DOI: 10.11883/1001-1455(2016)06-0774-07

爆轰加载下银气溶胶源项实验研究*

刘文杰,马庆鹏,王鹏来
(中国工程物理研究院流体物理研究所,四川 绵阳 621999)

摘要: 为研究钚气溶胶生成规律及源项分布,提出了一种密封环境下的金属气溶胶源项实验方法,利用爆炸容器及气溶胶采样器等实验设备,开展了钚替代材料银的气溶胶源项生成实验,分析了空气动力学直径小于 10 μm 的银气溶胶源项分布特性,并与外场扩散试验中钚气溶胶数据进行了对比。进一步采用不同炸药及加载装置,对相同银片样品进行加载实验,研究了加载峰值压力对银气溶胶源项分布的影响。研究结果表明,金属银可作为替代材料研究爆轰加载条件下钚气溶胶的源项参数,在一定实验条件下,二者归一化积累质量分布具有较高的一致性;爆轰加载产生的银气溶胶中,较小粒径气溶胶质量含量较高。气溶胶总量与加载峰值压力呈二次函数分布,当峰值压力超过某个临界值时,气溶胶总量将达到极值;此外,通过对同发次实验的 3 次不同采样数据进行分析,发现了较明显的气溶胶凝并和沉降现象。

关键词: 爆炸力学;粒径分布;归一化积累质量;银气溶胶;源项;钚气溶胶
中图分类号: O381 **国标学科代码**: 1303510 **文献标志码**: A

钚-239(下称钚)材料一般通过反应堆中产生的慢中子轰击铀-238 人工产生,是武器级核装置的重要裂变材料和核电站的初始加浓原料。作为高活性和高毒性的放射性核素,钚材料具有强烈地诱发骨肿瘤的生物毒性,且半衰期极长,约为 24 400 年。钚材料的化学性质极为活泼,常见的非合金态 α 位相是一种室温下坚硬的金属,但仅在小于 122 ℃时稳定。当含钚材料的核装置处于高能炸药化学爆炸和燃料燃烧等事故环境中时,钚材料将发生氧化反应并气溶胶化[1-2]。而钚气溶胶扩散至环境后极易因呼吸进入生物肺部和血液循环系统,使生物机体在存活期间遭受持续地内照射[3-4]。R. H. Condit[5]将可能对人体产生吸入危害的钚气溶胶颗粒的空气动力学直径上限定为 10 μm,急性致死剂量为 4.3 mg。因此,掌握爆轰加载下钚气溶胶的源项参数(产生气溶胶的总质量及粒径分布),对意外核事故的预防及应急响应措施的制定具有重大的意义。

对于核装置化爆条件下钚气溶胶的研究,仅有在内华达核试验场进行的大型外场安全试验 ORC[4,6]。迄今为止,仅有一次系统完备地测量炸药化爆条件下钚气溶胶的扩散试验,ORC 为几十年间针对化爆条件下钚气溶胶扩散的数值模拟提供了重要且唯一的源项及扩散分布数据[7-8]。但是,考虑对生物和环境的危害,之后对于钚气溶胶的源项及扩散研究转入核事故、核试验场地的钚气溶胶再悬浮[9-10]、沉积评估[11-12]以及实验室实验、数值模拟。M. J. Sagartz[13]通过 PBX-9404 炸药加载银球壳实验,模拟核装置在事故条件下钚气溶胶源项生成规律,研究了不同炸药构型条件下银样品气溶胶化的转化率,分析了炸药爆能对银气溶胶转化率的影响规律,但未说明使用金属银作为钚替代材料的依据。伍怀龙等[14]对钚气溶胶环境中放射性气体的迁移及扩散过程开展了实验研究,建立了描述放射性气体迁移过程的物理模型,但对钚气溶胶的源项特征未做明确描述。在数值模拟方面,相关研究机构相继开发了多种针对钚气溶胶扩散研究的数值计算模型,并对核事故扩散场景进行了数值计算。主要有 Hotspot 模型[15]、DIFOUT 模型[16]、MACCS2 模型[17]和 ERAD 模型[18],前 3 种是高斯烟云模型,后 1 种是采用蒙特卡洛方法的三维数值模型。

