

第二屆和平利用原子能國際會議文獻

核燃料和廢物處理

1

中國科學院原子核科學委員會編輯委員會編輯
科學出版社出版

核燃料和废物处理(1)

中国科学院原子核科学委员会編輯委员会編

*

科学出版社出版 (北京朝阳門大街 117 号)

北京市书刊出版业营业許可証出字第 061 号

中国科学院印刷厂印刷 新华书店总經售

*

1959 年 12 月第 一 版

书号: 2020 字数: 132,000

1959 年 12 月第一次印刷

开本: 787×1092 1/16

(京) 0001—3,800

印张: 5 3/8

定价: 0.70 元

目 录

P/297	放射性废液送入海水中的处理	1
P/307	在热反应堆中被照射过燃料的化学处理流程	13
P/518	加浓核燃料湿法分离过程的临界安全装备	43
P/1098	制取高纯度钍的碳化-碘化法	55
P/2004	核能工业发展中的废物处理任务	83

放射性废液送入海水中的处理*

H. J. 旦斯特 (Dunster)

摘 要

大約有五年了, 联合王国原子能委员会在塞力菲地方所設的温德斯凱厂曾經在距坎伯兰不远的海水中做过放射性的排放試驗。魚, 海藻, 海床和海边的沙的样品都已經被取得, 并且它們的放射性已經被估定。本篇总结这个試驗計劃的結果并断定最高允許排放率不能超过每月 20,000 居里总的 β 放射性。对于鐳 90, 对于鈾 106 和对于钷的特別限制是需要的。还提及利用这些資料来估定向其他各海岸的海水中的安全排放的問題。

1. 緒 言

許多有关核动力的过程和試驗操作产生了放射性废液, 它們可以用根据于两种基本程序的許多变型中任何一种来处理。这两种不同的程序是貯藏, 最好以高度浓集的形式貯藏, 或者是分散在自然环境中。核动力的主要裂变产物废物是有強烈放射性的, 非得采取在控制的条件下或者在隔离的自然区域中貯藏的程序不可。然而除这些强放射性的废物外, 还生成相当多的放射性非常稀薄的废物。对这些废物采取浓集貯藏的处理方法并不是經濟的办法, 在小心控制的条件下把它們分散于自然环境中, 常常是好办法。在联合王国里, 凡医院、工厂和实验室用放射性同位素都要把它们的液体废物, 在公共卫生条例的管制下放到沟渠或河水中。联合王国原子能委员会是唯一大規模处理放射性的机构, 并且制定了專門的条例来管制这种处理。在这种法律管制下, 原子能委员会要由英国政府的两个部門授权才能处理放射性废物。这两个部門指定稽查員去与原子能委员会共同处理。只有在他們的授权之下的一系列的排放是大量的。这种排放就是废水溶液从坎伯兰的塞力菲地方温德斯凱厂放到海里的。温德斯凱厂包括反应堆, 化学厂和研究工厂控制和核动力工艺学的实验室, 所以废物主要包含裂变产物和核燃料例如钷。它們包括稀释的水溶液, 这种水溶液在排放前要中和, 因此, 这种放射性不一定是真的溶液, 而可能是非常淡的悬浮物。这些废物通过水管子排放到海中去, 管子伸到大概在高水标以外三千米远的地方。

2. 在温德斯凱地方的初步研究

当温德斯凱厂初步計劃时, 认为每月排放液体废物几百居里可能并不麻煩, 并且认为选择海岸的位置可以大大的簡化处理問題。这样大数量的放射性就是向海中放出也不能不經過詳細的准备性調查和对可能問題的研究。这些問題的近似数字的估定是可能的, 并且表明有些

* 第二屆和平利用原子能国际會議文献, A/CONF. 15/P/297, 联合王国, 1958 年 6 月, 原文: 英文。

** 作者在联合王国原子能委员会工业組工作。

問題是主要的，有些是不重要而可略去的。這些問題的相對重要性是依據當地的海上環境并且依據有多少海上富源足以供人使用。

溫德斯凱廠的準備工作是从對於潮流及擴散過程的水形學研究開始的。海水擴散情況的研究是將大量染料撒於海岸之外各處并在以後的幾小時中從船上來收取生成的散層。從染料的散播率及稀釋率可以估計擴散係數，并且可以最後決定水管的長度以避免海岸上的高度濃集。這部分工作在1955年由西里門¹⁾在日內瓦會議上作過報告。潮流的研究是用流計和漂移標記，雖然在這區域內有很大的海潮波動，但只有很小的或沒有余流。這個結論以後在東北方的愛爾蘭海中鹽分布的研究已加以証實。這些研究說明離開陸地的淡水的轉移，主要是由於渦旋的擴散而非由於流動。當然，表面的水由於風吹也有很大的流動。這種流動不大影響水的大部轉移，但對於湍流有很大貢獻。

