



多形态氚的环境行为及辐射评价系统研究进展

聂保杰¹, 陈德仪¹, 王亮², 郑善良³, 谢锋⁴, 李厚文⁵, 朱月龙⁵, 李凤臣⁶, 王德忠^{1*}

1. 上海交通大学核科学与工程学院, 上海 200240;

2. 生态环境部核与辐射安全中心, 北京 100082;

3. 中国科学院合肥物质科学研究院, 等离子体物理研究所, 合肥 230031;

4. 清华大学核能与新能源技术研究院, 先进核能技术协同创新中心, 先进反应堆工程与安全教育部重点实验室, 北京 100084;

5. 中核核电运行管理有限公司, 海盐 314300;

6. 天津大学机械工程学院, 中低温热能高效利用教育部重点实验室, 天津 300350

* E-mail: dzwang@sjtu.edu.cn

收稿日期: 2022-10-28; 接受日期: 2023-01-03; 网络版发表日期: 2023-05-30

国家自然科学基金(批准号: 11905305)和广东省自然科学基金(编号: 2021A1515010035)资助项目

摘要 氚是核工业发展中向环境排放的主要放射性核素之一, 且随乏燃料后处理厂、聚变堆等系统的实施, 涉氚量将大幅度增加, 可能会对环境 and 公众带来一定的辐射影响. 氚形态多样、环境行为复杂且易受环境因素影响, 需针对性开发评价系统对环境氚水平及公众辐射剂量进行准确评价. 本文系统总结了氚基本特点、不同设施涉氚特点及氚环境行为特性, 论述了氚辐射环境评价系统研发现状. 在我国先进核能与后处理技术蓬勃发展背景下, 在多形态氚的多介质环境迁移转化规律掌握、自主化氚辐射环境评价系统开发与验证、氚辐射环境评价标准体系建立等三个方面提出了研究建议.

关键词 核设施, 氚环境行为, 氚辐射评价系统

1 引言

氚(^3H 或T)具有 β 放射性, 释放的 β 射线最大能量为18.6 keV, 半衰期约12.32年. 氚属于宇生放射性核素, 即通过宇宙射线中的中子、质子与大气中 ^{14}N 、 ^{16}O 等核素的核反应产生, 这一途径使全球的天然氚维持在3.5 kg水平^[1]. 相比于天然氚极低的产生率, 自然界中的氚主要通过人工核反应产生, 包括大气核试验和运行核电厂. 20世纪60年代前后大气核试验共产生了520~550 kg氚^[2], 但这一途径随着《全面禁止核试验

条约》的推动逐渐得到控制. 当前氚主要通过核电厂运行时的核燃料三元裂变反应和中子活化反应产生^[3].

轻水堆核电厂氚产生量相对较小且主要被限制在燃料包壳内部, 低含量氚处理难度大、经济成本高, 一般会在管控范围内直接排入大气或水体环境; 重水堆核电厂氚产生量较大, 一般对氚含量较高的重水进行氚提取或贮存衰变. 一直以来, 国际放射防护委员会(International Commission on Radiological Protection, ICRP)第119号报告^[4]、我国现行标准《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》(GB18871-2002)将氚划分为

引用格式: 聂保杰, 陈德仪, 王亮, 等. 多形态氚的环境行为及辐射评价系统研究进展. 中国科学: 技术科学, 2024, 54: 15–30

Nie B J, Chen D Y, Wang L, et al. Progress on environmental behaviors and radiation assessment system of multi-form tritium (in Chinese). Sci Sin Tech, 2024, 54: 15–30, doi: 10.1360/SST-2022-0356

低毒组放射性核素,表明氚对人体的辐射影响较低.但近期越来越多的研究认为,氚作为生命基本元素氢的放射性同位素,会参与DNA合成,造成损伤,其辐射影响被低估^[5,6].在诱发随机效应方面,β射线的相对生物效能(relative biological effectiveness, RBE)为1,但大量研究认为,氚虽然释放β射线,但其RBE大于1,甚至有公开文献报道RBE可达8^[7].2018年英国曼彻斯特大学Tawn等人^[8]研究发现,氚从业人员的细胞畸变率明显增加,并建议重新审视氚的辐射剂量学标准.2021年,日本包括国立放射科学所等在内的八家机构针对日本福岛含氚废水问题,联合指出“需要部署大量研发工作来研究氚的辐射影响”^[9].从管控角度,世界各国对氚的控制标准也存在较大差别,以饮水中氚控制限值为例,世界卫生组织推荐值为10000 Bq/L,澳大利亚为76103 Bq/L,俄罗斯为7700 Bq/L,加拿大为7000 Bq/L,美国为740 Bq/L,欧盟为100 Bq/L等^[10],尚未见我国的饮水中氚控制限值.氚的基本特点及控制限值如表1所示.因此,由于存在争议性,氚一直是电离辐射科学研究中的“明星”核素.

表1 氚的基本物理化学特点

Table 1 Basic characteristics of tritium

物理量	参数	
质量比活度	3.57×10^{14} Bq/g	
衰变方式、物理半衰期	β衰变、12.32 a	
环境主要形态	HT, HTO, CH ₃ T, TFWT, OBT, 氚化金属粉尘	
辐射暴露方式	吸入(呼吸和皮肤吸收)、食入(饮水和饮食)	
待积有效剂量系数(>12岁) ^[11]	吸入HT	1.8×10^{-15} Sv/Bq
	吸入HTO	1.8×10^{-11} Sv/Bq
	吸入CH ₃ T	1.8×10^{-13} Sv/Bq
	吸入OBT	4.1×10^{-11} Sv/Bq
	食入HTO	1.8×10^{-11} Sv/Bq
	食入OBT	4.2×10^{-11} Sv/Bq
饮用水氚控制限值 ^[10]	澳大利亚	76103 Bq/L
	WHO	10000 Bq/L
	俄罗斯	7700 Bq/L
	加拿大	7000 Bq/L
	美国	740 Bq/L
	欧盟	100 Bq/L
生物半排期 ^[12]	摄取HTO的97%仍为HTO	10 d
	摄取HTO的3%转变为OBT	40 d

十四五期间,我国正积极推动高温气冷堆、熔盐堆、钠冷或铅冷快堆、乏燃料后处理厂等先进核能与后处理设施的建造,并加大聚变堆技术的研发工作.相比运行核电厂,这些核设施的涉氚特点各异,对含氚流出物的排放管理及辐射环境影响提出了新的挑战.识别气载含氚流出物的环境行为有助于准确获知氚排放带来的环境辐射影响、合理制定氚排放控制策略.本文将系统总结氚的基本物理化学特点、各类设施涉氚特点、多形态氚环境行为特性,归纳氚辐射环境评价系统的研发进展,在先进核能与后处理技术快速发展背景下,对多形态氚的多介质环境迁移转化规律掌握、自主化氚辐射环境评价系统开发与验证、氚辐射环境评价标准体系建设等方面提出了研究建议.

2 各类设施的涉氚特点

涉氚设施包括两个方面:第一、运行核电厂是当前主要产氚来源,研发的先进核能系统和聚变堆是未来主要产氚来源;第二、乏燃料后处理厂、氚提取厂

(tritium removal facility, TRF)、氚实验室, 这些涉氚设施并不生产氚, 而是来源于核电厂乏燃料、含氚废水或用氚开展科学研究. 对于乏燃料后处理厂, 密封性良好的锆基合金包壳(水堆的主流包壳材料)的燃料元件在处理时将氚释放出来, 但乏燃料后处理厂一般不进行氚提取, 而是直接排入环境; 重水堆的一回路重水(~257 t)最大氚含量可达 $10^8 \sim 10^9$ Bq/g^[13], 这是氚提取厂的主要氚来源. 加拿大和韩国分别建造了DTRF和WTRF氚提取厂进行重水氚提取, 其中加拿大DTRF提取的氚是民用和国际热核聚变实验堆(international thermonuclear experimental reactor, ITER)用氚的主要来源; 为了研究聚变堆涉氚科学与技术问题, 德国、日本等国家分别建立了氚实验室, 可进行百克量级内的氚处理工艺验证. 不同设施涉氚特点见表2和3.

2.1 运行核电厂

按冷却剂类型, 在运水冷核反应堆可分为轻水堆和重水堆.

轻水堆的产氚途径包括: 核燃料的三元裂变反应, 冷却剂中硼(^{10}B 调节反应性, 随运行从千ppm减小至数ppm)、锂(LiOH调节pH, 99.9%为 ^7Li)、氚的中子活化反应等^[14]. 核燃料的三元裂变反应是主要的产氚途径, 这部分氚仅以较小比例(~1%)通过锆基合金包壳扩散进入冷却剂中^[15], 除核燃料包壳等材料的滞留部分外, 轻水堆产生的氚通常会排放进入大气或受纳水体.

重水堆的产氚途径与轻水堆类似, 但各途径对总产氚率的贡献不同. 重水堆采用重水冷却剂, 一回路重水中氘原子的中子活化反应是主要的产氚途径, 比核燃料三元裂变反应的产氚率高出两个量级. 重水堆一回路冷却剂也会加入约3 ppm的硼酸及少量的LiOH, 重水堆一回路冷却剂中氚的含量远大于轻水堆, 高含量的含氚重水一般经氚提取厂进行氚提取或贮存衰变.

