ICS 点击此处添加ICS号

CCS点击此处添加中国标准文献分类号

**T/CNS**

中国核学会团体标准

T/CNS XXXX—XXXX

|  |
| --- |
|  |

高温气冷堆核动力厂一回路碳-14取样测量

技术要求

Technical requirements for carbon-14 sampling and measurement in the primary circuit of high temperature gas-cooled reactor nuclear power plant

|  |
| --- |
| 征求意见稿 |
|  |

XXXX - XX - XX发布

XXXX - XX – XX 实施

中国核学会   发布

目  次

[目  次 I](#_Toc199351784)

[前  言 II](#_Toc199351785)

[1 范围 1](#_Toc199351786)

[2 规范性引用文件 1](#_Toc199351787)

[3 术语和定义 1](#_Toc199351788)

[3.1 捕集效率 Collection Efficiency 1](#_Toc199351789)

[3.2 氧化效率 Oxidation Efficiency 1](#_Toc199351790)

[3.3 吸附效率 Adsorption Efficiency 1](#_Toc199351791)

[3.4 淬灭 Quench 1](#_Toc199351792)

[4 总述 1](#_Toc199351793)

[4.1 目的和功能 1](#_Toc199351794)

[4.2 设计原则 2](#_Toc199351795)

[4.3 主要技术参数 2](#_Toc199351796)

[5 主要设备 2](#_Toc199351797)

[6 测量方法及流程 2](#_Toc199351798)

[6.1 一回路氦气中碳-14取样过程 2](#_Toc199351799)

[6.2 液体样品中碳-14测量 3](#_Toc199351800)

[6.3 一回路碳-14测量结果分析 3](#_Toc199351801)

[7 测量要求 3](#_Toc199351802)

[8 注意事项 3](#_Toc199351803)

[9 质量保证和控制 4](#_Toc199351804)

[参 考 文 献 5](#_Toc199351805)

前  言

本文件按照GB/T 1.1—2020《标准化工作导则 第1部分：标准化文件的结构和起草规则》的规定起草。

请注意本文件的某些内容可能涉及专利。本文件的发布机构不承担识别专利的责任。

本标准由中国核学会提出。

本标准由核工业标准化研究所归口。

本标准起草单位：清华大学核能与新能源技术研究院，中核能源科技有限公司，华能山东石岛湾核电有限公司。

本标准主要起草人：谢锋，冯孝贵，魏利强，刘学刚，姚峰，王彧，李川，曹建主，李红，王海涛，董玉杰，张作义，高旭，陈景，石琦，马倩，陈曦，贾永胜。

高温气冷堆核动力厂一回路碳-14取样测量技术要求

1. 范围

本文件规定了球床式高温气冷堆（以下简称：高温气冷堆）核动力厂一回路碳-14取样测量的技术要求，包括目的和功能、设计原则、主要技术参数、主要设备、测量方法及流程、测量要求和注意事项等。

本文件适用于高温气冷堆核动力厂一回路碳-14取样测量工作及技术要求。

1. 规范性引用文件

下列文件中的内容通过文中的规范性引用而构成本文件必不可少的条款。其中，注日期的引用文件，仅该日期对应的版本适用于本文件；不注日期的引用文件，其最新版本（包括所有的修改单）适用于本文件。

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| GB 18871 | 电离辐射防护与辐射源安全基本标准 |  |
| HAF 003 | 核电厂质量保证安全规定 |  |

1. 术语和定义

下列术语和定义适用于本文件。

* 1. 捕集效率 Collection Efficiency

指在一定条件下含有混气装置的碳-14取样器从一回路中捕获的碳-14的量与冷却剂中总碳-14的量的比值。

* 1. 氧化效率 Oxidation Efficiency

指在一定条件下一回路冷却剂经过氧化铜床，被氧化为CO2的CO、CH4占冷却剂中总CO、CH4的质量比值。

* 1. 吸附效率 Adsorption Efficiency

指在一定条件下一回路冷却剂流经分子筛床，被吸附的CO2与冷却剂中原有总CO2的质量比值。

* 1. 淬灭 Quench

指在液闪测量过程中导致能量传递损失的干扰因素，该干扰因素使从闪烁瓶射出的光子总能量低于核辐射能量。样品的淬灭水平越高，液闪计数效率越低，通常用淬灭校正曲线，即淬灭指数与计数效率的关系曲线，来校正淬灭对计数效率的影响。