這些初步估計僅僅指出三個主要潛在的危險。這三個危險就是在能吃的魚中的放射性，在能吃的海藻中的放射性，和海岸上的輻射。其他危險如沐浴人的受到照射，沙和海水的攝入，以及用海藻作肥料，均會發生危險，但這還是次要的。因此這個工作是集中在估計魚、海藻、海岸的放射性和海水的放射性的可能關係。工作的程序是開始看看在所計劃的水管地帶食用魚的分布和捕集，并且看看沿坎伯蘭海岸的這一帶地區食用海藻的分布情況。對魚的活動的研究包括在水管地帶三萬頭魚的捕獲和標記。有些魚是有計劃地再捕獲，而其它的魚是通過商業上的關係收回的。幾乎有一半標記的魚都再被捕獲。其結果說明魚作很小的季候活動，可能主要地是受溫度變化的限制，也說明這些魚離開這個區域時，很少游到比北愛爾蘭海更遠的地方。在商業碼頭標記魚的比例暗示着來自遠處溫德斯凱地方的魚引起了相當的稀釋。研究海藻的結果知道不能依靠非放射性的海藻得到很大的稀釋，因為坎伯蘭一帶的海藻僅僅在海岸綫約40千米處就進行收割，送到南威爾士一帶，在這裡海藻形成全部供給的很大部分。這些環境的研究得到實驗室工作的支持，在實驗室里魚和海藻被養在貯海水的池里并把放射性物質加進去。定期地拋出魚和收取海藻的樣品能使我們估計海水與能吃的東西之間的濃度倍數。對在魚和海藻中某些非放射性元素的濃度也進行了測量，這些元素在廢液中是會以放射性的形式出現的。把這些濃度與海水里各種元素的自然濃度作比較，能使我們進一步估計最高濃度倍數。

初步研究的結果指出廢液離開水管並且在離海岸不遠處很快地與大量海水混合，進行完全的垂直的混合。稀釋的放射性會被潮水向海岸上下沖擊，很慢的擴散到北愛爾蘭整個海中，最後流入大西洋內。只有在出口處的幾千米內一帶，放射性濃度才會與海水的自然本底放射性迥異。離開坎伯蘭海岸的水載着許多固體懸浮物，包括沙、泥，和有機體殘骸。在稀釋過程中許多放射性的東西都被吸收到懸浮物上和海床上，並且還有一些被吸收到海岸和海藻上，在離開坎伯蘭海岸的這一地區中生存的魚就是那些生存在海床上的魚，主要的是比目魚和甲殼類的魚。這些魚的取得放射性，一部分是由于水，一部分是由于他們生存其中的固體質點。另一部分是由于它們的食物，主要是生活在海床上的無脊椎動物。這些不同的濃集過程會使沙、海藻和魚的放射性達到十或百倍或有例外的達到千倍於海水中的放射性濃度。準確的推測是不可能的，因為在實驗室範圍內不可能得到自然界的真實情況。

把這些預測和魚、海藻、海岸的最大允許放射性水平的估計相結合，就可能估定最大允許

1) 西里門，H. 向愛爾蘭海中排放放射性廢物，第一部。放出的染料在海中的稀釋與運動的研究的初步實驗。和平利用原子能國際會議，第九卷，第418頁，日內瓦(1955)。

的排放率。因为有些推测的不确切,所以十的安全的因素在计算中被引入。从旦斯特¹⁾在1955年日内瓦会议上的报告里所得出的结论是: β 放射性每天约 100 居里的放出量和 α 放射性每天约 0.1 居里的排放量是绝对安全的。

3. 排放的放射性的研究

初步的研究,并未包括放射性的排放,因为以为这种排放不会产生有用的实验结果,除非继续不断地做几个月的工夫。但,在1952年温德斯凯地方已可能进行这种定期的排放,并且决定与缜密的监察工作相结合,进行有计划的实验。这种实验的目的不仅是指出排放的安全,而且要建立最大允许排放的值。这种实验是得到负责管理废物处理的各部门的支持的。自那时起,排放始终维持在这样的水平上,虽然未超出许可范围,但也足以在鱼、海藻和海岸沙磧的样品中得到可探测的放射性水平,现在这种实验还在进行中。

1. 监察的程序 从1952年来,在这期间,在监察方面主要的努力,是集中在测量鱼、海藻海岸沙磧和海床的放射性。另外还企图估计海水的放射性,但因水中悬浮着一些小的固体物质,使这种结果解释起来非常困难。因此,监察的程序的目的只在找出同人接触的物质中的放射性与放射性的排放率的关系。因此,监察的程序的结果不可能与初步研究的结果一步一步地作比较。对海岸沙磧的样品已估计了全 β 放射性,因为在海岸上只有 β , 和较少 γ , 辐射是重要的。海床的样品也被估计,一部分因为海床会沾污打渔器具,但也是因为海中放射性的分布反映在海水中放射性废物的分散。鱼和海藻都是用来作食物的,并且因在如铀、镭和其他裂变产物等物质之间毒性范围很广,因此用分析的方法去分别估计铀、镭、钍和全 β 放射性。在监察程序中所包括的测定的总数已经从每年 250 次增加到大约每年 1,000 次。除这些环境的测量外,还从向外流出的废液中来收取样品。为着对植物的控制,每一排放的试样品都已对全 β 放射性做出估计,有代表性的样品已加重视,并且每月给以一次详尽的分析。

