

连续循环法辐照制备¹²⁵I回路系统调试

李 波, 李世斌, 张劲松, 罗 宁, 薛 夫, 胡映江, 曾俊杰, 陈云明

Loop System Debugging for Production of ¹²⁵I by Continuous Cycle Reactor Irradiation

Li Bo, Li Shibin, Zhang Jinsong, Luo Ning, Xue Fu, Hu Yingjiang, Zeng Junjie, and Chen Yunming

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13832/j.jnpe.2024.03.0213>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

某核电厂控制棒测量棒位跳变问题分析与处理

Analysis and Treatment on Control Rod Measured Position Fluctuation of A Nuclear Power Plant

核动力工程. 2021, 42(6): 215–218

自然循环铅基快堆一回路系统驱动力的关键影响因素研究

Research on the Key Influencing Factors of the Driving Force of the Primary Loop System of the Natural Circulation Lead-based Fast Reactor

核动力工程. 2022, 43(3): 66–73

海上小型堆仪控系统的多样性评估方法及应用

Diversity Assessment Method and Its Application in I&C System of Offshore Small Modular Reactor

核动力工程. 2019, 40(2): 68–73

NHR200- II 低温堆非能动余热排出系统多支路自然循环特性分析

Analysis of Multi-branch Natural Circulation Characteristics of Passive Residual Heat Removal System in NHR200- II Reactor

核动力工程. 2023, 44(6): 63–70

小型氟盐冷却高温堆耦合布雷顿循环系统分析与研究

Analysis and Research of Coupled Brayton Cycle System for Small Fluorine Salt Cooled High Temperature Reactor

核动力工程. 2022, 43(5): 20–26

CAP1400非能动余热排出系统自然循环试验风险分析与应对措施

Risks Analysis and Countermeasures in Natural Circulation Test of CAP1400 Passive Residual Heat Removal System

核动力工程. 2021, 42(1): 167–171



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

文章编号: 0258-0926(2024)03-0213-06; DOI:10.13832/j.jnpe.2024.03.0213

连续循环法辐照制备¹²⁵I 回路系统调试

李波^{1,2,3}, 李世斌¹, 张劲松^{1,2,3*}, 罗宁^{1,2,3}, 薛夫¹,
胡映江^{1,2,3}, 曾俊杰^{1,2,3}, 陈云明^{1,2,3}

1. 中国核动力研究设计院, 成都, 610213; 2. 同位素及药物国家工程研究中心, 成都, 610213;
3. 四川省放射性同位素工程技术研究中心, 成都, 610213

摘要: 采用连续循环法辐照生产医用同位素¹²⁵I, 不仅能实现靶料循环辐照, 同时产生的¹²⁵I 被碘吸附装置所捕集提取。¹²⁵I 制备工艺装置系统根据岷江泳池试验堆 (MJTR) 场地布局已完成现场安装, 本研究对该系统的工艺设计构思、功能组成、研发进展等进行了详细的论述, 同时采用对回路保压、循环辐照过程模拟等方法对整个系统装置的气密性、功能性以及稳定性等开展详细的调试验证。结果表明, 整个系统装置具有较好的气密性, 其设备的功能性以及稳定性均满足技术设计要求, 该调试结果为后续热试验研究奠定了基础。

关键词: 连续循环法; 堆照; ¹²⁵I; 系统调试

中图分类号: TL352 **文献标志码:** A

Loop System Debugging for Production of ¹²⁵I by Continuous Cycle Reactor Irradiation

Li Bo^{1,2,3}, Li Shibin¹, Zhang Jinsong^{1,2,3*}, Luo Ning^{1,2,3}, Xue Fu¹, Hu Yingjiang^{1,2,3},
Zeng Junjie^{1,2,3}, Chen Yunming^{1,2,3}

1. Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China; 2. National Engineering Research Center of Isotope and Medicine, Chengdu, 610213, China; 3. Radioisotope Engineering Technology Research Center of Sichuan, Chengdu, 610213, China