无论是轻水堆还是重水堆, 排放氚的化学形态包括单质氚(HT)、蒸气氚(HTO)和甲烷氚(CH_3T). HTO是水堆氚的主要排放形态和氚致辐射剂量的主要来源^[16]. 我国对水堆的氚排放有明确的管理排放限值^[17].

2.2 先进核能系统

四代堆是典型的先进核能系统. 美国于2000年发起“第四代核能系统国际论坛(GIF)”, GIF提出6种堆

型, 包括钠冷快堆、铅冷快堆、气冷快堆、超临界水堆、超高温气冷堆和熔盐堆. 四代堆的产氚水平主要取决于是否引入锂, 尤其是 ^6Li , 因此, 四代堆可通过控制锂的含量减小氚产生率. 但氚作为重要的战略资源, 四代堆具有大规模产氚的天然优势^[18], 如液态锂铅材料既可作为氚增殖剂, 也可作为冷却剂, 相比其他产氚堆方案, 如轻水堆产氚、加速器产氚等, 不需要引入专用的产氚技术.

熔盐堆若采用氟锂熔盐, 其氚产生率与重水堆相当. 氚的产生可能会导致材料的性能下降和放射性污染, 因此, 为降低氚的产生, 需对熔盐中 ^6Li 含量进行控制, 并通过在线除氚技术降低熔盐中氚含量^[19]. 除锂产氚因素外, 其他途径产氚与轻水堆类似.

高温气冷堆的氚产生途径除核燃料三元裂变反应, 硼、锂等中子活化反应外, 还包括特有的 ^3He 中子活化反应: $^3\text{He}(\text{n}, \text{p})^3\text{H}$. 总体来看, 高温气冷堆产氚率与轻水堆相当^[20]. 高温气冷堆采用球形燃料元件, 其中含有TRISO包覆颗粒. TRISO包覆颗粒中心是燃料核芯, 从内向外依次是缓冲层、内致密热解碳层、碳化硅层和外致密热解碳层. 得益于这种设计, 核燃料三元裂变反应产氚的释放比例更低, 但中子活化反应产氚的排放比例更高, 综合考虑三元裂变反应和中子活化反应, 高温气冷堆的氚排放水平相当或略高于轻水堆^[20].

金属快堆(钠或铅冷)多采用碳化硼作为控制棒, 其氚产生率略高于轻水堆. 此外, 相比锆基合金包壳, 不锈钢包壳由于其良好的耐腐蚀性能、较好的抗中子辐照损伤能力及优异的高温力学性能等特点, 成为快堆燃料元件包壳材料的首选^[21], 由于氚在不锈钢包壳中具有更强的渗透性(>95%)^[20,22], 快堆运行期间气载流出物中氚含量或将有所升高. 针对这一问题, 国际国内正在积极研发多种阻氚涂层材料.

先进核能系统如高温气冷堆、熔盐堆、钠或铅冷快堆等, 运行在严格控氧环境下, HT在流出物中的份额将有所提高, 或成为主要化学形态, 由于氚的高活性特点, 可能也会产生一定量的HTO、 CH_3T 及氟化金属粉尘. 目前尚未见我国对先进核能系统的氚管理排放限值.

2.3 聚变堆

聚变堆被认为是最有希望解决人类未来能源问题

表 2 不同核设施的涉氚特点

Table 2 Tritium characteristics in various nuclear facilities

类型 1 GWe	氚产生途径	产氚核反应	氚产生率 ^{a)} (×10 ¹⁴ Bq/a)	氚积存量 (Bq)	主要形态 ^{b)}	国内氚排放管理限值	
						气态	液态
轻水堆 ^[14,34]	三元裂变反应	U/Pu + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	7.3	10 ¹⁵ 量级	HTO	1.5×10 ¹³ Bq/a	7.5×10 ¹³ Bq/a
		B + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	0.4				
	中子活化反应	Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	0.1~0.2				
		D + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	0.005				
重水堆 ^[28]	三元裂变反应	U/Pu + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	7.3	10 ¹⁷ 量级	HTO	4.5×10 ¹⁴ Bq/a	3.5×10 ¹⁴ Bq/a
		B + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	极低				
	中子活化反应	Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	极低				
		D + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	749.7~928.2				
高温气冷堆 ^[35]	三元裂变反应	U/Pu + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	2.5	10 ¹⁵ 量级	HT	参考水堆	
		Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	1.0				
	中子活化反应	B + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	6.6				
		He + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	0.6				
熔盐堆 ^[36] (氟锂熔盐)	三元裂变反应	U/Pu + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	5.1	与在线处理 技术有关	HT	公开文献未见	
	中子活化反应	F + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	1.5				
		Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	395.4				
快堆 ^[37] (钠冷)	三元裂变反应	U/Pu + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	6.9	10 ¹⁵ 量级	HT	参考水堆	
	中子活化反应	B + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	16.7~18.7				
		Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	极低				
聚变堆 (氘氚聚变)	中子活化反应	Li + ¹ ₀ n → ³ ₁ H + ...	217770	10 ¹⁷ 量级	HT ^{c)}	公开文献未见	
	聚变反应	D + D → ³ ₁ H + ...	514.1				
后处理厂 ^[38]	无 (主要来源于核电厂 乏燃料的滞留氚)	取决于乏燃料处理能力			HTO	2.5×10 ¹⁵ Bq /100 tU	5.2×10 ¹⁵ Bq /100 tU

a) 不同文献中, 由于同一类型反应堆不同型号间设计差异、评估用数据如U/Pu的三裂变氚产额差异等, 表中所述具体数值可能会存在一定偏差, 但体现了不同产氚途径的份额。此外, 部分元素如Li的同位素⁶Li和⁷Li均能产氚, 统一用元素符号表示, 产生率为该元素的总产额。b) 本文提到的HT代表单质氚, 部分设施也包括DT, T₂等; HTO代表蒸气氚, 部分设施也包括DTO, T₂O等。对于先进核能系统, HT在形态中的份额理论上应高于水堆, 后续仍需加强论证。c) 聚变堆常规运行时氚排放主要有两个来源, 氚工厂和热室。两者均是经过处理后的氚, 可能仍以HTO形态为主; 但对于事故工况, 可能存在高份额HT释放。

的根本出路之一, 氘氚聚变反应是最有望率先实现商业应用的聚变反应。氚在自然界中含量极少, 聚变堆需要解决首炉氚燃料和运行氚自持问题。聚变堆用氚主要通过锂(主要为⁶Li)的中子活化反应产生。据评估,

按氚增殖比为1.1、氚燃烧份额为1%、燃烧可用度为80%, 1 GW聚变功率的聚变堆年氚产生量约为48.9 kg、在线氚积存量将达千克量级、年氚循环量(从托卡马克大厅进入氚工厂的年累积通量)将达

表 3 国际典型氚实验室和氚提取厂

Table 3 International typical tritium laboratories and tritium removal facilities

类型	名称	服务目的	氚来源	氚许可量	在线最大氚量
氚实验室	德国TLK ^[31]	聚变和基础物理	加拿大重水堆	40 g	25 g
	日本TPL ^[32]	聚变	美国产氚堆 加拿大重水堆	62 g	36 g
	美国TSTA ^[30]	聚变	公开文献未见	200 g	140 g
	加拿大CRNL ^[39]	重水堆和聚变	加拿大重水堆	未见	100 g
	英国H3AT	聚变	加拿大重水堆	~200 g 2018年开建, 预计2024年建成	
军事目的	美国SRS ^[30]	核武器	美国产氚堆	~8000 g	未见
	名称	目的	运行时间	运行可用度	氚提取总量
氚提取厂	加拿大DTRF ^[28]	重水堆氚提取处理 (30 Ci/kg)	1988~ (设计30年)	65%	1000~2000 g/a
	韩国WTRF ^[29]	重水堆氚提取处理 (10~60 Ci/kg)	2007~ (设计40年)	68.1% (2007~2018)	8151.3 g (2007~2018)
	罗马尼亚CTRF ^[13]	重水堆氚提取处理 (10~54 Ci/kg)	在建 (设计40年)	≥80%	—

5566 kg。聚变堆涉氚量的大幅度增加, 将为氚安全防护带来前所未有的挑战, 氚安全是聚变辐射安全关注的核心问题^[23]。

对于聚变堆, 常规运行时, 氚排放主要来自于氚工厂和热室, 氚的排放形态可能主要为HTO, 但真空室和工艺系统中主要以HT的形态存在, 事故工况时, 存在高份额HT排放风险。从现有聚变装置的运行经验来看, 氚还会与面向等离子体材料产生的粉尘相结合形成氟化金属粉尘, 如氟化钨粉尘、氟化铍粉尘等。目前尚未见我国对聚变堆的氚管理排放限值。国际层面上, ITER国际组织对气态氚的管理排放限值控制为: 常规运行年份为 2.2×10^{14} Bq/a, 大修年份为 9×10^{14} Bq/a; 对液态氚的管理排放限值控制为 2.0×10^{11} Bq/a^[24]。ITER作为通向聚变能工程应用的重要一步, 在燃烧可用度、氚操作量等方面都远低于聚变工程试验堆和聚变电站。因此, ITER氚管理排放限值能否直接应用于未来聚变堆有待论证。

