系统处于运行的起始状态时，向一回路中注入给定量的氨水，使氨水在整

个冷却剂系统中迅速弥散并达到均匀混合。该策略在模型中表现为：对所有划分的网格节点赋予相同的初始氨浓度，模拟其在体系中的均匀分布，随着堆芯辐照过程的持续进行以及冷却剂在回路中的流动，各网格节点中的物质随之不断输运更新，其浓度受到反应和传输过程的影响动态变化，呈现出随时间的演化关系。

为了研究不同初始氨弥散浓度的影响，利用模型计算了0~100 mg·L^{-1}含氨冷却剂辐解过程中H_2和OH^-的浓度随时间的变化，其中，0 mg·L^{-1}的纯水辐解数据作为对照组，5 mg·L^{-1}和10 mg·L^{-1}为低浓度水平，17 mg·L^{-1}、34 mg·L^{-1}和51 mg·L^{-1}为中浓度水平，60 mg·L^{-1}、80 mg·L^{-1}和100 mg·L^{-1}为高浓度水平组，为评估氨在反应堆长期运行过程中缓慢耗尽所引发的化学效应，观察浓度稳态的建立过程，仿真时间设为1.6×10^4 s，结果如图4所示。

图4(a)中H_2的浓度随辐照进行很快达到化学稳态，且氨初始弥散浓度升高导致H_2的生成速率显著提升，辐照时间为1.6×10^4 s，0 mg·L^{-1}的体系中H_2的浓度约为0.02 mg·L^{-1}，低氨浓度组的H_2浓度为0.62~1.25 mg·L^{-1}，中氨浓组H_2浓度为2.12~6.34 mg·L^{-1}，高氨浓度组100 mg·L^{-1}的体系中H_2的浓度高达12.36 mg·L^{-1}。上述结果表明，中氨浓度弥散策略中17 mg·L^{-1}和34 mg·L^{-1}的初始氨浓度可以满足H_2的限值要求，低和高氨浓度组中H_2的浓度均不能满足需求。

从冷却剂的pH来看，所有浓度的氨弥散策略均无法在较长运行时间内满足维持碱性状态的需求，如图4(b)所示。初始加氨且辐照开始后，冷却剂的pH迅速下降，由弱碱性回落至中性状态(280 ℃)，且在1~5 h内脱离碱性控制限值范围，最终在24 h内趋于中性水平。值得注意的是，短期内的pH变化不会直接导致材料腐蚀行为的加剧，碱性环境的丧失可能诱发对金属材料更为不利的腐蚀倾向，导致反应堆实际运行中的潜在风险。

综上所述，初始弥散加氨策略通过控制氨浓度在17~34 mg·L^{-1}范围内，可使冷却剂中溶解氢的浓度维持在目标限值范围。然而，由于碱性条件难以长期维持，辐照开始后体系pH迅速回落至中性，因此该策略难以同时实现冷却剂化学控制的两大目标：即溶解氢浓度达标和体系的弱碱性环境维持。

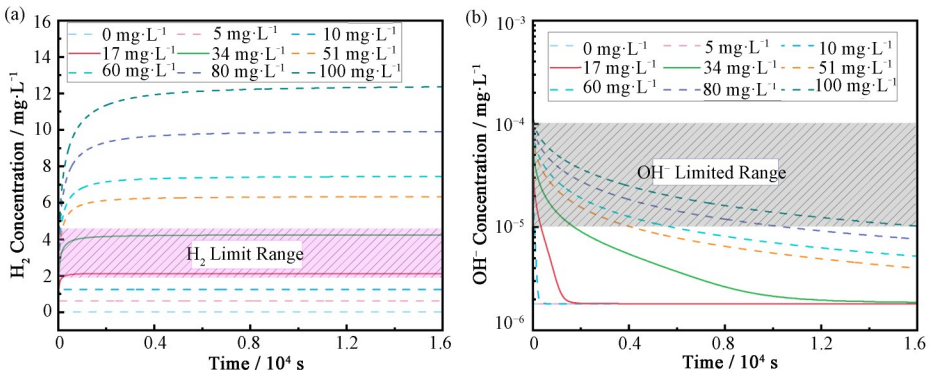


图4 温度280 ℃，吸收剂量率1×10^4 Gy·s^{-1}时，初始弥散加氨策略中溶解氢(a)和OH^-(b)浓度随时间变化曲线(彩图见网络版)

Fig.4 Variations of dissolved H_2 (a) and OH^- (b) concentration with time under the initial ammonia dispersion strategy at 280 °C and absorbed dose rate of 1×10^4 Gy·s^{-1} (color online)