Abstract: The production of medical isotope ¹²⁵I by continuous cycle irradiation can not only realize the cycle irradiation of the target material, but also the ¹²⁵I produced will be captured by the iodine adsorption device. The ¹²⁵I preparation process device system had been installed on site according to the site layout of Minjiang test reactor (MJTR). In this study, the process design concept, functional composition and research and development progress of the system are discussed in detail. Meanwhile, the air tightness, functionality and stability of the whole system device were debugged and verified by using the pressure maintaining of the loop and the simulation of the cycle irradiation process. The results show that the whole system device has good air tightness, and the functionality and stability of the equipment meet the technical design requirements. The research results lay a foundation for the follow-up thermal test research.

Key words: Continuous circulation method, Reactor irradiation, ¹²⁵I, System debugging

0 引言

¹²⁵I 是重要的医用放射性核素 (半衰期 $T_{1/2} = 59.407$ d), 电子俘获 (EC) 释放能量为 27.0 keV 的 X 射线, 伴随发射 35.5 keV 的 γ 射线, 无 β

辐射。由于其半衰期较长、能量适中、对人体组织产生的辐射损伤小等优点, 使其在生物医学、放射性免疫体外诊断和近距离植入治疗肿瘤等方面得到广泛应用。其中, 临床实践使用最多的

收稿日期: 2023-12-17; 修回日期: 2024-03-11

作者简介: 李波 (1987—), 男, 副研究员, 博士研究生, 现主要从事医用同位素制备及其应用研究, E-mail: lb332255@163.com

*通讯作者: 张劲松, E-mail: zjs909@sohu.com

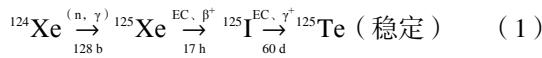
^{125}I 籽源辐射量可根据肿瘤对辐射的敏感性进行调整, 范围为 $0.1\sim 1\text{ mCi}$ ($1\text{ Ci}=3.7\times 10^{10}\text{ Bq}$)^[1]。然而, 目前国内 ^{125}I 原料长期完全依赖进口, 因此, 为实现 ^{125}I 原料的国产化, 亟需开展国产 ^{125}I 生产工艺研发, 这对推动我国核医学全产业链的发展具有重大的科学实际意义。

目前, 利用反应堆辐照生产 ^{125}I 的方法主要有高压靶筒分批辐照法^[2-3]、间歇循环回路法^[4-5]以及连续循环回路法。但传统方法存在制备效率低、杂质含量高、靶料复用率较低等不足, 为获得高核纯度 ^{125}I 产品, 中国核动力研究设计院依托岷江泳池试验堆(MJTR)首次提出开展连续循环回路法辐照制备 ^{125}I 的工艺研究, 并根据设计要求对连续循环辐照制备 ^{125}I 回路系统装置的功能性等进行了系统的调试验证。

1 ^{125}I 制备方法概述

1.1 实验原理

^{125}I 主要由反应堆热中子辐照 ^{124}Xe 产生的 ^{125}Xe 衰变得到的, 其核反应为:



式中, $1\text{ b}=10^{-28}\text{ m}^2$ 。

在反应堆辐照 ^{124}Xe 的过程中, 还存在 2 个次级核反应, 即:

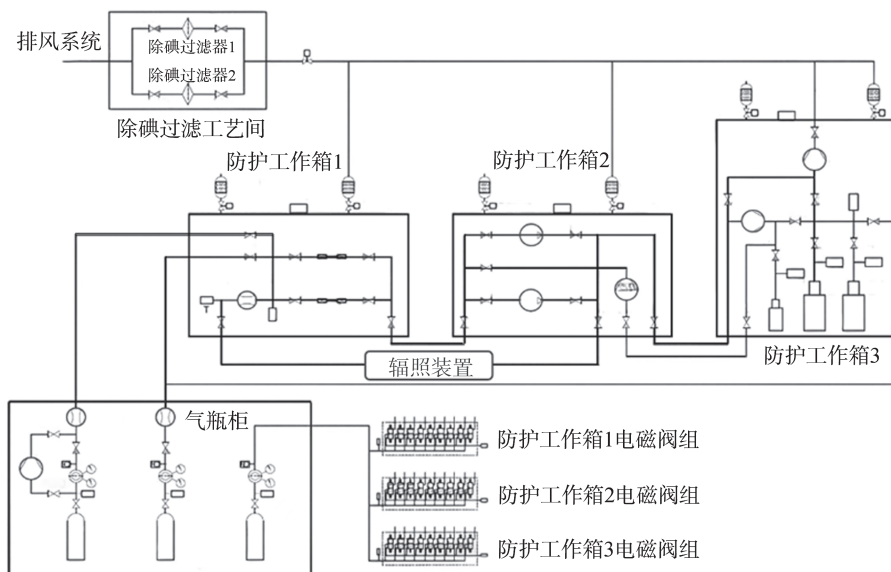
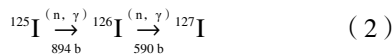
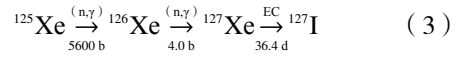


图1 连续循环辐照制备 ^{125}I 的工艺流程图

Fig. 1 Process Flow Chart of ^{125}I Preparation by Continuous Cycle Irradiation



式(2)的次级核反应产生射线能量较高的 ^{126}I (半衰期 $T_{1/2}$ 为 13.11 d), ^{126}I 的存在会对 ^{125}I 的产额及质量造成不利影响。

1.2 连续循环辐照法

连续循环辐照制备 ^{125}I 的工艺流程如图1所示, 回路中的气体在外力的驱动下实现连续循环, 循环过程中生成的 ^{125}I 被碘吸附器选择性捕获。 ^{125}I 制备工艺流程为: 首先, 将整个回路系统抽负压; 再通过进气系统将富集 ^{124}Xe 气体送入回路系统中, ^{124}Xe 被真空泵送入辐照装置活性区, 受热中子循环辐照后变为 ^{125}Xe ; 循环过程 ^{125}Xe 衰变成的 ^{125}I 被安装在防护工作箱1内的碘吸附装置捕捉, 其余气体继续循环至辐照装置内完成循环辐照; 最终, 将剩余未反应的 ^{124}Xe 转入暂存罐中储存备用^[6]。将碘吸附装置取下后进行淋洗获得 Na^{125}I 样品。

2 ^{125}I 连续循环制备系统

整个回路系统主要由进气系统、辐照装置、3个防护工作箱、除碘过滤系统以及管道等组成。为了保证装置的安全性, 所有的设备、阀门等均密封在防护工作箱体内, 箱体以外的所有管路均为焊接形式, 3个防护工作箱顶端的排气口均通过除碘过滤系统。运行回路系统包括辐照装置、

防护工作箱 1 和防护工作箱 2。整套系统通过上、下位机实现对各仪控设备的远程功能操控。工艺装置整体泄漏率 $\leq 1 \times 10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$ 。其中，碘吸附装置用于捕集¹²⁵Xe 衰变产生的¹²⁵I；回路中的气体在循环泵作用下实现气体的连续循环。

2.1 装置系统构成

(1) 物理连接方面

物理连接即装置设备连接。以循环回路为基础（主回路一备一用模式），其组成结构为辐照装置、真空泵、循环泵、空气压缩机、碘吸附装置及管路等相连以构成循环辐照系统。进气系统安装在主回路支路，通过远程控制阀门开关可以使¹²⁴Xe 和氦气能快速进入辐照装置内。碘吸附装置为可便捷拆装的不锈钢吸附柱，内腔可填充碘吸附材料，柱体与防护箱体上的插拔工装（机械手）配套使用。

(2) 功能控制方面

对现场装置的功能控制主要通过堆厅外的上位工控机来实现，主要包括对泵的启停和流速控制、阀门的开关以及压力温度参数监测等，涉及的具体调试及控制运行流程有抽真空、加入气体、气体循环、气体转移、气体暂存等。