在模拟核事故条件下钚气溶胶的扩散机制时,所有模型的输入参数均依赖于事故发生的源项数据。

* **收稿日期**: 2015-04-09; **修回日期**: 2015-05-25
基金项目: 国家自然科学基金项目(21307119)
第一作者: 刘文杰(1982—),男,博士,副研究员; **通信作者**: 马庆鹏,maqingpeng@caep.cn。

然而出于安全性等方面的考虑，直接开展钚材料化爆实验研究缺乏现实可行性。鉴于银是一种低熔点（961.78 ℃）、高沸点（2 163 ℃）的金属，除密度相对较低外，其基本物理化学性质与钚具有一定的相似性，且不存在放射毒性等问题。因此，本文中，拟采用银作为钚的替代材料，开展炸药化爆条件下银气溶胶的源项实验，研究粒径 10 μm 以下（PM10）的银气溶胶源项分布特性，探索使用银模拟钚材料气溶胶源项分布的可行性，并进一步利用多种爆轰模型及加载方式，研究加载峰值压力对银气溶胶源项参数的影响特性。

1　实验方法

图 1 为爆轰加载金属银的实验装置示意图，装置由高密封爆炸容器、气溶胶采集系统（多级冲击采样器、压力传感器、热电偶及质量流量计）和抽气系统（真空泵、角阀及波纹管道）组成。其中，爆炸容器为卧式柱形，两端为球头，设计 TNT 当量为 2.5 kg，容器采用高密封设计，600 h 总泄漏份额不大于 10^{-8}。气溶胶采集系统的核心装置是安德森八级撞击式气溶胶采样器 TE-20-800，可对 0 ～ 10 μm 粒径范围内的气溶胶进行分段采集，图 2(a)为该采样器的实物图。该采样器具有一个 10 μm 粒径的前置切割级，用来切割、分离所有粒径大于等于 10 μm 的颗粒，如图 2(b)所示；中间八级切割粒径分别为 9.0、5.8、4.7、3.3、2.1、1.1、0.7 和 0.4 μm，对应冲击板为 0～7，分别采集 9～10 μm 至 0.4～0.7 μm 粒径的气溶胶颗粒；后置级用来收集所有粒径小于 0.4 μm 的气溶胶颗粒。采样器利用惯性原理对气溶胶进行粒径切割，其切割原理如图 2(c)所示。当含气溶胶气流由各级加速喷嘴喷出时，受到冲击板的阻挡，粒径小、质量轻的气溶胶将随气流改变流动方向流入下一级，粒径大、质量重的气溶胶将打在冲击板上进而被滤膜收集。利用该原理，每级滤膜收集到的气溶胶粒径分布在该级和上一级截断直径范围内，从而实现了气溶胶多级采样。选用对金属颗粒物吸附性能最优的高密度石英纤维滤膜作为气溶胶样品采集基底。通过压力传感器和热电偶监测容器环境压力及温度；通过真空抽气系统的可调角阀控制抽速，并通过质量流量计监测采样流量，将它限制为(28.3±1.5) L/min，以保证采样器的粒径切割精度。