2.2 源恒速加氨策略模拟

由于初始弥散加氨策略难以满足一回路水化学控制的要求，为实现冷却剂体系中pH的长期稳定控制，本文采用源恒速加氨策略，即在冷却剂进入堆芯前持续施加稳定的氨源项，以模拟一回路化学体积控制系统中充注泵的连续注氨效果。相比于初始弥散加氨方式，该策略可在较长时间内维持堆内氨浓度的相对稳定。计算了堆芯入口连续注氨速率0~16.4 g·s^{-1}和方波间隔注氨速率1.64 g·s^{-1}情况下，冷却剂中溶解氢和OH^-的浓度演化过程，结果如图5所示。

图5(a)显示，在源恒速加氨策略下，过高的注氨速率容易导致溶解氢浓度迅速突破限值范围。例如，在注氨速率为1.64 g·s^{-1}的条件下，H_2浓度在8 000 s时已超过20 mg·L^{-1}，远高于限值上限。即使在较低注氨速率(0.164 g·s^{-1})下，若辐照时间足够长，H_2浓度同样可能突破限值。尽管停止注氨可抑制H_2的进一步积累，但浓度并不会迅速回落至正常范围，反而可能因体系中残留氨持续辐解而进一步增加。上述结果表明，源恒速加氨策略存在导致H_2浓度超限的潜在风险。

在源恒速加氨策略的基础上进行了改进，尝试采用方波式间断加氨方式，即以1.64 g·s^{-1}的速率注氨1 h后停止注氨，再间隔1 h后恢复恒速注氨，如

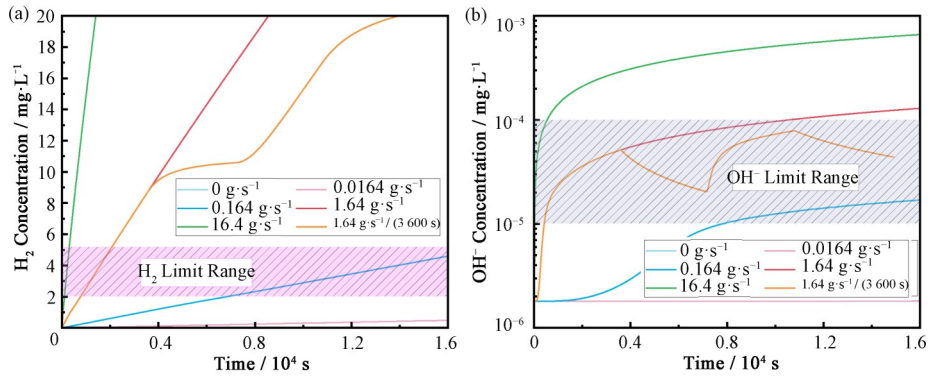


图5　温度280 °C，吸收剂量率1×10⁴ Gy·s⁻¹时，源恒速加氨策略中溶解氢(a)和OH^-(b)浓度随时间变化曲线（彩图见网络版）

Fig.5　Variations of dissolved H_2 (a) and OH^- (b) concentrations with time under continuous ammonia feeding strategy at 280 °C and absorbed dose rate of 1×10⁴ Gy·s⁻¹ (color online)

此循环往复。模拟结果表明，该改进策略仍存在溶解氢浓度在较短时间内（约2 000 s）突破限值的风险。尽管pH在初期可维持相对稳定，如图5（b）所示，但随着循环次数的增加，体系中氨的累积效应可能导致pH持续升高，进而带来潜在的超限风险。

此外，如图5（b）所示，相比于源恒速加氨，方波间断注氨的pH可控性较强，前者仅在注氨速率为0.164 g·s⁻¹和1.64 g·s⁻¹时显示出pH在较短时间内的可控性，过低（0.016 4 g·s⁻¹）和过高（16.4 g·s⁻¹）的注氨速率均无法有效调控冷却剂的pH。

综上所述，方波式间断加氨在pH控制方面具有一定效果，通过调节加氨的频率和浓度，可使体系pH在目标区间内实现小幅波动。然而，无论采用何种控制方式，H_2浓度均存在超出限值的风险，因此该加氨策略仍难以全面满足既定的水化学控制目标。针对该策略下溶解氢浓度持续上升的问题，可进一步引入除氢措施，模拟其在控制H_2浓度达标方面的效果，以实现对水化学状态的综合优化调控。

