

文章编号 : 0253-9950(2004) 04-0198-06

后处理厂释放气体中稳定惰性气体同位素 在核保障监督中的应用研究

张小枝, 刘大鸣, 李金英, 李安利, 金小海

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:用 Origen2.1 计算模式对压水堆元件中 Kr, Xe 相关同位素与燃料的关系进行了计算, 并估算了后处理厂烟囱释放气体中 Kr, Xe 各稳定同位素的来源、丰度和原子浓度。 ^{82}Kr , ^{129}Xe 可用作环境样品中惰性气体同位素的天然本底; 裂片 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 、 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 、 $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 的丰度比值, 可用于指示乏燃料燃料, 进而估算正在被分离的钚同位素组成, 并有可能对后处理厂实行保障监督。

关键词: Kr; Xe; 同位素分布; Origen2.1 计算; 后处理厂; 核保障

中图分类号: O613.14; O613.15 **文献标识码:** A

用惰性气体同位素监测乏燃料燃料的研究在国外断断续续有一些报道。早在上世纪 60 年代, Maeck 和 Christensen 提出了用裂片同位素之间的相关性来确定乏燃料的燃料^[1,2]。当时建议的同位素对有 $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$, $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, $^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$, $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ 等。从 1973 年到 1983 年, 在欧洲联合研究中心(JRC)组织下, 以 Guardini 和 Guzzi 为主, 在多家实验室的配合下, 对 4 种堆型、燃料为 8 ~ 37 GWd/tU 的 100 多个乏燃料元件进行全面分析, 并报道了对应不同燃料的、经测量的 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 原子数比值和经质谱测量的 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{143}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$, $^{144}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$, $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{85}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$, $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 的原子数比值^[3~5]。该系列实验中的各裂片同位素均直接来自乏燃料元件。除欧洲报道的数据外, 至今未见到其它有关惰性气体的实验数据。

利用上述实验数据, Koch 于 1983 年首先开展了同位素关联技术研究。该工作提到了 $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$, $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, 他们的研究主要集中于 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{242}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 和 $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 与燃料的相关性^[6~9]。国际原子能机构 Okubo 于 1988 年, 采用 ISOTEX-1 堆物理计算程序, 以 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, 83

$\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{83}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$, $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$, $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 为验证数据, 首次研究了 Kr, Xe 稳定同位素比与乏燃料燃料的关系, 并提出了用惰性气体同位素对后处理厂实行保障监督的可行性^[10]。

进入 90 年代, 随着 IAEA 93+2 计划的实施, Lawrence Livermore 实验室的 Hudson 对 Kr, Xe 同位素数据进行了进一步研究, 并对质谱测量进行了文献调研, 他的工作支持了 Okubo 的观点^[11]。90 年代后期, 在 Los Alamos 实验室的 Perry 领导下, 以 Charlton 为主, 继续开展了用惰性气体对大型商用后处理厂保障监督的研究。他们先后选择了 Los Alamos 实验室开发的堆物理计算程序 Helios 和 Montburn, 对 14 × 14 压水堆产生的 Kr, Xe 同位素分布进行了计算^[12~16]。值得注意的是, 用于验证计算结果的实验数据仍然是 Guardini 于 1983 年发表的数据^[3~5]。由于采用了更先进的计算程序, Los Alamos 实验室的燃料计算误差为 10%。在此以前的计算误差均在 15% 左右。

过去的工作主要集中于理论计算裂片惰性气体同位素的产额并验证不同堆物理计算程序运算的结果。本工作进一步研究后处理厂惰性气体的释放、采样点的选取、环境样品中天然惰性气体同

收稿日期: 2003-12-04; 修订日期: 2004-03-29

作者简介: 张小枝(1965-), 女, 河南孟州人, 副研究员, 博士, 从事核保障研究。

位素本底的扣除、适用于监测乏燃料燃耗的惰性气体同位素对的选择,以及惰性气体同位素分布与燃耗,U和Pu同位素分布之间的关系。

1 乏燃料后处理工艺中惰性气体的释放和采样点的选取

1.1 后处理工艺惰性气体的释放和回收

后处理工艺是实现铀钚提取、分离和纯化的过程。它主要包括元件切割、酸溶解、铀钚共提取、铀钚分离、铀钚纯化等工序。在切割与溶解过程中, ^3H , Kr, Xe, I, CO_2 , NO_x 及水蒸汽等易挥发物质会释放出来。这些气体经过处理后, Kr, Xe 和 CO_2 直接排入环境, NO_x 被转换为硝酸再循环利用, I 等放射性气溶胶被回收, 以降低它们对环境的放射性危害。