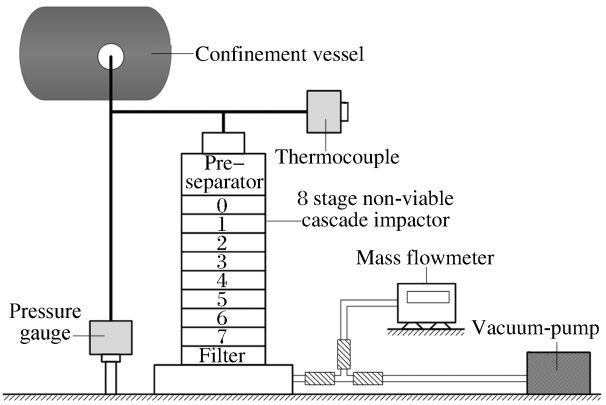

图 1 爆轰加载金属银气溶胶实验装置示意图

Fig. 1 Illustration of experimental setup

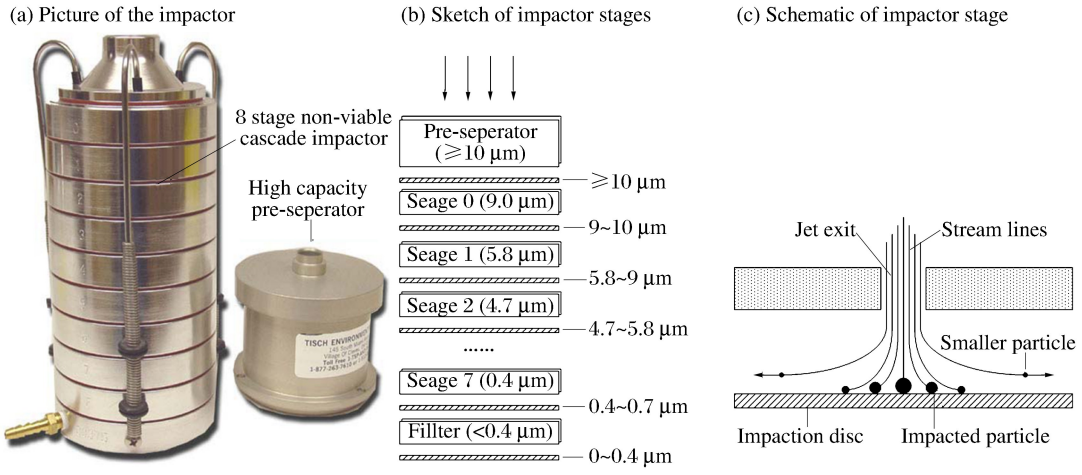

图 2 安德森八级撞击式气溶胶采样器

Fig. 2 Anderson 8 stage non-viable cascade impactor

为了获得较高的加载压力，主要采用平面对碰加载模型（见图 3）对银片进行爆轰加载，该构型与 ORC-DT 钚气溶胶外场扩散试验加载构型[18]类似。单片炸药尺寸为∅100 mm×20 mm，银片放置于两片炸药之间；起爆装置使用 BL-21 雷管，传爆药为泰安∅32 mm×11 mm；装置外用厚度 5 mm 的有机玻璃外壳进行约束；实验银样品均为高纯银片（含银 99.99%），质量为 45 g。

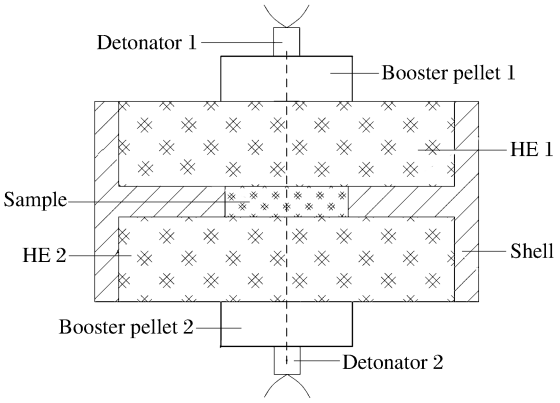

图 3 平面对碰爆轰加载装置示意图

Fig. 3 Sketch of detonative device

实验状态参数见表 1，共开展 7 发次爆轰加载条件下的银气溶胶实验。其中前 3 发次为标定实验，用于评估采样器的气溶胶采样误差；后 4 发次为变加载压力的银气溶胶源相实验，是为了获得多种加载压力条件下银气溶胶生成总量及粒径分布。加载分为单面和对碰两种方式，单面加载实验装置仍如图 3 所示，但拆除了底部起爆雷管 2 和传爆药 2。p 为各加载条件下作用在银样品上的峰值压力的理论计算结果。其中，平面对碰及单面加载两种加载方式下作用在银片上的峰值压力以炸药的 CJ 爆轰参数为输入参数，根据 Rankine-Hugoniot 曲线得到。

