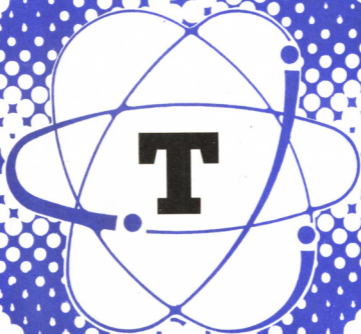


杨怀元 编著

原子能出版社

氡的安全与防护



ISBN 7-5022-1476-3



9 787502 214760 >

ISBN 7-5022-1476-3

TL364 定价:65.00元



图书在版编目(CIP)数据

氟的安全防护/杨怀元编著. 北京:原子能出版社,1997.3

ISBN 7-5022-1476-3

I. 氟… II. 杨… III. 氟核-核安全保障 N. TL364

中国版本图书馆 CIP 数据核字(96)第 01725 号

内 容 简 介

本书主要参考国际原子能机构和美国国家放射防护委员会一系列关于氟的专题报告和最近文献资料,系统阐述了氟的监测控制、废物处理、安全防护与环境影响。全书共 10 章,第 1~4 章介绍了核设施中的氟及其相关工艺以及与源项控制有关的氟的特性、包容与除去、废物处理;第 5~7 章重点讨论了放射性危害与剂量学、氟监测技术与运行安全防护;第 8~9 章为环境中的氟及其评价方法;第 10 章介绍了国外主要氟实验室及其研究现状。书后附有本书的主要参考文献。

本书为专业参考书,供从事检测设施氟安全、辐射防护、废物管理、环境保护等工作的科技人员使用,也可供氟的生产、科研和教学人员参考。

©原子能出版社,1996

原子能出版社出版发行

责任编辑:李盈安

社址:北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码:100037

原子能出版社印刷厂印刷 新华书店经销

开本:787×1092mm 1/16 印张 20 字数 460 千字

1997 年 3 月北京第 1 版 1997 年 3 月北京第 1 次印刷

印数:1—500

定价:65.00 元

氡的安全与防护

杨怀元 编著

原子能出版社

前 言

氚是氢的放射性同位素,人工产氚已有 40 多年的历史。除了过去它曾用于军事目的外,氚在工农业生产、生物医学、水文地质、科学研究等领域有着广泛的应用。在现代能源工业中,氚在裂变动力堆和燃料后处理厂的运行过程中随废物排放到环境中,国际原子能机构(IAEA)曾预测到本世纪末每年排放的总氚量将高达 1.85×10^{19} Bq,比地球上现有的氚总量高几十倍。目前的研究进展已经表明,聚变堆将会成为新一代的世界能源。虽然它将是一个更清洁的核能源,但它可能含有很大的氚盘存量,因为一个热核反应堆释放的氚量比一个相当功率的核电站释放的氚量要大 1 万到 10 万倍。因此,随着聚变能的研究和开发,氚的监测与控制,以及安全防护和环境影响正在成为一个专门的研究领域。

由于氚会被人体组织吸收并使之受到照射,因此有关核设施内氚的管理,废物处置、安全防护和环境影响问题很早就受到人们的重视。美国国家放射防护委员会在 70 年代中后期陆续发表了 NCRP 47 号报告“氚测量技术”和 NCRP 62 号报告“环境中的氚”。国际原子能机构也陆续在 1979 年发表了“环境中氚的行为”(IAEA-SM-232/74),80 年代发表了“载氚废物的处理”(TR-203)、“核设施中氚的管理”(TR-234)以及 90 年代发表的“氚的安全操作”(TR-324)等论文集和一系列技术报告。日本为核聚变研究而汇编了大型的“氚资料集 1988”。加之每隔几年召开一次的“氚技术在裂变、聚变和放射性同位素中的应用”国际会议所提供的丰富的论文资料,使我们在今天有可能对于氚的安全与防护有一个较为完整、系统的了解。由于这些报告资料的绝大部分未翻译成中文在国内系统介绍,所以它们的影响仅局限于研究院、所较小范围。

本书试图为核设施生产现场从事氚安全防护和环境保护的人员提供一本合适的专业参考书,大部分内容取自于上面提及的 NCRP 和 IAEA 报告。为了在叙述上系统化并保持内容的连续性,在个别章节作者依据国际放射防护委员会(ICRP)的出版物和国内外发表的其它最新文献作了适当改写和补充。当然,在相应的章节对国内的研究进展与成果也尽可能给予较详细的介绍,以使做具体工作的同志,对于氚的安全防护的全貌及国内外进展概况能有一个较为完整的了解。本书分为 10 章。前 4 章概述了核设施中氚相关的工艺、氚的特性、包容与除去和废物处理,内容都与源项控制有关。这里所提及的工艺和生产管理方面的知识,都是从安防人员的角度而言的。第 5 章为放射性危害与剂量学,试图使读者在深入理解氚致内照剂量的同时,由具体到一般逐渐领会国际放射防护