在元件切割过程中,约5%的惰性气体释放出来。其余95%则随着元件的溶解而进入尾气系统。据报道^[17], ^{85}Kr 的释放有一个峰值,它出现在加酸后的1h左右,可持续1~2h。 ^{85}Kr 的整个释放时间持续6h,这也是200kg乏燃料溶解完全的时间。释放 ^{85}Kr 的过程也是其它惰性气体核素的释放过程。Kr, Xe 不受后处理工艺的物理、化学过程影响,以元素形式直接进入后处理厂的尾气处理系统。

上世纪80年代以前的后处理厂,一般对尾气中的惰性气体不进行回收,惰性气体全部经过烟囱进入大气。为了降低 ^{85}Kr 对环境的放射性污染,新建立的大型后处理厂配备了Kr回收工艺。主要的回收方法有固体吸附、溶剂选择性吸收和低温蒸馏^[18,19]。其中,低温蒸馏作为成熟技术应用于法国、英国、日本等商用后处理厂。在原料气流速为850L/min时,Kr最高回收率为98%,一天可回收 1.5×10^{14} Bq的 ^{85}Kr 。实际运行时,平均回收率约在50%~70%之间。其余30%~50%仍然经后处理厂烟囱进入大气环境。伴随着Kr的回收,Xe向环境的释放量也大幅度降低。虽然针对Xe回收的研究比较少,考虑到乏燃料溶解过程中Xe的释放量是Kr的10余倍,Xe的沸点(-108.10)比Kr的沸点(-153.35)高约50, Kr和Xe化学性质相近,可以认为Xe的回收率与Kr的回收率相近。

1.2 后处理厂惰性气体环境采样点的选取

各国的环境保护机构均要求定期监测核设施排放气体的放射水平。监测对象有 ^3H , ^{133}I 和 ^{85}Kr

等。为了使采样具有代表性,在烟囱的设计和建造时,已经考虑了取样的均匀性。以烟囱为采样点,可充分利用已有监测设备,有效选择采样时间。

本文选择两个具有不同生产能力的后处理厂的烟囱,其技术参数列入表1。它们的年处理量分别为1000t和100t。尽管年处理能力不同,烟囱的几何尺寸也不同,但它们却具有相同的排风量 $1.8 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{h}$ 。

表1 两个不同生产规模的后处理厂排风技术参数

$W/(\text{t} \cdot \text{h}^{-1})$	h/m	d/m	$v/(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	$t/$
1.25	50	2	20	25
0.15	100	5	3.2	25

注(Notes): W 为元件处理量(Fuel throughput), h , d 为烟囱高度(Stack height)和烟囱直径(Stack inner diameter), v 为排气速度(Exit velocity), t 为排气温度(Exit temperature)

本文用Origen2.1计算了燃耗为30GWd/tU、 ^{235}U 起始丰度为3.0%的乏燃料元件中Kr, Xe的累积生成量,结果列入表2。根据表1,2,计算了烟囱排放气体中主要裂片Kr, Xe的原子浓度范围,计算结果列入表3。大气中各对应同位素的原子浓度也列入表3中。从表3可知,后处理厂烟囱排放气体中,裂变产生的Kr的稳定同位素浓度与大气中相应同位素的浓度处于同一量级;裂片Xe同位素的浓度比大气中相应同位素的浓度高1到2个量级。

表2 每吨压水堆乏燃料元件中Kr和Xe的累积生成量

同位素(Isotope)	m/g	N_{atom}
^{83}Kr	38	2.8×10^{23}
^{84}Kr	102	7.3×10^{23}
^{85}Kr	22	1.6×10^{23}
^{86}Kr	172	1.2×10^{24}
^{131}Xe	397	1.8×10^{24}
^{132}Xe	970	4.4×10^{24}
^{134}Xe	1339	6.0×10^{24}
^{136}Xe	2094	9.2×10^{24}