2.2 装置子系统单机调试

装置子系统单机调试指对各仪控部件组成的单个系统进行功能性测试，以满足各种联调工况下的技术要求。整个子系统安装调试过程中，遵循“边安装边调试”原则，分别完成对阀门、泵、流量计、压力表及风机等仪控部件的单项/多项控制进行测试。

在子系统单机调试满足技术要求条件下，根据调试和运行逻辑，可分为四大系统：回路抽负压系统、进气系统、气体转移与循环辐照系统、储气罐系统。

3 调试结果

装置安装后进行了阀门、流量计、真空泵、循环泵等设备的单机调试。在单机调试满足技术要求下，开展了四大系统联调。

3.1 回路抽负压系统

回路抽负压主要是对回路中的气体进行置换以及回路密封性能的检查。回路抽负压系统主要涉及上位工控机、真空泵、阀门及多数数据传输收

集等界面系统。系统抽低负压及检漏调试流程如图 2 所示，主要涉及步骤有抽真空机组运行（真空泵、风机等）、全系统抽真空检漏（粗检）/分段抽真空检漏（精检）及真空保压等。

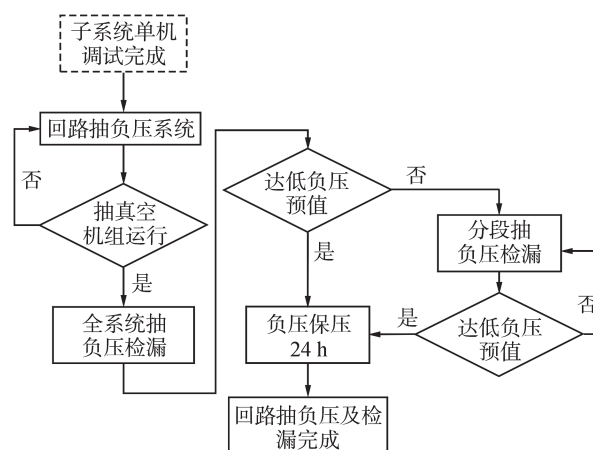


图 2 回路抽负压及检漏调试流程图

Fig. 2 Debugging Flow Chart of Loop Negative Pressure and Leak Detection

上述步骤中，抽真空机组运行是为了确保真空泵、风机等仪控设备正常稳定工作。全系统抽负压主要是初步判断整个回路系统在低负压环境气密性是否良好；若存在漏点，须进行分段精细检漏，直至压力稳定后方可开展后续注入气体工作。由图 3 可知，系统完成抽负压状态后，主回路压力和副回路压力在保压 24 h 过程中基本稳在 4 kPa（绝对压力），说明回路在负压状态下，空气未进入回路系统。通过上述系统性的调试，证实了回路抽负压系统及相关装置仪控工作状态正常、稳定。全回路低负压保压 24 h，压力变化处于 $\pm 0.1 \text{ kPa}$ 内，表明系统的真空负压条件和气密性达到了技术要求。