委员会的辐射防护理论与概念体系。第6章为氡监测技术,在内容的选取上尽可能使读者掌握最基本的测量技术,而对发展动向和最新技术也有所了解。第7章运行安全防护则结合国内的实际情况,介绍了国外行之有效的管理经验。第8章和第9章分别为环境中的氡与评价方法。第10章介绍国外主要氡实验室及其研究现状。书后附录有尽可能全的各章节内容的参考文献,使研究人员和想进一步了解的读者,需要时便于查阅和校核。

本书能够出版,首先要感谢中国核工业总公司安防环境卫生局和中国辐射防护研究院领导的关心和支持,感谢核工业总公司404厂,中国核动力研究设计院,中国工程物理研究院核物理与化学研究所、材料所,秦山核电公司和广东大亚湾核电合营有限公司等单位的支持与资助,以及他们对作者的信任与鼓励。

本书第1章至第4章由陈式研究员审阅,第5章至第10章由马如维研究员审阅。他们对本书的最后修改定稿提出了许多宝贵的意见。在本书的准备过程中一些疑难问题的讨论和解决,作者也常得到中国辐射防护研究院其它专家和同事们热情帮助,在这里一并表示衷心的感谢。

作者意识到,要把40多年来发展累积的所有关于氡安全防护的技术资料,全面系统地概括在一本书中,就知识面和水平而言实在不是一个人力能胜任的。今年是我国“九五”计划的第1年,在世纪交替之际我国核能将有一个大的发展,氡的问题也必将引起各方面重视。作为急就篇,文中难免有许多差错和不当之处,作者热切希望有关专家学者和广大读者给予批评指正。

杨怀元 1996.10
于中国辐射防护研究院

目 录

第 1 章 核设施中的氙的管理	(1)
1.1 动力堆与燃料后处理厂中氙的管理	(1)
1.1.1 引言	(1)
1.1.2 氙的产生与处理	(1)
1.1.3 含氙废液的浓集处理	(6)
1.2 聚变堆的燃料循环与氙技术.....	(11)
1.2.1 引言.....	(11)
1.2.2 聚变堆的燃料循环.....	(12)
1.2.3 燃料循环系统有关的氙技术.....	(14)
1.3 氙的生产贮存与衡算管理.....	(18)
1.3.1 引言.....	(18)
1.3.2 氙的生产.....	(19)
1.3.3 氙的贮存.....	(22)
1.3.4 氙设施的衡算管理.....	(25)
1.3.5 工艺控制分析测量技术.....	(25)
第 2 章 氙的性质及其与安全相关的特性	(31)
2.1 氙的基本性质.....	(31)
2.2 氙气向氙化水蒸气的转化.....	(32)
2.3 与材料的化学与辐射分解反应.....	(34)
2.3.1 腐蚀.....	(34)
2.3.2 结构性能的退化.....	(34)
2.3.3 挥发性氙化合物的产生.....	(35)
2.4 氙气的渗透特性.....	(35)
2.4.1 溶解度.....	(35)
2.4.2 扩散率.....	(36)
2.4.3 渗透率.....	(38)
2.4.4 氙渗透性评价方法.....	(41)
2.5 氙的泄漏.....	(45)
2.5.1 氙泄漏量评价方法.....	(45)
2.5.2 氙泄漏量计算例.....	(46)
2.6 氙相容材料导则.....	(47)
2.6.1 金属.....	(47)
2.6.2 石墨、玻璃和陶瓷	(48)
第 3 章 氙的包容与除去	(53)
3.1 引言.....	(53)