注(Note): 30 GWd/tU, 3.0% ^{235}U

表 3 烟囱中裂变 Kr, Xe 的
原子浓度与大气中的浓度比较

Table 3 Comparison of Kr, Xe concentrations in
stacks from fission yield and atmospheric background

同位素 (Isotope)	$N_{\text{fis}}^1 / \text{m}^{-3}$	$N_{\text{air}}^2 / \text{m}^{-3}$
^{80}Kr		6.25×10^{17}
^{82}Kr		3.19×10^{18}
^{83}Kr	$2.3 \times 10^{17} \sim 1.9 \times 10^{18}$	3.18×10^{18}
^{84}Kr	$6.1 \times 10^{17} \sim 5.1 \times 10^{18}$	1.58×10^{19}
^{85}Kr	$1.2 \times 10^{17} \sim 1.1 \times 10^{18}$	0
^{86}Kr	$9.9 \times 10^{18} \sim 8.3 \times 10^{19}$	4.82×10^{18}
^{129}Xe		5.59×10^{17}
^{131}Xe	$1.6 \times 10^{18} \sim 1.3 \times 10^{19}$	4.49×10^{17}
^{132}Xe	$3.6 \times 10^{18} \sim 3.1 \times 10^{19}$	5.68×10^{17}
^{134}Xe	$5.0 \times 10^{18} \sim 4.2 \times 10^{19}$	2.21×10^{17}
^{136}Xe	$7.7 \times 10^{18} \sim 6.4 \times 10^{19}$	1.87×10^{17}

注 (Notes): 1) 裂变 Kr, Xe 浓度 (Concentration from fission yield); 2) 大气中 Kr, Xe 浓度 (Atmospheric background)

2 适于燃耗监测的 Kr, Xe 同位素的选取

从烟囱中采集的惰性气体是大气中的天然惰性气体和裂变产物的混合物。Kr, Xe 各同位素的天然丰度和 ^{235}U 热中子裂变产生的相应同位素分布列入表 4。从表 4 可见, ^{78}Kr , ^{80}Kr , ^{81}Kr , ^{82}Kr , ^{124}Xe , ^{126}Xe , ^{128}Xe , ^{129}Xe 和 ^{130}Xe 的裂变产额低, 因而它们的裂变生成量可以忽略。其中, 天然丰度 (浓度) 较高的 ^{82}Kr , ^{129}Xe 可分别作为基准核素, 用来扣除后处理厂释放气体中的天然本底部分。

^{83}Kr 的累积产额高 (0.54%), 其母核 ^{83}Br 的寿命短 (2.4 h), ^{83}Kr 可作为燃耗和元件类型的指示同位素。它的热中子吸收截面 ($1.8 \times 10^{-26} \text{ m}^2$) 较大。在反应堆中, 有一部分 ^{83}Kr 经 (n,) 反应生成 ^{84}Kr 。同样, ^{84}Kr 的高产额和母核的短寿命是它作为指示同位素的优点。

^{86}Kr 的裂变产额最大 (1.97%), 母核寿命短, 中子吸收截面小, 天然丰度低 (见表 3 和表 4)。它不随堆运行参数、运行历史和冷却时间而改变, ^{86}Kr 是燃耗和元件类型的最佳指示剂。

^{131}Xe 和 ^{132}Xe 的裂变产额分别为 2.89% 和 4.31%, 这两个同位素的母核寿命也都在几天左右 (^{131}I 的半衰期 8 d, ^{132}Te 半衰期为 3.3 d)。此

表 4 ^{235}U 热中子裂变的
Kr, Xe 产额和同位素相对分布

Table 4 Fission yields of Kr, Xe from ^{235}U thermal
fission and relative isotopic distributions

