

压水堆核电站含氚废水产生与排放

高 飞, 杨林君, 潘跃龙

深圳中广核工程设计有限公司, 广东 深圳 518057

摘要: 随着核能发展和环境保护的需要, 核电站排氚的问题逐渐进入公众的视野。本文简要介绍了压水堆核电站氚的产生和释放机理, 核电站运行时液态氚的排放情况, 并对国内外法规标准进行了比较分析。通过上述分析, 提出了对现有压水堆核电站含氚废液处理的需求。

关键词: 氚; 含氚废水; 内陆核电站

中图分类号: TL941 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2016)01-0052-05

doi: 10.7538/hhx.2016.38.01.0052

Production and Release of Tritium in PWR Nuclear Power Plants

GAO Fei, YANG Lin-jun, PAN Yue-long

China Nuclear Design Co. Ltd, Shenzhen of Guangdong Province, Shenzhen 518057, China

Abstract: With the need for nuclear energy development and environmental protection, the discharge of tritium from nuclear power plants gradually comes into the public view. This paper briefly describes the production and release mechanism of tritium from PWR nuclear power plants, liquid tritium release, and the comparison of domestic and international regulations and standards. Through above analysis, the demand for existing PWR nuclear power plant tritiated waste water treatment is presented.

Key words: tritium; tritiated waste water; inland nuclear power plant

压水堆核电站中的氚主要是在核反应中产生的, 一部分在燃料元件中产生并通过包壳渗透到一回路, 另一部分通过一回路冷却剂中微量杂质如 B、Li 等与中子活化形成。氚在废水中以 HTO 形式存在, 由于现有核电站中缺乏对含氚废水的处理装置, 而常规放射性核素的去除手段如吸附、过滤、蒸发、离子交换、膜技术等几乎不可能将 HTO 与 H₂O 分离出来, 大部分氚最终被排放到环境之中。随着核电规模的扩大, 含氚废水排放的问题也逐渐受到越来越多的关注。

本文简要介绍压水堆核电站氚的产生和释放机理, 核电站运行时液态氚的排放情况, 并就其排放量与国内外法规标准进行比较分析, 提出对现有压水堆核电站含氚废液处理的需求。

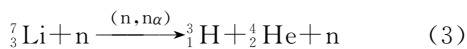
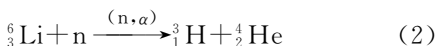
1 氚产生与释放

氚主要是由反应堆运行时燃料的裂变反应及硼、锂、氘和二次源中铍的中子活化反应产生。

燃料元件、二次源中产生的氚有一部分会扩散到一回路中, 一回路中还会因为硼、锂、氘的中

子活化反应产生氚,运行时一般将冷却剂中的氚浓度控制在一定范围内。

反应堆中的氚产生途径主要有:(1)燃料中三元裂变产生的氚通过包壳扩散到一回路冷却剂中;(2)反应性控制中在一回路冷却剂中加入硼酸,硼活化产生的氚是一回路中氚的重要来源(反应如式(1));(3)在一回路水中为调节 pH 值加入 LiOH,但锂活化产生的氚同样成为一项重要来源(反应如式(2)、(3));(4)由冷却剂中天然存在的氘通过中子活化产生氚(反应如式(4));(5)二次源中的铍活化产生的氚。



一回路冷却剂中氚产生途径^[1]示于图 1。由图 1 可知,一回路中硼、锂、氘的活化约占总氚释放量的 72%,而由于三元裂变中产生的氚大部分被滞留在燃料包壳内,一回路中氚仅有 25%来自三元裂变。

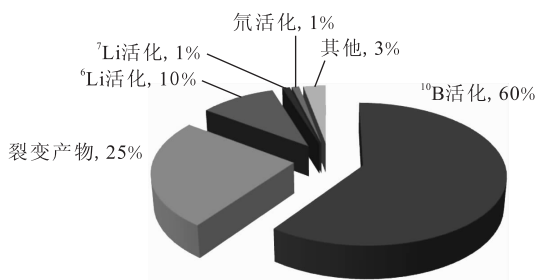


图 1 一回路冷却剂中氚产生途径^[1]

Fig. 1 Production pathway of tritium in primary coolant^[1]

通过以上各个途径产生的氚进入一回路冷却剂后会通过核岛系统(图 2)向环境流出。为避免停堆开盖期间对操纵员内照射的影响,应对一回路冷却剂的氚浓度进行控制。通常一回路冷却剂经过化学和容积控制系统的净化单元处理后,再送至硼回收系统蒸发器进一步处理,冷却剂通过蒸发器被分离为蒸馏液和硼酸溶液。在反应堆冷却剂中氚浓度过高的情况下,硼回收系统中含氚蒸馏液会通过核岛废液排放系统排向环境。此外,其中有少量冷却剂在检修、取样等操作过程中泄漏至核岛排气和疏水

