

济南微型中子源反应堆退役的 放射性核素调查

张永保¹, 刘耀华², 李义国¹, 张金花¹, 吴振坤¹, 黄保京¹,
吴小波¹, 彭旦¹, 鲁谨¹, 夏普¹

(1. 中国原子能科学研究院 反应堆工程研究设计所, 北京 102413;

2. 山东省地质科学实验研究院, 山东 济南 250013)

摘要: 对济南微型反应堆容器上筒节、水池材料、水净化树脂及废物现场取样进行放射性核素调查, 并详细介绍了对水池材料的调查。被调查的材料中放射性核素主要包括⁶⁰Co、¹⁵²Eu、¹³⁷Cs 和⁵⁴Mn, 反应堆容器正下方的池底材料中放射性核素活度浓度较高。调查结果表明: 反应堆容器上筒节、堆水净化树脂及废物均为低放废物, 部分水池材料也应作为低放废物进行剥离。调查采用标准物质 GBW08304a 进行质量控制, 测量值与标准值在±15% 内一致。

关键词: 微型中子源反应堆; 退役; 放射性核素; 调查

中图分类号: TL943

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2013)08-1394-04

doi: 10.7538/yzk.2013.47.08.1394

Radionuclide Survey for Jinan Miniature Neutron Source Reactor Decommissioning

ZHANG Yong-bao¹, LIU Yao-hua², LI Yi-guo¹, ZHANG Jin-hua¹, WU Zhen-kun¹,
HUANG Bao-jing¹, WU Xiao-bo¹, PENG Dan¹, LU Jin¹, XIA Pu¹

(1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-75, Beijing 102413, China;

2. Shandong Institute and Laboratory of Geological Sciences, Jinan 250013, China)

Abstract: Radionuclides in upper reactor container, pool materials, resin and waste were surveyed on the decommissioning site of Jinan Miniature Neutron Source Reactor, and the survey of pool materials was described in detail. The radionuclides in surveyed materials include ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu, ¹³⁷Cs and ⁵⁴Mn with higher activity concentrations in materials at pool bottom just below the reactor container. The survey results indicate that upper reactor container, resin for reactor water purification, waste and a part of pool materials are low level waste. A certified reference material GBW08304a was used in this survey for quality control. The measured values agree well with the standard values within ±15%.

Key words: miniature neutron source reactor; decommissioning; radionuclide; survey

济南微型中子源反应堆(简称微堆,MNSR)是一座采用高富集度²³⁵U为燃料、金属铍作反射层、轻水作慢化剂和冷却剂的罐-池结构的小型低功率反应堆,建于1989年5月,2008年3月停闭,2010年12月8日国家环保部批复济南微堆退役(环审(2010)393号)。济南微堆位于济南市市区,其周围人口稠密,10 km范围内工业企业和旅游景点众多,场址利用价值十分高。济南微堆的额定热功率约为30 kW,内辐照座额定热中子注量率为 $1\times10^{12}\text{ cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$,建成后主要用于中子活化分析研究,放射性污染水平很低。因此,济南微堆采取立即拆除的退役策略,并达到场址无限制开放的目的。目前,国内外已有小型反应堆成功实施了退役,如我国的上海微堆^[1]和加拿大的SLOWPOKE堆^[2]。

放射性核素调查是反应堆退役源项调查的重要内容,其目的是确定放射性核素的种类、分布及其强度,对放射性废物分类和实现退役过程废物最少化、排放最少化及工作人员与公众受照剂量最少化有重要意义。

1 调查对象^[3]

图1为济南微堆示意图,其由反应堆本体和辅助系统两部分组成,反应堆本体位于反应堆大厅中央的水池中,包括反应堆容器(由上、下筒节组成)、堆体悬吊架、螺旋冷却器及容器内部件。反应堆容器内有堆芯组件、铍反射层、控制棒、中子探测器、热电偶、水位计和辐照管等。辅助系统包括控制系统、跑兔系统、水净化系统、堆气净化系统、辐射监测系统、热工测量系统、废液贮存