同位素 (Isotope)	$Y(^{235}\text{U}) / \%$	$A_{\text{rel}} / \%$	$A_{\text{nat}} / \%$
^{78}Kr	2.18×10^{-15}	-	0.35
^{80}Kr	6.59×10^{-14}	-	2.25
^{81}Kr	3.46×10^{-9}	-	0
^{82}Kr	5.47×10^{-5}	-	11.6
^{83}Kr	0.536	14.2	11.5
^{84}Kr	1.00	26.5	57.0
^{85}Kr	0.283	7.48	-
^{86}Kr	1.97	51.9	17.3
^{124}Xe	4.7×10^{-19}	-	0.1
^{126}Xe	1.09×10^{-10}	-	0.09
^{128}Xe	1.00×10^{-6}	-	1.91
^{129}Xe	7.1×10^{-1}	-	26.4
^{130}Xe	2.2×10^{-4}	-	4.1
^{131}Xe	2.89	13.2	21.2
^{132}Xe	4.31	19.7	26.9
^{134}Xe	7.87	35.9	10.4
^{136}Xe	6.31	28.8	8.9

注 (Notes): $Y(^{235}\text{U})$ 为 ^{235}U 热中子累积产额 (Cumulative fission yield), A_{rel} 为裂变同位素的相对丰度 (Relative isotopic distribution from fission process), A_{nat} 为天然丰度 (Natural abundance)

外, 由于 ^{131}Xe 中子吸收截面较大 ($9.06 \times 10^{-26} \text{ m}^2$), 随着燃耗的加深, 部分 ^{131}Xe 会活化为 ^{132}Xe 。这两个同位素都包含了燃耗和元件类型的信息, 一定程度上也与堆功率水平和堆运行历史等因素有关。

^{134}Xe 的裂变产额最高 (7.87%), 没有长寿命的同质异位素, 中子吸收截面小, 因此, ^{134}Xe 的浓度只依赖于燃耗和元件参数, 它最适于燃耗监测。

Xe 的最后一个稳定同位素为 ^{136}Xe , 它的产额高 (6.31%), 没有长寿命母核, 中子吸收截面也很小, 然而 ^{136}Xe 的量受 ^{135}Xe 的影响较大。 ^{135}Xe 及其母核的半衰期虽不长 (9.17 h), 但其产额高, 且 ^{135}Xe 的中子吸收截面高达 $2.65 \times 10^{-22} \text{ m}^2$, 因而反应堆功率水平及运行历史等都影响 ^{136}Xe 在乏燃料中含量有显著影响。由此可见, 天然丰度为 8.9%

的¹³⁶Xe 不适于作反应堆燃耗的指示剂。

燃耗的深浅直接关系⁸³Kr, ⁸⁴Kr, ⁸⁶Kr, ¹³¹Xe, ¹³²Xe, ¹³⁴Xe 的生成量。鉴于质谱测量给出的是原子数之比,这里用⁸³Kr/⁸⁶Kr、⁸⁴Kr/⁸⁶Kr、¹³¹Xe/¹³⁴Xe 和¹³²Xe/¹³⁴Xe 的原子数之比表示与燃耗的相关性。