系统。这些冷却剂在核岛排气和疏水系统收集后,送往废液处理系统,经除盐处理后,也通过核岛废液排放系统排向环境。

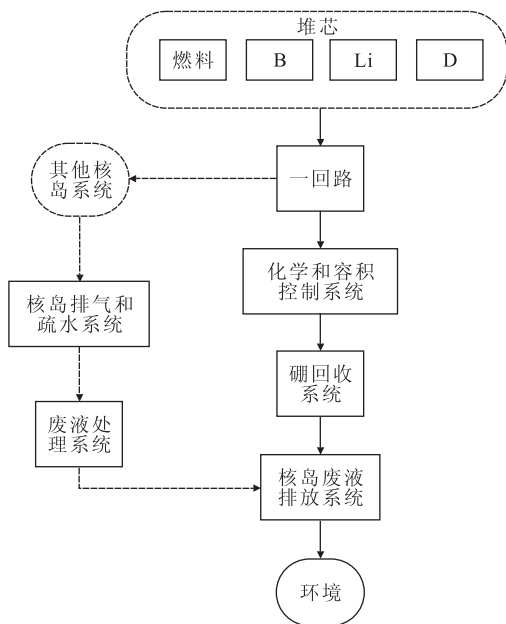


图 2 压水堆核电站液态氚释放途径

Fig. 2 Release pathway of tritium in PWR nuclear power plant

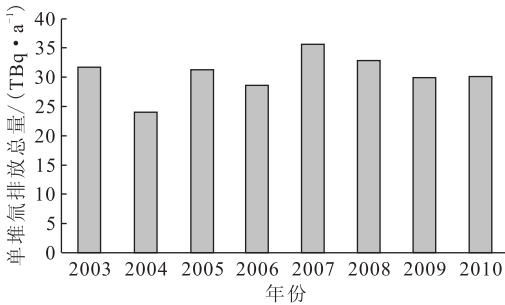
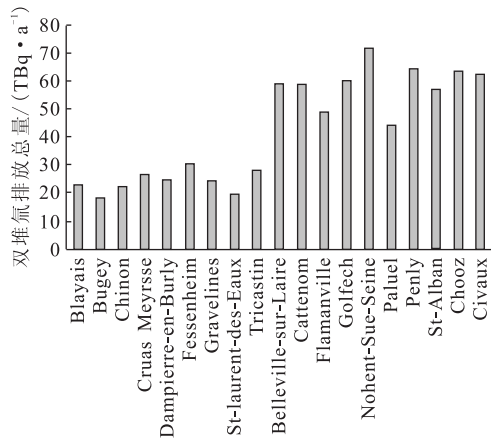
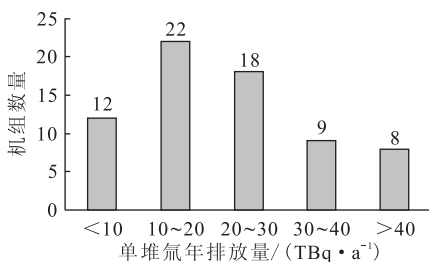
2 氚排放总量与浓度

为了维持主回路冷却剂的氚浓度低于控制值的要求,硼回收系统中蒸发器的蒸馏液必要时也可以直接排放。CPR1000、华龙一号堆型一回路氚活度浓度控制值为 15 GBq/m^3 ,EPR、AP1000 堆型一回路氚活度浓度控制值稍高,为 37 GBq/m^3 。通过液态氚排放总量和氚浓度控制值可以计算出每种堆型的一回路直接排氚水总量。在考虑了一回路对其他系统的不可复用泄漏后,可以得到每类堆型的含氚废水排放量,结果列入表 1。由表 1 可知,随着反应堆热率和能力因子的不断提高,氚排放总量整体呈上升趋势。现有核电机组氚排放压力相对较大。通过对大亚湾核电站排放历史数据分析,每年排放情况示于图 3^[6]。由图 3 可知,2007 年为大亚湾单台机组液态氚排量最高值 35.525 TBq 。大亚湾厂址液态氚排放控制值从电站商业运行至 2001 年底为 55.6 TBq/a (两台机组),2002 年至 2010 年 5 月为 145 TBq/a (四台机组),2010 年 6 月至今为 225 TBq/a (六台机组)。法国和美国核电厂液态氚排放结果示于图 4、5^[7-8]。由图 4、5 可知,法国核电厂有近十个

表 1 压水堆核电站液态氚产生量与排放量

Table 1 Volume of production and release for liquid tritium in PWR nuclear power plants

