

文章编号:0253-9950(2009)02-0125-04

氚污染部件干法去污技术

石正坤,吴涛,但贵萍,谢云

中国工程物理研究院核物理与化学研究所,四川绵阳 621900

摘要:针对核退役工程中存在的大量含氚废物处理问题,利用设计组装的干法去污处理装置对氚污染的金属进行了加热、紫外线、臭氧去污研究。结果表明,升高温度可明显提高去污效果;220℃用365 nm紫外线照射3 h对不锈钢的表面去污效率可达99%;臭氧与加热联合作用更有利于提高去污效率,220℃时去污3 h,臭氧对不锈钢、铝、黄铜的去污效率可达95%以上;而去污完毕经放置后,金属的氚表面活度会有所增加。

关键词:氚;去污;紫外线;臭氧;加热

中图分类号:TL944 **文献标志码:**A

Dry Decontamination for Tritiated Wastes

SHI Zheng-kun, WU Tao, DAN Gui-ping, XIE Yun

China Academy of Engineering Physics, P. O. Box 919(215), Mianyang 621900, China

Abstract: To aim at decontamination of tritiated wastes, we have developed and fabricated a dry tritium decontamination system, which is designed to reduce tritium surface contamination of various alloy by UV, ozone and heating. The result indicates that the elevation of temperature can obviously improve decontamination effect. With 3 h irradiation by 365 nm UV at 220℃, it has a decontamination rate of 99% to stainless steel surface. Ozone can more obviously improve decontamination effect when metal was heated. Ozone has a decontamination effect beyond 95% to stainless steel, aluminum and brass at 220℃. Tritium surface concentration of metal has a little increase after decontamination.

Key words: tritium; decontamination; UV; ozone; heating

关于含氚废物处理技术,欧洲、加拿大、日本、美国等都主要集中在核电站、民用堆等核设施中管道排出废气的消氚、含氚废水中氚的提取、表面氚去污以及氚废物包装材料的研究上。在退役工程实施过程中,大量低水平氚污染装置、部件和工具的去污非常重要,它可以大量减少待处理的废物量,降低工程成本。国内外氚去污有很多方法,如对氚污染表面用化学试剂擦拭、高压水冲洗、加热蒸发和水蒸气吹洗等。但是这些技术作为工程

实施应用时,去污成本高、产生大量的二次废物、工作时间长、工作环境危险、效率低下。为此,已发展了一些新的氚去污技术,如激光加热去污、紫外线加热去污、臭氧去污和加热去污等。其中,氚氧化去污系统(OTDS)中利用臭氧氧化处理不锈钢、铜、塑料、陶瓷等,可将低水平污染废物去污到解控水平($<16.66 \text{ Bq}/100 \text{ cm}^2$)^[1]。采用加热将氚驱离污染物表面并借助臭氧和紫外线共同作用将氚氧化为氚水^[2],该法对氚污染不锈钢的去污

效率大于 80%，对铝的去污效率大于 99%。紫外线还用于托卡马克聚变试验堆中石墨瓦的氚去污^[3-4]。另外，吹洗气中加入 H₂O 与 H₂O₂ 蒸气后可增加不锈钢中氚的解吸速率，并降低了去污解吸的温度^[5]。国内未见这方面的研究报道，本工作拟用紫外线、臭氧与加热等方法对氚的去污效率进行研究，为退役工程中氚污染部件的有效去污提供依据。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

氚气，纯度为 99.9%，自制。

XH-3125 氚气监测仪，国营 262 厂，测量范围为 $3.7 \times 10^5 \sim 3.7 \times 10^{11}$ Bq/m³；NPF200W 臭氧发生器，山东绿邦光电设备有限公司，臭氧产量可达 20 g/h；JE-1 表面氚测量仪，自制；EA-180/FE 紫外灯，美国 Spectronics 公司，波长 365 nm；流量计，浙江余姚工业自动化设备厂，最大流量为 6 m³/h；5 A 分子筛，上海沸石分子筛有限公司；硅胶捕集器，自制。