Kr 和 Xe 相比, Xe 的裂变产额是 Kr 的 5~10 倍,大气中 Xe 的浓度仅为 Kr 的 1/10,因而 Xe 同位素比 Kr 更适于环境监测。

3 Kr, Xe, U 和 Pu 的同位素相关性及其随燃耗的变化

判断后处理厂是否存在违约活动的关键在于被分离的²⁴⁰Pu 和²³⁹Pu 的相对含量。用 Origen 2.1 计算模式计算了一典型压水堆中²³⁵U/²³⁸U, ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu, ¹³¹Xe/¹³⁴Xe, ¹³²Xe/¹³⁴Xe, ⁸³Kr/⁸⁶Kr 和⁸⁴Kr/⁸⁶Kr 原子数比值随燃耗变化,结果示于图 1~6。该结果与 Helios 计算结果基本一致^[13]。一般认为,用于核武器的²³⁹Pu 丰度应在 93% 以上^[20],对应燃耗仅为 3 GWd/tU, ²³⁵U 丰度从 3% 降至 2.67%。由图 2 可以看出,随着燃耗加深, ²⁴⁰Pu 的相对量迅速增加。一般动力堆乏燃料中, ²⁴⁰Pu 与²³⁹Pu 的原子数比值高于 30%,对应燃耗在 25~35 GWd/tU, ²³⁵U 丰度降低至 0.8% 左右;从图 2 还可以看出,对于轻水反应堆,燃耗在 35 GWd/tU 以下范围内, ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值随燃耗增加而增加;随着²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 的原子数比值和燃耗的增加, ¹³¹Xe/¹³⁴Xe 的原子数比值从 0.39 降低到 0.29, ¹³²Xe/¹³⁴Xe 的原子数比值从 0.57 升高到 0.76; ⁸³Kr/⁸⁶Kr 的原子数比值从 0.27 降低到 0.22, ⁸⁴Kr/⁸⁶Kr 对应的原子数比值从 0.52 上升到 0.62。 ¹³¹Xe/¹³⁴Xe, ¹³²Xe/¹³⁴Xe, ⁸³Kr/⁸⁶Kr 和⁸⁴Kr/⁸⁶Kr 的原子数比值与燃耗近似存在着线性关系。由此可知,如果实验测量出 Xe 的相关同位素比值,根据相关同位素的原子数比值与燃耗的关系,即可推算出乏燃料的燃耗,进而利用²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 与燃耗的对应关系,推算铀的同位素组成。

燃耗在 15~32 GWd/tU 之间时,这里²³⁵U/²³⁸U 和²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 的原子数比计数结果与 JRC 的实际测量值之间的偏差不超过 5% 的燃耗变化范围, ¹³¹Xe/¹³⁴Xe, ¹³²Xe/¹³⁴Xe, ⁸³Kr/⁸⁶Kr 和⁸⁴Kr/⁸⁶Kr 的计算值与 JRC 的实际测量值的偏差不超过 15% 的燃耗变化范围^[5]。

燃耗在 15~32 GWd/tU 之间时,这里²³⁵U/²³⁸U 和²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 的原子数比计数结果与 JRC 的实际测量值之间的偏差不超过 5% 的燃耗变化范围, ¹³¹Xe/¹³⁴Xe, ¹³²Xe/¹³⁴Xe, ⁸³Kr/⁸⁶Kr 和⁸⁴Kr/⁸⁶Kr 的计算值与 JRC 的实际测量值的偏差不超过 15% 的燃耗变化范围^[5]。

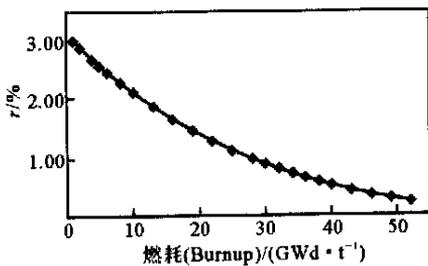


图 1 ²³⁵U/²³⁸U 随燃耗的变化
Fig. 1 ²³⁵U/²³⁸U ratio v. burnup for obriheim reactor

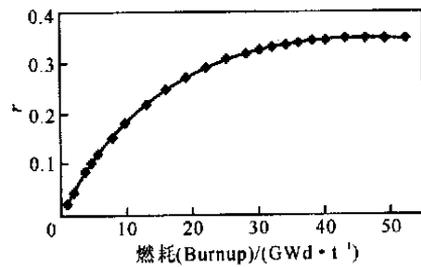


图 2 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 随燃耗的变化
Fig. 2 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu ratio v. burnup for obriheim reactor