3.2	初级包容	(53)
3.2.1	设计原则	(53)
3.2.2	管线系统	(53)
3.2.3	阀门与紧固件	(54)
3.2.4	压力保护	(54)
3.2.5	泵	(55)
3.3	次级包容	(55)
3.3.1	引言	(55)
3.3.2	手套箱	(56)
3.3.3	手套箱气氛的净化	(58)
3.3.4	手套箱系统的仪器设备	(59)
3.3.5	次级包容的丧失	(60)
3.4	氟的净化除去	(62)
3.4.1	除氟系统的工作原理	(62)
3.4.2	常用催化剂与干燥剂	(63)
3.4.3	小型除氟器的结构与性能	(67)
3.4.4	国内在气体净化与除氟技术方面的研究进展	(68)
3.5	氟包容除去系统的设计	(70)
3.5.1	氟包容除去系统的设计考虑	(70)
3.5.2	除氟设备的设计方法	(71)
3.6	大型氟包容与除去系统	(76)
3.6.1	日本原研的氟工艺研究室	(76)
3.6.2	欧洲氟操作实验室	(83)
3.6.3	美国洛斯·阿拉莫斯国立研究所氟系统试验设施 TSTA	(84)
第4章	氟废物的处理与处置技术	(86)
4.1	概论	(86)
4.1.1	含氟废物的特点	(86)
4.1.2	废物来源与分类	(86)
4.1.3	氟废物处理处置的一般方法	(87)
4.2	低水平含氟有机废液的燃烧处理	(88)
4.2.1	液闪计数产生的废闪烁液	(88)
4.2.2	一般处理方式	(88)
4.2.3	燃烧装置的结构与性能	(89)
4.3	液体废物的整备与包装	(89)
4.3.1	实验室少量废水的处理方法	(89)
4.3.2	低水平废液的水泥固化	(93)
4.3.3	中、高水平液的其它整备方法	(95)
4.3.4	液体废物的整备与包装	(97)

4.4	固体废物的包装与安全管理	(99)
4.4.1	固体废物的分类与管理原则	(99)
4.4.2	高释气率废物的去污再处理	(100)
4.4.3	固体废物的包装与贮存	(101)
4.4.4	固化废物桶氟释气率的测定	(102)
第5章	放射性危害与剂量学	(105)
5.1	职业照射产生的氟危害	(105)
5.2	氟剂量学	(106)
5.2.1	基本的量和单位	(106)
5.2.2	ICRP 30号出版物的剂量学模型	(109)
5.2.3	氧化氟 HTO	(110)
5.2.4	元素氟	(113)
5.2.5	氟标记有机化合物	(115)
5.2.6	金属氢化物	(116)
5.3	公众成员摄入氟的年龄依赖剂量	(116)
5.3.1	ICRP 56号出版物的主要内容	(116)
5.3.2	氟的生物动力学资料和食入剂量系数	(117)
5.4	氟内照剂量的估算与评价	(119)
5.4.1	人体摄入氟的测定方法	(119)
5.4.2	氟内照剂量的估算方法	(120)
5.4.3	HT 对肺致剂量的估计方法	(122)
5.4.4	HT 表面污染致皮肤剂量的估计方法	(123)
5.4.5	国外严重氟污染的报道	(124)
5.5	减少氟内照剂量的方法	(126)
5.5.1	暴露后的清洗	(126)
5.5.2	增加水的摄入量	(126)
5.5.3	其它医学促排措施	(127)
5.6	ICRP 出版物与我国的辐射防护规定	(128)
5.6.1	我国的辐射防护规定	(128)
5.6.2	人体氟摄入量与受照剂量、危险度的关系	(129)
5.6.3	ICRP 以及我国推荐的参考人	(131)
5.6.4	ICRP 1990 年建议书	(132)
第6章	氟监测技术	(136)
6.1	引言	(136)
6.2	空气或气体中氟的监测	(138)
6.2.1	鼓泡器和被动式氟取样器	(138)
6.2.2	电离室方法	(143)
6.2.3	正比计数器与闪烁计数器	(150)

6.2.4	多管干燥器在甄别式氡监测仪上的应用	(152)
6.2.5	刻度与标准	(157)
6.3	液体中氡的监测	(158)
6.3.1	概论	(158)
6.3.2	取样分析	(158)
6.3.3	液体闪烁计数测量系统	(159)
6.3.4	固体闪烁流室	(160)
6.3.5	进样水流与维护管理	(161)
6.4	氡的表面污染监测	(162)
6.4.1	一般考虑	(162)
6.4.2	擦拭法测量	(163)
6.4.3	直接测量方法	(164)
6.5	液体闪烁测量技术及其应用	(165)
6.5.1	液闪计数的一般原理	(165)
6.5.2	液体闪烁计数器及其性能	(168)
6.5.3	计数效率及其猝灭校正	(171)
6.5.4	计数测量应用	(173)
第7章	运行安全防护	(177)
7.1	氡安全防护的一般原则	(177)
7.2	氡系统运行和维护的特殊问题	(177)
7.2.1	可移动性	(177)
7.2.2	化学形态	(178)
7.2.3	化学和辐射分解反应	(178)
7.2.4	排出流净化问题	(178)
7.3	职责范围与管理措施	(179)
7.3.1	基层安防部门的职责与任务	(179)
7.3.2	进入控制	(180)
7.3.3	区域控制	(180)
7.3.4	操作程序控制	(180)
7.4	氡监测与内照剂量控制	(181)
7.4.1	监测计划的制定	(181)
7.4.2	运行过程的防护监测	(181)
7.4.3	个人监测与内照剂量控制	(183)
7.5	维修与污染控制	(185)
7.5.1	包容系统的维修	(185)
7.5.2	污染控制和废物处理	(185)
7.5.3	去污	(186)
7.5.4	氡的贮存	(187)