2. 海中物质放射性的最大允许水平 取作样品的海中物质的允许放射性水平要从有关的同位素和海产物对于人的生活所起的作用来决定。在温德斯凯工厂研究时所用的基本标准就是辐射防护国际委员会所推荐的标准,特别是在1953年²⁾国际会议后所推荐印出的标准。国际委员会所给出的数值主要是关于辐射工作人员在医疗中所受到的辐照的,这些数字在应用到一般人员以前,已被减低十倍。

关于估计海岸沙磧的允许放射性,假定没有人每年在沙滩上度过一百小时以上的时间,并且以每年 1.5 放射剂量 (rads) 作为 β 和 γ 的混合辐射的允许每年剂量。这些样品已根据在一厚源上的 β 计数加以估计,其结果已用可能给出相同计数率的钾 40 的浓度来校准。采用作为海岸样品的允许水平是每克干重 2.5×10^{-2} 微居里。这个数量对较深层的受污染的沙,相当于在 100 小时内略小于 1.5 的放射剂量。样品干重的使用导致了一个很小的安全因数。因为大多数剂量都用 β 辐射来表示,每年 1.5 rads 的数字也包含一个很小的因数。这些因数都尚未加以考虑。收集样品的地点从最接近出口处到几公里远的地方,但样品的分布地带还是着重在出口处。在天气晴朗时,一些微细的黑淤泥沉淀在沙磧上,直到风浪来时才被冲开。沉淀的东西就留在那个地方并且淤浅,它们排放的放射剂量每年不超过 1.5, 假定放射性水平仍

1) 旦斯特 H. J. 向爱尔兰海中排放放射性废物。第二部。放射性废液每天安全放出量的初步估计。论文第 419 页,日内瓦(1955)。

2) 辐射防护国际委员会,推荐,一九五四年十二月一日修正。英国辐射学杂志,增刊第六号(1955)。

然在每克約 1×10^{-1} 微居里以下。在海床上的放射性對人是沒有直接危險的，但是因為打魚器具可能被污染，所以也要規定一個每克 1×10^{-1} 微居里的限制。這個數值是從靠近廢液出口處所用打魚器具的放射性程度實驗測量而決定的。海床樣品是在出口幾千米內，主要的是在海岸平行窄帶內取得的。在這裡放射性的大部分是沉淀著取得的。

对于海藻的消费亦作了同样的估价。我们知道,少数人每天平均吃海藻能达到 75 克。由于离温德斯凯较远的地方的海藻造成的稀释尚未得到允许量,并且取样计划也被用来求得整个坎伯兰海岸一带海藻的平均放射性的估价。海藻的最大允许浓度因此被认为放射工作人员所消费的饮水的最大允许浓度的 3.3 倍。不考虑非放射性的海藻的稀释引入一个安全因数,这个因数不会少于二。

因为鈾 106 是放出的主要成分,所以最好把这个同位素分开,而不与其余 β 放射物相混。許多魚和海藻的样品都对鈾 106 和全 β 放射性作估定。这样就不难指定对于鈾的最大允許放射性的值,但是对于鈾 106 以外的 β 放射物的放射性水平和最大允許放射性却都难以規定。本文为着方便起見,用一厚源来計数,来估計全 β 放射性,把鉀 40 当作标准,并且从中減去鈾 106 的值,这个值是鈾 106 将会給出的,如果用相同方法来估定而不是用化学分离和当作一薄源来計数的話。用这种方法所得到的差值是属于全放射性的,而鈾 106 除外,应用到这方面的最大允許水平是从飲水中每毫升 2×10^{-4} 微居里值推究出来的。

在溫德斯凱所採用的最大允許水平總括在下面表 1 內。

表 1 海中物質放射性的最大允許水平

放射性类型	水中的最大允許水平 ($\mu\text{c/ml}$)	海中物質	海产物中的最大允許水平 ($\mu\mu\text{c/g}$)
全 β	—	海岸沙磧	25,000
		海岸淤泥	100,000
		海床	100,000
全 α (假定的鈾 239)	3×10^{-6}	魚	30
		海藻	10
全 β (包括或除出鈾 106)	2×10^{-4}	魚	2,000
		海藻	670
鈾 106	1×10^{-4}	魚	1,000
		海藻	330
鈾 90	8×10^{-7}	魚	8
		海藻	2.7

3. 監察程序的結果 自排放开始后,在这期間,对于結果的意义常常进行检查,因此把这些工作分成了一系列的試驗时期,这种分法是带有相当的任意性的。这些結果也就要按着試驗期来叙述,才觉方便。