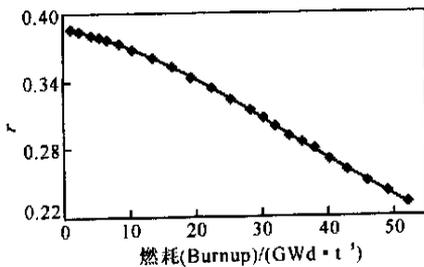


图 3 ¹³¹Xe/¹³⁴Xe 随燃耗的变化
Fig. 3 ¹³¹Xe/¹³⁴Xe ratio v. burnup for obriheim reactor

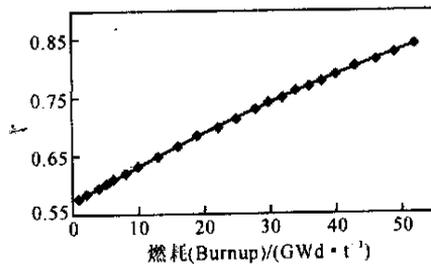
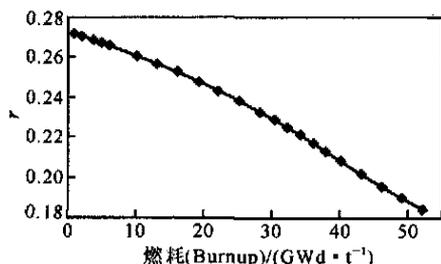
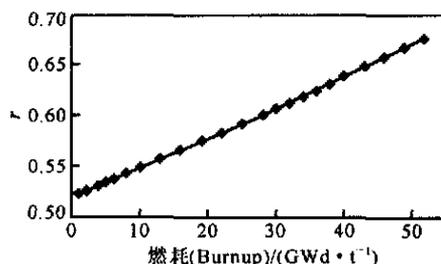


图 4 ¹³²Xe/¹³⁴Xe 随燃耗的变化
Fig. 4 ¹³²Xe/¹³⁴Xe ratio v. burnup for obriheim reactor

图 5 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 随燃耗的变化Fig. 5 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ ratio v. burnup for obriheim reactor图 6 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 随燃耗的变化Fig. 6 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ ratio v. burnup for obriheim reactor

对于 ^{235}U 起始丰度3%,燃耗低于15 GWd/tU的乏燃料,U,Pu,Kr,Xe等相关同位素的原子数比值尚没有见到实验数据。目前不能给出理论计算值与实际测量值之间的偏差。不过,从图3~6可知,从低燃耗到高燃耗,Kr,Xe相关同位素的原子数比值与燃耗几乎是线性关系。在低燃耗区,U,Pu相关同位素的原子数比值与燃耗也呈线性相关。预计在低燃耗区,包括3 GWd/tU,各相关同位素的原子数比值的理论计算值与实际测量结果的偏差应与高燃耗区的偏差接近。该偏差不影响判断被分离Pu是武器级Pu还是民用Pu。

4 结论

(1) 从Origen2.1计算结果可以看出, $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 和 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 的原子数比值与压水堆乏燃料燃耗几乎呈线性关系。惰性气体相关同位素的原子数比值,可以用于指示乏燃料燃耗深度,进而判断钚的同位素组成。 ^{235}U 起始丰度3%、燃耗在15~32 GWd/tU之间时,本文用Origen2.1计算的 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子数比值计算结果与JRC的实际测量值之间的偏差不超过5%的燃耗变化范围, $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 、 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 、 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 和 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 的计算值与JRC的实际测量值的偏差不超过15%的燃耗变化范围。对于燃耗低于15 GWd/tU的乏燃料,U,Pu,Kr,Xe等相关同位素的原子数比值尚没有见到实验数据。有待进一步的实验验证。

(2) 核裂变产生的惰性气体同位素组成,显著区别于天然Kr,Xe同位素的分布。 ^{82}Kr 和 ^{129}Xe 可用作扣除天然本底的基准核素。

(3) 通过对铀燃耗在30 GWd/tU, ^{235}U 起始丰度3.0%的乏燃料元件中Kr,Xe的累积生成量的计算和后处理厂烟囱排风量的估算,能够看出从

烟囱取样、经质谱分析及扣除本底后,可以获得裂变产物Kr,Xe的同位素分布。

(4) 烟囱为后处理厂的主要尾气排放口,应用以烟囱为采样点的惰性气体同位素监测技术,即可进行后处理厂环境放射性核素监测,此操作远离主工艺区,对正在运行的后处理厂干扰小。由于裂片Kr,Xe不在后处理厂环境中积累,惰性气体只能用于处理乏燃料时实时监测。

(5) 本文只针对压水堆燃料元件进行了计算。后处理厂实际释放的Kr,Xe裂片同位素分布除与燃耗相关外,还与反应堆堆型以及元件中 ^{235}U 的起始丰度有关。今后需要用Origen2.1对不同堆型和燃料元件进行更详细的计算。