7.6	个人防护衣具	(187)
7.6.1	引言	(187)
7.6.2	工作罩服和外套	(188)
7.6.3	手套	(188)
7.6.4	鞋或鞋罩	(189)
7.6.5	供气式呼吸器	(189)
7.6.6	防护气衣	(190)
第8章	环境中的氡	(193)
8.1	环境中氡的来源	(193)
8.1.1	天然氡的发现与产生机制	(193)
8.1.2	核试验	(194)
8.1.3	反应堆、燃料后处理及其它	(195)
8.2	环境氡的取样与测定方法	(196)
8.2.1	氡分析样品的收集与取样	(197)
8.2.2	样品制备方法	(200)
8.2.3	低水平氡测量技术	(205)
8.3	环境氡的分布与水平	(207)
8.3.1	天然水	(207)
8.3.2	大气	(212)
8.3.3	土壤与生态系	(214)
8.4	环境中氡的传输与循环	(216)
8.4.1	大气中的氡	(216)
8.4.2	陆地环境中的氡	(217)
8.4.3	水环境中的氡	(221)
8.4.4	地下水环境中的氡	(222)
8.4.5	海洋中的氡	(223)
第9章	氡释放的环境影响与评价方法	(224)
9.1	氡释放与环境氡的关系	(224)
9.1.1	氡释放强度与设施边界大气中浓度的关系—稀放系数	(224)
9.1.2	^3H 释放率与大气水蒸气及降水中 ^3H 浓度的关系	(224)
9.1.3	对地下水的影响	(225)
9.1.4	对植物的影响	(226)
9.1.5	对土壤的影响	(227)
9.2	事故性释放对环境的影响	(230)
9.2.1	1970年8月6日 LLL $1.1 \times 10^{16} \text{Bq}$ 的氡异常释放	(230)
9.2.2	1974年5月2日 SRP $1.8 \times 10^{15} \text{Bq}$ 氡的异常释放	(231)
9.3	环境影响评价方法	(234)
9.3.1	照射途径	(234)

9.3.2	日本原子力安全协会 S.56 剂量估算模型	(234)
9.3.3	美国 NCRP 模型及其改进	(237)
9.4	用于剂量评价的环境氡转移模型	(239)
9.4.1	SRL 陆地生态系统模型	(239)
9.4.2	UFOTR1 事故性氡释放评价模型	(242)
第 10 章	国外的主要氡实验室及研究现状	(247)
10.1	引言	(247)
10.2	日本	(247)
10.2.1	日本原子能研究所	(247)
10.2.2	日本各大学实验室	(249)
10.2.3	其它设施	(250)
10.3	欧洲	(250)
10.3.1	新欧洲氡实验室的建立	(250)
10.3.2	联合欧洲环 JET 氡技术计划方面的进展	(251)
10.3.3	实验室分工与研究规划	(251)
10.4	加拿大	(252)
10.4.1	燃料循环系统进展	(252)
10.4.2	再生区与第 1 壁技术	(253)
10.4.3	安全技术研究	(253)
10.5	美国	(255)
10.5.1	萨凡那河场地	(256)
10.5.2	EG&G 蒙德实验室	(256)
10.5.3	劳伦斯利弗莫尔国家实验室(LLNL)	(257)
10.5.4	圣地亚国家利弗莫尔实验室(SNLL)	(257)
10.5.5	洛斯阿拉莫斯国家实验室(LANL)	(258)
参考文献	(261)

第 1 章 核设施中的氙的管理

1.1 动力堆与燃料后处理厂中氙的管理

1.1.1 引言

裂变反应堆和燃料后处理厂是当前核设施向环境释放氙的主要来源。随着核电工业的持续发展,由于氙的放射性危害和它在环境中的特性,核设施中氙的管理日益受到重视,在处理含氙流出物和废物方面已有许多重要的技术进展^[1,2]。应当看到,将来聚变堆中产生和处理的氙量将比目前同等功率生产的裂变堆产生的氙量高几个数量级,现在为处理裂变堆产生的氙而研究发展起来的大多数技术也将适用于今后的聚变堆设施。