2.4 乏燃料后处理厂

乏燃料后处理厂本身不发生核反应, 而是在乏燃料后处理中将氚进行释放, 因此, 乏燃料后处理厂的涉氚能力与乏燃料的处理量线性相关。一座年处理量为1400 t重金属的商业规模轻水堆乏燃料后处理厂, 年涉氚量约为 $1.85 \times 10^{16} \sim 3.7 \times 10^{16}$ Bq^[25]。目前在运

的商业后处理厂均是基于湿法Purex流程开展的, 乏燃料中约89.5%的氚会进入溶解液中, 约0.5%进入中溶解尾气中, 约10%仍滞留在锆合金包壳中(不溶于硝酸溶液, 废包壳一般被送去固体废物处理处置)^[25]。乏燃料后处理厂的氚主要以液态形式存在, 在良好受纳水体和公众接受度情况下进行水体排放。以法国阿格后处理厂(La Hague reprocessing plant)为例, 作为目前世界在运最高处理能力的商业规模乏燃料后处理厂, 其年处理量最高可达1700 t重金属, 年液态氚排放量高达 1.27×10^{16} Bq (2012~2017年均数据)^[26], 年气态氚排放量为 6.42×10^{13} Bq (2004~2008年均数据)^[27], 该后处理厂年氚排放量约为431个百万千瓦锆基包壳轻水堆氚排放总和^[20]。我国在《核燃料循环设施流出物归一化排放量管理限值》国家标准征求意见稿中对乏燃料后处理设施流出物的归一化排放量管理限值进行了规定, 如表2所示。

2.5 氚提取厂

对于轻水堆核电站, 氚产生量较低, 提取的经济成本过高, 一般不进行提取, 氚提取厂主要用于回收重水堆核电站一回路冷却剂中的氚。截至2022年12月底, 国际在运重水堆机组共48台(含暂时关停1台)、在建3台(均在印度)、永久关停10台, 其中, 在运机组中加拿大和印度各19台、韩国和阿根廷各3台、罗马尼亚和中

国各2台。据文献报道, 仅加拿大和韩国拥有两座氚提取厂DTRF和WTRF进行氚分离提取, 罗马尼亚正在建造氚提取厂CTRF^[13]。加拿大从重水堆中提取的氚将是ITER用氚(~12.3 kg)的重要来源^[28], 此外, 加拿大每年还售卖100~200 g氚用于商业活动。韩国自2007年运行WTRF以来, 截至2018年底, 共提取氚8151.3 g, 年均运行因子为68.1%^[29]。

除商用外, 美国、俄罗斯等国分别将含锂靶件插入商业轻水堆或特殊用途核反应堆来产氚, 进行氚提取用于军事目的。以美国为例, 氚处理主要在萨凡纳河厂址(Savannah River Site, SRS)进行, 在线最大氚操作许可量可达8 kg^[30], 如表3所示。

2.6 氚实验室

聚变堆将面临前所未有的大量级氚处理, 且聚变堆氚主要以气态单质形式进行循环处理, 必须开发与之匹配的氚处理技术。基于聚变氚技术需求, 德国卡尔斯鲁厄理工学院(KIT)和日本原子能机构(JAEA)分别建造了TLK(Tritium Laboratory Karlsruhe)和TPL(Tritium Process Laboratory)实验室, 这两个实验室的在线氚最大操作许可和实际氚操作量均在百克以内^[31,32]。美国洛斯·阿拉莫斯国家实验室(LANL)建造的TSTA(Tritium Systems Test Assembly)在实验室级别中氚操作许可量达到了200 g, 实际在线氚量达到了140 g^[30]。此外, 自聚变研究以来, 美国的TFTR(Tokamak Fusion Test Reactor)装置和欧洲的JET(Joint European Torus)装置先后投入上百克氚开展了氚气聚变实验, 实现了10 MW级别聚变功率, 也都实现了百克氚的处理^[33]。基于JET氚处理经验, 英国卡拉姆聚变能研究中心自2018年开始建造闭式氚循环研究设施H3AT, 约为ITER氚工厂规模的1/20, 预计2024年建成, 涉氚量约为200 g。

综上可知, 不同设施的涉氚特点存在较大区别: 在氚产生途径方面, 随着熔盐堆、快堆、聚变堆等的研发, 氚产生量将逐渐增加, 对氚处理与安全防护技术提出了新挑战; 在氚排放量方面, 乏燃料后处理厂的氚排放与乏燃料的处理能力有关, 远高于在运核电厂, 需要格外关注, 大量级氚循环量及在线积存量也为聚变堆的氚排放带来了极大挑战, 应特别关注聚变堆事故工况下(如失真空事故、失冷事故等)气载氚的泄露风险; 在流出物氚形态方面, 由于氚的高活性特点, 不

同设施排放氚可能同时含有HT, HTO, CH₃T, 氚化粉尘等混合形态, 但HTO仍是核电厂、后处理厂等关注的主要形态, HT在先进核能系统及聚变堆(尤其事故工况)中需要特别关注, 新型反应堆排放氚的形态仍需进行深入论证; 从我国对氚排放的管理限值方面, 目前分别针对在运轻水堆、重水堆和乏燃料后处理厂从国家标准层面制定了排放管理限值, 先进核能系统及聚变堆中, 对于与水堆涉氚特点相当的堆型, 如高温气冷堆、金属快堆, 可参考水堆的排放管理限值, 但对于涉氚量明显高于水堆的情况, 如熔盐堆、聚变堆等, 或应根据氚在流出物总放射性占比, 在剂量限值约束下, 综合考虑经济性和辐射安全性, 在标准层面制定新的排放管理限值。

3 多形态氚环境行为

气载含氚流出物的环境行为主要包括: 大气扩散、土壤迁移转化、食物链转移及人体吸收代谢等。如图1所示, 与其他核素相比, 多形态氚的环境行为特性主要表现在下述几个方面。

3.1 大气扩散

核设施排放氚的形态主要有单质氚、蒸气氚、甲烷氚和氚化金属粉尘等。蒸气氚在高湿度环境下可能转变为液滴氚(粒径较小的液滴可长时间悬浮在空气中, 也称为气溶胶, 粒径较大的液滴会出现明显的重力沉降, 本文将两者统称为液滴氚), 如云或雾的形成, 因此, 按物理化学形态划分, 大气中可能存在的氚形态包括单质氚、蒸气氚、液滴氚、甲烷氚和氚化金属粉尘等。

气态HT, HTO, CH₃T密度均比空气低, 高质量分数排放时会出现不同程度的浮力上升现象: 对于常规流出物, 流出物中气态氚含量较低, 浮力上升效应不明显; 对于事故工况, 流出物中气态氚含量可能较高, 尤其与氢气混合下低密度气流。例如, 福岛第一核电厂产生的数百公斤氢气, 质量分数越高, 浮力效应越明显, 同等质量分数下单质氚的浮力效应大于蒸气氚和甲烷氚。浮力上升效应将使近地表氚含量降低。

据评估, 粒径大于20 μm的液滴氚会出现明显的重力沉降^[40], 重力沉降速度随粒径的增加而增加, 因此流出物若出现较大的粒径液滴氚, 或将主要沉降于近

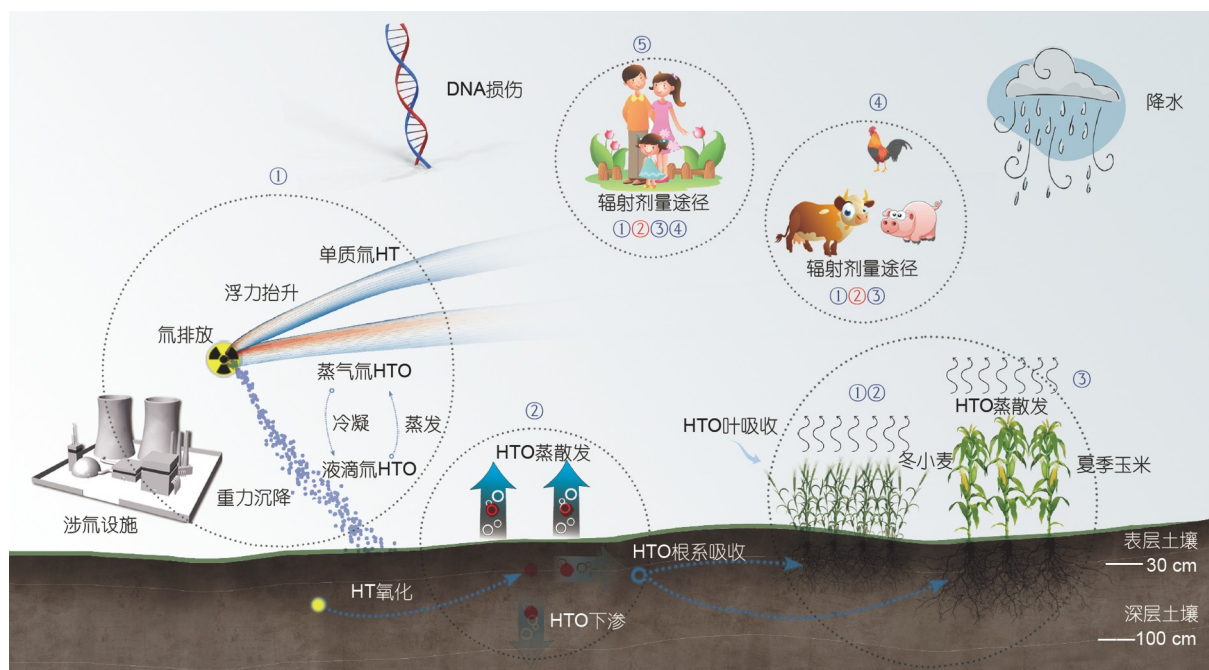


图 1 (网络版彩图)多形态氚环境迁移转化特点及辐射剂量途径

Figure 1 (Color online) Environmental behaviors and radiation exposure pathways of multi-form tritium.