罐和废物坑。堆芯组件位于反应堆容器的下筒节,已于2009年11月从反应堆容器中吊出,并运到中国原子能科学研究院储存。

济南微堆累计运行时间为2 939 h,积分中子注量为 $1.06\times10^{19}\text{ cm}^{-2}$,运行期间和停闭期间未发现燃料元件破损,也未发生放射性污染和泄漏等事故。因此,各种材料所含放射性核素主要为活化产生的长寿命核素,且集中在堆本体、水池材料、水净化树脂和废物中。距离堆芯最近的物项放射性活度较强,这些物项包括下筒节、铍反射层、辐照座和控制棒等,已采用理论计算的方法进行了源项调查^[4]。其他物项包括上筒节、水池材料、水净化树脂、废物坑及其中的废物,拟采用取样测量的方法进行调查,其中以水池材料产生的废物量最大,下面主要介绍对水池瓷砖和混凝土的放射性核素调查。

2 调查方法

2.1 取样

济南微堆水池为圆柱形结构,直径为2.7 m,深为6.5 m,池底、池壁均贴有15 cm×15 cm的正方形瓷砖,池壁及池底示意图如图1和2所示。池壁瓷砖后有0.6 m混凝土层,内埋有钢筋;池底瓷砖下有1.25 m混凝土层,内埋有槽钢。

济南微堆的反应堆容器偏心悬挂于水池内,其底部距离池底0.5 m。池底材料取样时,以容器底部中心对应的池底作为参照点。池壁圆周方向有54块瓷砖,以正北方向为起点,按

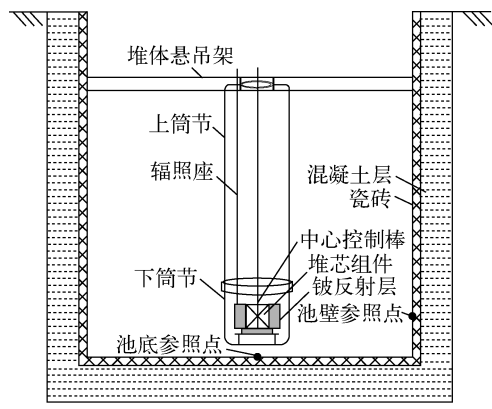


图1 济南微堆示意图

Fig.1 Schematic of Jinan MNSR

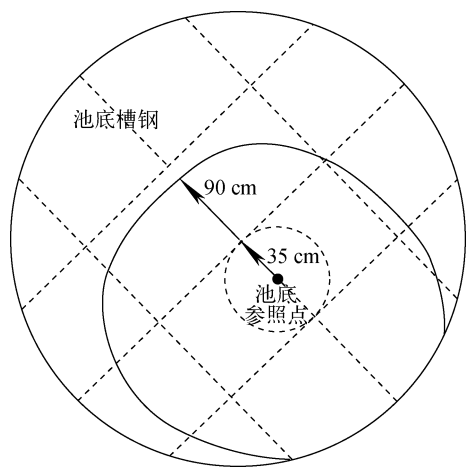


图2 济南微堆池底示意图

Fig.2 Pool bottom schematic of Jinan MNSR

顺时针方向编号;垂直方向有 100 多块瓷砖,由底向上编号,则每块池壁瓷砖均对应一唯一的编号。距离堆芯最近的池壁瓷砖为圆周方向第 23 块垂直方向第 4 块瓷砖,其编号为 c23-d4,池壁材料取样时以此为参照点。

池底瓷砖在池底参照点取样,池壁瓷砖在池壁参照点的圆周方向和垂直方向由近及远取样。池壁混凝土在池壁参照点处取样,池底混凝土分别在池底参照点及其半径方向每 5 cm 深度钻取 1 个样品。样品粉碎后装入直径为 7 cm、容积为 300 cm³ 的塑料测量罐内。

2.2 测量

所有样品采用 γ 谱测量系统进行测量,该系统由高纯锗探测器、多道 γ 谱仪和微机组成,其对 ⁶⁰Co 1 332 keV 的分辨率为 1.8 keV,相对探测效率为 40%。每个样品的测量时间为10~24 h。

