

简易桶装废物非破坏检测装置设计及检验

苏容波, 夏文友*, 吴中义, 李涛文, 王建军, 涂俊

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要:介绍了组装的桶装废物非破坏检测装置及其探测效率获得方法,并将探测效率的实验值与计算值进行了比较,其变化趋势一致。使用 ^{137}Cs 标液制作实验源模拟桶装废物进行验证实验,在放射源随机分布、介质密度低于 1.761 g/cm^3 情况下,计算结果偏差在 $\pm 20\%$ 内;在放射源极端分布、介质密度为 1.538 g/cm^3 情况下,计算结果偏差达 $-76\%\sim 152\%$,说明该方法用于核设施退役产生的桶装废物的分级是可行的。

关键词:非破坏检测;探测效率;随机分布;极端分布

中图分类号:TL751

文献标志码:A

文章编号:1000-6931(2012)S0-0671-06

Design and Examination of Barreled Radioactive Waste Non-destructive Testing Equipment

SU Rong-bo, XIA Wen-you*, WU Zhong-yi, LI Tao-wen, WANG Jian-jun, TU Jun

(China Academy of Engineering Physics, P. O. Box 919-219, Mianyang 621900, China)

Abstract: The methods to acquire detection efficiency and the non-destructive assay system of barreled radioactive waste were introduced, and the changing tendencies between experimental result and theory are consistent. The verification experiments were carried through barreled radioactive materia which was made by ^{137}Cs standard liquor. It is indicated that relative deviation is less than 20% when radioactive sources are random distribution and medium density is less than 1.761 g/cm^3 , and that relative deviation is from -76% to 152% when radioactive sources are extrem distribution and medium density is 1.538 g/cm^3 . Calculation results show that this method is reasonable to class barreled radioactive waste from decommissioning.

Key words: non-destructive assay; detection efficiency; random distribution; extrem distribution

核设施退役实施必将产生大量的放射性废物,这些废物最终外运至国家永久性废物库存放^[1]。根据放射性废物管理的要求,废物产生

单位应对放射性废物进行相关处理,然后将其装入标准废物桶,经整备后分析出桶内废物的核素种类及活度并进行分级。对于桶装废物中

收稿日期:2012-05-22;修回日期:2012-08-20

作者简介:苏容波(1977—),男,湖北天门人,助理研究员,应用物理专业

* 通信作者:夏文友, E-mail: wenyouxia@gmail.com

所含核素及其活度的分析,最为理想的分析技术是非破坏测量(NDA)技术^[2]。目前市场上已有标准的桶装废物测量装置,分为SGS、TGS两种型号,但其价格相当昂贵,一般在3百万~5百万元左右。桶装放射性废物活度测量的主要目的是对废物进行分级,对其处置时按放射性等级选择处置方式,如半衰期大于30 a的废物,比活度低于 4×10^6 Bq/kg的是低放废物,比活度高于 4×10^{10} Bq/kg的是高放废物,介于两值之间的是中放废物^[3]。由此可推测,即使测量结果存在数倍的误差也基本不影响废物的分级,故在条件不允许情况下用 γ 谱仪组装简易的桶装废物活度测量装置也可满足要求。

桶装废物进行分层、旋转处理后,每一被测层整体效果针对透射源可简化为介质密度均匀分布,针对发射源可简化为放射性强度均匀分布^[1],因此可利用现有的高纯锗探测器加工一配套的对废物桶进行分层、旋转的非标装置组成简易的桶装废物分层扫描测量装置(简单的SGS测量装置),用于核设施退役产生的桶装废物活度测量。

1 系统组成

系统主要分为3部分:传动部分、测量部分和控制部分。装置框架示意图及实物图示于图1。

2 探测效率与吸收因子的关系

具体条件下 γ 谱仪探测效率可利用无源效率刻度软件计算得到;探测器本征数据确定了边界条件,输入几何位置参数(包括被测对象尺

寸)、介质密度分布、放射性分布、屏蔽体参数即可计算出探测器对该被测对象内某核素特征 γ 射线的探测效率^[4-6]。非标测量平台安装固定后,探测器已确定,探测器本征数据值唯一;探测器与被测对象的相对几何位置确定,即几何位置参数唯一;屏蔽体参数也为固定值。因此,探测效率与桶内介质密度和放射性分布相关。通过对废物桶进行分层、旋转处理后,每一被测层简化为近似于介质密度和放射性强度均匀分布,因此可近似地认为探测效率是介质密度的函数。