2.3　基于除氢优化的源恒速加氨策略模拟

由于初始弥散和源恒速加氨策略均存在不足，本小节基于源恒速加氨策略引入除氢机制，针对注氨速率0.164 g·s⁻¹和1.64 g·s⁻¹匹配了对应的除氢速度（注氨0.164 g·s⁻¹：−0.001 48 g·s⁻¹；注氨1.64 g·s⁻¹：−0.014 g·s⁻¹，−0.015 g·s⁻¹，−0.016 g·s⁻¹），通过在网格划分的堆芯顶部处设置H_2负源项的方式模拟除氢过程，需要指出的是，除氢装置的开启时间越早氢浓度和pH稳态水平越低，开启越晚两者稳态水平越高。由于冷却剂体系中初始H_2浓度为0，为避免计算出错，并基于注氨后pH控制和除氢速率的综合考量，此负源项设置为达到特定时间后（1 200 s，10 800 s）再开启，模拟结果如图6所示。

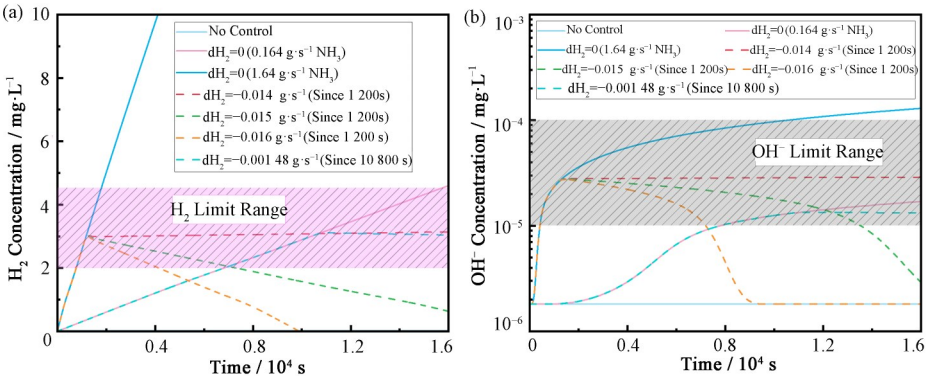


图6　温度280 °C，吸收剂量率1×10⁴ Gy·s⁻¹时，基于除氢优化的源恒速加氨策略中溶解氢(a)和OH^-(b)浓度随时间变化曲线（彩图见网络版）

Fig.6　Variations of dissolved H_2 (a) and OH^- (b) concentrations with time under the hydrogen-removal-optimized continuous ammonia feeding strategy at 280 °C and absorbed dose rate of 1×10⁴ Gy·s⁻¹ (color online)

图6（a）显示，较高的除氢速率会导致体系中溶解氢浓度迅速下降，可能引发除氧失效等不良后果。例如，在注氨速率为1.64 g·s⁻¹的条件下，当除氢速率为0.016 g·s⁻¹和0.015 g·s⁻¹时，H_2浓度分别在约2 000 s和7 200 s降至浓度下限。相比之下，适当降低除氢速率（0.014 g·s⁻¹）可使H_2浓度维持在合理范围内。类似地，在较低注氨速率下（0.164 g·s⁻¹），进一步降低除氢速率（−0.001 48 g·s⁻¹）同样有助于使H_2浓度达标。

pH的变化情况如图6（b）所示，不设置除氢的源

恒速加氨策略中，pH均随辐照时间的增加而持续升高，最终突破pH限值上限。注氨速率为1.64 g·s^{-1}且除氢速率为0.016 g·s^{-1}和0.015 g·s^{-1}时，pH仅能在2 h和4 h内保持。进一步分析符合H_2浓度要求的两种加氨策略发现：这两种方式均可满足pH的限值范围，且基本规律是加氨速率越小，除H_2压力越小，达到稳定时的pH和溶解氢的水平就更低。

综上所述，通过对源恒速加氨策略进行除氢优化研究，得到了两套合理的控制方案：

1）源恒速加氨速率为1.64 g·s^{-1}，加氨开始1 200 s后开启除氢装置，除氢速率控制在0.014 g·s^{-1}，对应的pH=6.9；

2）源恒速加氨速率为0.164 g·s^{-1}，加氨开始10 800 s后开启除氢装置，除氢速率为0.001 4 g·s^{-1}，对应的pH为6.5。

两种方案对应的溶解氢浓度为2.7~3.1 mg·L^{-1}，即30~35 mL·kg^{-1}（STP），但考虑到较高的冷却剂pH能够有效降低一回路冷却剂系统金属材料腐蚀，因此第一种方案更优。

3 结语

本文建立了一回路含氨冷却剂水化学控制模型，并以KLT-40S反应堆为例研究了含氨冷却剂辐解行为，对比了初始弥散加氨、源恒速加氨和基于除氢优化的源恒速加氨策略对溶解氢和pH的作用效果。结果显示：