(6) 本文通过计算,虽然说明了用后处理厂烟囱为采样点的惰性气体同位素监测技术可以实现对后处理厂的保障监督,但尚需进一步用实验验证其可行性。实验应包括环境样品采集、惰性气体质谱分析、天然Kr,Xe本底扣除、裂片 $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 、 $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ 、 $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 和 $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$ 的计算、乏燃料燃耗估算以及误差分析等。

致谢:董明理研究员给作者提供了Origen2.1程序,并和周培德博士一起与作者进行了多次有益讨论;王林博同志协助作者进行了许多程序调试工作;在本文的定稿过程中,曾得到金惠民研究员和常志远副研究员等同志的多次修改,在此作者均表示感谢!

参考文献:

- [1] Maeck WJ. Proposed Determination of Nuclear Fuel Burnup Based on the Ratio of Two Stable Fission Products of the Same Element[R]:IDO-14642. Idaho USA: Idaho Operations Officer, 1965.

- [2] Christensen D E, Schneider R A. Consistency Evaluation of Accountability Data for a Chemical Processing Plant [R]: BNWL-CC-2346. Washington: Battelle-northwest, Richland, 1969.
- [3] Foggi C, Renquellucci C C, Perdisa G. Isotope Correlations Based on Fission Product Nuclides in LWR Irradiated Fuels—A Theoretical Evaluation [R]: IAEA-SM/201/44. Vienna:IAEA, 1972.
- [4] Final Report of ESARDA Working Group on Isotopic Correlations and Reprocessing Input Analysis (ICE) [R]: ESARDA 2/81, KFK 3337. Juxembourg: ESARDA, European Safeguard Research and Development Association, 1981.
- [5] Guardini S, Guzzi G. Benchmark Reference Data on Post Irradiation Analysis of Light Water Reactor Fuel Samples [R]:EUR 7879 EN, Juxembourg: Commission of the European Communities, 1983.
- [6] Koch L, Schoof S. The Isotope Correlation Experiment [R]: EUR 7766 EN. Brussels, Belgium: Commission of the European Communities, 1983.
- [7] Koch L, Cricchio A, Gerin F. Isotope Correlations of Heavy Isotopes and Fission Products for Consistency Checks and Data Generation[A]. In: Presented at the IAEA Working Group on the Use of Isotopic Composition Data in Safeguards[C]. Vienna, 1972.
- [8] Koch L, Braun H, Cricchio A. Some Correlations Between Isotopes of Xe, Kr, U, Pu and Burnup Parameters for Various Thermal and Fast Reactors[A]. In: Proceedings of the Symposium on Progress in Safeguards Techniques[C]. Karlsruhe:IAEA, 1970. 539~550.
- [9] Welium R, Meester R DE, Kammerichs K. The Categorization of Binary Isotope Correlations Derived From the Databank of the European Institute of Transuranium Elements[A]: In Proceedings of the ESARDA Symposium on the Isotopic Correlation and Its Application to the Nuclear Fuel Cycle [C]. Stresa, Italy: European Safeguards Research and Development Association, 1978.
- [10] Ohkubo M. Gaseous Isotope Correlation Technique for Safeguards at Reprocessing Facilities [R]: IAEA-STR-240. Vienna:IAEA, 1988.
- [11] Hudson G B. Noble Gas Measurements for Spent Nuclear Fuel Reprocessing[R]:UCRL-ID-118658. USA:Lawrence Livermore National Laboratory, 1993.
- [12] Nakhleh C W, Perry R, Poths J. Noble Gas Atmospheric Monitoring at Reprocessing Facilities [A]. International Workshop on Status of Measurement Techniques for the Identification of Nuclear Signatures IRMM[C]. Geel, Belgium, 1997.
- [13] Charlton W S, Perry R, Fearey B L. Comparisons of Helios Calculated Isotope Concentrations to Measured Values for Several Reactor Systems[A]. In: 16th Fuel Management Systems User Group Meeting. Madrid Spain. October 21~23, 1998.
- [14] Charlton W S. Noble Gas Measurement and Analysis Technique for Monitoring Reprocessing Facilities [R]: LA-13636-T. USA:Los Alamos Scientific Laboratory, 1999.
- [15] Charlton W S, Fearey B L, Nakhleh C W. Operator Declaration Verification Technique for Spent Fuel at Reprocessing Facilities[J]. Nucl Instrum Methods in Phys Res, Sect B 168, 2000, 98~108.
- [16] Stanbro W D, Charlton W S, Hemberger P H. The Use of Stable Xenon Isotope Monitoring in Strengthened Safeguards at Large Reprocessing Plants[A]. Journal of Nuclear Material Management[C]. 2000.
- [17] 袁良本,谈树清. 核工业中的氦和氙[M]. 北京:原子能出版社,1983. 21~23.
- [18] 袁良本,谈树清. 核工业中的氦和氙[M]. 北京:原子能出版社,1983. 60~274.
- [19] Hebel W, Cotton G. Methods of Krypton85 Management [A]. Proceedings of a Meeting Organized by the Commission of the European Communities and Held in Brussels, 29, 1982, Harwood Academic Publishers for the Commission of the European Communities, 1983. 98~188.
- [20] 刘华秋主编. 军备控制与裁军手册[M]. 北京:国防工业出版社,2000. 220.