2.3 计算

用两个自制的模拟土壤放射源对探测器的绝对效率进行刻度,利用下式计算待测样品中核素 i 的活度浓度 C_i (Bq/g):

$$C_i = \frac{A_i}{\epsilon_i m_{\text{样}}} \tag{1}$$

式中: A_i 为核素 i 的计数率, s⁻¹; ϵ_i 为核素 i 特征峰的绝对效率; $m_{\text{样}}$ 为待测样品的质量, g。

本次调查采用一级标准物质——河流沉积物环境放射性标准物质 GBW08304a 进行质量控制,将其与待测样品在相同的几何位置进行测量,利用前面得到的探测器绝对效率计算其所含核素的活度浓度,计算结果和标准值吻合较好(表 1)。天然放射性核素²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K的测量值与标准值的相对误差较大,这是由于它们受测量本底的影响较大,计算时虽对本底进行了扣除,但本底的测量不确定度较大。

表 1 质控标准 GBW08304a 的测量结果
Table 1 Measured values of radionuclides in CRM GBW08304a

核素	活度浓度/(Bq·g ⁻¹)		相对误差/%
	测量值	标准值	
²²⁶ Ra	0.135	0.158±0.019	-14.6
²³² Th	0.070 5	0.065 6±0.004 5	7.5
⁴⁰ K	0.628	0.575±0.035	9.2
⁶⁰ Co	0.082	0.081±0.005	1.2
¹³⁷ Cs	0.140	0.137±0.008	2.2

3 调查结果

混凝土、瓷砖和废物中的放射性核素主要为⁶⁰Co 和¹⁵²Eu,槽钢和钢筋中主要为⁶⁰Co 和⁵⁴Mn,反应堆容器上筒节和堆水净化树脂中主要为⁶⁰Co 和¹³⁷Cs。IAEA 对大量材料中放射性核素⁶⁰Co、¹⁵²Eu、⁵⁴Mn 和¹³⁷Cs 规定的清洁解控水平均为 0.1 Bq/g^[5],如果所调查材料中放射性核素的活度浓度低于该水平,即可满足“对公众成员在一年内来自被豁免的实践或源的年有效剂量小于或等于 10 μSv”的豁免准则,则其对环境的影响无需评价证明便达到了清洁解控的水平。对放射性核素活度浓度高于清洁解控水平的材料应进行剥离,并根据 GB 9133—1995《放射性废物的分类》^[6]的规定对剥离的材料进行分类。另外,对含有多种人工放射性核素的材料还应满足下式:

$$\sum_{i=1}^n \frac{C_i}{C_{Li}} \leqslant 1 \tag{2}$$

式中: C_{Li} 为核素 i 的清洁解控水平, Bq/g; n 为材料中放射性核素数目。

3.1 池底瓷砖

反应堆容器距池底仅 0.5 m,池底参照点的瓷砖活化最为严重,放射性核素主要为⁶⁰Co 和¹⁵²Eu,其活度浓度分别为 2.837 Bq/g 和 10.45 Bq/g,远高于其清洁解控水平,对池底瓷砖应进行部分剥离并作为低放废物,具体剥离范围可参照池底混凝土的调查结果。

3.2 池底混凝土

池底参照点及其半径方向不同深度的混凝土中放射性核素的活度浓度列于表 2。由表 2 可见,参照点剥离到 48 cm 深度、半径方向 90 cm剥离到 5 cm 深度时,剩余混凝土的放射性核素活度浓度即可低于清洁解控水平。混凝土剥离后会在池底形成一半径为 90 cm、深度为 48 cm 近似圆锥形的坑,剥离的混凝土应作为低放废物。

3.3 池壁瓷砖和混凝土

池壁参照点处混凝土中放射性核素主要为⁶⁰Co 和¹⁵²Eu,其活度浓度分别为 0.006~0.009 Bq/g 和 0.018~0.029 Bq/g,均远低于清洁解控水平,整体池壁混凝土均无需剥离。

表 3 列出池壁参照点圆周方向和垂直方向瓷砖中放射性核素的活度浓度,其中ND表示

表 2 池底混凝土中放射性核素的活度浓度

Table 2 Activity concentrations of radionuclides in concrete at pool bottom

深度/cm	参照点活度浓度/(Bq·g ⁻¹)		半径/cm	深度/cm	参照点半径方向活度浓度/(Bq·g ⁻¹)	
	⁶⁰ Co	¹⁵² Eu			⁶⁰ Co	¹⁵² Eu
10~15	0.686	1.788	35	35~40	0.128	0.298
20~25	0.252	0.573	40	35~40	0.032	0.090
30~35	0.188	0.467	45	28~33	0.056	0.126
40~45	0.075	0.184	70	10~15	0.028	0.078
45~48	0.023	0.066	90	0~5	0.017	0.060