表 1 实验状态参数

Table 1 Experimental details

实验	炸药	加载方式	p/GPa
1	RHT-901	平面对碰	119.0
2	RHT-901	平面对碰	119.0
3	RHT-901	平面对碰	119.0
4	RHT-901	单面加载	45.85
5	TNT	平面对碰	83.11
6	TNT	单面加载	33.12
7	RTB-904	平面对碰	40.82

实验前，先清洗容器内壁，并尽可能减少容器内可能影响气溶胶样品分析的实验辅助材料，如加载装置采用棉绳悬挂而取消木支架，雷管套采用有机玻璃而不用铝材料。

2 结果及分析

2.1 采样数据汇总及误差

炸药爆轰零时后，立即打开容器密封阀和真空抽气系统，利用采样器开始对气相爆轰产物进行分级采集。每次采样时间均为 10 min，单次累积抽气量为 283 L，约为待测气溶胶体系总量（容器总体积）的 3.877 %。采样结束后，回收采样滤膜对沉积在各级滤膜上的气溶胶颗粒物进行物化分析：利用粒度分析仪或电化学消解后能谱分析，给出容器内气相银气溶胶粒径分布范围；利用原子吸收光谱方法，给出气相银气溶胶采集总量。7 发次实验的银气溶胶各粒径的采样分析结果如表 2 所示，其中实验 3 进行了 3 次间隔采样。

在样品分析过程中，对分析精度进行测试，得到 4 组电化学消解银标样试液的检测结果，如表 3 所示。表中，ρ_s 为标样浓度，ρ_m 为实测结果。依据此测试结果，对本批次实验银气溶胶含量测试结果的相对误差进行分析。计算得出 4 组试样的测量误差分别为：$\delta_1=0.42\%$、$\delta_2=1.97\%$、$\delta_3=1.57\%$、$\delta_4=-0.06\%$，进而得出标样试液检测误差的平均值 $\bar{\delta}=\frac{1}{4}\sum_1^4\delta_i=0.975\%$。检测误差较小，精度较高，检测数据可信。

对气溶胶源项生成的分析主要从两个方面开展：一是各粒径气溶胶质量分布，二是气溶胶的归一化积累质量分布（小于某一粒径的气溶胶质量占采样总质量的百分比）。

图 4 为实验 1～3 标定得到的银气溶胶归一化积累质量分布。对比采样 1、2 可知，在 3.3～10 μm

表 2 银气溶胶采样数据

Table 2 Data of collected samples of silver aerosol

采样	$m/\mu g$									$M/\mu g$	t/s
	0～0.4	0.4～0.7	0.7～1.1	1.1～2.1	2.1～3.3	3.3～4.7	4.7～5.8	5.8～9	9～10		
1	1.01	48.6	85	59.5	122	31.8	14.5	21.4	14.9	398.71	58
2	1.01	6.06	42.2	115	33.4	17.2	8.96	10.5	13.4	247.73	46
3a	0.88	9.29	58.6	126	26.5	5.12	1.8	1.92	1.84	231.95	387
3b	0.39	0.32	1.32	2.43	1.7	0.82	0.31	0.86	1.46	9.61	3 600
3c	0.28	0.28	0.7	1.62	1.89	1.86	1.17	2.83	3.95	14.58	7 200
4	0.34	24.5	505	1 080	261	49.8	18.6	22.2	14.2	1 975.64	34
5	7.03	24.3	292	924	437	202	69.5	49.9	66.6	2 072.33	34
6	1.74	33.6	90.1	372	597	104	35.5	29.1	25.8	1 288.84	33
7	1.75	44.4	137	367	493	320	114	109	73.2	1 659.35	30

表 3 电化学消解银标样试液浓度

Table 3 Calibration error of samples

编号	$\rho_s/(\mu g \cdot L^{-1})$	$\rho_m/(\mu g \cdot L^{-1})$
1	5	5.021
2	30	30.592
3	30	30.471
4	30	29.982