1. 总述
   1. 目的和功能

高温气冷堆是具有第四代核电系统特征的先进堆型，其堆芯采用TRISO包覆颗粒球形燃料元件、氦气作为一回路冷却剂、石墨作为慢化剂、反射层及结构材料，因此高温气冷堆堆芯及一回路放射性核素的类型、活度水平、输运行为及分布等与压水堆具有明显差异。

高温气冷堆核动力厂一回路冷却剂中碳-14的来源，不仅有三元裂变，还有燃料元件包覆颗粒中的17O的活化，燃料元件基体石墨、石墨反射层、碳砖等材料中的13C的活化，以及燃料元件基体石墨和冷却剂中14N的活化，而且其在冷却剂氦气中的化学形态与水堆中的也明显不同，因此对高温气冷堆核动力厂一回路碳-14的取样测量需要根据其源项特点进行设计，才能有效获得一回路碳-14源项及行为信息。

为了掌握一回路碳-14源项特点，包括碳-14的活度浓度以及不同化学态碳-14（14CO、14CH4与14CO2）的比例，以及氦净化系统中氧化铜床的氧化效率、分子筛床的吸附效率等，需要设计相应的取样系统及装置，制定相应的测量方法、流程和要求，获得高温气冷堆核动力厂一回路碳-14源项信息。

* 1. 设计原则

测量对象为一回路冷却剂中的碳-14，不影响核动力厂的安全运行，系统和设备为非安全级、常规抗震、工业质保等级。但需根据GB18871的相关规定，做好充分的辐射防护。

* 1. 主要技术参数

主要技术参数要求：

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  | 碳-14取样器的氧化效率： | ≥94%； |
|  | 碳-14取样器的捕集效率： | 碳-14（空气碳）捕获效率＞90%；  碳-14（甲烷碳）捕获效率＞90%； |
|  | 液体闪烁计数仪测量不确定度： | <5%。 |

1. 主要设备

针对一回路碳-14取样测量的推荐设备如下：

1. 碳-14取样回路（包含过滤器、减压阀、调节阀、截止阀等）；
2. 含有混气装置（或固体氧化剂装置）的碳-14取样器；
3. 液体闪烁计数仪（liquid scintillation counter, LSC）。
4. 测量方法及流程
   1. 一回路氦气中碳-14取样流程

进入氦净化系统的氦气流过氧化铜床时，所含的杂质CO、CH4被转化成CO2。而后经过分子筛床，可将冷却剂氦气中的CO2吸附。为了获得一回路氦气中典型位置处的碳-14活度浓度等信息，在氦净化系统尘埃过滤器后、氧化铜床后和分子筛床后分别设置取样管路，取样气体经减压阀、过滤器和调节阀等部件，然后进入含有混气装置的碳-14取样器进行碳-14的取样，其串联的鼓泡器会把氦气中的14CO2有效滞留在取样液中，获得的液体样品定期送往放化实验室采用LSC进行碳-14活度测量。此外，碳-14取样器前设置吹扫气路，取样前先将碳-14取样器前端管路进行吹扫，使取样具有代表性。

含有混气装置的碳-14取样器有两种工作模式：

（1）混气装置打开时，进入鼓泡器的一回路氦气样气中具有足量的氧气，在其中的加热催化装置作用下，可获得一回路氦气中全碳-14的活度测量。

（2）混气装置关闭时，进入鼓泡器的一回路氦气样气中缺少氧气，仅能获得一回路氦气中以14CO2形态存在的碳-14的活度。

采用混气装置打开时的测量结果，可获得高温气冷堆核动力厂尘埃过滤器后、氧化铜床后（气/水分离器前）和分子筛床后一回路氦气中全碳-14的活度浓度。采用混气装置关闭时的测量结果，通过对比监测尘埃过滤器后和氧化铜床后氦气中碳-14的活度水平，可获知碳-14被氧化铜床氧化的效率；通过对比监测氧化铜床后和分子筛床后一回路氦气中碳-14的活度水平，可获知碳-14被分子筛床吸附的效率。

在核动力厂启动与停堆过程中，可采用较大的取样频率（如3天1次），稳态运行后，取样频率可降低（如7天1次或半月1次）。当发现数据异常或活度变化剧烈时，应加大取样频率并分析原因。