第一期是包括 1952 年全年和 1953 年的第一季度。这一期是用以估定在海的环境中放射性的散播情况和找出多么快就能达到平衡。这些結果說明放出后仅几个月就能达到平衡情况并且后来的經驗已經加以証实。这个短的时间可以用放射性的迅速移出隣近的环境来解释。这种过程会影响海床放射性也影响海藻和魚的放射性,这是很有意义的。

后一期其号数由 2 至 6,从九个月到十五个月,包括的期間一直到 1957 年末。这一期 2 的結果,一直到 1954 年 4 月,是由費尔和麦克林¹⁾在 1955 年日内瓦會議上作了报告,这些結果并被用作对允許排放的完全的复核的基础。这个复核指出 β 放射性每天近 1000 居里的排放和 α 放射性每天几居里的排放是安全的,假定对鈾 106 和鈾 90 的排放制定附加的限制的話。第三期和第四期是用作确定这些結論的,并且在 1956 年放射性的排放率是有意地增加了,一部分是为处理不需要的废物,但主要的是为了取得較好的試驗材料。这些結果表明并不需要修改 1954 年估定的最大允許排放量。

表 2 指出試驗时期的細节和所排放的各种物質的数量,接着就是表 3、4、5、6、7。这些表指出所分析的样品的数目和在每一时期中所得的結果的算术平均值。这些表指出在海藻中鈾的水平和全 β 放射性,在这些排放中的限制因数,是有系統的低于最大允許水平。在所有其他情况中,海中物質的放射性水平低于最大允許水平約百分之十。

在主要取样的程序外,在距出口处約 50 公里以內的地区中也間或加以测量。在这么远的距离中,放射性的水平与自然本底也并无大异。

取样計劃的目的不仅是証明排放的安全,虽然安全是操作的必需部分。同等重要的是估計,能在坎伯兰海岸一带排放而不致发生危险的放射性的最大总額。这种估計对于海藻,这种限制性物質的不同放射性的水平在各个时期得到結果的計权平均数得来的。这种計权平均

1) 費尔 D. R. 和麦克林 A. S. 向爱尔兰海中放射性废物的排放。第三部。放射性废物的試驗排放。論文第 420 頁。日内瓦(1955)。

表2 試驗时期和排放数量

期数	2	3	4	5	6
日期	6/4/53 25/4/54	25/4/54 25/6/55	26/6/55 4/3/56	4/3/56 31/3/57	31/3/57 5/1/58
持續期間(28天的月份)	14	15	9	14	10
平均排放(居里/28天)					
全 α	1.25	1.53	12.33	4.89	4.61
全 β	1350	2011	1326	6572	4549
鈾 106	364	709	247	3280	1483
全 β					
鈾 106 除外	986	1302	1079	3292	3066
鈾 90	74	33	27	147	143

表3 海岸沙磧的放射性

放射性类型	时 期	样品数目	平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)	最大允許水平 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)
全 β	2	40	24	25,000
	3	38	24	
	4	30	36	
	5	46	74	
	6	25	57	

表4 海岸淤泥的放射性

放射性类型	时 期	样品数目	平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)	最大允許水平 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)
全 β	2	5	5,880	100,000
	3	9	3,510	
	4	4	4,080	
	5	50	11,980	
	6	33	5,930	

表5 海床的放射性

放射性类型	时 期	样品的数目	平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)	最大允許水平 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)
全 β	2	103	1,260	100,000
	3	195	580	
	4	113	690	
	5	249	4,030	
	6	64	4,790	
鈾 106	5	88	2,525	100,000
	6	24	4,249	

数被总的平均排放率除,就得出每 82 天一居里的排放率可能造成的放射性水平。这个数目又被分成适当的最大允許水平,估計的排放的最大允許速率就得到了。这种过程在表 8 中可以看到。在这里用的唯一計权因数就是时期的长度。分析的易行性和精确性視放射性的排放率的增加而增加,但在这种工作中取样手續的不确定性会比这种增加更重要,同时感觉对放出速

表6 比目魚的肉块中的放射性

放射性类型	时 期	样品的数目	平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)	最大允許水平 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)
全 α	3	26	0.020	30
	4	28	0.008	
	5	42	0.012	
	6	13	0.048	
全 β	3	26	3.6	2,000
	4	28	4.2	
	5	42	9.1	
	6	13	7.0	
釷 106	3	26	0.80	1,000
	4	28	0.71	
	5	42	2.35	
	6	11	2.25	
全 β 釷 106 除外	3	26	2.0	2,000
	4	28	2.8	
	5	42	4.4	
	6	11	2.5	
鋇 90*†	3	26	0.06	8
	4	28	0.05	
	5	42	0.05	
	6	11	0.06	

