

Main Low Energy β Emitter Radioactivity and Control Method Research in Nuclear Power Plant

Yaru Fu, Hui Li, Huaibin Li

Shanghai Nuclear Engineering Research & Design Institute, Shanghai
Email: fuyr@snerdi.com.cn

Received: Nov. 20th, 2014; revised: Dec. 22nd, 2014; accepted: Jan. 4th, 2015

Copyright © 2015 by authors and Hans Publishers Inc.
This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).
<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

As the control technology of fission and corrosion products develops during the full power operation in the nuclear power plant, the impact from the main β emitters (like tritium and Carbon-14) to people becomes increasingly important. Certain limits of the tritium and carbon-14 concentration in the effluences for both single unit and site are established in GB6249-2011, also, it includes the tritium concentration restriction in the 1 km downstream water from the discharge canal for inland sites. Based on the main generation pathway, a theoretical method is applied to analyze the tritium and carbon-14 generations in this paper, and some tritium and carbon-14 release control recommended measures are provided from both the generating pathway and design aspects. Also, these measures could be used for the NPP design optimization, safety analysis and environment assessment.

Keywords

Low Energy β Emitter, Tritium, Carbon-14, Radiation Control, Environment Assessment, Safety Analysis

核电厂中主要弱 β 释放体的放射性量及控制方法研究

付亚茹, 黎 辉, 李怀斌

上海核工程设计研究院, 上海
Email: fuyr@snerdi.com.cn

收稿日期: 2014年11月20日; 修回日期: 2014年12月22日; 录用日期: 2015年1月4日

摘要

随着核电厂中对正常满功率运行时裂变产物和腐蚀产物控制水平的不断提高, 主要的弱 β 释放体(如氚和C-14)对公众的辐射影响变得日益重要。GB 6249-2011中对流出物中氚和C-14的单机组和厂址排放总量规定了控制值, 也对内陆厂址排放口下游1 km处受纳水体中氚浓度进行了限制。本文根据核电厂中氚和C-14的主要产生途径, 采用理论方法对其产生量进行分析, 并从其产生途径和设计角度, 提出了切实可行的对释放到环境中的氚和C-14进行控制的方法和措施, 以用于优化电厂设计, 为环境影响评价和安全分析提供审评的依据。

关键词

弱 β 释放体, 氚, C-14, 放射性控制, 环境影响评价, 安全分析

1. 引言

随着核电厂中对正常满功率运行时裂变产物和腐蚀产物控制水平的不断提高, 主要的弱 β 释放体(如氚和C-14)对公众的辐射影响变得日益重要。

氚在核电厂中引起关注的原因为其半衰期较长(12.3年), 如果留在厂内, 会导致放射性水平的提高。氚主要以氚水形式存在, 无论是液态还是气态, 氚均可因吸入、食入或通过皮肤而进入人体, 并构成危害。氚的生物半衰期(12天)较短, 并且其衰变产生的 β 射线能量较低, 氚在核电厂产生的放射性核素中属于毒性最小之列, 但是在环境影响评价及环境监测中属于重点关注的核素。

压水堆核电厂中C-14的产生量相对不高, 但由于半衰期很长(5730年), 而且C-14很容易通过食物链进入到人体内并滞留, 因此从环境影响评价的角度, 必须对C-14的产生量和排放量进行计算分析。

氚衰变时放出的 β 射线平均能量为5.7 keV, 最大能量为18.6 keV; C-14衰变时放出的 β 射线平均能量为49.5 keV, 最大能量为156 keV, 均属于弱 β 释放体, 主要对人员产生内照射危害。英国医学研究委员会在2007年发表的研究成果表明[1]: 如氚一样的弱 β 释放体对人体的辐射危害具有一些没有被包括在当前常规辐射防护评价中的特征, 如在相同吸收剂量的情况下, 低能 β 射线具有比较严重的生物学效应等。世界上发展核电的各国均对氚和C-14的释放进行了相应的研究和控制, 中国国家标准GB 6249-2011中对流出物中氚和C-14的单机组和厂址的排放总量规定了控制值, 也对内陆厂址排放口下游1 km处受纳水体中氚浓度进行了限制[2]。

本文采用理论方法对核电厂流出物中氚和C-14的产生量进行分析, 并从其产生途径和设计角度, 提出了切实可行的对释放到环境中的氚和C-14进行控制的方法和措施, 以用于优化电厂设计, 为环境影响评价和安全分析提供审评的依据。

2. 主要产生途径

2.1. 核电厂流出物中氚的主要产生途径

压水堆核电厂主回路中氚的主要产生途径包括:

- 1) 燃料裂变(三元裂变)产生的氚通过燃料包壳扩散或燃料包壳破损处泄漏进入主冷却剂中;
- 2) 主冷却剂中可溶硼与中子的反应;
- 3) 可燃的中子吸收体中产生的氚通过扩散或包壳破损进入主冷却剂中;
- 4) 主冷却剂中可溶锂与中子的反应;
- 5) 主冷却剂中氘与中子的反应。

一般情况下,压水堆核电厂主回路中产生的氚将通过调硼排水、反应堆冷却剂泄漏和乏燃料池的蒸发等途径进入到环境中,大部分以液体形式存在,少部分以气体形式存在。

2.2. 核电厂流出物中 C-14 的主要产生途径

压水堆核电厂主回路中 C-14 主要由 O-17(n, α)C-14 和 N-14(n,p)C-14 反应生成。虽然在燃料芯块、燃料包壳、反应堆冷却剂和结构材料中都含有 O-17 和 N-14,但是电厂中向环境释放的 C-14 主要来自反应堆冷却剂中 O-17 和 N-14 的活化。C-14 主要的排放途径是气态排放,其它排放途径包括通过离子交换累积在离子交换树脂中变成固体废物或通过液体途径排放。

3. 原分析方法

3.1. 核电厂流出物中氚的分析方法

在以往的东西屋堆型核电厂中,西屋公司对氚排放量分析基于早期运行电厂经验数据,使用 PWR-GALE 程序计算分析[3]。

PWR-GALE 程序计算氚排放量的方法基于电厂运行经验,在 NURGE-0017 [3]中以 1970 年代的美国运行电厂的氚排放统计平均值为基础,其排放总量按照 $1.48E + 10$ Bq/MWt/a 进行简单估算,氚的气、液态排放比例根据主回路中氚的活度浓度及排放到环境中的废液量等进行调整。

从国内外的电厂运行经验数据看,PWR-GALE 程序对氚排放总量的计算过于保守,气态和液态氚的排放比例与国际运行经验相比偏差较大,需要对分析方法进行优化改进。

3.2. 核电厂流出物中 C-14 的分析方法

在以往的东西屋堆型核电厂中,西屋使用 PWR-GALE 程序计算得到的 C-14 总排放量,无法体现出核电厂的不同功率及其它具体特征,并且无法分别给出气态和液态所占排放量的份额,需要对分析方法进行优化改进。

4. 分析方法改进

计算向环境排放的氚和 C-14 的优化分析方法,基于采用机理模型计算得到的主回路中的氚和 C-14 的产生量和国际上核电厂的运行经验确定的氚和 C-14 通过液态和气态途径排放的不同比例。下文对主要分析过程及 AP1000 电厂的主要分析结果进行介绍:

4.1. 优化的核电厂流出物中氚分析方法

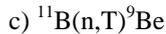
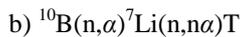
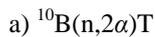
在通过理论方法得到氚在主回路中的产生量之后,结合调研得到的电厂运行经验数据,给出氚在气态和液态中排放量。

- 1) 三元裂变产氚

主冷却剂中由三元裂变产生的氚总量与堆芯热功率、氚的裂变产额及氚从燃料释放到主冷却剂中的份额等相关。本文计算采用的氚从燃料中的释放份额为 2%。

2) 可燃毒物棒及主冷却剂中硼的贡献

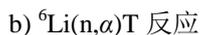
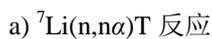
硼与中子产氚的反应包括:



上述反应中, 只有前两个反应对氚有显著贡献。 $^{11}\text{B}(n,\text{T})^9\text{Be}$ 反应的阈能较高, 约为 14 Mev, 堆内能量高于 14 MeV 的中子注量率一般低于 $1.0\text{E}+10 \text{ n/cm}^2\cdot\text{s}$, 相应的截面也很小(约 5 mb), 因此, 这一反应的产氚量可忽略不计。故只需计算前两个反应的贡献。同时, 需要考虑可燃毒物棒中产生的氚以一定份额释放到主冷却剂中。

3) 主冷却剂中可溶锂的贡献

主冷却剂中均采用 LiOH 作为 pH 值控制剂, 主冷却剂中可溶锂与中子产氚的主要反应包括:



4) 主冷却剂中氚的贡献

主冷却剂中氚与中子产氚的反应主要是 $^2\text{H}(n,\gamma)\text{T}$ 反应。

5) 氚的气、液态排放分配份额

关于氚的气、液态排放分配比例, 本文推荐采用如下数据:

根据国际原子能机构(IAEA)的统计结果[4], 压水堆核电厂典型的气态氚排放量为 $3.7\text{E} + 03 \text{ GBq/MWe/a}$, 液态氚排放量为 $2.59\text{E}+04 \text{ GBq/MWe/a}$ 。

以上方案中氚的液态排放占总量的 87.5%, 气态排放占总量的 12.5%; 考虑到国际上最新的运行经验及一定的包络性, 本文假定: 液态氚的份额为氚产生总量的 100%, 气态氚的份额为氚总量的 12.5%。