未检测出。可见,垂直方向上距参照点 2~3 块的瓷砖即 d1~d6 需剥离,圆周方向上距参照点 7 块的瓷砖即 c16~c29 需剥离,共计 6×14 块,剥离的瓷砖应作为低放废物。

表 3 池壁瓷砖中放射性核素的活度浓度

Table 3 Activity concentrations of radionuclides in tiles at pool wall

瓷砖位置		活度浓度/(Bq·g ⁻¹)	
		⁶⁰ Co	¹⁵² Eu
垂直方向	c23-d5	0.025	0.123
	c23-d6	0.023	0.089
	c23-d10	0.003	ND
圆周方向	c15-d5	0.008	0.047
	c30-d5	0.003	0.030
	c10-d5	ND	ND
	c37-d5	ND	ND

3.4 其他材料

其他材料中放射性核素的活度浓度列于表 4。由表 4 可见,反应堆容器上筒节、堆水净化树脂和废物均应作为低放废物;部分池底槽钢需作为低放废物剥离;池壁钢筋中放射性核素的活度浓度均低于清洁解控水平,无需剥离。

表 4 其他材料中放射性核素的活度浓度

Table 4 Activity concentrations of radionuclides in other materials

样品名称	活度浓度/(Bq·g ⁻¹)			
	⁶⁰ Co	¹⁵² Eu	⁵⁴ Mn	¹³⁷ Cs
池底参照点槽钢	8.626	ND	1.642	ND
池壁参照点钢筋	0.038	ND	0.054	ND
堆水净化树脂	0.165	ND	ND	0.026
混合废物	0.762	2.657	ND	ND
上筒节顶部	0.540	ND	ND	0.017
上筒节底部	1.514	ND	ND	0.209

4 结论

采用 γ 谱测量的方法对济南微堆的反应堆

容器上筒节、水池材料、水净化树脂及废物等现场取样进行放射性核素调查,这些材料中的放射性核素主要包括⁶⁰Co、¹⁵²Eu、¹³⁷Cs 和⁵⁴Mn。反应堆容器正下方的池底材料中放射性核素活度浓度较高,池底参照点瓷砖中的⁶⁰Co 和¹⁵²Eu 分别达 2.837 Bq/g 和 10.45 Bq/g,远高于其清洁解控水平。反应堆容器上筒节、堆水净化树脂及废物均为低放废物,水池瓷砖、池底混凝土及槽钢应部分剥离并作为低放废物,池壁混凝土和钢筋无需剥离。放射性核素调查是济南微堆退役源项调查的重要内容,在放射性废物分类和实现退役过程的废物最少化、排放最少化及工作人员与公众受照剂量最少化方面将发挥重要作用。

参考文献:

[1] 梁志,霍小东.上海微堆卸载核临界安全控制分析[C]//第十二届反应堆数值计算与粒子输运学术会议论文集.[出版地不详]:[出版者不详],2008:320-324.

[2] SMITH J W, RICHMAN J, SONOC S, et al. An overview of the defuelling & decommissioning of the U of T SLOWPOKE research reactor[C]//Proceedings of Interregional Workshop on Small Research Reactors.[S.l.]:[s.n.],2003.

[3] 彭旦,高永春,谢建伦,等.济南微堆退役报告[R].北京:中国原子能科学研究院,2010.

[4] 徐治龙,刘振宇,沈峰.济南微堆退役源项和剂量计算分析[C]//第十三届反应堆数值计算与粒子输运学术会议论文集.[出版地不详]:[出版者不详],2010:1-4.

[5] IAEA.No.RS-G-1.7 Application of the concepts of exclusion, exemption and clearance: Safety guide[S].Vienna:IAEA,2004.

[6] 核工业第二研究设计院.GB 9133—1995 放射性废物的分类[S].北京:中国标准出版社,1995.