粒径范围内，银气溶胶归一化积累质量分布基本吻合；在小于 3.3 μm 粒径范围内，因小粒径颗粒悬浮运动具有一定随机性且易受气流扰动的影响，3 次采样结果稍有差异，但变化趋势一致。综上，3 次采样银气溶胶归一化积累质量分布趋势一致，仅在数值上稍有差异。因此，可以认为，采用密封容器开展爆轰加载条件下银气溶胶源项的研究方法是可行的，具有较高的可重复性，其数据是合理、有效的。

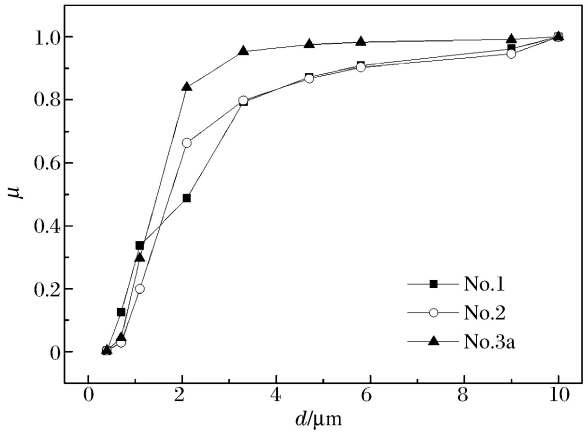

图 4 爆轰加载下银气溶胶源项生成数据标定

Fig. 4 Calibration of silver aerosol source-term after explosion

2.2 银气溶胶源项分布及沉降、凝并

图 5 为 7 发次实验爆轰零时后采样银气溶胶粒径质量分布，这 7 发次实验银气溶胶的粒径质量分布具有一定的相似性。各次采样结果表明，爆轰加载产生的银气溶胶含量峰值均出现在 1.1～3.3 μm 粒径范围内，在不同的加载方式下，该峰值在 1.1～2.1 μm 和 2.1～3.3 μm 两个粒径范围内变化。爆轰零时后，采样 1、2、3a、4、5、6、7 中，0.7～3.3 μm 银气溶胶百分含量分别为 66.8%、76.9%、91.0%、93.4%、79.8%、82.2%、60.1%。在整个采样区间内，粒径在 0.7～3.3 μm 范围内的气溶胶含量占总量比例均高于 60%。这表明，在对金属银进行爆轰加载时，产生较小粒径（0.7～3.3 μm）气溶胶含量较高，在 RHT-901 高猛炸药加载下，这个粒径范围内的气溶胶含量甚至可达 90%以上。