6) AP1000 核电厂的氚产生量分析

基于如下的假设和参数对 AP1000 核电厂的氚产生量进行分析:

a) 对反应堆冷却剂中中子活化导致的氚产生量主要考虑了堆芯活性区、旁通水、下降段水、上反射层和下反射层 5 个区域的贡献;

b) 假定电厂全年满功率运行, 即电厂可利用率为 100%;

c) 采用 ENDF 数据库获得的 47 群产氚的中子反应截面;

d) 燃料棒和可燃毒物棒中氚产生量的 2% 释放入反应堆冷却剂中; 反应堆冷却剂中添加的 LiOH 浓度平均值为 3.0 ppm。

计算得到的 AP1000 核电厂氚产生量及各产生途径对总产生量的贡献可见表 1。考虑了氚在气、液态排放分配份额后得到的单机组和六台机组的排放量均能够满足 GB 6249-2011 中规定的单机组和厂址排放量控制值要求。

4.2. 优化的核电厂流出物中 C-14 分析方法

由于 C-14 半衰期非常长, 约为 5730 年, 因此在反应堆寿期内(60 年)计算 C-14 产生量及排放量时, 可以不考虑 C-14 的衰减。

考虑到国际上最新的运行经验及一定的包络性, 假定通过气态途径释放的 C-14 占反应堆冷却剂中产生总量的 100%, 通过液态途径释放的 C-14 占产生总量的 10% [5]。

用以上介绍的方法对 AP1000 电厂流出物中 C-14 的产生量进行分析, 主要的假设和参数介绍如下:

1) 与计算氚源项类似, 对反应堆冷却剂中中子活化导致的 C-14 的产生量主要考虑了 5 个区域的贡

献，并假定电厂可利用率为 100%；

- 2) 采用 ENDF 数据库获得的 C-14 的中子反应截面；
- 3) 反应堆冷却剂中 N 的平均浓度为 15 ppm。

计算得到的 AP1000 核电厂 C-14 的产生量及各产生途径对总产生量的贡献可见表 2。考虑了 C-14 在气、液态排放分配份额后得到的单机组和六台机组的排放量均能够满足 GB 6249-2011 中规定的单机组和厂址排放量控制值要求。

5. 放射性控制措施研究

5.1. 氚的放射性控制措施研究

由上文的分析结果可知，向环境中排放的氚主要来自于反应堆冷却剂中硼的活化、燃料的三元裂变和反应堆冷却剂中 Li-6 的活化。故从氚的主要产生途径的角度，可以得到主要控制措施有：限制氚从燃料中的释放、限制反应堆冷却剂中硼和 Li-6 的浓度等。从更符合工程实际的角度，IAEA 在参考文献[4]中给出了如下的建议：

- 1) 发展燃料棒的结构和提高燃料棒的质量以避免燃料棒破损；
- 2) 尽可能使用锆合金包壳代替不锈钢包壳；
- 3) 使用 Li-7 富集度为 99% 的 LiOH 作为 pH 值控制剂；
- 4) 尽可能的隔离破损燃料棒，以避免污染乏燃料池；
- 5) 控制反应堆冷却剂的化学水平，以减少腐渣在燃料棒表面的沉积。

另外，在核电厂中关键位置设置氚的测量系统，并且允许对氚进行收集。

Table 1. The amount of tritium production in the primary loop of AP1000 power plant
表 1. AP1000 核电厂一回路中氚产生量

主回路中氚的产生途径	氚产生量(Bq/a)	占总量的百分比(%)
燃料中三元裂变	9.21E+12	18.96
可燃毒物棒中 $^{10}\text{B}(n,2\alpha)$ 和 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}(n,n\alpha)\text{T}$ 反应	8.97E+11	1.85
主冷却剂中 $^{10}\text{B}(n,2\alpha)\text{T}$ 反应	3.30E+13	67.97
主冷却剂中 $^7\text{Li}(n,n\alpha)\text{T}$ 反应	3.69E+11	0.76
主冷却剂中 $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ 反应	4.99E+12	10.27
主冷却剂中 $^3\text{H}(n,\gamma)\text{T}$ 反应	9.50E+10	0.20
总计	4.86E+13	100.00

Table 2. The amount of carbon-14 production in the primary loop of AP1000 power plant
表 2. AP1000 核电厂一回路中 C-14 产生量

反应类型	C-14 产生量(Bq/a)	占总量的百分比(%)
O-17(n, α)C-14	4.03E+11	88.79
N-14(n,p)C-14	5.10E+10	11.21
总计	4.55E+11	100