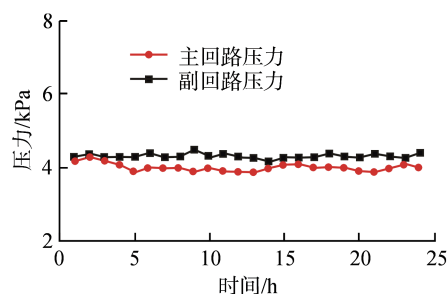


图 3 回路系统抽真空压力变化图

Fig. 3 Pressure Variation of Vacuum Pumping of Loop System

3.2 进气系统

进气系统主要是根据试验要求将定量的²⁴Xe和氦气注入循环回路中。进气系统调试流程如图4所示，主要涉及步骤有进气系统运行、常压保压及加压保压（300 kPa）等。

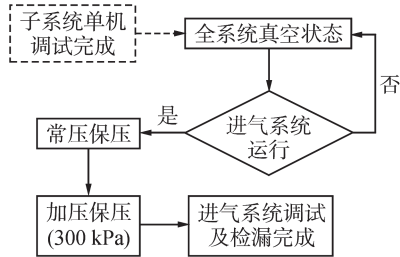


图4 进气系统调试流程图

Fig. 4 Debugging Flow Chart of Intake System

其中，进气系统运行是指氦气瓶手动提前开阀，上位工控机控制气体流速及相应电磁阀门的开闭。进气系统运行失效指由于阀门失控或气瓶缺气导致未注气成功，需先整改，并返回上一级运行状态。常压保压指慢慢让氦气充满辐照装置及主回路中，当达到常压状态时，关闭进气阀门，完成至少 24 h 保压。加压保压指继续充入氦气至主回路压力显示为 300 kPa 左右时，关闭进气阀门，完成至少 24 h 保压，调试结束。

由图5可知，主回路保压 24 h 后，系统温度有小幅度降低，但整体趋于稳定；主回路压力整体相对稳定，压力变化≤0.1%，表明系统的气密性良好。由表1可知，初始保压压力为 302.1 kPa（28.8℃，301.95 K），保压 24 h 后，根据理想气体状态方程计算理论压力值为 300.7 kPa（27.4℃，300.55 K），实测值相对计算值增加了 0.8 kPa，即按同等温度下，长时间保压压力的变化皆不大于 0.3%。实测压力比理论值偏大，一方面可能是由于堆运行期间水池内水的流动造成的，且压力、温度传输工控机距离较远；另一方面，水孔道中辐照罐体积约 2.3 L，位于堆水至少 8 m 深处，水压的影响会导致压力微涨。上述结果表明，主回路系统压力正常平稳，气体未发生泄漏，满足工艺所需技术指标要求。

3.3 气体转移与循环辐照系统

气体转移与循环辐照系统调试的目的是确保气体在辐照过程中能正常循环辐照，循环一定阶段后能实现气体的转移和暂存备用。

完成上述回路抽负压、进气系统调试后，便

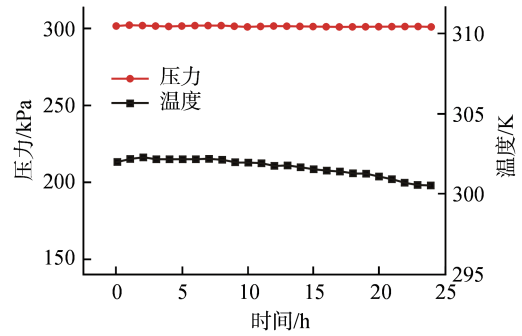


图5 主回路保压 24 h 后主回路压力变化图

Fig. 5 Pressure Variation of the Main Loop after Pressure Held for 24 Hours

表1 主回路保压 24 h 后主回路压力理论值与实际值对比
Tab. 1 Comparison between Theoretical Values and Actual Values of Main Loop after Pressure Held for 24 Hours

运行过程	开始保压实测值(28.8℃)	保压24 h后(27.4℃)		实际压力增加值
		实测值	理论计算值	
主回路压力/kPa	302.1	301.5	300.7	0.8