厂区土壤环境中,造成局部氚浓度的增加.此外,研究表明,氚化金属粉尘如聚变堆中氚化钨粉尘粒径谱从纳米到数十微米级都可能存在^[41],部分氚化金属粉尘同样会存在重力沉降现象.

不同形态氚的浮力或重力沉降将导致大气扩散的差异,扩散中形态的动态变化将改变原有大气扩散轨迹,最终导致释放一次烟羽的近地表浓度分布水平及辐射剂量评估偏差.

此外,多形态氚的大气扩散行为,除浮力抬升和干沉降外,湿沉降行为也存在较大差异,溶解度的差异导致液滴氚最易沉降、其次是蒸气氚,单质氚的湿沉降行为常忽略不计.上述特性可能是部分氚水平测量研究认为厂址周边区域土壤氚水平与释放源距离无明显相关性的原因^[42].

3.2 土壤迁移转化

对于HT释放源,由表1可知,吸入HTO的待积有效剂量系数是吸入HT的 10^4 倍,在辐射剂量评价中,同等氚排放源项所致公众个体辐射剂量小于 10^4 倍,部分文献报道约为 10^2 倍^[3],除HT和HTO大气扩散的浮力或重力沉降的差异外,主要取决于土壤中HT的氧化及氧化

产物HTO的蒸发现象.主流观点认为,与空气中氧化现象(氧化率约 10^{-5} h^{-1})相比^[43],土壤微生物作用下HT的氧化率更大,单质氚在浅层土壤的氧化率如表4所示.研究表明,这一氧化率与微生物含量、土壤基质浓度、土壤含水量、土壤温度、土壤酸碱度等相关^[44].被氧化的HTO在降水、土壤类型、植物根系吸收、蒸散发等因素影响下,部分HTO会随水分蒸散发从土壤或植被进入近地表空气中,形成二次烟羽,这一途径所致辐射剂量明显高于HT一次烟羽所致辐射剂量^[45].

对于HTO释放源,从大气沉降至土壤后,会在降水作用下“自上而下”迁移,表层土壤中的HTO会在蒸散发作用下“自下而上”迁移^[46].除降水、蒸散发因素外,氚在土壤中迁移还会受到土壤类型的影响,相比黏土类土壤,砂质土壤疏水性强、持水性差,迁移速度更大.总体来说,氚在土壤中的迁移速度明显大于其他金属类放射性核素,如铯^[47].究其原因,铯会发生土壤物理化学吸附,尤其是黏土性矿物,而氚主要存在于土壤液态水中,会随土壤水流移动.

与HTO释放源相比,HT在土壤中的行为更加复杂,但从目前在运的核设施来看,HTO依旧是主要的

表 4 单质氚的浅层土壤氧化率实验

Table 4 Oxidation experimental results of HT in the shallow soil layer

实验场景 ^{a)}		土壤氧化率
土壤采样实验室实验	美国某区域土壤 ^[50]	20%/h
	美国后处理厂土壤 ^[51]	12%~66% (0.6~5.4 h)
	森林草甸土	19.6%/min
	日本茨城和宫崎土壤 ^[52]	水稻土 3.8%/min
		旱稻土 5.8%/min
	日本茨城松林土壤 ^[53]	29.3%/h
	日本国立聚变科学研究所Toki厂土壤 ^[54]	0.6756%/min
	加拿大达灵顿核电厂土壤 ^[55]	0.19% 暴露13.6 min, 暴露后24 h测量
	设施运行排放实验	0.00028% 暴露0.5 h, 暴露后数小时测量
		0.00015% 暴露0.5 h, 暴露后2 h测量
		0.00011% 暴露12 h, 暴露后立刻测量
大气释放示踪实验	加拿大恰克河实验室土壤 ^[56]	1.5%/h

a) 采样实验一般是通过将厂址周边土壤取回, 经过前处理, 在手套箱中开展实验室实验, 这种方法易控制环境条件, 但可能破坏了土壤固有特征; 设施运行排放和大气释放示踪实验是直接目标厂址土壤开展, 保留了土壤固有特征, 但难以控制和获知影响结果的边界条件. 浅层土一般取0~5 cm.

释放源, 并且从长期来看, 进入环境中的HT最终都会转化为HTO, 因此, 在评估氚的危害及环境监测时一般都使用HTO. 但对于未来特殊堆型如聚变堆, 依旧存在大量级HT事故释放风险, 应尽早关注HT的转化行为及其事故危害.

作为氚独有的辐射暴露途径, 土壤中HTO蒸散发二次烟羽所致辐射剂量是目前氚辐射剂量评价存在不确定度的原因之一. 源于非主导形态和较低的辐射毒性, 鲜见对CH₃T土壤行为研究的报道.

3.3 食物链转移

植物的吸收代谢是氚向食物链转移的重要环节. 植物对氚的吸收究竟主要来自空气氚还是土壤氚一直存在不同观点. 为研究水分传输, 澳大利亚水文与土壤物理学家Philip于1966年提出“土壤-植物-大气连续体(soil-plant-atmosphere continuum, SPAC)”概念, 即土壤水分通过植物根系吸收、导管传输、蒸腾作用进入大气层, 大气降水进入土壤再次被植物吸收, 从而形成水分传输体系^[48]. 这一模型有助于研究HTO的植物吸收和蒸散发行为. 但仍需进一步论证因氚的同位素交换

效应所致植物对空气氚的吸收份额.

吸收进入植物体的HTO与组织自由水结合形成组织自由水氚TFWT, 除大部分通过蒸腾作用散发到空气中, 部分会在光合作用下参与有机物的形成, 形成有机氚OBT, 植物体内的TFWT和OBT是氚在食物链传递的主要形态^[49].

动物对氚的吸收代谢则相对明确, 从食物链角度, 主要考虑家禽如鸡鸭鹅、家畜如猪牛羊通过吸入和食入途径进入动物体, 经水分、有机物代谢, 可获得动物体内TFWT和OBT的动态分布.

3.4 人体吸收代谢

大气和土壤中氚经食物链途径转移至粮食作物、果蔬、肉蛋等食物中, 最终, 氚经呼吸与皮肤吸收、食入途径进入人体产生内照射, 人体所受辐射剂量可根据摄入氚活度与待积有效剂量系数进行估算. 氚辐射剂量评价中, 除常规的释放烟羽所致呼吸与皮肤吸收剂量外, 还要考虑下垫面(土壤和植被)蒸散发烟羽所致辐射剂量. 如表1所示, 人体HTO的生物半排期为10天, OBT的生物半排期为40天^[12], 据此可以估算, 连续

摄入或短期摄入多形态氙后人体内氙浓度的动态变化, 对于职业人员, 常根据尿氙估算人体摄入氙的活度及所致剂量。

4 氙辐射环境评价系统

氙形态多样、处理难度大、排放活度高、环境行为复杂, 需针对多形态氙的环境行为特性开发评价系统实现辐射剂量的准确评价。

国际合作层面, 最具代表性的是由国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)组织的放射性环境研究体系, 如1985~1996年期间的生物圈模型验证研究项目(BIOMOVs I/II), 1996~2001年期间的生物圈模型与评价项目(BIOMASS), 2003~2007, 2009~2011年期间的辐射安全环境模型项目(EMRAS I/II), 2012~2015, 2016~2019年期间的放射性影响评价模型及数据开放、测试与协调项目(MODARIA I/II), 及现阶段正组织的放射性和环境影响评定方法项目(MEREIA)。尤其在EMRAS计划下, 成立了第七工作组(WG-7(氙和碳14工作组)), 开展了气态氙辐射环境评价系统的联合验证研究, 在统一例题下, 用于事故短期排放的评价系统输出结果不确定度较大, 甚至相差两个数量级^[57], 如图2所示。MODARIA I的WG-7继续围绕事故氙排放开展了评价系统不确定性研究, 后续MODARIA II的WG-3特别研究了真实厂址环境下的不确定性问题^[58]。