5.2. C-14 的放射性控制措施研究

由上文的分析结果可知, 向环境排放的放射性 C-14 的量主要由反应堆冷却剂中的 O-17 和 N-14 反应生成, 故限制反应堆冷却剂中 O-17 和 N-14 的浓度, 为控制 C-14 向环境排放的主要出发点。从更符合工程实际的角度, IAEA 在参考文献[4]中给出了如下的建议:

- 1) 减少反应堆冷却剂中 N-14 的量(包括: 很多采用联氨做 pH 值控制剂的电厂采用 LiOH 作为控制剂, 化学和容积控制箱等水箱中的覆盖气体不采用氮气等);
- 2) 减少反应堆冷却剂中 O-17 的量, 但这样做的经济性较差, 一般不推荐。

5.3. AP1000 电厂的氚和 C-14 控制措施分析和评价

针对 IAEA 提出的控制核电厂中氚释放的措施和方法, AP1000 电厂的控制措施分析如下:

- 1) AP1000 电厂采用了性能比较先进的燃料棒, 电厂正常运行时, 燃料棒发生破损的风险较小;
- 2) AP1000 燃料棒和可燃毒物棒的包壳材料均为锆合金;
- 3) AP1000 电厂要求在反应堆冷却剂中添加的 LiOH 中 Li-7 的富集度不能低于 99.9%;
- 4) AP1000 电厂中设置了专门贮存破损燃料棒的格架, 从一定程度上对破损燃料棒进行了隔离;
- 5) AP1000 电厂采用了优良的水化学控制和腐蚀产物控制措施, 如向反应堆冷却剂中加锌和硼锂协调型 pH 值控制措施, 来减少腐渣在燃料棒表面的沉积。

针对 IAEA 提出的控制核电厂中 C-14 释放的措施和方法, AP1000 电厂的控制措施分析如下:

AP1000 电厂采用了 LiOH 作为 pH 值控制剂, 仅冷启动时向主冷却剂中加入少量的联氨, 并且化学和容积控制系统中无容积控制箱, 美国电厂运行经验表明冷却剂中 N 浓度低于 0.5 ppm。

6. 结论与建议

基于压水堆核电厂中弱 β 释放体的特点, 本文对气态和液态流出物的氚和 C-14 排放源项的分析方法及控制措施等进行了研究, 根据研究给出如下的结论和建议:

- 1) 对于氚, 根据理论模型计算核电厂氚的气态、液态排放量比原分析方法更符合电厂运行情况, 可根据该方法, 对单机组和厂址向环境排放的气态和液态氚申请排放量设计目标值, 并可在设计阶段对是否可以满足 GB 6249-2011 规定的单机组和厂址排放量的控制值要求进行评估;
- 2) 对于 C-14, 通过机理模型计算得到的 C-14 气态和液态的产生量和向环境的排放量比原方法更加合理, 可根据该方法, 对单机组和厂址向环境排放的气态和液态 C-14 申请排放量设计目标值, 并可在设计阶段对是否可以满足 GB 6249-2011 规定的单机组和厂址排放量的控制值要求进行评估;
- 3) 考虑到目前国内并无 AP1000 运行电厂, 则计算过程中的部分参数无法准确确定, 故计算结果考虑了一定的包络性和保守性, 后续需要继续对部分模型和参数的选取进行进一步的研究和优化;
- 4) 根据 IAEA 给出的对压水堆核电厂流出物中氚和 C-14 的产生和排放进行控制的技术建议, AP1000 电厂目前的设计符合相应的控制要求。

致 谢

特别感谢上海核工程研究设计院的同事梅其良正研级高级工程师对本工作的指导帮助。

参考文献 (References)

- [1] Seminar E U S (2007) Emerging issues on tritium and low energy beta emitters. *Proceedings of a Scientific Seminar*, Luxembourg.
- [2] GB 6249-2011 (2011) 核动力厂环境辐射防护规定. 中国环境科学出版社, 北京.

- [3] Chandrasekaran, T. and Lee, J.Y. (1985) Calculation of releases of radioactive materials in gaseous and liquid effluents from pressurized water reactors. NTIS Rep. NUREG-0017-Rev.0.
- [4] IAEA (2004) Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14. Technical Reports Series No.421.
- [5] Kim, K. (2011) Estimation of ^{14}C in nuclear power plant gaseous effluents. NRC Public Meeting.

汉斯出版社为全球科研工作者搭建开放的网络学术中文交流平台。自2011年创办以来，汉斯一直保持着稳健快速发展。随着国内外知名高校学者的陆续加入，汉斯电子期刊已被450多所大中华地区高校图书馆的电子资源采用，并被中国知网全文收录，被学术界广为认同。

汉斯出版社是国内开源 (Open Access) 电子期刊模式的先行者，其创办的所有期刊全部开放阅读，即读者可以通过互联网免费获取期刊内容，在非商业性使用的前提下，读者不支付任何费用就可引用、复制、传播期刊的部分或全部内容。