* 所有这些結果都是接近探测的限度的。

† 所有鋇 90 的結果都包括小量鋇 89。

表7 能吃的海藻中的放射性

放射性类型	时 期	样品的数目	平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)	最大允許水平 ($\mu\text{mc/g}$ 干重)
全 α	2	36	0.11	10
	3	117	0.14	
	4	45	0.33	
	5	257	0.27	
	6	131	0.22	
全 β	2	40	92	670
	3	145	96	
	4	91	96	
	5	256	260	
	6	130	226	
釷 106	2	55	22	330
	3	68	44	
	4	33	40	
	5	162	120	
	6	52	181	
全 β 釷 106 除外	2	40	48	670
	3	62	22	
	4	33	40	
	5	159	60	
	6	—	—*	
鋇 90†	2	17	0.23	2.7
	3	48	0.03	
	4	36	0.07	
	5	57	0.21	
	6	9	0.04	

* 对这时期的結果的解释不确定的成分太大,以致不能用。(見本文第 16 段)。

† 所有鋇 90 的結果都是包括小量的鋇 89。

率以計权可能并不妥当。一个取样的誤差是已知其存在的，这誤差是由于在放出点附近的海岸地带所采集的海藻样品占了很大比重所致。使用了1.5的改正因数来减少这个誤差，这一改正因数被包含在对每28天一居里的排放速率所造成的放射性的最后估計中。为了簡化各个时期的比較，表8也包括了在每个时期中28天一居里的排放率得出的平均放射性的值。这些值沒有用1.5因数来較准。

表8中的最大允許排放的数字在目前是最好的，但还不能算是最后的。無論如何，这些数字如果不考虑到不同的同位素的同时排放的可能的相加的效果，实际上是不能应用的。特别是錒和 α 放射物都是易于侵入骨內的，一定要認为是相加的，而鈾和其他 β 放射物的大部分一定要加以限制，因为它们会給予腸胃道的下部以照射剂量，因此一定要認作是另一个相加組。估定全 β 放射性的大小和最大允許水平是困难的，因此需要包括还未被正确估定的安全因数。这些因数，与来自其他地区的海藻使坎伯兰地方海藻稀释的效应相結合，即表示出最大允許排放量被估低了，估低的倍数不会小于三。

4. 在其他海岸水中的放射性排放

本文完全是研究坎伯兰地方的放射性的排放，但一部分也能被应用去研究其他海岸地带的放射性排放問題。海岸处理的限制因素是具有地方性特点的，因此总括温德斯凱海岸环境的特殊性是会有帮助的。

这里沒有規律的海潮，但有与海岸平行的很好的潮流。

这里有相当可观的湍流，由于旋涡扩散而造成很好的垂直混合和分散。

有很多細微的质点的悬浮物。

沒有供人食用的甲壳类的魚。

本地的魚是在底层找食物的，在当地能停住些时，但不是完全靜止的。

食用海藻在海岸边收割。

沙滩供假期海边遊客遊嬉之用。

除有能吃的海藻和不存在任何規律的海潮外，这些特征大多是会促使放射性分散，和减少它在与人有关的物質中浓集的。

想从温德斯凱地方所得来的經驗来估定在任何地点的处理問題时，最好是从温德斯凱地方每月(28天)一居里的单位排放的效应开始。表9說明从前面的表中所得到的計权平均数，加上从温德斯凱放出点几公里地方的蠔肉(*Mytilus* sp.)的七十个分析的平均結果。这个表也說明相关的最大允許放射性水平和从每月一居里的不断排放所生成的这些允許水平的分数。假使对第二栏和第三栏的值能就当地情况加以适当調整的話，表9就能被运用去做其他海岸环境安全放出率的初步估計。这些估計的准确性决定于在温德斯凱地方的环境与其他地区的环境相似的程度和对下面一些变数可能进行定量比較的程度，这些变数象分散的程度、各种魚和海藻的摄取量，和人們对于海产物的利用与消費。

除坎伯兰海岸外，在联合王国的其他两个地区也曾进行調查过，目的在估定它們是否适合处理放射性的东西。这两个地区就是苏格兰的北岸，靠近塞騷，在那里建立了一个唐莱实验反应堆机构，另一个地区就是英格兰南岸，靠近韦茅斯，与在温弗里斯草原所建立的新的研究机构相近咫尺。在这两个地区，龙虾是有商业上的重要性的，但这两个地区各有不同。靠近唐莱，海岸是多石的，水是清的，只是沿岸有悬浮的細微的磨碎介壳。韦茅斯湾的沿岸是多沙的，