在IAEA国际合作项目框架下, 德国、罗马尼亚、日本、法国、加拿大、美国、英国、韩国等先后开发了气态含氙流出物的辐射环境评价系统, 这些系统特点见表5。德国KIT的Raskob^[59]最早在20世纪90年代针对常规运行和事故工况氙排放的大气扩散、土壤蒸发、食物链转移及剂量评价分别开发了NORMTRI和UFOTRI系统^[60], 该系统被用于早期ITER厂址无关阶段氙辐射环境评价。同时期加拿大原子能有限公司(AECL)的Russell和Ogram^[61]针对重水堆氙排放的辐射环境评价开发了ETMOD系统。21世纪初期美国劳伦斯·利弗莫尔国家实验室(LLNL)的Peterson^[62], Humann和Aluzzi^[63]开发了用于评价常规运行氙排放的多介质环境氙浓度及剂量评价系统DCART, 以及用于评价事故工况氙排放的辐射剂量评价系统HotSpot。英国剑桥大学Jeffers和Parker^[64]针对常规运行和事故工况氙排

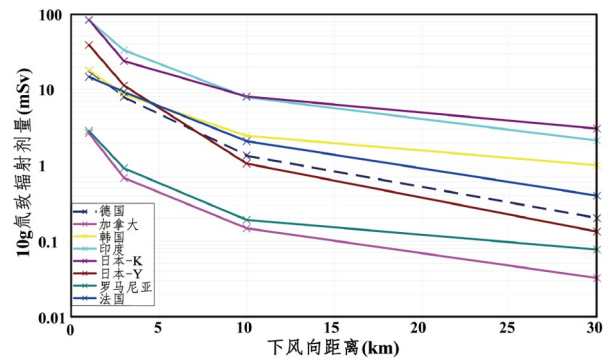


图2 国际8个模型在EMRAS统一例题下的测试结果

Figure 2 Verification results of eight models under benchmark scenario in the frame of IAEA-EMRAS project.

放开发了大气扩散、食物链及剂量评价系统TERM。法国原子能委员会(CEA)开发了用于评价事故氙释放的环境氙浓度及剂量评价系统CERES, 该系统被用于ITER厂址阶段氙辐射环境评价。这类系统的核心是在经验化基础上建立起来的比活度模型, 模型进行了大量简化和经验赋值, 难以追踪复杂瞬变环境因素下氙的环境动态分布特征。

近些年, JAEA的Ota等人^[65]针对氙排放的大气-土壤-植物耦合迁移过程开发了SOLVEG系统。加拿大AECL的Korolevych和Kim^[66]以及法国辐射防护与核安全研究所(IRSIN)的Dizès等人^[67]围绕土壤-植物氙转化过程分别开发了CTEM-CLASS-TT和TOCATT- χ 。相比早期的评价系统, 这类系统采用箱体模型(一阶动力学模型)或CFD方法模拟氙的环境行为, 丰富了环境介质氙输运模拟方法, 更多考虑了复杂多变环境因素对氙输运行为的影响, 如SOLVEG-II系统考虑了土壤的气体输运或水流运移模型。因此, 近期研究人员意识到需要对传统经验模型进行精细化处理, 引入数值模型, 但现存评价系统目前还限于单一形态氙和部分介质研究, 针对多形态氙转化、跨介质迁移等复杂行为需进一步研究。

由此可以看出, 国际上主要国家均针对氙开发了环境迁移转化及辐射剂量评价系统, 并且近些年正逐渐对系统涉及的经验或比活度模型进行细化, 采用数值模型更精细化考虑环境多因素对氙迁移转化的影响, 并重点关注评价中的不确定性问题。

国内在氙分离提取技术、氙测量、土壤和作物氙水平表征等方面开展了系列研究^[68,69], 在多形态氙的

表 5 典型氚辐射环境评价系统特点

Table 5 Characteristics of international typical tritium radiation environmental assessment systems

评价系统	开发机构	环境介质	适用情形
NORMTRI ^[59]	德国KIT	大气-土壤-食物链及剂量评价	常规运行HT, HTO排放
UFOTRI ^[60]	德国KIT	大气-土壤-食物链及剂量评价	事故HT, HTO释放 用于ITER厂址无关阶段氚事故分析
ETMOD ^[61]	加拿大AECL	大气-土壤-食物链及剂量评价	事故HT, HTO释放
DCART ^[62]	美国LLNL	大气-土壤-食物链及剂量评价	常规运行HTO排放
HotSpot ^[63]	美国LLNL	大气及剂量评价	事故HT, HTO释放
TERM ^[64]	英国CHU	大气-土壤-食物链及剂量评价	常规运行或事故HT, HTO释放
SOLVEG-II ^[65]	日本JAEA	大气-土壤-植物	事故HTO释放
CTEM-CLASS-TT ^[66]	加拿大AECL	土壤-植物	事故HTO释放
TOCATTA ^[67]	法国IRSN	土壤-食物链及剂量评价	常规运行或事故HTO释放
CERES ^[70]	法国CEA	大气-土壤-食物链及剂量评价	事故HT, HTO释放 用于ITER厂址阶段氚事故分析

多介质环境迁移转化规律基础研究方面仍相对滞后,关于自主化氚辐射环境评价系统的开发及验证工作尚不多见。

5 研究建议

30余年, IAEA特别针对氚的环境行为及辐射影响评价系统发起了多个国际合作计划, 国际上主要国家均以气态含氚流出物为对象开展了一些基础研究并开发了辐射环境评价系统。这些评价系统相比无核素差异化的通用系统更多考虑了氚的特性, 一定程度上提升了氚辐射剂量评价的准确性。但部分科学问题仍未得到解答, 多形态多介质迁移转化的精细化模型仍未建立, 实际工程应用中缺乏统一的评价标准, 统一例题下评价仍存在高达两个量级的不确定度^[57]。这些都增大了氚安全管理的难度: 排放控制过低会制约核能发展, 过高会对环境和公众产生一定辐射影响。未来工作建议着重开展下述研究。

5.1 多形态氚的多介质环境迁移转化规律掌握

大气扩散方面, 除目前关注的热羽抬升和动力抬升外, 应与排放工艺相结合, 关注流出物中氚的形态及含量, 研究单质氚的浮力抬升规律, 变化大气温湿度对蒸气-液滴氚的物理形态变化影响, 液滴氚和氟化金属粉尘的重力沉降规律; 研究单质氚、蒸气氚和液

滴氚的湿沉降差异, 验证经典冲刷模型在多形态氚湿沉降的适用性; 研究下垫面特征和气象因素对蒸散发二次烟羽扩散的影响特点, 从而掌握复杂多变环境中多形态氚所致近地表浓度分布差异性规律。

土壤迁移转化方面, 研究气象因素和土壤成分对氚土壤迁移的影响机制; 研究微生物作用下土壤多形态氚的转化机理, 一般认为, 土壤HT在微生物作用下会被氧化成HTO, 但从文献报道数据来看, 实验室实验与野外原位实验获得的土壤氧化率差异较大, 如表4所示, 可能是由空气氚浓度控制、土壤结构、微生物含量等因素引起。但鲜见土壤多因素对HT氧化率的影响规律及模型的深入研究; 还有研究认为, 土壤HTO在微生物作用下也可被转化为OBT^[71]。微生物作用下土壤HT-HTO-OBT多形态间转化机理有待进一步揭示。

食物链转移方面, 重点关注植物吸收及代谢, 结合植物生长习性, 研究植物对氚吸收及代谢的连续动态变化规律, 阐明多环境因素下不同类型植物的大气、土壤氚吸收及形态转化机制。目前, 虽然开展了一些植物氚吸收与代谢实验研究, 但这些实验数据在时间尺度上关联度不足, 难以反映动态环境因素对植物氚吸收与代谢影响规律, 不同植物对空气和土壤氚吸收或释放规律仍不够清晰。

此外, 还应重点研究多形态氚在跨介质的界面迁移问题, 如气态氚在大气-土壤界面、大气-水体界面的传输, 获得传质系数, 从而掌握氚在气液界面的传

质规律并建立模型. 研究氚自包气带土壤至含水层的迁移规律, 为部分区域饮水剂量评价提供精细化模型.

5.2 自主化氚辐射环境评价系统开发与验证

除掌握多形态氚的多介质环境迁移转化规律外, 我国目前在自主化氚辐射环境评价系统开发方面工作相对滞后, 在核设施氚辐射剂量评价中多采用无核素差异化的通用评价系统或基于比活度模型开展, 这些模型在核设施运行阶段配合现场调查实验监测数据具有一定的可靠性^[72,73], 但在缺乏现场调查实验监测数据时(如选址阶段、建造阶段等)难以反映氚的特性, 存在较大不确定度. 随着我国乏燃料后处理厂、聚变堆等实施, 涉氚量将大幅度增加, 氚辐射安全研究至关重要. 建议尽早部署自主化氚辐射环境评价系统的开发工作, 上海交通大学联合国内相关单位在氚辐射环境评价系统CTEAS(Chinese Tritium Environment Assessment System)的开发思路如图3所示. 该系统包

括快速评价模块和数值精细评价模块, 其中, 快速评价模块主要基于修正比活度模型开展, 即考虑经验赋值和数值模型比对给出的相关修正, 由于计算方便、快捷, 且具有一定国际认可度的特点, 推荐用于含氚流出物的环境影响评价和事故早期应急支撑等. 数值精细评价模块虽然计算耗时较长, 但能反映实际环境因素对评价结果的影响, 推荐用于复杂环境场景的评价和中后期事故后果评价等.