1.2 实验方法

根据调研结果及退役氚废物的去污要求，设计了 1 套去污实验系统，其结构示意图示于图 1。

将 2 mm 厚的不锈钢、铝与黄铜的圆片，表面经清洗处理后置于金属容器中充入氚气密封静置约半年时间，抽出其中的氚气后制得氚污染片。氚污染片置于去污容器中进行去污，经加热、紫外线与臭氧等去污处理后，取出去污片，用 JE-1 表

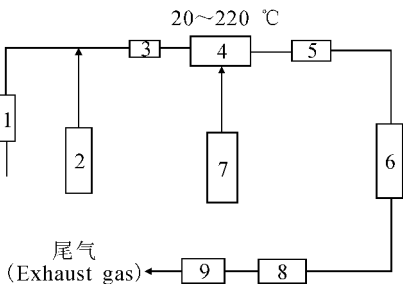


图 1 去污实验系统示意图

Fig. 1 Scheme of tritium decontamination system

- 1——流量计(Mass flowmeter), 2——臭氧发生器(Ozone generator), 3——硅胶捕集器(Silicagel trap), 4——去污容器(Decontamination vessel), 5——氚监测仪 1 (Tritium monitor 1), 6——Cu/CuO 炉(Furnace), 7——紫外灯(UV lamp), 8——5A 分子筛(Molecular sieve), 9——氚监测仪 2 (Tritium monitor 2)

面氚测量仪进行表面氚的测量，得到其表面的氚活度。去污处理后的金属片置于保干器中可测量不同时间的氚表面活度，进而了解去污后金属的氚表面活度的变化情况并推测其内部残存的氚含量。氚监测仪 1 用于测定去污容器中解吸出的吹洗气的氚活度。线状 Cu/CuO 催化剂在 550 °C 将吹洗气中的氚气转化为氚化水并用 5 A 分子筛吸附处理。尾气由氚气监测仪 2 检测符合要求后排入大气。

2 结果和讨论

2.1 去污结果

波长为 365 nm 的紫外线分别在常温与 220 °C 下对氚污染不锈钢片进行去污，不锈钢片的氚表面活度 A_s 随去污时间 t_1 变化的结果示于图 2。由图 2 可知，常温下紫外线无法对不锈钢表面的氚进行去污，当加热到 220 °C 时紫外线照射可很快降低不锈钢表面的氚污染水平，去污 40 min 时氚的表面活度从 $(2\ 774 \pm 28)$ Bq/cm² 降至 (50 ± 1) Bq/cm² ($n=7$)，去污效果明显。

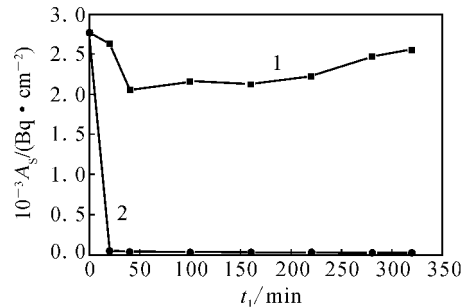


图 2 紫外线照射下氚污染不锈钢片的表面污染水平随时间变化

Fig. 2 Tritium contamination level on the surface of a stainless steel sheet as a function of UV irradiation time
1——常温(Room temperature), 2——220 °C

在 140, 220 °C 下分别对不锈钢、黄铜、铝 3 种金属进行表面氚去污，其结果示于图 3。由图 3 可知，220 °C 下去污 30 min 可将不锈钢、黄铜、铝的氚表面活度分别降至 (106 ± 3) , (45 ± 2) , (409 ± 5) Bq/cm² ($n=7$)，明显高于 140 °C 的去污效果，结果表明升高温度有利于对氚的去污，其中对不锈钢、黄铜的去污效果更明显。