启动气体转移与循环辐照系统调试运行，其流程如图6所示，主要步骤有循环机组运行、循环辐照模拟、压力稳定监测、停止循环辐照模拟、气体转移暂存、真空泵机组运行等。

系统常压/加压指辐照装置及主回路中存有氦气；启动循环泵开始模拟循环辐照过程，时长

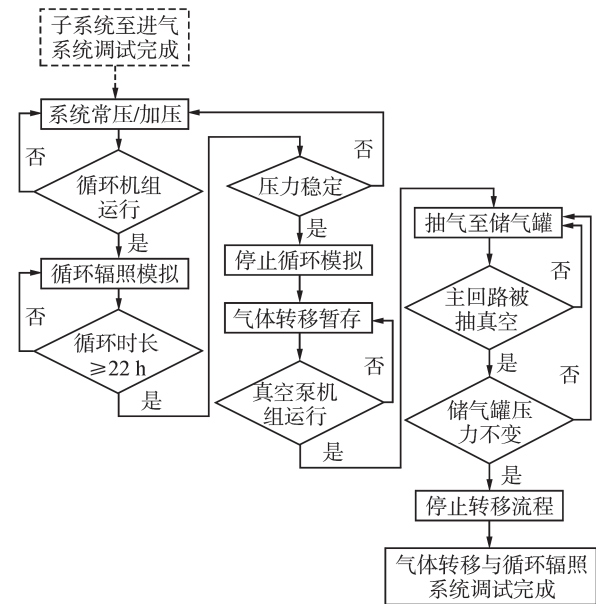


图6 气体转移与循环辐照系统调试流程图

Fig. 6 Debugging Flow Chart of Gas Transfer and Cycle Irradiation System

不低于 22 h，同时记录系统温度、压力等参数，确认系统运行稳定性；停止循环后，启动真空泵及相应阀门，将主回路辐照气体抽空转至储气罐内，且两边压力不变时，停止真空泵转气流程，调试结束。

为获得回路连续运行参数，模拟了系统辐照装置在充入微正压氦气时的工况。主回路循环流量与压力随时间变化的关系如图 7 所示。表 2 展示了启停循环泵前后系统压力的数值对比，由表 2 可知，回路系统在启泵前和循环保压 22 h 停泵后的压力分别为 103.5 kPa 和 103.6 kPa，压力实际升高了 0.1 kPa，但相同温度下的理论计算值是相吻合的。由图 7 可知，运行过程中，主回路压力在 36.4~40.0 kPa 之间波动，基本趋于稳定状态。压力出现波动主要是因为气体循环是一个动态过程，且压力未出现明显上升，表明没有空气进入，连续运行状态良好。结果表明，系统在连续循环运行 22 h 后，回路气体未发生泄漏。同时，从图 7 也可看出，回路连续运行 22 h 后，流量计设定值与实测值偏差低于 3.5%，且实测值的波动变化低于 1.5%，表明流量计能稳定工作。

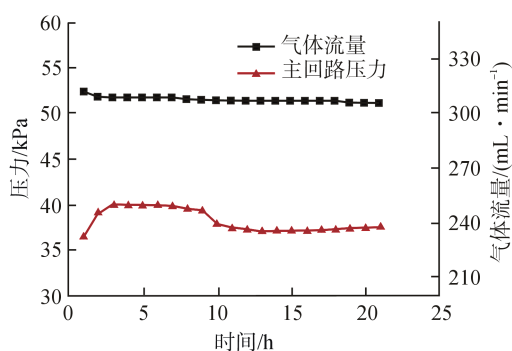


图 7 主回路循环流量与压力随时间变化关系图

Fig. 7 Relationship between Gas Flow and Pressure of Main Loop Circulation with Time

表 2 主回路气体模拟循环辐照全过程压力变化

Tab. 2 Pressure Change of Whole Process of Main Loop Gas Simulation Cycle Irradiation

运行过程	开始保压 实测值 (26.5℃)	循环11 h后 (28.7℃)实 测值	保压22 h后(26.9℃)		实际压力 增加值
			实测值	理论计算值	
主回路压 力/kPa	103.5	37.4	103.6	103.6	0

综上所述，循环泵、流量计和压力表都能够长时间正常稳定工作，满足工艺技术指标要求。

3.4 储气罐系统

储气罐系统主要用于暂存气体，包括剩余靶料¹²⁴Xe或废气。调试中需考虑加压储气情形，共 3 个罐，每个罐内腔设计体积与辐照装置一致。调试内容主要为验证罐的气密性，运行流程为注气送料、加压保压（400 kPa）等。

依据图 8，3 个储气罐气密性验证具体调试如下：首先，利用进气系统向 3 号防护箱体的 3 个储气罐充氦气至 105 kPa（约 1 个大气压）；保压 0.5 h 后，观察压力变化不大于 0.1%；继续注气加压至 400 kPa，保压 24 h 观察记录系统温度及 3 个储气罐压力情况，其数据结果如图 9 所示。