多形态氚的多介质环境迁移转化规律复杂, 影响因素多, 应对氚辐射环境评价系统开展全方位的验证, 建议结合典型厂址连续采样的原位实验和风洞-土柱-盆栽等生态实验室实验开展验证, 对于原位实验, 氚排放源项数据、气象等数据往往难以获取, 可结合风洞实验开展复杂气象、下垫面影响下多形态氚的大气扩散与沉降模型的验证, 通过长周期连续采样原位实验获得空气氚浓度变化, 对氚的土壤迁移转化及作物吸收代谢模型进行验证. 此外, 结合风洞-土柱-盆栽等生

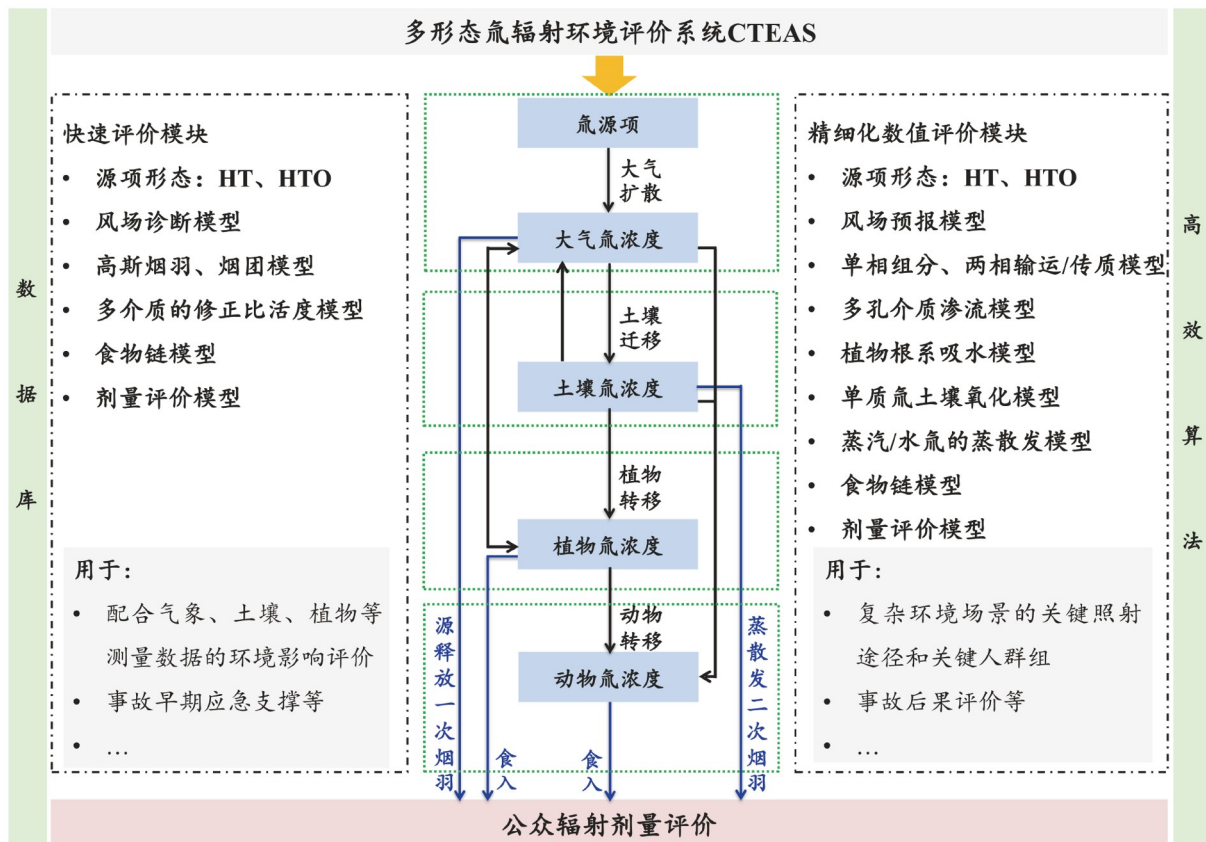


图3 (网络版彩图)多形态氚辐射环境评价系统CTEAS研发

Figure 3 (Color online) Research and development plan for Chinese tritium environment assessment system (CTEAS).

态实验室实验验证单一或多因素对氚迁移转化的影响模型, 从而降低评价系统的不确定度.

5.3 氚辐射环境评价标准体系建立

由于氚的特殊性, 如表6所示, 我国早在20世纪就针对氚建立了系列标准, 如氚内照射剂量估算与评价方法、水中氚的分析方法、尿中氚的分析方法、用于辐射防护的空气中氚的测量和监测设备等, 这些标准在评估职业人员氚致辐射剂量、环境氚水平测量等方面提供了重要的方法支撑, 但针对含氚流出物的多介质环境氚浓度及所致剂量评价方法等相关标准尚未建立.

在放射性流出物的辐射环境影响评价中, 先后建立了多项针对核电厂运行状态和事故工况下放射性流出物辐射环境影响评价技术规范等标准, 这些标准从源项、气象数据、大气弥散因子计算、食品中放射性浓度计算、辐射剂量计算等方面进行了详细的设定, 使得辐射环境影响评价更加客观、规范化. 对于氚的辐射环境影响评价, 部分标准假定作物水中氚浓度与空气水中氚浓度具有平衡关系, 推荐比活度模型进行计算. 根据国际十余个模型的对比, 这种计算方法可能会引起两个量级的不确定度^[57].

随着多形态氚的多介质环境迁移转化规律掌握, 自主化氚辐射环境评价系统开发与验证等工作的不断

表 6 放射性流出物辐射环境评价与氚的部分现行标准

Table 6 Typical active standards related with tritium and radiation environment assessment of radioactive effluents

分类	标准名称	标准类型	实施时间	范围
氚	氚内照射剂量估算与评价方法	核行业标准 EJ/T 287-2000	2001-01	规定了氚水的内照射剂量估算方法和评价方法. 适用于辐射工作人员的氚水内照射剂量估算及评价.
	尿中氚的分析方法	核行业标准 EJ/T 1047-1997	1997-12	规定了氧化蒸馏、液体闪烁计数法测定尿中氚的方法. 适用于尿中总氚的分析, 尿中总氚含量在 $7.0 \times 10 \sim 7.5 \times 105$ Bq/L时均可使用.
	水中氚的分析方法	环境保护标准 HJ 1126-2020	2020-04	规定了水中氚的分析方法. 适用于地表水、地下水、饮用水和海水等环境水体中氚的分析, 对于核设施液态流出物中氚的分析, 也可参照使用.
	用于辐射防护的空气中氚的测量和监测设备	核行业标准 EJ/T 1077-1998	1998-11	规定了空气中氚的测量和监测设备的技术要求、试验方法和检验规则等. 适用于为辐射防护目的的工作场所用的各类空气中氚的测量和监测设备.
放射性流出物	核电厂运行状态下气载放射性流出物辐射环境影响评价技术规范	能源行业标准 NB/T 20181-2012	2013-03	规定了核电厂运行状态下气载放射性流出物排放辐射环境影响评价的内容、方法 and 要求. 适用于核电厂选址、建造和运行各阶段辐射环境影响评价.
	核电厂事故工况气载放射性物质释放辐射环境影响评价技术规范	能源行业标准 NB/T 20182-2012	2013-03	规定了核电厂选址假想事故和设计基准事故工况下气载放射性物质释放辐射环境影响评价的内容、方法 and 要求. 适用于核电厂选址、建造和运行等阶段事故工况下的辐射环境影响评价.
	反应堆放射性流出物常规排放所致公众剂量的估算方法	能源行业标准 NB/T 20186-2012	2013-03	提出了反应堆放射性流出物常规排放所致公众剂量的估算方法. 适用于反应堆放射性流出物常规排放所致公众剂量的估算. 其他核设施的放射性流出物常规排放所致公众剂量的估算也可参照执行.
	核事故应急情况下公众受照剂量估算的模式和参数	国家标准 GB/T 17982-2018	2018-12	提出了核事故应急不同阶段依据应急辐射监测数据(或由烟羽扩散模式导出的相应数据)估算公众受照剂量的模式和参数. 适用于核事故应急情况下公众受照辐射剂量的估算和评价. 核设施正常运行情况下公众受照剂量的估算和评价也可参考应用.

深入, 应尽早建立氚辐射环境评价标准体系, 从而降低评价的不确定度.

6 结语

氚是核工业发展过程中向环境排放的主要放射性核素之一. 与其他放射性核素相比, 氚形态多、活性强、环境行为复杂, 经食物链途径广泛存在于作物和动物的组织自由水和有机物中, 被人体吸入和食入后产生内照射, 可能会造成人体DNA损伤, 产生一定的辐射影响.

针对多形态氚的复杂环境行为及辐射影响, 本文系统梳理了不同设施涉氚特点, 重点介绍了多形态氚的环境行为特性, 评述了氚辐射环境评价模型的进展, 最后在我国先进核能与后处理技术大力发展的背景下, 提出了发展建议: 应加强多形态氚在多介质环境迁移转化规律的基础研究, 加快开发具有自主知识产权的氚辐射环境评价系统, 并建立氚辐射环境评价方法的标准体系, 使我国具备氚辐射环境影响评价能力, 优化氚排放策略, 服务于先进核能系统、乏燃料后处理厂、聚变堆等的氚排放控制及辐射环境影响评价.