堆型	液态氚排放预期值/ (TBq · a ⁻¹)	液态氚排放设计值/ (TBq · a ⁻¹)	含氚废水排放量/ (m ³ · a ⁻¹)	排放氚活度浓度/ (GBq · m ⁻³)
CPR1000 ^[2]	35.10	43.65	≈3 410	≈15
华龙一号 ^[3]	34.9	44.8	≈3 000	≈15
AP1000 ^[4]		48.6	≈1 000	≈37
EPR ^[5]	52	75	2 200	≈37

图 3 大亚湾液态氚排放^[6]Fig. 3 Liquid tritium release in Daya Bay^[6]图 4 法国压水堆液态氚排放^[7]Fig. 4 Liquid tritium release in French PWR^[7]图 5 美国压水堆液态氚排放^[8]Fig. 5 Liquid tritium release in U.S. PWR^[8]

厂址的双堆液态氚年排放量在 60 TBq 左右,美国有 25% 的电站单堆排放量在 30 TBq 以上。目前世界各国在运行的压水堆核电站产生的液态氚均采取了直接向环境排放的方式处理。

由于大海稀释能力较强,我国现有在运行、在建厂址均为滨海厂址。但是内陆核电站厂址一般位于大江大河流域,附近区域人口较为稠密,核电建设将对现有流域、区域水资源配置格局产生较大的影响。根据某内陆 AP1000 厂址的排放浓度使用 CORMIX 计算结果可见,对于参照 2006 年附近水文站逐日水位和流量资料校核计算,在排放口下游 1 000 m 断面处满足液态氚的日均浓度不超过 100 Bq/L 时,环境允许的液态氚年排放量为 1.02×10^{14} Bq,该值大于 2 台机组液态氚的年产生量 74.8×10^{12} Bq,但低于 4 台机组液态氚的年产生量 149.6×10^{12} Bq。氚排放问题将成为该厂址或类似厂址扩建或获批的重要制约因素。

3 氚排放法规标准

随着核能发展和环境保护的需要,氚排放的相关法规标准也在日益完善。《核电厂放射性液态流出物排放技术要求》(GB 14587—2011)和《核动力厂环境辐射防护规定》(GB 6249—2011)中对氚的排放从总量、浓度、均匀排放三个方面进行规定。

相关国标中规定:“对于 3 000 MW 热功率的反应堆,气载放射性流出物中氚源项的控制值为 15 TBq/a,液态放射性流出物中氚源项的控制值为 75 TBq/a,对于同一堆型的多堆厂址,所有机组的总排放量应控制在 300 TBq/a 以内”;“对于内陆厂址,槽式排放出口处的放射性流出物,……保证排放口下游 1 km 处受纳水体中总 β 放射性不超过 1 Bq/L,氚浓度不超过 100 Bq/L。”;“核动力厂的年排放总量应按季度和月控制,每个季度

的排放总量不应超过所批准的年排放总量的二分之一,每个月的排放总量不应超过所批准的年排放总量的五分之一。若超过,则必须迅速查明原因,采取有效措施。”

放射性流出物氚控制限值对比列入表 2。通过表 1 与表 2 中各国氚排放相关法规标准限值比较可见,我国国标中所要求的内陆厂址排放口下游 1 km 氚活度浓度限值 100 Bq/L 与其他国家氚控制值相比,基本相当或更为严格。该标准的提出对内陆核电厂的选址及氚排放与运行管理提出了极大的挑战。

表 2 放射性流出物氚控制限值对比

Table 2 Comparison of radioactive effluent control limits

国家	年总量控制值	槽口排放口浓度控制值	环境浓度控制值
美国	-	3.7×10^4 Bq/L	-
法国	7.4×10^{13} Bq/a	-	日均浓度贡献值: 河流:74 Bq/L 海:740 Bq/L
中国	7.5×10^{13} Bq/a	-	内陆(排放口下游 1 km 处):100 Bq/L

注:- 表示无相关标准要求(下同)

国际组织及部分国家饮用水标准对比列入表 3。

表 3 国际组织及部分国家饮用水标准对比

Table 3 Comparison of drinking water standards for domestic and international

组织或国家	法规、标准	$C(^3\text{H})/(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$
世界卫生组织	《饮用水水质指南(第 3 版)》—2006	根据 0.1 mSv/a 的参考剂量水平评价,为 10 000 Bq/L
美国	《国家饮用水水质标准》	740 Bq/L
加拿大	《饮用水水质规定》	7 000 Bq/L
欧盟	《饮用水水质法令》—1998	100 Bq/L
法国	2007 年 1 月 11 日法令	100 Bq/L
中国	GB 5749—2006 《生活饮用水卫生标准》	-

4 压水堆含氚水处理装置要求

对于现有各条压水堆技术路线,无论是三代堆型还是二代加堆型,对含氚废水均没有有效的

处理方法。现有的蒸发、离子交换、膜技术等废液处理技术仅能用于处理除氚以外的放射性核素,大部分氚最终被排放到环境中。我国内陆核电项目已在开展各项工作,预期“十三五”期间将有内陆项目获批。内陆厂址的客观条件(如排放受纳水体环境的容量比滨海电厂小,废液的排放稀释条件不如滨海电站)对氚的排放提出了更高的要求。