由图 9 可得，3 个储气罐在约 400 kPa 的压力条件下保压 24 h 后，由于温度升高，压力值均有不同程度的增加。这可能是由于循环回路连

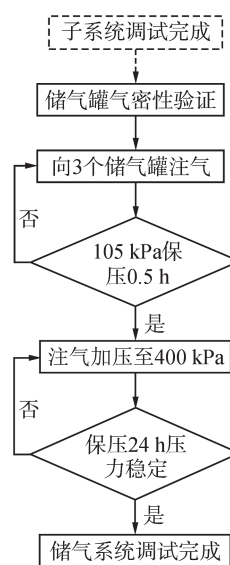


图 8 储气系统调试流程图

Fig. 8 Debugging Flow Chart of the Gas Storage System

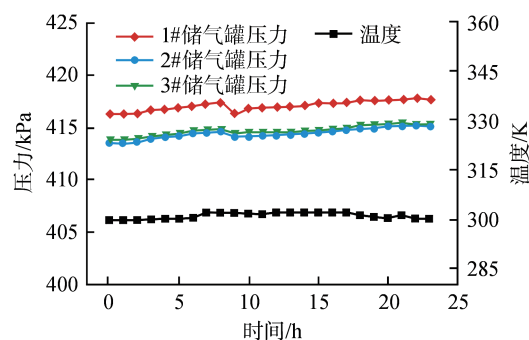


图 9 储气罐压力变化关系图

Fig. 9 Pressure Variation of Gas Storage Tank

续运行, 气体分子不断运动造成内部系统温度有小幅升高引起的。根据理想气体状态方程计算得到相同温度下的理论压力值见表 3, 相比理论压力值, 实际压力值分别增加了 0.7、1.0、0.9 kPa。3 个储气罐实测压力出现微涨的主要原因为反应堆运行期间装置振动所带来的影响。结果表明, 储气罐系统未发生气体泄漏, 气密性表现良好, 满足本连续工艺的技术要求。

表 3 各储气罐保压 24 h 后压力对比数据表

Tab. 3 Comparison of Pressures after 24 Hours of Pressure Holding for Gas Storage Tanks

运行过程	开始保压实测值 (26.4℃)	保压24 h(26.8℃)		实际压力 增加值
		实测值	理论计算值	
1#储气罐压力/kPa	416.3	417.6	416.9	0.7
2#储气罐压力/kPa	413.5	415.1	414.1	1.0
3#储气罐压力/kPa	413.8	415.3	414.4	0.9

4 结 论

本文以连续循环法辐照制备¹²⁵I 工艺装置系统为调试对象, 完成了各子系统单机调试、多系

统联调及工艺装置的气体抽真空、气体转移、暂存、循环等。调试结果表明, 整个系统装置具有较好的气密性, 设备功能性及稳定性均达到了设计要求, 调试结果为后续热试验奠定了坚实的基础, 为¹²⁵I 试生产提供了基本保障。

参考文献:

- [1] HU P, HUANG J W, ZHANG Y L, et al. Iodine-125 seed implantation in the treatment of malignant tumors[J]. *Journal of Interventional Medicine*, 2023, 6(3): 111-115.
- [2] RUSSELL H T. Production of ¹²⁵I and fabrication ¹²⁵I X-ray sources: ORNL-TM-562[R]. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1963.
- [3] 葛巨龙. ¹²⁵I 的生产现状与前景展望 [J]. *同位素*, 2013, 26(4): 204-207.
- [4] HASSAL S B. Method and apparatus for production of radioactive iodine: US, 6056929A[P]. 2000-05-02.
- [5] 于宁文, 沈亦佳, 吴宇轩, 等. 制备¹²⁵I 的堆照循环回路模拟系统调试 [J]. *同位素*, 2018, 31(2): 104-109.
- [6] 李波, 罗宁, 曾俊杰, 等. ¹²⁵I 生产工艺研究进展与展望 [J]. *同位素*, 2020, 33(6): 366-373.

(责任编辑: 马 蓉)