(下转第 214 页,Continued on page 214)

Preparation and Preliminary Evaluation of $^{125,131}\text{I}$ Labeled Human Recombinant Annexin

CHEN Da-ming^{1,2}, JIN Xiao-hai¹, QI Ben-zhong¹, LUO Zhi-fu¹, JIA Bing^{1,2}, ZHANG Ying-mei³,
YANG Hong-wei¹, ZHANG Jin-rong¹, DU Jin^{1,2}, MA Da-long³, WANG Fan^{1,2}

1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(58), Beijing 102413, China;
2. Medical Isotope Research Center, Peking University, Beijing 100083, China;
3. Human Disease Genomic Research Center, Peking University, Beijing 100083, China

Abstract: The aim of this study is to evaluate the potential applicability of radioiodine-labeled human recombinant 36 kDa protein Annexin prepared in domestic conditions as an imaging agent for diagnosis of apoptosis. Experimental conditions for labeling of Annexin with ^{125}I or ^{131}I by Iodo-Gen method are optimized with respect to the concentrations of Iodo-Gen and the protein, reaction time, temperature, and pH value. Under the recommended conditions a labeling yield of higher than 80% may be achieved. The radiochemical purity of the labeled protein is increased to 95% or higher after purification with gel chromatography. The labeled compound $^{125,131}\text{I}$ -Annexin prepared in this way is proved to be stable within 40 h at room temperature. The animal experiment with normal mice shows that $^{125,131}\text{I}$ -Annexin is quickly distributed in whole body after injection and mainly accumulated in liver, kidneys and spleen. The clearance from blood is very fast. *In vivo* deiodination is also observed. Our *in vitro* experiments with Balb/C mouse thymus cells indicate that $^{125,131}\text{I}$ -Annexin maintains high affinity to dexamethasone-induced apoptotic cells, K is 8.53 nmol/L, RT is 1.23×10^6 binding point/cell.

Key words: apoptosis; Annexin; $^{125,131}\text{I}$; stability; cell binding assay

(上接第 203 页, Continued from page 203)

Stable Noble Gas Isotopes Released From Reprocessing Plant Used for Nuclear Safeguards

ZHANG Xiao-zhi, LIU Da-ming, LI Jin-ying, LI An-li, JIN Xiao-hai

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(8), Beijing 102413, China

Abstract: The correlations between stable noble gas isotopic ratios and the burnup of spent fuel are calculated by Origen2.1 code. The production of stable Kr, Xe nuclides in reactor fuel and the subsequent dilution of these nuclides in the reprocessing plant stacks are estimated for PWR fuel with a burnup of 30 GWd/tU. ^{82}Kr and ^{129}Xe , at the natural background, are suggested being baseline for subtracting atmospheric parts of the other isotopes in the samples consisting of both fissionogenic and natural noble gas. The nuclide ratios of $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$, $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ and $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ near linearly correlated with the burnup of the spent fuel can be used for the nuclear safeguards.

Key words: noble gas isotopes; reprocessing plant; nuclear safeguards