1）初始弥散加氨策略能使溶解氢浓度达标，实现冷却剂的还原性控制，但无法有效调控冷却剂的pH；

2）源恒速加氨策略在溶解氢浓度控制方面存在短板，采用方波间断加氨时可实现pH的调节但无法长时间控制溶解氢浓度在限值范围内；

3）基于除氢优化的源恒速加氨策略通过匹配相应的除氢速率，可同时实现冷却剂pH的调节和溶解氢浓度控制；

4）本文还给出了较为合理的水化学控制方案，即加氨速率为1.64 g·s^{-1}，加氨开始1 200 s后开始除氢，除氢速率0.014 g·s^{-1}。

作者贡献声明 罗天骏、袁誉坤负责编写代码、分析数据和起草文章；周肖元负责数据处理；郭子方负责文章修改和终稿校订；杜颖哲、林鹏负责提供研究平台和获取经费；胡国军负责论文的质量审查和内容把控。

参考文献

1 Hussein E M A. Emerging small modular nuclear power reactors: a critical review[J]. Physics Open, 2020, **5**: 100038. DOI: 10.1016/j.physo.2020.100038.

2 吕欣, 李澍, 尹俊连, 等. 氮气-水体系多组分辐解平衡计算模型[J]. 原子能科学技术, 2024, **58**(11): 2310－2317. DOI: 10.7538/yzk.2023.youxian.0862.
LYU Xin, LI Shu, YIN Junlian, *et al*. Multi-component radiolysis equilibrium calculation model in nitrogen-water system[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2024, **58**(11): 2310 － 2317. DOI: 10.7538/yzk. 2023. youxian. 0862.

3 张扬, 郭子方, 刘春雨, 等. 压水堆一回路含氨冷却剂辐射分解过程模拟[J]. 哈尔滨工程大学学报, 2024, **45**(12): 2377－2383. DOI: 10.11990/jheu.202307039.
ZHANG Yang, GUO Zifang, LIU Chunyu, *et al*. Radiolysis process simulation of coolant containing ammonia forpressurized water reactor's primary circuit[J]. Journal of Harbin Engineering University, 2024, **45**(12): 2377－2383. DOI: 10.11990/jheu.202307039.

4 郭子方, 张扬, 李一帆, 等. N_2气氛下氨水溶液γ辐射分解行为[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2024, **42**(1): 010204. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0088.
GUO Zifang, ZHANG Yang, LI Yifan, *et al*. γ-radiolysis of the aqueous ammonia solution saturated by N_2[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2024, **42**(1): 010204. DOI: 10.11889/j. 1000-3436.2023-0088.

5 曹骐, 杜香怡, 郭子方, 等. γ辐照条件下硼-锂-氨型冷却剂的辐射分解行为[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2023, **41**(3): 030201. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0020.
CAO Qi, DU Xiangyi, GUO Zifang, *et al*. γ-radiolysis of boric acid-lithium hydroxide-ammonia coolant[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2023, **41**(3): 030201. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0020.

6 吴世发, 解景尧, 万甲双, 等. 铅铋快堆一回路冷却剂温度稳态运行方案控制特性研究[J]. 核技术, 2025, **48**(10): 100603. DOI: 10.3724/j. 0253-3219.2025. hjs. 48. 240386. CSTR: 32193.14. hjs. CN31-1342/TL. 2025.48. 240386.
WU Shifa, XIE Jingyao, WAN Jiashuang, *et al*. Control characteristics of the steady-state operation scheme for coolant temperature in the primary loop of the Lead-Bismuth cooled fast reactor[J]. Nuclear Techniques, 2025, **48**(10): 100603. DOI: 10.3724/j. 0253-3219.2025. hjs. 48. 240386. CSTR: 32193.14. hjs. CN31-1342/TL. 2025.48. 240386.

7 张伟豪, 刘茂龙, 曾陈等. 熔盐堆冷却剂凝固行为的实验及数值模拟研究[J]. 核技术, 2025, **48**(4): 040603. DOI: 10.11889/j. 0253-3219.2025. hjs. 48.230405. CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2025.48.230405.

ZHANG Weihao, LIU Maolong, ZENG Chen, *et al*. Experimental and numerical simulation study on the solidification behavior of molten salt reactor coolants[J]. Nuclear Techniques, 2025, **48**(4): 040603. DOI: 10.11889/j. 0253-3219.2025. hjs. 48.230405. CSTR: 32193.14. hjs. CN31-1342/TL.2025.48.230405.