1.1.2 氙的产生与处理

在核动力工厂里,氙由燃料的三分裂变和中子与堆本体部件的核反应而产生。产氙的反应有许多,如 $^2\text{H}(n, r)^3\text{H}$, $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)^3\text{H}$, $^7\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$, $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 和 $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 。重水反应堆是最主要的产氙源。通过重水中氙对中子的吸收,其产率近似为 $8.9 \times 10^4 \text{ TBq} \cdot \text{GW}(e) \cdot \text{a}^{-1}$ 。作为比较,由三分裂变产生的氙为 $5.6 \sim 11.2 \times 10^2 \text{ TBq} \cdot \text{GW}(e) \cdot \text{a}^{-1}$,而由其它核反应的产率依赖核反应堆堆型,小于 $3.7 \times 10^2 \text{ TBq} \cdot \text{GW}(e) \cdot \text{a}^{-1}$ 。

1.1.2.1 核动力工厂

(1)重水反应堆

在加拿大重水铀反应堆 CANDU(PHWR)中,重水被容纳在两个分开的系统—慢化剂和冷却剂中。实际上所有的氙产生与驻留在接近大气压力下运行的大约为 70℃ 的慢化剂系统里。冷却剂回路运行温度为 300℃,压力 9.6 MPa。氟化重水由这些系统的泄漏构成了含氙流出物的来源。含氙流出物由气载和含水流物构成。这样,无论从安全还是从经济上考虑,泄漏重水的控制和回收就成了重水反应堆设计和运行的一个重要的组成部分。表 1-1 给出了在一个 Candu 核动力电站测量得到的重水泄漏数据^[3]。

表 1-1 重水反应堆 D₂O 的浅漏样本—BRNCE 核电站 A

部 件	整个电站慢性 D ₂ O 泄漏 (%)	泄漏率 (%)	
		<0.1g/d	>0.1g/d
管道及管道连接件	5.4	100	0
仪器与控制部件	1.4	78	22
法兰盘	28.1	56	44
阀门	59.8	78	22
观察窗玻璃	0.8	57	43
其它	4.5	—	—

氟化重水的长期低水平泄漏、散逸产生气载氙的污染,水和气载氙释放值之间的分布依赖于许多因素变化。除设计本身要求将重水的泄漏减到最小以外,气载氙的污染控制主要是将重水系统的绝大部分放在反应堆安全壳内。安全壳的设计,运行和维修确保这些被包容的

系统成为最小限度的环境排放与职业照射源。必须接通动力的重水系统或位于安全壳内,或在安全壳外屏蔽的绝大多数为密闭的房间内。

在反应堆安全壳内,配备有闭合循环的重水回收系统,用于回收重水并将氚水平保持在职业照射可以接受的水平。密闭房间可以使用空气进行清洗或配置空气干燥剂装置。电站的空气质量,由于通风的设计是从污染最少的区域流向污染最重的区域,因而能得到保持。

由慢化剂和冷却系统产生的泄漏重水被收集在大罐中。来自慢化剂系统的水或被直接馈送返回慢化剂管道系统(假若重水的同位素纯度足够高的话),或在通过水蒸馏富集之前被送入纯化系统。来自该蒸馏单元的馏液将含有小于 0.5% 的 D_2O ,是氚化废物一项来源。其蒸气中的氚浓度依赖于被回收重水中的氚浓度,对于 185 GBq/l 的回收水,在馏液中氚浓度将小于 925 MBq/l。

如加拿大 Pickering A 核电站气载氚的平均日排放量 1981 年为 1.59 TBq,1980 年为 1.89 TBq。Bruce A 核电站相应的排放量为 9.25 和 4.44 TBq。液体废物排放, Pickering 核电站 1981 年为 0.78 TBq,1980 年为 1.30 TBq,而 Bruce A 电站相应的值为 2.0 TBq/d 和 2.44 TBq/d。

反应堆部件和厂房内所使用的清洁材料如抹布和墩布被泄漏出的重水污染是固体废物的一项来源。其它氚污染的废物包括实验室用过的样品瓶,塑料个人防护衣具和空气呼吸器中的蛭石。这些低水平放射性废物贮存在被监测的混凝土坑内,其四周为压实的颗粒状回填土并配备地面下的排水管道系统。通过混凝土的扩散和透过混凝土与结构结合部密封层小缝隙的泄漏被认为是氚的主要散逸机制。即使发生泄漏,逸出氚的大部分也会被地面下的排水系统拦截和收集,使渗入高度防渗的下层土址和地下水系统的部分减到最小。