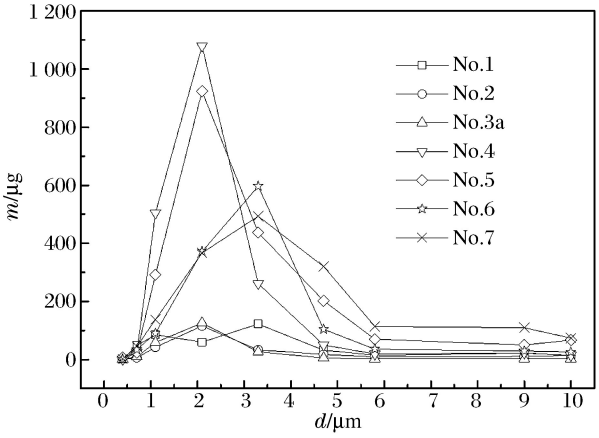

图 5 银气溶胶源项分布

Fig. 5 Distribution of silver aerosol source-term

图 6 为实验 3(RHT-901 平面对碰加载)中 3 次间隔采样银气溶胶归一化积累质量分布及粒径质量分布。由图 6(a)可知,爆轰加载零后 2 h 采样 3c 的银气溶胶归一化积累质量分布,与 ORC-DT 外场扩散试验钚气溶胶数据[19-20]具有较高的一致性。这表明,采用银作为替代材料对爆轰加载条件下钚气溶胶源项的模拟是完全可行的。此外,对比 3 次采样数据(见图 6(a))可知,三者在归一化积累质量分布方面有较大的差别,采样时间越早,小粒径气溶胶含量越高。为此,对 3 次采样得到的粒径质量分布(见图 6(b))做进一步地分析。在 0～2.1 μm 粒径范围内,随着采样时间的推移,该范围内气溶胶质量呈现明显的下降趋势;而在 2.1～10 μm 粒径范围内,第 2 次采样得到的气溶胶质量比第 1 次有明显下降,第 3 次采样得到的气溶胶质量比第 2 次有明显上升;在 5.8～10 μm 粒径范围内,第 3 次的结果甚至高于第 1 次采样结果。这表明,随着时间的推移,容器内的银气溶胶发生了较显著的凝并及沉降现象。

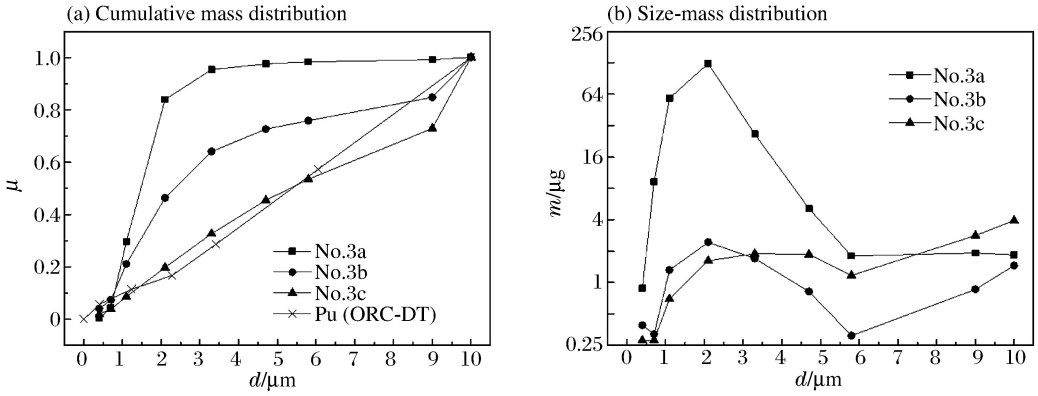

图 6 实验 3 气溶胶源项分布

Fig. 6 Source-term of silver aerosol of experiment 3

综上所述,在采用的实验密封环境实验条件下,采用 RHT-901 炸药对银金属进行平面对碰爆轰加载,产生的银气溶胶经过 2 h 稳定后,较接近开放环境化爆条件下钚气溶胶源项分布。同时,爆轰零时后产生的 0.7～3.3 μm 粒径范围内银气溶胶占 PM10 银气溶胶比例较高,且随着时间推移,容器内小粒径气溶胶发生较明显的凝并和沉降现象。

2.3 加载峰值压力的影响

参照表 1～2,得到加载峰值压力与采样中银气溶胶总量的对应关系,并对数据点进行二阶多项式拟合,如图 7 所示,其中 RHT-901 平面对碰加载实验 1～3 的气溶胶总量取平均值。