参考文献

- 1 Michel R L. Tritium inventories of the world oceans and their implications. *Nature*, 1976, 263: 103–106
- 2 Oms P E, Bailly du Bois P, Dumas F, et al. Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016. *Sci Total Environ*, 2019, 656: 1289–1303
- 3 Nie B, Fang S, Jiang M, et al. Anthropogenic tritium: Inventory, discharge, environmental behavior and health effects. *Renew Sustain Energy Rev*, 2021, 135: 110188
- 4 ICRP. Compendium of dose coefficients based on ICRP publication 60. Vol. 41. Report, 2012
- 5 Peng S M, Chen Z L, Zhou X S. Progress and prospects on tritium safety for fusion energy (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2022, 52: 222021 [彭述明, 陈志林, 周晓松. 聚变能源中氚安全研究进展及展望. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2022, 52: 222021]
- 6 Li S R, Cui F M, Liu Y L, et al. Advances in research on carcinogenic, mutagenic and teratogenic effects of tritiated water (in Chinese). *Radiat Protect Bull*, 2019, 39: 32–35 [李圣日, 崔凤梅, 刘玉龙, 等. 氚水致癌、致突变和致畸效应研究进展. 辐射防护进展, 2019, 39: 32–35]
- 7 Little M P, Lambert B E. Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. *Radiat Environ Biophys*, 2008, 47: 71–93
- 8 Tawn E J, Curwen G B, Riddell A E. Chromosome aberrations in workers occupationally exposed to tritium. *J Radiol Prot*, 2018, 38: N9–N16
- 9 Matsumoto H, Shimada Y, Nakamura A J, et al. Health effects triggered by tritium: How do we get public understanding based on scientifically supported evidence? *J Radiat Res*, 2021, 62: 557–563
- 10 CNSC. Standards and guidelines for tritium in drinking water. Ottawa: Canadian Nuclear Safety Commission, 2008
- 11 General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Basic standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources (in Chinese). GB 18871-2002, 2002-10-08 [国家质量监督检验检疫总局. 电离辐射防护与辐射源安全基本标准. GB 18871-2002, 2002-10-08]
- 12 State Administration of Science, Technology and Industry for National Defence. Dose estimation and assessment method for internal exposure of tritium (in Chinese). EJ/T 287-2000, 2000-09-20 [国防科学技术工业委员会. 氚内照射剂量估算与评价方法. EJ/T 287-2000, 2000-09-20]
- 13 Stefan L, Trantea N, Bornea A, et al. Cernavoda tritium removal facility: A key tritium supplier for future fusion facilities. *Fusion Eng Des*, 2019, 146: 1505–1509
- 14 Fu P T, Dai M L, Zhu Z W, et al. Study of annual tritium discharge in pressurized water reactor based on historical data (in Chinese). *High Power Laser Particle Beams*, 2022, 34: 026009 [付鹏涛, 代明亮, 祝兆文, 等. 基于运行反馈的压水堆氚排放量研究. 强激光与粒子束, 2022, 34: 026009]
- 15 Li H, Mei Q L, Fu Y R. Analyses of generation and release of tritium in nuclear power plant (in Chinese). *Atom Energy Sci Technol*, 2015, 49: 739–743 [黎辉, 梅其良, 付亚茹. 核电厂氚的产生和排放分析. 原子能科学技术, 2015, 49: 739–743]
- 16 Xu Q S, Qin L L, Xia Z H, et al. Distribution of atmospheric multi-forms tritium in the vicinity of Qinshan nuclear power plants (in Chinese). *Nuclear Technique*, 2019, 42: 53–58 [徐庆松, 秦来来, 夏正海, 等. 秦山核电基地大气多形态氚的分布. 核技术, 2019, 42: 53–58]
- 17 Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, General Administration of Quality Supervision, Inspection and

- Quarantine of the People's Republic of China. Regulations for environmental radiation protection of nuclear power plant (in Chinese). GB 6249-2011, 2011-2-18 [环境保护部、国家质量监督检验检疫总局. 核动力厂环境辐射防护规定. GB 6249-2011, 2011-2-18]
- 18 Wu Y C. Research progress and application prospect of lead based reactor (in Chinese). *Modern Phys*, 2018, 30: 35–39 [吴宜灿. 铅基反应堆研究进展与应用前景. *现代物理知识*, 2018, 30: 35–39]
- 19 Huang G, Shentu Y, Chen W, et al. Experimental investigation on hydrodynamics and mass transfer of a novel fission gas removal equipment for molten salt reactor. *Nucl Eng Des*, 2021, 372: 110977
- 20 IAEA. Management of waste containing tritium and carbon-14. Report. Vienna, 2004
- 21 Chen P, Zhang R Q, Duan Z G, et al. Progress in research and development of stainless-steel fuel cladding for variant advanced nuclear reactors (in Chinese). *China Basis Sci*, 2021, 23: 1–8 [陈平, 张瑞谦, 段振刚, 等. 面向不同先进反应堆应用的新型不锈钢包壳研发进展. *中国基础科学*, 2021, 23: 1–8]
- 22 Luscher W G, Senor D J, Clayton K K, et al. *In situ* measurement of tritium permeation through stainless steel. *J Nucl Mater*, 2013, 437: 373–379
- 23 Wu Y C, Yu J, Hu L Q, et al. Assessment on safety characteristics of fusion nuclear reactor (in Chinese). *Nuclear Sci Eng*, 2016, 36: 802–810 [吴宜灿, 郁杰, 胡丽琴, 等. 聚变堆安全特性评价研究. *核科学与工程*, 2016, 36: 802–810]
- 24 Abdou M, Riva M, Ying A, et al. Physics and technology considerations for the deuterium–tritium fuel cycle and conditions for tritium fuel self sufficiency. *Nucl Fusion*, 2021, 61: 013001
- 25 Hou Y Y. Tritium management in reprocessing plant of spent nuclear fuel in power reactor (in Chinese). *Ind Sci Trib*, 2018, 17: 47–49 [侯媛媛. 动力堆乏燃料后处理厂中氚的管理. *产业与科技论坛*, 2018, 17: 47–49]
- 26 OSPAR. French implementation report of PARCOM recommendation 91/4 on radioactive discharge. Report, 2019
- 27 Schnierder M, Marignac Y. Spent nuclear fuel reprocessing in France. Technical Report. Princeton, 2008
- 28 Kovari M, Coleman M, Cristescu I, et al. Tritium resources available for fusion reactors. *Nucl Fusion*, 2018, 58: 026010
- 29 Ahn H J, Kim T J, Park S B, et al. Tritium distribution in the low-level and intermediate-level wastes of a Korean CANDU reactor. *Fusion Sci Tech*, 2020, 76: 596–599
- 30 Pawelko R, Cadwallader L, Shimada M. Safety and tritium applied research facility annual atmospheric tritium emissions. *Fusion Sci Tech*, 2019, 75: 18–23
- 31 Welte S, Besserer U, Osenberg D, et al. Tritium Laboratory Karlsruhe: Administrative and technical framework for isotope laboratory operation. *Fusion Sci Tech*, 2015, 67: 635–638
- 32 Kurata R, Yamada M, Suzuki T, et al. Operational experience of tritium handling facilities in the Japan Atomic Energy Agency's tritium process laboratory. *Fusion Sci Tech*, 2017, 71: 687–692
- 33 Bell A C, Gentile C A, Lässer R L K, et al. Tritium inventory control—The experience with DT tokamaks and its relevance for future machines. *Fusion Eng Des*, 2003, 66-68: 91–102
- 34 Peterson H, Baker D. Tritium production, releases and population doses at nuclear power reactors. *Fusion Tech*, 1985, 8: 2544–2550
- 35 Cao J, Zhang L, Xie F, et al. Source term study on tritium in HTR-PM: Theoretical calculations and experimental design. *Sci Tech Nucl Ins*, 2017, 2017: 1–11
- 36 Mays G, Smith A, Engel J. Distribution and behavior of tritium in the coolant-salt technology facility. Technical Report. Oak Ridge, 1977
- 37 Yang Y, Zheng J Y, Wang F L, et al. Research on migration behavior and environmental discharge pathways of tritium in sodium coolant fast reactor (in Chinese). *Sci Technol Innov Herald*, 2017, 14: 115–118 [杨勇, 郑继业, 王凤龙, 等. 氚在钠冷快堆中的迁移行为和环境排放途径研究. *科技创新导报*, 2017, 14: 115–118]
- 38 Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, State Administration for Market Regulation. Authorized limits for normalized releases of effluents from nuclear fuel cycle facility. GB13695-20 [生态环境部、国家市场监督管理总局. 核燃料循环设施流出物归一化排放量管理限值(征求意见稿). GB13695-20]
- 39 Winfield D J, Miller J. Safety analysis for the CRL tritium laboratory. *Fusion Tech*, 1995, 28: 995–999
- 40 Chen D, Nie B, Dong B, et al. Insights into near-surface distribution characteristics of multi-form tritium with consideration of atmospheric buoyancy and gravitational deposition. *Chemosphere*, 2023, 312: 137231
- 41 Peillon S, Dougniaux G, Payet M, et al. Dust sampling in WEST and tritium retention in tokamak-relevant tungsten particles. *Nucl Mater Energy*, 2020, 24: 100781
- 42 Kim S B, Bredlaw M, Rousselle H, et al. Organically bound tritium (OBT) activity concentrations in surface soil at the Chalk River Laboratories,