8 罗慧. 先进非能动核电机组一回路冷却剂流量系统化测量方法[J]. 核技术, 2023, **46**(10): 100602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.100602.
LUO Hui. Systematic measurement method for primary coolant flow rate in advanced passive nuclear power units [J]. Nuclear Techniques, 2023, **46**(10): 100602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.100602.

9 Scott P. A review of irradiation assisted stress corrosion cracking[J]. Journal of Nuclear Materials, 1994, **211**(2): 101–122. DOI: 10.1016/0022-3115(94)90360-3.

10 Draganić I G. Radiolysis of water: a look at its origin and occurrence in the nature[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2005, **72**(2–3): 181–186. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2004.09.012.

11 Uchida S, Katsumura Y. Water chemistry technology – one of the key technologies for safe and reliable nuclear power plant operation[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2013, **50**(4): 346–362. DOI: 10.1080/00223131.2013.773171.

12 Boyd A W, Carver M B, Dixon R S. Computed and experimental product concentrations in the radiolysis of water[J]. Radiation Physics and Chemistry, 1980, **15**(2–3): 177–185. DOI: 10.1016/0146-5724(80)90129-6.

13 Bérerd D N, Moncoffre D N, Martinet D P, *et al*. Influence of water radiolysis on the passive properties of 316L-stainless steel[J]. ChemPhysChem, 2024, **25**(18): e202300785. DOI: 10.1002/cphc.202300785.

14 Sultana A, Meesungnoen J, Jay-Gerin J P. Effect of very high dose rates on the radiolysis of supercritical water at 400 ℃ and 25 MPa[J]. Canadian Journal of Chemistry, 2023, **101**(5): 284–296. DOI: 10.1139/cjc-2022-0210.

15 Ershov B G, Gordeev A V. A model for radiolysis of water and aqueous solutions of H_2, H_2O_2 and O_2[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2008, **77**(8): 928–935. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2007.12.005.

16 Joseph J M, Choi B S, Yakabuskie P, *et al*. A combined experimental and model analysis on the effect of pH and O_2(aq) on γ -radiolytically produced H_2 and H_2O_2[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2008, **77**(9): 1009–1020. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2008.06.001.

17 Elliot A J, Bartels D M. The reaction set, rate constants and g-values for the simulation of the radiolysis of light water over the range 20 ℃ to 350 ℃ based on information available in 2008[R]. Atomic Energy of Canada Limited, 2009. No.AECL--153-127160-450-001.

18 Yakabuskie P A, Joseph J M, Clara Wren J. The effect of interfacial mass transfer on steady-state water radiolysis [J]. Radiation Physics and Chemistry, 2010, **79**(7): 777–785. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2010.02.001.

19 Pálfi T, Wojnárovits L, Takács E. Calculated and measured transient product yields in pulse radiolysis of aqueous solutions: Concentration dependence[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2010, **79**(11): 1154–1158. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2010.06.004.

20 Karditsas P J. Water radiolysis in fusion neutron environments[J]. Fusion Engineering and Design, 2011, **86**(9–11): 2701–2704. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2010.12.040.

21 Yousefi N. Gamma-radiolysis kinetics of liquid, vapour and supercritical water[M]. The University of Western Ontario (Canada), 2014.

22 Roth O, LaVerne J A. Effect of pH on H_2O_2 production in the radiolysis of water[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2011, **115**(5): 700–708. DOI: 10.1021/jp1099927.

23 Daub K, Zhang X, Noël J J, *et al*. Gamma-radiation-induced corrosion of carbon steel in neutral and mildly basic water at 150 ℃[J]. Corrosion Science, 2011, **53**(1): 11–16. DOI: 10.1016/j.corsci.2010.09.048.

24 Dey G R. Nitrogen compounds' formation in aqueous solutions under high ionizing radiation: an overview[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2011, **80**(3): 394–402. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2010.10.010.

25 Yakabuskie P A, Joseph J M, Stuart C R, *et al*. Long-term γ-radiolysis kinetics of NO_3^- and NO_2^- solutions[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2011, **115**(17): 4270–4278. DOI: 10.1021/jp200262c.

26 Guo Z F, Zhang Y, Jiao L M, *et al*. Radiolysis of aerated aqueous ammonia solutions[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2023, **332**(12): 5059–5070. DOI: 10.1007/s10967-023-09239-y.

27 Kumar P S, Mohan D, Chandran S, *et al*. Evaluation of nitrogen containing reducing agents for the corrosion control of materials relevant to nuclear reactors[J]. Materials Chemistry and Physics, 2017, **187**: 18–27. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2016.11.031.

28 Iwamatsu K, Sundin S, LaVerne J A. Hydrogen peroxide kinetics in water radiolysis[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2018, **145**: 207–212. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2017.11.002.