加热至 220 °C，同时通入质量浓度 6 mg/L、流速为 1.2 m³/h 的臭氧进行金属材料表面氚的联合去污实验，其结果示于图 4。由图 4 看出，

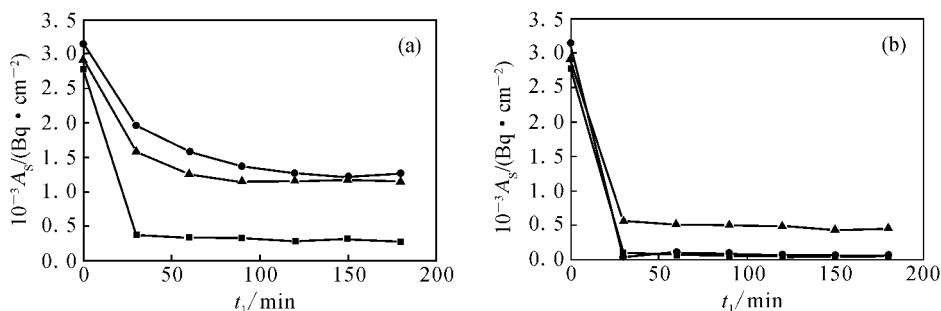


图 3 140 °C(a)和 220 °C(b)对氚污染金属片表面的去污

Fig. 3 Tritium decontamination from the surface of metal sheets by heating to 140 °C(a) and 220 °C(b)

▲——铝(Aluminum), ■——不锈钢(Stainless steel), ●——黄铜(Brass)

220 °C 下通入臭氧 30 min 可很快将不锈钢、黄铜、铝表面的氚表面活度分别降低到 (66 ± 1) , (38 ± 1) , $(259 \pm 3) Bq/cm^2 (n=7)$ 。铝的去污效果要比不锈钢、黄铜差。与图 3(b) 比较看出, 由于臭氧的加入, 明显提高了对各金属材料表面的氚去污效果。

采用氚的初始表面活度 $(A_{s,0})$ 较低的金属片所进行的臭氧与加热(220 °C)联合去污实验的结果示于图 5。与图 4 相比, 图 5 中氚的表面活度较低的金属片经同样条件去污后, 金属片残留的氚表面活度更低。但是, 由于氚的初始表面活度较低的原因, 得到的去污效率较低。

不同去污方法对不锈钢、黄铜、铝 3 种材料进行的表面去污实验所得出的去污效率结果列于表 1。由表 1 看出, 在加热条件下紫外线对不锈钢有良好的去污效率; 升高温度有利于增加氚去污效率, 表明温度是增加去污效率的重要因素; 220 °C 时臭氧的作用可明显提高对 3 种金属的去污

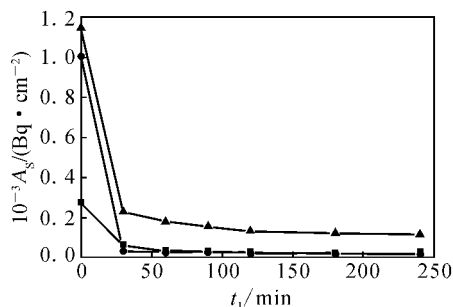


图 5 220 °C 时臭氧对低表面污染金属的去污

Fig. 5 Tritium decontamination from low decontaminated metal surfaces by ozone at 220 °C

▲——铝(Aluminum), ■——不锈钢(Stainless steel), ●——黄铜(Brass)

效率。

2.2 去污后表面氚的变化

金属片加热至 220 °C 去污 3 h 后氚的表面活度 A_s 随放置时间 t_2 的变化结果示于图 6。由图 6 看出, 加热去污后的金属经放置后, 其氚的表面活度会随时间而有所变化, 黄铜放置 17 d 后氚表面活度增加了 35%, 同样放置时间的不锈钢、铝的氚表面活度增加量则较少。这种经放置后氚表面活度的增加表明, 进入金属材料内部的氚在加热去污过程中难于全部解吸出来, 经过一定时间后由于浓差扩散其内部的氚会逐渐到达金属表面, 从而造成氚的表面活度有所增加。但是, 这种氚表面活度的增加并不明显。220 °C 臭氧去污后的金属片经融化收集气体测量, 其最后残存的氚量低于初始值的 18%, 表明金属内部残存的氚量很少。