- Canada. *J Environ Radioact*, 2019, 208-209: 105999
- 43 IAEA. Influence of the rate of conversion of HT to HTO on projected radiation doses from release of molecular tritium. In: Symposium on the Behavior of Tritium in the Environment. San Francisco, 1979
 - 44 Ota M, Yamazawa H, Moriizumi J, et al. Measurement and modeling of oxidation rate of hydrogen isotopic gases by soil. *J Environ Radioact*, 2007, 97: 103–115
 - 45 Nie B, Ni M, Jiang J, et al. Dynamic evaluation of environmental impact due to tritium accidental release from the fusion reactor. *J Environ Radioact*, 2015, 148: 137–140
 - 46 Nie B, Wu S, Yang D, et al. Quantitative prediction of dynamic HTO migration behavior in the soil and non-negligible evapotranspiration effect. *J Hazard Mater*, 2022, 425: 127772
 - 47 Qiu G H, Pan Z Q, Wang J, et al. Studies on tritium migration regularities in unsaturated soil of arid region (in Chinese). *Radiat Protect*, 2015, 35: 321–325 [邱国华, 潘自强, 王驹, 等. 氚在干旱地区非饱和土壤中迁移规律研究. *辐射防护*, 2015, 35: 321–325]
 - 48 Li Y Q, Meng Y C, Song H W, et al. Distribution of hydrogen and oxygen stable isotope of water in soil-plant-atmosphere continuum (SPAC) system of a typical forest area (in Chinese). *Chin J Appl Ecol*, 2021, 32: 1928–1934 [李雨芊, 孟玉川, 宋泓苇, 等. 典型林区水分氢氧稳定同位素在土壤-植物-大气连续体中的分布特征. *应用生态学报*, 2021, 32: 1928–1934]
 - 49 Eyrolle F, Ducros L, Le Dizès S, et al. An updated review on tritium in the environment. *J Environ Radioact*, 2018, 181: 128–137
 - 50 McFarlane J C, Rogers R D, Bradley Jr. D V. Environmental tritium oxidation in surface soil. *Environ Sci Technol*, 1978, 12: 590–593
 - 51 McFarlane J C, Rogers R D, Bradley Jr. D V. Tritium oxidation in surface soils. A survey of soils near five nuclear fuel reprocessing plants. *Environ Sci Technol*, 1979, 13: 607–608
 - 52 Ichimasa M, Ichimasa Y, Azuma Y, et al. Oxidation of molecular tritium by surface soils. *J Radiat Res*, 1988, 29: 144–151
 - 53 Ichimasa M, Ichimasa Y, Yagi Y, et al. Oxidation of atmospheric molecular tritium in plant leaves, Lichens and Mosses. *J Radiat Res*, 1989, 30: 323–329
 - 54 Ichimasa M, Suzuki M, Obayashi H, et al. *In vitro* determination of oxidation of atmospheric tritium gas in vegetation and soil in Ibaraki and Gifu, Japan. *J Radiat Res*, 1999, 40: 243–251
 - 55 Kim S B, Stuart M, Bredlaw M, et al. HT to HTO conversion and field experiments near Darlington Nuclear Power Generating Station (DNPGS) site. *J Environ Radioact*, 2014, 132: 73–80
 - 56 Burnham C D, Brown R M, Ogram G L, et al. An overview of experiments at Chalk River on HT dispersion in the environment. *Fusion Tech*, 1988, 14: 1159–1164
 - 57 Raskob W. Test and validation studies performed with UFOTRI and NORMTRI. *Forschungsbericht*, 2007
 - 58 IAEA. Harmonization and intercomparison of models for accidental tritium releases to the atmosphere. Report. Vienna, 2022
 - 59 Raskob W. Description of NORMTRI: A computer program for assessing the off-site consequences from air-borne releases of tritium during normal operation of nuclear facilities. *Forschungsbericht*, 1994
 - 60 Raskob W. UROTRI: Program for assessing the off-site consequences from accidental tritium release. *Forschungsbericht*, 1990
 - 61 Russell S B, Ogram G L. ETMOD: A new environmental tritium model. *Fusion Tech*, 1992, 21: 645–650
 - 62 Peterson S. Historical doses from tritiated water and tritiated hydrogen gas released to the atmosphere from Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) part 1. Description of tritium dose model (DCART) from routine releases from LLNL. Technical Report. Livermore, 2006
 - 63 Homann S, Aluzzi F. HotSpot Health Physics Codes Version 3.0 User's Guide. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 2014
 - 64 Jeffers R S, Parker G T. Development, description and validation of a tritium environmental release model (TERM). *J Environ Radioact*, 2014, 127: 95–104
 - 65 Ota M, Kwamena N O A, Mihok S, et al. Role of soil-to-leaf tritium transfer in controlling leaf tritium dynamics: Comparison of experimental garden and tritium-transfer model results. *J Environ Radioact*, 2017, 178-179: 212–231
 - 66 Korolevych V Y, Kim S B. Modelling and validation of OBT formation in tomato and potato plants. *Fusion Sci Tech*, 2011, 60: 1288–1291
 - 67 Le Dizès S, Aulagnier C, Henner P, et al. TOCATTA: A dynamic transfer model of ^3H from the atmosphere to soil-plant systems. *J Environ Radioact*, 2013, 124: 191–204
 - 68 Chen Z, Lai C, Li Y, et al. A planar-type ionization chamber for tritium surface contamination measurements in fusion facility. *Fusion Eng Des*, 2021, 165: 112258
 - 69 Liang J, Cheng W, Xue X, et al. Annual variation of different forms of tritium in the soil around Qinshan nuclear power plant. *J Environ*

[Radioact](#), 2022, 251-252: 106957

- 70 Monfort M, Patryl L, Armand P. Presentation of the CERES platform used to evaluate the consequences of the emissions of pollutants in the environment. [Radioprotection](#), 2011, 46: S653–S659
- 71 Kim S B, Bredlaw M, Rousselle H, et al. Determination of the baseline tritium concentrations (HTO, TFWT and OBT) in soil and plants in Ontario, Canada. [J Environ Radioact](#), 2022, 243: 106810
- 72 Yang J, Lian B, Lv C X, et al. Validation of dose assessment model for atmospheric tritium release (in Chinese). [Radiat Protect](#), 2022, 42: 141–145 [杨洁, 廉冰, 吕彩霞, 等. 大气氚释放剂量评价模式验证. [辐射防护](#), 2022, 42: 141–145]
- 73 Yang J, Lian B, Zhao Y J, et al. Assessment of internal dose from tritium of Qinshan nuclear power base (in Chinese). [Radiat Protect](#), 2020, 40: 583–586 [杨洁, 廉冰, 赵杨军, 等. 秦山核电基地氚排放所致周围公众内照射剂量评价. [辐射防护](#), 2020, 40: 583–586]

Progress on environmental behaviors and radiation assessment system of multi-form tritium

NIE BaoJie¹, CHEN DeYi¹, WANG Liang², ZHENG ShanLiang³, XIE Feng⁴, LI HouWen⁵, ZHU YueLong⁵, LI FengChen⁶ & WANG DeZhong¹

¹ School of Nuclear Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China;

² Nuclear and Radiation Safety Center, Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China (MEE), Beijing 100082, China;

³ Institute of Plasma Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;

⁴ Institute of Nuclear and New Energy Technology, Collaborative Innovation Center of Advanced Nuclear Energy Technology, Key Laboratory of Advanced Reactor Engineering and Safety of Ministry of Education, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

⁵ China National Nuclear Corporation (CNNC) Nuclear Power Operations Management Co., Ltd., Haiyan 314300, China;

⁶ Key Laboratory of Efficient Utilization of Low and Medium Grade Energy, Ministry of Education, School of Mechanical Engineering, Tianjin University, Tianjin 300350, China

Tritium is the most common radionuclide released into the environment because of the development of the nuclear industry. The amount of tritium increases substantially from the spent fuel reprocessing plant and fusion reactor, potentially posing radiation risks to the environment and public health. The environmental behaviors of multi-form tritium are extremely complex and easily influenced by external factors. An assessment system must be developed to accurately assess environmental tritium levels and the effects of radiation on the public. This study summarized tritium's basic characteristics, tritium characteristics in various facilities, and tritium environmental migration characteristics. In addition, the progress of the international tritium environmental radiation assessment systems was discussed here. Considering China's rapid development in advanced nuclear power and reprocessing technologies, research proposals were made upon three areas: migration and transformation rule of multi-form tritium in a multimedia environment, development and validation of a Chinese tritium environmental radiation assessment system, and establishment of a standard system for tritium radiation environmental assessment.

nuclear facility, tritium environmental behaviors, tritium radiation assessment system

doi: [10.1360/SST-2022-0356](https://doi.org/10.1360/SST-2022-0356)