表8 在单位排放速率下海藻中的加权平均放射性和最大允许放出量

放射性类型	时 期	每28天一居里的排放率的 平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$)	海藻的最大允许水平及其 与最大允许排放率的关系
全 α	2	8.8×10^{-3}	$10 \mu\text{mc/g}$
	3	9.2×10^{-3}	
	4	2.7×10^{-3}	
	5	5.5×10^{-3}	
	6	4.8×10^{-3}	
加权平均数*	所 有 各 期	3.1×10^{-3}	320c/28 天
全 β	2	6.8×10^{-3}	$670 \mu\text{mc/g}$
	3	4.8×10^{-3}	
	4	7.2×10^{-3}	
	5	4.0×10^{-3}	
	6	5.0×10^{-3}	
加权平均数*	所 有 各 期	3.2×10^{-3}	21,000c/28 天
钷 106	2	6.0×10^{-3}	$330 \mu\text{mc/g}$
	3	6.2×10^{-3}	
	4	16.2×10^{-3}	
	5	3.7×10^{-3}	
	6	12.2×10^{-3}	
加权平均数*	所 有 各 期	4.1×10^{-3}	8,000c/28 天
全 β 钷 106 除外	2	4.9×10^{-3}	$670 \mu\text{mc/g}$
	3	1.7×10^{-3}	
	4	3.7×10^{-3}	
	5	1.8×10^{-3}	
	6	—	
加权平均数	所 有 各 期	1.7×10^{-3}	39,000c/28 天
铯 90	2	31.1×10^{-4}	$2.7 \mu\text{mc/g}$
	3	9.1×10^{-4}	
	4	25.9×10^{-4}	
	5	14.3×10^{-4}	
	6	2.8×10^{-4}	
加权平均数	所 有 各 期	9.7×10^{-4}	2,800c/28 天

* 对采样的不均与分配的校准(见第6—8页)。

表9 从温德斯凯排放的结果总结

放射性的类型和 样品的类型	每28天一居里的排放率的 加权平均放射性 ($\mu\text{mc/g}$)	最大允许水平 ($\mu\text{mc/g}$)	从每28天一居里的排放率所 得到的最大允许水平的分数
全 α			
海 藻	3.1×10^{-2}	10	3.1×10^{-3}
魚	4.1×10^{-3}	30	1.4×10^{-4}
蝦	3.1×10^{-1}	30*	1.0×10^{-3}
全 β			
海 藻	3.2×10^{-2}	670	4.8×10^{-5}
魚	1.6×10^{-3}	2,000	8×10^{-7}
蝦	8.2×10^{-2}	2,000*	4.1×10^{-5}
海岸沙磧	1.3×10^{-2}	25,000	5.2×10^{-7}
海岸淤泥	2.0	100,000	2×10^{-6}
海 床	6.9×10^{-1}	100,000	6.9×10^{-5}
鈾 106			
海 藻	4.1×10^{-2}	330	1.2×10^{-4}
魚	1.0×10^{-3}	1,000	1.0×10^{-6}
蝦	3.0×10^{-2}	1,000*	3.0×10^{-5}
海岸淤泥	1.1	100,000	1.1×10^{-5}
海 床	1.3	100,000	1.3×10^{-5}
全 β 鈾 106 除外			
海 藻	1.7×10^{-2}	670	2.5×10^{-5}
魚	1.3×10^{-3}	2,000	6.5×10^{-7}
銻 90			
海 藻	9.7×10^{-4}	2.7	3.6×10^{-4}
魚	6.3×10^{-4}	8	7.9×10^{-5}

* 关于魚也是用同样数字,虽然在这个海岸一带蝦不是用作食物。

水中带有沉重的悬浮的质点。

唐萊那里的初步工作已经指出放射性的分散,至少在距海岸几百米的区域以内是没有在温德斯凯那里分散得快,一部分是由于和海岸平行的水下石壁。进一步的问题是由于天气不好,泡沫大量吹到岸边,而它带有在岸边悬浮的某些细微质点。由于这些原因,从海岸附近的临时水管放出核分裂产物溶液的试验结果而估计出允许的放出量。用荧光性染料作附加的试验去研究在计划铺设的最后水管的地带的水的运动和分散。这些研究已指出相当于温德斯凯地方的可能排放量大约十分之一的数量完全是安全的,但是还需要进行涉及到长期排放的进一步的工作,以准确地建立最大允许放出率。

在英国南部海岸所作的实验首先是要找出最好的地点从那里进行液体废物的排放,这些废液将从温弗里斯草原发出,其次是研究在这地区影响废液分散的过程。这种工作的进行是从船上放下荧光性染料,并且从前西里門¹⁾在日内瓦所报告的相同。扩散率之快至少如在温德斯凯地方的等量齐观,但情况因为潮水向岸流动的倾向而弄得复杂。打龙虾的工作因为要掌握器具,致在海床上花费很长时间,也导致了许多在温德斯凯地方所没有的一些原因。至

1) 見第2頁註1), 此处未再註(譯者按)。

目前为止,在这个地区还不曾排放过有放射性的东西,所以也只能有初步的估计。按估计来说,最大允许排放量也不过和在温德斯凯地方的一样,但是在这个已被一系列的试验性的排放证实以前,在废液中的放射性将被限制到所估计的安全数字的十分之一。