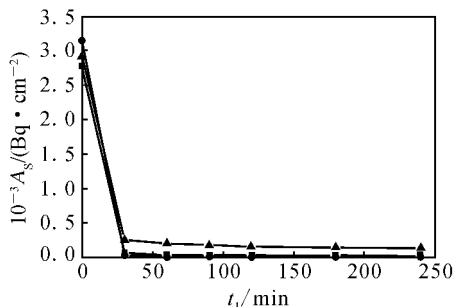


图 4 220 °C 时臭氧对氚污染金属表面的去污

Fig. 4 Tritium decontamination from the surface of metal sheets by ozone at 220 °C

▲——铝(Aluminum), ■——不锈钢(Stainless steel), ●——黄铜(Brass)

表 1 不同方法去污 3 h 的去污效率

Table1 Decontamination effectiveness of each method at 3 h

%

样品(Specimens)	$A_{s,0}/(\text{Bq} \cdot \text{cm}^{-2})$	紫外线(UV)	加热(Heating)		臭氧(Ozone)
		220 °C	140 °C	220 °C	220 °C
不锈钢(Stainless Steel)	2 774	99.20±2.26	90.03±1.10	98.82±3.63	99.41±1.76
黄铜(Brass)	3 144		60.68±1.76	98.35±1.90	99.23±1.43
铝(Aluminum)	2 912		60.27±0.87	84.51±0.75	95.17±1.56

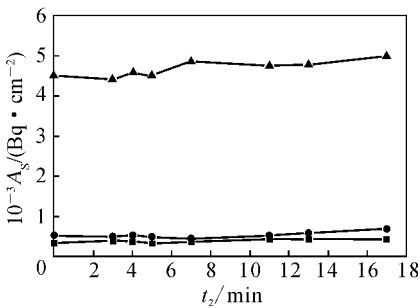
注(Note): $n=7$ 

图 6 去污后金属的氚表面活度随放置时间的变化

Fig. 6 Surface tritium activity at different time after decontamination

▲——铝(Aluminum), ■——不锈钢(Stainless steel),
●——黄铜(Brass)

3 结 论

采用加热、紫外线、臭氧等方法对不锈钢、铝、黄铜 3 种金属材料进行了氚去污研究。结果表明,紫外线在加热条件下对不锈钢有良好去污效果;升高温度可增加对氚的去污效果;加热条件下臭氧可增加对氚的去污效果;去污后经过一定的

时间放置,金属的氚表面活度有少量增加,但增加的绝对量不大,可认为金属内部残存的氚量已很少。

参考文献:

- [1] Gentile C A, Parker J J, Guttadora G L, et al. Oxidative Tritium Decontamination System, DE-AC02-76CH03073 [R]. Princeton: pppl. gov/pub-report, 2002.
- [2] Krasznai J P, Mowat R. UV/Ozone Treatment to Decontaminate Tritium Contaminated Surfaces[J]. Fus Technol, 1995, 28: 1 336-1 341.
- [3] Oya Y, Shu W, O'hira S, et al. A Study of Tritium Decontamination of Deposits by UV Irradiation [J]. J Nucl Mater, 2001, 16: 469-472.
- [4] Shu W, Ohira S, Gentile C A, et al. Tritium Decontamination of TFTR Carbon Tiles Employing Ultra Violet Light[J]. J Nucl Mater, 2001, 16: 482-485.
- [5] Quinlan M J, Shmayda W T, Lim S, et al. Effects of H_2O and H_2O_2 on Thermal Desorption of Tritium From Stainless Steel [J]. Fus Sci Technol, 2008, 54: 519-522.