在印度,氚向环境的主要排放源是位于 Rajasthan 原子能电站的高压重水反应堆。低水平含氚废液排出流,与该电站产生的其它低水平放射性废液一道,被排放到天然蒸发池设施。该设施基于非沸腾型的环境温度下的蒸发汽化,废水比活度在 74~222 GBq/l 的量级,包括由重水浓集工厂接收的那些废水。蒸发速率依赖于温度,湿度和整个时间内的风速分布。这些参数在该场址全年度是令人满意的。已经观察到除蒸发汽化之外,氚化水同大气中水蒸气的交换对于氚向大气的处置也是一种重要的机制^[4]。

由氚回收工厂产生的高浓度氚是一种特殊的产品,因其本身的商业价值不可能被认为是废物。在加拿大氚回收工厂已由安大略 Hydro 和加拿大原子能有限公司委托恰克河核研究所建立,在法国 Grenoble 的朗之万研究所也有一座氚回收工厂在运行。这类工厂使用工艺的详细情况,将在下面的章节中介绍。

(2) 轻水反应堆

在沸水和压水反应堆中氚主要由三分裂变 $560\sim 740\text{ TBq}\cdot\text{GW}(\text{e})\cdot\text{a}^{-1}$ 和在水中存在的天然氚、锂杂质与中子反应 $< 37\text{ TBq}\cdot\text{GW}(\text{e})\cdot\text{a}^{-1}$ 产生,水中氚的浓度处于低水平范围 11.1 MBq/kg。在沸水堆(BWR)中由排放气体释放的活度比例为 10%~50%,液相释放为 50%~90%。在压水堆(PWR)中,慢化剂和冷却剂活性的 99% 存在于液相中,10% 在气相中。由于它们的浓度低,气体和液体氚化流出物两者在经过适当的稀释后排向环境大气,所以这种释放比允许的释放水平要低得多。

(3) 其它类型反应堆

在其它类型反应堆如改进型气冷堆(AGR),高温反应堆(HTR)和快中子增殖堆(FBR)中,氙的产生仅是一种裂变产物,其活度范围约为 $630\sim 925 \text{ TBq} \cdot \text{GW}(\text{e}) \cdot \text{a}^{-1}$ 。

1.1.2.2 后处理工厂

(1) 概论

送入燃料后处理厂(FRP)处理的氙量依赖于燃料的类型以及在不同的反应堆堆型中所使用的包壳材料。在反应堆运行期间会有一些氙从氧化物燃料中扩散出来,渗入包壳,随后进入冷却剂中。由此最后随同正常的液态和气态废物排向环境。剩余的氙预期将随同乏燃料一起被送入后处理工厂。

具有不锈钢包壳的轻水堆燃料(来自压水堆和沸水堆可能仅含有燃料中生成量一半的氙,而锆合金包壳燃料预期能载带几乎所有的氙去后处理。这是因为从该燃料中扩散出来的氙几乎全部被作为氟化锆滞留在锆合金中。

另一方面,来自改进型气冷堆和快中子增殖堆的具有不锈钢包壳的燃料,预期只会有少量的氙被送入后处理。在高温反应堆中氙的分布,进而送入后处理的量,多少有些不确定,依赖于石墨中的锂杂质和氦冷却剂中 ^3He 的杂质含量。

依据目前世界范围内的核动力电站和现行的后处理技术,在今后几十年内轻水堆燃料的后处理预期在核燃料后处理中占主要地位。一个安装电功率为 50 GW,相当于每年 1400 t 重金属的商业规模的轻水堆燃料后处理工厂的总产量,估计约为 $1.85\sim 3.7 \times 10^4 \text{ TBq}$ 氙/年。

(2) 通用 Purex 工艺流程中的氙

后处理轻水堆燃料的工厂,目前使用一种称为普雷克斯(Purex)的工艺流程(用 TBP 萃取铀钚),来除去裂变产物并从中回收裂变或可变成裂变物质的材料。在运行准备期间,燃料元件被切割成小块投入溶解槽内,用浓硝酸将燃料溶解浸出。

含有铀、钚和裂变产物的溶解槽液然后被送入溶剂萃取系统。在第 1 级混合器里铀和钚被萃取进入有机相(磷酸三丁脂煤油)中,振荡洗涤,然后被送入第 2 级混合器中。留在含水相中的裂变产物底液则被送给高放废液处理工序进行浓集和固化。在第 2 级和第 3 级混合器中产品材料铀和钚被分离开来并分别进行再萃取。

依照后处理工艺中氙的流向,会有某个确定的份额结合固定在锆合金包壳中。预期在包壳中,可能约含有氙总量的 60%,实际数字依赖于燃料棒的温度而不是局部燃耗^[5]。氟化包壳废物可以用水泥固定在鼓形桶中进行处置。