5. 結 論

这水形学和生物学初步的研究的结果,与以后在过去五年中每月约三千居里的平均放射率的排放的海上环境的监察,说明了在坎伯兰岸外的放射性的分散的一般情况。所排放的废液很快地被大量海水冲淡,并且被振荡的潮汐沿几公里长的海岸来往带动。在这样动盪的范围之外,放射性由于涡旋扩散过程而转移,而且浓度也在几十公里内降到不足重视的程度。许多放射性的东西大多数被吸收在海岸悬浮的沙泥和有机物的精细质点上,有些则沉淀到海床上。水管的长度是长到使在海岸沙质上所沉淀的 β 放射性的浓度大约五十倍低于靠近废液出口附近海床上的浓度。这个地区的鱼,主要的是比目鱼,生存在海床上,因而从水中,从悬浮的颗粒中,从它们用作食物的无脊椎动物中接受了放射性。在鱼的食用部分中的放射性水平比在海床中的放射性水平要少几百倍,而且与周围海水的放射性水平亦无大异。有些到达海岸的放射性不是被沙吸收而是被海藻吸收,因为这种海藻差不多是直接用作食物,因此对其放射性须加以严格限制。在坎伯兰地方所收割的海藻大都是在废液出口处约二十公里以内的地方生长的,实际上并没有被别处海藻所稀释。因此最大允许排放量是被这种海藻的放射性所限制,也被一小部分好食海藻的居民的安全保护所限制。

这种实验程序的结果已经指出在距坎伯兰约三公里的地方,裂变产物每月20,000居里的排放是安全的。现在正在进行的进一步工作显示出,这个数字可以合理地增加,或者可能加到每月100,000居里。这些很高的数字之所以可能,是因为这个地区的海洋过程能引起足够的分散而可以阻止在出口处附近或在爱尔兰海的广大地区放射性一年又一年的不断积累。

同样的放射性的放出在其他海岸水中也是可能的,但是安全排放率只能靠当地试验来决定。虽然水形学和实验室的研究帮助了我们初步地估计安全排放率,而其最大值则有赖于经过科学地计划的至少持续几个月的放射性的试验性排放。在实际排放的头几年中应该继续进行这种实验,以调查长期的变化和放射性不断积累的可能性。其后,执行大大缩小的监察工作就可以保证情况的安全。这样的试验计划表现了一个很可观的科学上的努力,并且温德斯凯计划,包括有近十一年的时期,牵动一个约有十和二十个技术人员的队伍。我们希望从温德斯凯工厂,由于长期实验的结果所取得的经验,可以使确定其它海岸地带的安全排放率所需进行的试验简化。

6. 誌 謝

这里所报告的工作是由几个团体负责的。初步的水形学工作是由哈威尔地方的原子能研究机关所安排的,其后的估值是由温德斯凯地方的研究和发展部门决定的,它们也负责这个试验计划的头一部分和大部分关于鱼和海藻的实验室工作。鱼在水中的运动和打上岸的研究与海藻的收割和消费的研究,以及其余关于鱼的实验室工作,是由农渔食物部渔业实验室完成的。温德斯凯工厂的卫生物理部负责试验排放和取样程序的总计划。监察计划的分析任务是由温德斯凯工厂的化学事务部担承的。

作者深深感谢所有这些团体和这些团体中的个别工作人员,他们都贡献许多材料,作为我

这一报告的依据;并且感谢 G. C. 柯林斯先生帮助我们调整了几千个试验结果, 这些结果都已总括在以上各表中。

(鄭啓惠譯 吳 銳校)

在热反应堆中被照射过燃料的 化学处理流程*

G. R. 豪威斯 (Howells)

T. G. 洪吉斯 (Hughes)

D. R. 馬 凱 (Mackey)

K. 沙丁頓 (Saddington)

1. 緒 言

設在联合王国原子能管理局的温士凱尔(Windscale)化学工厂是处理照射后天然或低浓集的鈾燃料的^{[1][2]}。其操作流程是先从裂变产物中分离出鈾和钚,然后再进行純化,将以硝酸鈾形式存在的貧化了的鈾送到斯普林費爾茨(Springfields)工厂进行再浓集和再制造,而将钚制成条状。

液-液萃取法被用在各种接触器中进行分离和純化的操作。水相是燃料元素溶解在硝酸中,二种有机溶剂被用于不同的操作阶段。第一种是 β, β' -二丁氧基二乙基醚("Butex")用于初級分离过程和鈾的純化过程。第二种是用无臭煤油作稀释剂的磷酸三丁酯用于钚的純化过程,將純的硝酸钚溶液轉化成金属是要經過几步操作的,即轉化成固体草酸盐,分解成氧化物,轉化成四氯化物和最后用金属鈣还原氟化物。

本报告叙述处理过程的基本化学,給出每一阶段的化学流程图和从工厂的工程学及化学工程学方面来討論。工厂的設備和一般管理亦都談到,同时回顧了六年多来連續操作的經驗,对于非常有兴趣的某几点特別地加以叙說。