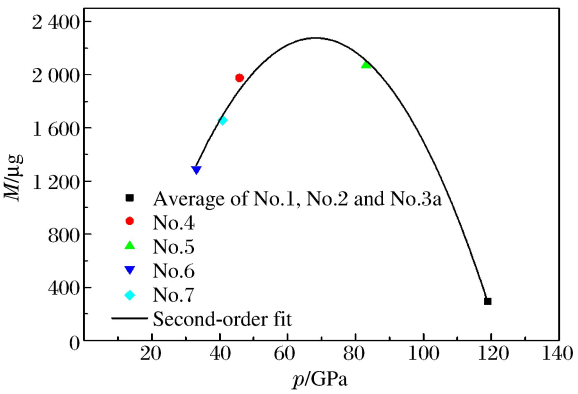

图 7 不同峰值压力下采样中银气溶胶总量

Fig. 7 Amount of silver aerosol under different pressures

由图 7 可知,随着峰值压力增大,银气溶胶总量呈先增大后减小的趋势,表明气溶胶的浓度不是随峰值压力而渐增的。通过对比数值拟合曲线与实验采样结果可知,二者一致性很高,这表明银气溶胶总量与加载峰值压力存在典型的二次函数关系。依据拟合曲线可知,在 45.85～83.11 GPa 的峰值压力区间内,存在一个银气溶胶产物总量极值,通过计算,得出该极值对应的压力约为 68.69 GPa。对于这个结果,文献[21]中提到,在对多个核爆试验场和次临界试验场的扰动再悬浮钚气溶胶浓度测量时得出,核爆试验场的气溶胶浓度明显低于次临界试验场。经对核爆试验场爆心土壤进行筛选、电镜分析后得到大量的微小的琉璃化钚化合物。这表明,当加载峰值压力超过一定值时,被加载金属材料化合物可能会发生琉璃化现象,抑制小粒径气溶胶颗粒的形成,进而导致气溶胶浓度降低。

3 结　论

设计了爆炸容器内金属材料在爆轰加载条件下的气溶胶源项实验方案，通过对银材料爆轰加载获得了 PM10 银气溶胶的源项参数，实现了对 ORC-DT 试验中钚气溶胶源项分布的模拟。具体获得了以下结论。

(1) 实验结果表明，在爆炸容器约束空间内，爆轰加载下产生的银气溶胶与钚气溶胶的归一化积累质量分布具有较高的一致性。在一定条件下，可以使用银作为替代材料研究钚气溶胶的源项分布，为后续气溶胶扩散的数值计算提供输入参数。

(2) 在对金属银进行爆轰加载时，较小粒径 (0.7～3.3 μm) 气溶胶含量较高，在 RHT-901 高猛炸药加载下，这个粒径范围内的气溶胶含量甚至可达总量的 90%以上。

(3) 结果表明，爆轰零时后，银气溶胶发生显著的凝并和沉降现象：爆轰零时后 1 h 内，各粒径范围气溶胶含量均有下降，较小粒径气溶胶含量下降更明显；零后 2 h 内，较小粒径气溶胶含量进一步减少，但较大粒径气溶胶含量不降反升。

(4) 得到加载峰值压力和生成 PM10 银气溶胶总量的变化规律，银气溶胶总量与加载峰值压力呈二次函数分布，该现象发生的原因可能在于高加载压力时银材料发生了琉璃化。进一步研究，在该实验装置上，加载峰值压力约为 68.69 GPa 时，可能获得的 PM10 银气溶胶质量最大。对该极值，拟在后续的实验工作中予以确认。

参考文献：

[1] Martz J C, Haschke J M. A mechanism for combustive heating and explosive dispersal of plutonium[J]. Journal of Alloys and Compounds, 1998,266(1):90-103.

[2] Haschke J M, Martz J C. Oxidation kinetics of plutonium in air from 500 to 3 500 ℃: Application to source terms for dispersal[J]. Journal of Alloys and Compounds, 1998,266(1):81-89.

[3] 刘文杰，胡八一，李庆忠. 核事故条件下钚气溶胶源项研究综述[J]. 安全与环境学报，2011,11(5):259-263.
Liu Wenjie, Hu Bayi, Li Qingzhong. Review of plutonium aerosol source-term in nuclear accident[J]. Journal of Safety and Environment, 2011,11(5):259-263.

[4] Stewart K, Thomas D C, Terry J L, et al. Atomic weapons research establishment[R]. AWRE REPORT NO. 0-29/65, 1965.

[5] Condit R H. Plutonium dispersal in fires: Summary of what is known[R]. UCRL-ID-114164, 1993.

[6] Titus R W. Operation roller coaster: Project officers report-project 2.4[R]. POR-2504, 1965.