在第 1 级混合器里,大量残留氙同裂变产物一起作为氟化水(HTO)和氟化硝酸(TNO₃)留在液相中。在各种排放废气中气态 HT 和氟化水蒸气 HTO 似乎只占总盘存量很小的百分数。另一个很小的百分数随有机溶剂在被溶解和带走的液相中。

对于共用酸和水的各种萃取循环回收系统,由于重复循环产生的交叉污染及其它原因,结果造成在标准 Purex 工艺流程中实际上所有工艺流的氙污染。表 1-2 给出了依据标准 Purex 工艺流程进行轻水堆燃料后处理期间氙在各工序的简化分布。

(3) 控制氙所需要的工艺改进

从溶解工序开始,燃料中的氙随着硝酸和水的引入而被一次又一次地同位素稀释。结果使现行的后处理工厂运行模式产生了体积非常大的含氙废液,其数量级约为每吨重金属

100 m³。

表 1-2 氟在通用燃料后处工艺中的简化分布

运行	工艺流	工艺流中氟的份额 (盘存量的%)	化学形态
切割工序	燃料元件	100*	
	燃料元件小块	>99.99	
	排放废气	<10 ⁻³	HTO, HT
溶解工序	液相	~40	HTO, TNO ₃
	包壳	~60**	ZrT
	排放废气	<0.5	HT
萃取工序	含水相	>35	
	有机相	<5	
再萃取工序	水相	<4.9	
	有机相	~0.01	
	Pu 产品	~0.1	
	U 产品	~0.01	

* 在燃耗为 30 GW·d/t 相应于 13~26 TBq/t。 ** 主要依赖于局部燃料棒的温度。

在氟化水可以直接排向环境大气的地方(如印度的天然蒸发池)和可以用大量稀释方法直接排入海洋的沿海场址(如英国、法国等),这种工艺是可行的。然而,对于居民密集的内陆场址,氟的回收在将来可能是需要的。

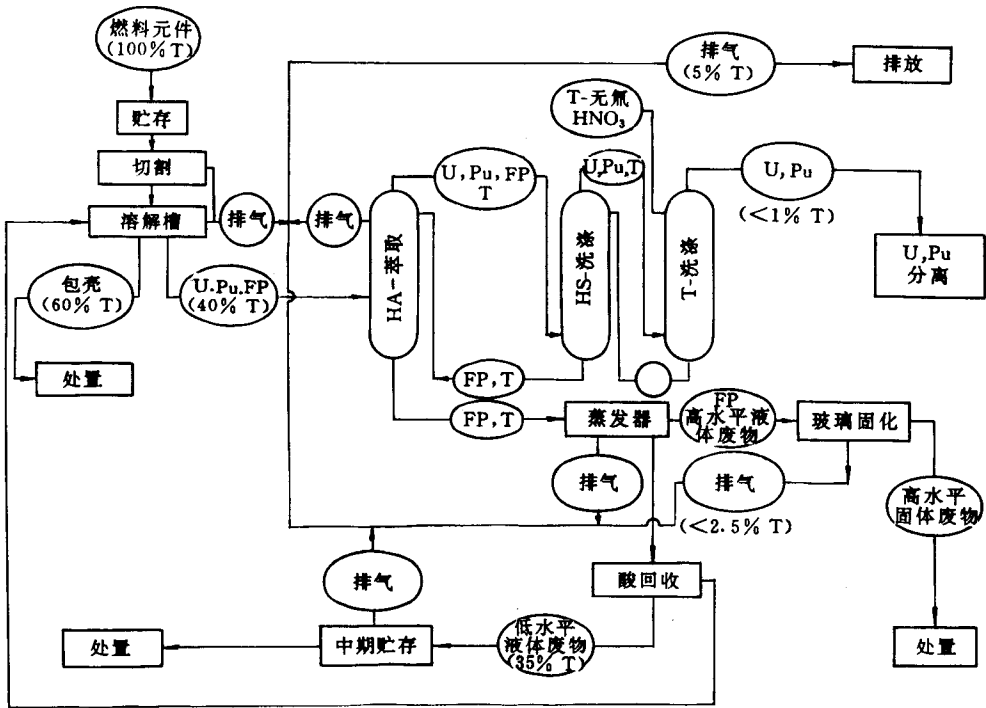


图 1-1 在改进型 Purex 工艺流程的第 1 级含水相循环中的氟分布
(氟含量由总产量的百分数给出; U, Pu, FP, T 分别表示铀、钚、裂变产物和氟)