2. 化 学 过 程

基本的化学問題首先于1947年在安大略(Ontario)的乔克河(Chalk River)由R. 斯貝恩司(Spence)博士领导下的一組工作者进行了研究。在这些工作的基础上开始进行了初級分离工厂的設计和进一步詳細研究了处理过程,同时在哈威尔原子能研究中心(A.E.R.E. Harwell)和皇家化学工业公司(I. C. I. Ltd.)的維特納斯(Widnes)研究實驗室进行,把附属的鈾和钚的純化过程发展成連續进行的操作。当开始工作时,一些其他的操作过程(蒸餾、沉淀和吸附过程)被与溶剂萃取过程分开地考虑的。溶剂萃取法最終地被采用是由于它的較大的效率和在此之前很多报告报导了在此領域內溶剂萃取法比了其他方法更为有效的事实。

本流程是基于鈾和钚能被有机溶剂从它們的硝酸盐溶液里有效地萃取出来,而实际上裂变产物同少許例外的剩留物不被萃取,通常酮类具有极大的萃取效率,其次是醚类,醚酯类、酯类、醇类和硝基烷类,萃取效率依次地下降;碳氢化物和卤代碳氢化物只有极小的萃取作用。早期工作中,在初級分离过程所用的溶剂經過考虑后縮減为四种:乙醚、己酮、Butex 和二氯代

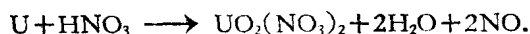
* 第二届和平利用原子能国际會議文献 A/CONF.15/P/307, 联合王国, 1958年6月, 原文:英文。

三乙二醇(Triglycoldichloride)。最后选用了 Butex, 在适当的还原条件下, 它能借简单的溶剂萃取过程而很好地分离铀和钚, 宁肯选用 Butex 而不用己酮是由于后者对硝酸不大稳定, 并且由于用了 Butex 时在初级分离过程里仅要用硝酸作为盐析剂, 而对高放射性的水相残留液可以得到较高的蒸发率。

Butex 具有高的閃燃点(低的燃烧危险)和在水中很低的溶解度, 而它的高黏度、密度(接近于水)和在某些条件下与硝酸氧铀形成晶体络合物即有硝酸存在时成 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \cdot \text{C}_{12}\text{H}_{26}\text{O}_3$, 没有硝酸存在时成 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O} \cdot 2\text{C}_{12}\text{H}_{26}\text{O}_3$ 是很不利的。

与硝酸一起加热时 Butex 即被分解, 这个反应是溶剂分子被逐步氧化和随着被硝酸还原成 CO_2 和水。脂肪族酸如草酸和丁酸(Butyric acid)是中间产物。由于辐射效应, 使得原始的反应周期中止而引发了另一个与热反应无法分辨的反应, 一种混合气体 ($\text{NO}_2, \text{NO}, \text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2$ 等)释放出来。在所用酸度条件下, 萃取过程(大于 20% w/w HNO_3)时的分解程度是很小的, 并且不影响正常操作, 然而当酸度很高时 (50—60% w/w HNO_3), 这个反应变得很猛烈, 同时很快地放出气体。由于最终产物的酸度是高的, 因此在高速率蒸发过程里这是很重要的。若先从水相原料溶液中除去有机物质, 那末这个过程能安全地操作, 然而商业的 Butex 会含有非挥发性的有机杂质, 它已经被先用溶剂处理除去, 用 57% w/w 硝酸洗溶剂, 再用 2% 的酸洗是有效的。

金属铀易溶于硝酸, 溶解速率大约正比于酸的浓度, 通常一批铀的溶解可以用下式近似地表示:



实际上, 每克分子铀用 5—6 克分子硝酸。

在溶解过程里引进氧气能节约酸(无烟溶解^[5])。氧化氮烟雾氧化后再行吸收在稀硝酸里。无烟溶解的更大便利在于减少了出气的体积而使得滌气器的设计简单了。

无烟溶解可用下式表示:



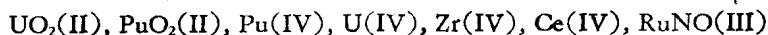
辐照后的铀棒溶解在热硝酸里, 所得的溶液中含有 U(VI), Pu 主要是 Pu(IV) 和少量 Pu(VI)。

这些金属离子在水溶液相里形成溶解在溶剂里的硝酸根络合物而被 Butex 所萃取(例如铀的情形)。同时有水合 UO_2^{2+} 存在, 它们亦是一系列的水合硝酸根络合物^[6]。



彼此达成平衡, 较高的络合物与有机相具有非常大的溶剂化趋势而形成化合物 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O} \cdot y(\text{Butex})$ 。

下列离子是很容易被萃取入 Butex 的:



而 Pu(III) 和其他的裂变产物仅有少量转入有机相或者完全地不被萃取。

前一組离子的分配系数 (K = 在溶剂相和水相间的平衡浓度比) 受系统里硝酸根离子浓度的极大影响。因此, 这就可能用必需的萃取次数, 在高浓度硝酸根时定量地把铀和钚萃取入溶剂相, 然后在低离子浓度下把它们反萃取入水溶液相。萃取过程的成功大大地依赖于效率, 使得这些转移能够很容易地完成。

* w/w——指重量百分浓度——譯者注。