* 1. 液体样品中碳-14测量

碳-14的活度通过LSC测量。测量的样品是从碳-14取样器的每个取样瓶中采集两个平行样品，每个样品2mL。通过LSC测量液体样品中碳-14的活度之后，再结合之前测量到的收集瓶中NaOH溶液的量和体积，通过计算确定一回路中碳-14活度浓度。用LSC测量碳-14时，记录样品的计数率和淬灭指数，然后根据事先用一系列碳-14标准液闪样品确定的淬灭校正曲线计算计数效率，从而得到样品中碳-14的活度。

与氚的测量不同，碳-14样品中存在HTO，因此在测量的碳-14液闪谱图中，需扣除氚的贡献。样品中碳-14的放射性浓度AC-14，可用方程(1-1)求得：

(1-1)

其中，*C*是通道321-600的计数率（本例中1-320道址中含有氚的贡献），*KC-14*是通道321-600中碳-14计数率与通道1-600中碳-14计数率的比值，*EC-14*是通道1-600中碳-14的计数效率，*V*是样本体积。对LSC测量碳-14来说，*KC-14*和*EC-14*的值随样品淬灭水平的变化而变化。因此，需要首先确定*KC-14*和*EC-14*与淬灭指数的相关性。

* 1. 一回路碳-14测量结果分析

综合上述结果，确定高温气冷堆核动力厂不同运行工况下氦净化系统尘埃过滤器后（即氧化铜床前）、氧化铜床后、分子筛床后一回路碳-14的活度浓度（换算为标准状况），阐释一回路碳-14以14CO、14CH4和14CO2形态存在的比例，明确氧化铜床的氧化效率和分子筛床的吸附效率，进一步结合一回路碳-14的产生机制和敏感性分析，确定高温气冷堆一回路碳-14的主要产生来源和影响其活度浓度的关键因素。

1. 测量要求

高温气冷堆核动力厂一回路碳-14取样测量，获得的信息包含：

1. 取样管路中氦气的压力、温度以及累积流量；
2. 碳-14取样器每个取样瓶中碳-14的液闪仪谱图以及活度；
3. 含有混气装置的氚取样器中氦气累积流量、空气累积流量、混合气体累积流量；
4. 取样测量确定的对应一回路取样位置处的碳-14活度浓度（换算为标准状况）；
5. 氦净化系统氧化铜床对碳-14的氧化效率和分子筛床对碳-14的吸附效率；
6. 一回路冷却剂中以14CO、14CH4和14CO2化学形态存在的碳-14的比例。
7. 注意事项

（1）基于GB18871的相关规定，在放化分析实验室中开展一回路碳-14测量分析实验工作；

（2）在进行一回路碳-14取样、制样及测量过程中，应充分考虑工作人员的辐射防护，尤其注意碳-14的内照射，注意在有通风的房间中进行实验；

（3）整个测量过程应避免放射性样品的交叉污染，以及对设备、设施可能存在的沾污。

1. 质量保证和控制

高温气冷堆核动力厂一回路碳-14取样测量工作的实施单位必须经资格评审合格并持有国家核安全监管部门颁发的相应的许可证的单位开展，按照HAF 003《核电厂质量保证安全规定》制定并有效实施质量保证大纲，并在满足辐射防护要求和放化分析条件要求的场所进行。

参 考 文 献

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| [1] GB 6249 | 核动力厂环境辐射防护规定 |  |
| [2] HAF 003 | 核电厂质量保证安全规定 |  |
| [3] T/CNS 22 | 高温气冷堆核动力厂辐射防护设计准则 |  |
| [4] T/CNS 97 | 高温气冷堆核动力厂工艺辐射监测和放射性流出物监测系统设计准则 |  |
| [5] | Feng X, He Q, Wang J, *et al.*, The long-term stability on basic performances of a diisopropylnaphthalene-based liquid scintillation cocktail [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2012, 70(8): 1536-1540. |  |
| [6] | Xie F, Peng W, Cao J, *et al.*, Experimental investigation of 14C in the primary coolant of the 10 MW high temperature gas-cooled reactor, *Radiocarbon*, 61 (3), 867-884, 2019. |  |
| [7] | Liu X, Peng W, Wei L, *et al.*, A comprehensive study of the 14C source term in the 10 MW high temperature gas-cooled reactor, *Radiocarbon*, 61 (5), 1169-1183, 2019. |  |
| [8] | L’annunziata M F, Tarancón A, Bagán H, *et al.*, Liquid scintillation analysis: Principles and practice, *Handbook of Radioactivity Analysis*, 575-801 Amsterdam, Elsevier, 2020. |  |