[7] Boughton B A, DeLaurentis J M. An integral model of plume rise from high explosive detonations[C]//Davis L R, Catton I. Buoyant plumes: Proceedings of the 24th National Heat Transfer Conference. Pittsburgh, PA, USA: ASME, 1987:27-32.

[8] Boughton B A, DeLaurentis J M, Dunn W E. A note on a stochastic model of turbulent dispersion in the atmosphere[J]. Boundary-Layer Meteorology, 1989,48(4):443-444.

[9] Shinn J H, Homan D N, Hofmann C B. A summary of plutonium aerosol studies: Resuspension at the Nevada Test Site[R]. UCRL-90746, 1986.

[10] Shinn J H. Complementary Pu resuspension study at Palomares, Spain[R]. UCRL-ID-150980, 2002.

[11] Johansen M P, Kamboj S, Kuhne W W. Whole-organism concentration ratios for plutonium in wildlife from past US nuclear research data[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2013,126(6):412-419.

[12] Johansen M P, Child D P, Davis E, et al. Plutonium in wildlife and soils at the Maralinga legacy site: Persistence over decadal time scales[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014,131(2):72-80.

[13] Sagartz M J. Violent reaction source term study[R]. SAND-943252, 1995.

[14] 伍怀龙，田东风，郝樊华，等. 钚气溶胶环境中惰性气体氪迁移过程研究[J]. 物理学报，2011,60(3):162-165.
Wu Huailong, Tian Dongfeng, Hao Fanhua, et al. Investigation on inert gases transport process in plutonium

aerosol[J]. Acta Physica Sinica, 2011,60(3):162-165.
[15] Homann S G, Wilson D V. Hotspot health physics code: Version8.0[R]. UCRL-MA-118617, 1995.
[16] Shreve J D. Operation roller coaster: Scientific directors report[R]. DASA-1644, 1965.
[17] Steele C M, Wald T L, Chanin D I. Plutonium explosive dispersal modeling using the MACCS2 computer vode [R]. LA-UR-98-1901, 1998.
[18] Boughton B A, Delaurentis J M. Description and validation of ERAD: An atmospheric dispersion model for high explosive detonations[R]. SAND92-2069-UC-702, 1992.
[19] Beasely R R. Operation roller coaster: Technical photography[R]. POR-2519, 1965.
[20] Church H W. Cloud rise from high-explosives detonation[R]. SC-RR-68-903, 1969.
[21] Shinn J H. Technical basis for air pathway assessment of resuspended radioactive aerosols: LLNL experiences at seven sites around the world[R]. UCRL-JC-115045, 1993.

Experimental research of silver aerosol source-term under explosive detonation

Liu Wenjie, Ma Qingpeng, Wang Penglai
(*Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang* 621999, *Sichuan, China*)

Abstract: An experimental method in the confinement vessel for silver aerosol source-term investigation of metal under high explosive detonation was designed to simulate the plutonium aerosol source-term of nuclear devices under the circumstance of high explosive detonation. Seven silver source-term experiments under variable explosive pressure were conducted in the aerosol facility and the size distribution characteristics of the silver aerosol with an aerodynamic diameter less than 10 μm were examined and compared with the data from the field test. The results show that the silver aerosol source-term under specific conditions has good agreement with the plutonium aerosol source-term obtained by the U. S. government under test conditions simulating an open-air detonation accident of nuclear device. The amount of the silver aerosolized in the experiment is determined by the peak value of high explosive pressure that acted on the silver plate and exhibited a quadratic polynomial. The silver aerosol with an aerodynamic diameter ranging from 0.7 to 3.3 μm account for the major part of the silver aerosol induced by high explosive detonation. When the peak value exceeds a certain critical value, the total amount of aerosol reaches the maximum. Settlement and combination of aerosol were observed in the comparative analysis of the size-mass distribution of the samples collected at different times after the explosion.

Key words: mechanics of explosion; size distribution; cumulative mass; silver aerosol; source-term; plutonium aerosol

(责任编辑 丁 峰)