减少含氚废水的体积,已有许多报告和评述^[5,6,7],可以考虑采用下述方案。

a. 在开始阶段的第 1 级水循环中将氚隔离。该程序包括一个独立的氚化酸和水的回收系统,且第 1 个混合接触器中的有机相用无氚的洗涤酸洗涤以除去被溶解和带入的含氚水。

b. 通过水和硝酸的部分再循环使用,可以实现小体积水中氚的浓集。它具有提高第 1 级循环中含水相氚水平的逆向运行效果。

使用后一方法,可将流出物的体积减小到 $1 \text{ m}^3/\text{t}$ 重金属的量级,图 1-1 给出了一个具有再循环、洗涤和独立的酸回收系统的改进型 Purex 工艺流程中氚的分布。

挥发氧化是另一个可供选择的预备工艺。它通过在提高的温度下进一步氧化,促使气体裂变产物从氧化物燃料中释放出来。该工艺试图作为从辐照后燃料中除去氚,碘,氪和氙的一种方法,但迄今只部分成功地用于碘和惰性气体的除去^[8]。

然而,挥发氧化也可被用于在溶解前从燃料中除去氚,这样就避免了在后处理期间的同位素稀释。图 1-2 给出了该工艺的原理流程图,主要特点是将 UO_2 在空气或氧气流中氧化成 U_3O_8 ,破坏其晶格结构,使被捕集的气体释放出来。通过将燃料在 550°C 左右的回转炉内加热数小时,可以实现这一点。预期对每吨重金属可得到 $2\sim 20 \text{ l HTO}$,浓度在 $1\sim 0.1 \text{ TBq/l}$ 范围,气态 HT 的释放率应当小于 0.1% ^[9]。浓集的氚化水(对于 1400 t/a 的后处理工厂约为 $30 \text{ m}^3/\text{a}$),可以通过电解转化为毒性较小的 HT 形态,然后释放到大气中。

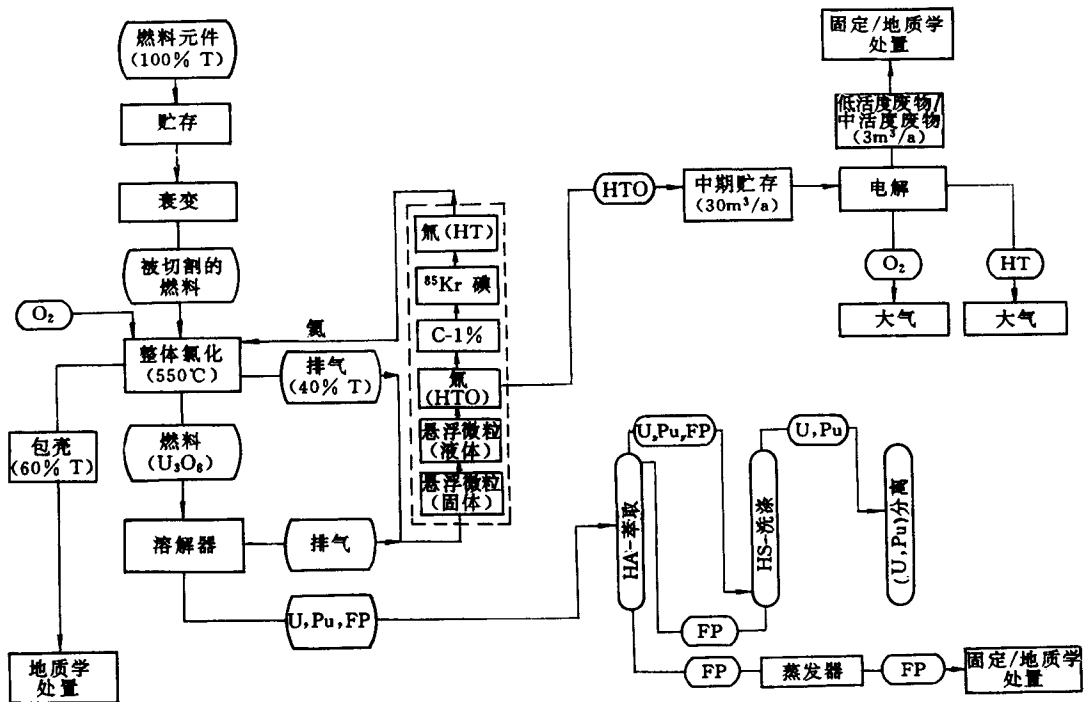


图 1-2 挥发氧化工艺流程中气态氚向环境的释放

挥发氧化工艺目前尚待进行全面研究,估计主要问题可能是(1)工程问题(如温度控制设备的大小,磨损与腐蚀,临界控制);(2)挥发氧化燃料在溶解槽内的行为,以及(3)剩余的挥