压水堆型核电站含氚废水具有氚浓度低、含氚废水量大的特点。由于绝大部分的氚封闭在包壳燃料元件内,其回路循环水氚浓度很低,每吨废水中氚活度仅为 10^{10} Bq 量级,约合 $0.04 \sim 0.1$ mg/t,比重水堆型慢化剂中的氚浓度低 10^3 量级。由表 1 的压水堆核电站液态氚产生量与排放量可见,单堆含氚废水产量一般在千吨级以上。虽然由于氚浓度过高而作为排氚水排出的一回路冷却剂硼质量分数最高可达 0.25%,非氚放射性核素活度浓度在预期工况下为 10^6 Bq/L 量级,但其他杂质含量较少。

为充分利用核电站现有设备,降低处理成本并提高系统安全性,可考虑将含氚废水处理装置接入硼回收系统或废液处理系统之后,即首先通过硼回收系统或废液处理系统完成对含氚废水的放射性去污并去除硼酸等其他非放杂质。经前置系统处理后,送往含氚废水处理装置的待处理废液中 $w(\text{B})=0.0002\% \sim 0.0005\%$,非氚核素放射性活度浓度小于 100 Bq/L。含氚废水经废水处理装置脱氚处理后,绝大部分可送往硼回收系统或其他系统复用,少量废液不满足复用要求可送往核岛废液排放系统,这样可实现内陆厂址的氚近零排放。具体流程示于图 6。

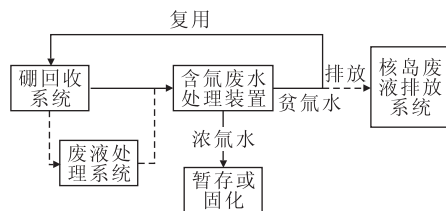


图 6 含氚废水处理装置接入简图

Fig. 6 Tritiated waste water treatment device access diagram

国标中对氚活度浓度的限值为 100 Bq/L,与含氚废液浓度相差 5 个数量级。由于目前的技术条件限制,去污因子达到 10^5 以上难度很大。但

是,一方面电厂内还会产生大量不含氚的放射性废液及其他不带放射性的常规废液,预计在厂内经混合后,废液氚浓度可大大降低,另一方面在厂外受纳水体也有一定的稀释能力,因此建议考虑氚处理装置对氚的去污因子为 10~100。一座动力堆一回路含氚水每天的取出量为数吨,而一个核电站厂址由 2 座、4 座或 6 座不等的堆组成。设计除氚装置时需要考虑同时完成多个堆的处理容量。实际应用的工程规模装置需要具有 1 000 m³/a 含氚废水的处理能力。在进行含氚废水除氚过程中,不能对核电机组运行、工作人员及周边公众构成威胁,易燃、易爆气体的泄漏、输运等安全问题、浓氚水的贮存、输运、氚处理设备泄漏等问题需要重点考虑。

5 结 论

随着核能发展和环境保护的需要,核电站排氚的问题受到日益重视。通过分析,得出以下结论:

(1) 目前在国标 GB 14587—2011 和 GB 6249—2011 中对内陆氚排放提出了世界范围内最严格的控制要求;

(2) 通过对国内外在运行、在建电站的氚排放量调研与分析,发现现有内陆厂址的确存在氚

排放不达标的问题;

(3) 为满足内陆厂址的氚处理要求,氚处理装置的去污因子需要达到 10~100,处理能力需要达到 1 000 m³/a。

参考文献:

- [1] Azar M. Radwaste and primary waste processing to effectively manage tritium [C] // Proceedings 2006 EPRI International Low Level Waste Conference, Palo Alto CA, 2006.
- [2] 宁德核电厂三、四号机组最终安全分析报告[R]. 深圳:深圳中广核工程设计有限公司,2013.
- [3] 防城港核电厂 3、4 号机组环境影响评价报告[R]. 深圳:深圳中广核工程设计有限公司,2014.
- [4] 广东陆丰核电一期工程初步安全分析报告[R]. 上海:上海核工程研究设计院,2013.
- [5] 台山核电厂一期工程最终安全分析报告[R]. 深圳:深圳中广核工程设计有限公司,2014.
- [6] 蒋兴华等. 大亚湾核电运营管理有限责任公司年鉴[M]. 北京:原子能出版社,2004—2011.
- [7] Hussey D. Modeling tritium lifecycle in nuclear plants [C] // Proceedings 2006 EPRI International Low Level Waste Conference, Palo Alto CA, 2006.
- [8] André-Claude L. ASN report on the state of Nuclear Safety and Radiation Protection [R]. France: ASN, 2010.