对于密度已知的介质,该介质针对透射源(选定为⁶⁰Co)的吸收有如下固定关系:

$$n = n_0 e^{-kx}$$

式中: n_0 、 n 分别为旋转台上放置空桶和充入均匀介质桶并以5 r/min转速旋转情况下透射源⁶⁰Co特征射线1 332.5 keV感兴趣区内的净计数率; k 为介质吸收因子,与介质密度相关; x 为桶直径。

桶直径为一定值,因此上式可简化为:

$$n = n_0 e^{-k}$$

吸收因子 k 按下式计算:

$$k = \ln(n_0/n)$$

因此对于某具体的桶装废物,探测器对应着某一探测效率 η ,针对透射源介质对应着某一吸收因子 k ,可通过实验拟合吸收因子 k 与探测效率 η 的关系。

测量仪器是堪培拉公司生产的BE5030便携式高纯锗 γ 谱仪,探测器序列号8502,探测器能量分辨率2.2 keV(针对1.33 MeV),相对探测效率45%。以¹³⁷Cs的661.65 keV的特征峰为例,在介质密度确定情况下,探测器对其探

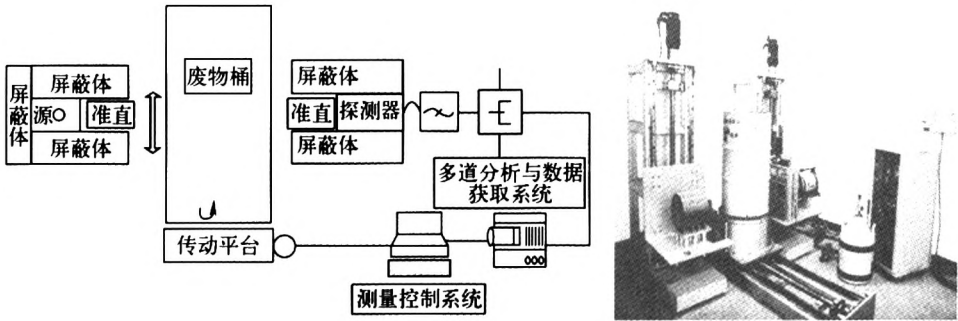


图1 装置结构图(a)和实物图(b)
Fig.1 Block diagram (a) and picture (b) of equipments

测效率利用无源效率刻度软件计算得到,吸收因子为实验值,实验选一批不同密度非放均匀介质,实验数据列于表 1,拟合图示于图 2。

表 1 蒙特卡罗计算数据

Table 1 Calculation data by Monte-Carlo

密度/(g·cm ⁻³)	k	η
0.125	0.422	1.534 10×10 ⁻⁴
0.213	0.721	1.353 01×10 ⁻⁴
0.222	0.757	1.336 29×10 ⁻⁴
0.280	0.917	1.236 82×10 ⁻⁴
0.343	1.092	1.141 70×10 ⁻⁴
0.417	1.299	1.044 57×10 ⁻⁴
0.470	1.492	9.832 53×10 ⁻⁵
0.596	1.910	8.598 54×10 ⁻⁵
0.720	2.332	7.627 96×10 ⁻⁵
0.779	2.460	7.233 08×10 ⁻⁵
0.843	2.735	6.844 53×10 ⁻⁵
0.845	2.867	6.833 04×10 ⁻⁵
1.000	3.419	5.592 77×10 ⁻⁵
1.111	3.644	5.569 26×10 ⁻⁵
1.212	3.648	5.199 60×10 ⁻⁵
1.282	4.123	4.968 94×10 ⁻⁵
1.479	5.150	4.416 86×10 ⁻⁵
1.661	5.310	3.973 00×10 ⁻⁵
1.765	5.653	3.820 90×10 ⁻⁵
1.914	6.160	3.561 68×10 ⁻⁵

探测效率与吸收因子拟合公式如下,其相似系数为 0.998 25。

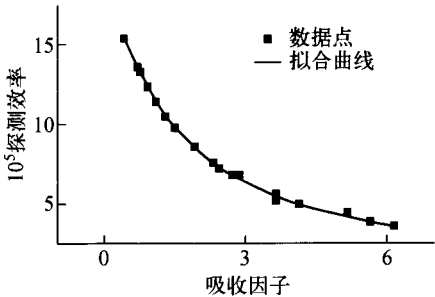


图 2 661.65 keV 探测效率与吸收因子拟合曲线
Fig.2 Fitting curve between detection efficiency and absorb factor of 661.65 keV

$$\eta = 9.00 \times 10^{-5} \exp(-k/3.695\ 4) + 8.25 \times 10^{-5} \exp(-k/1.052\ 98) + 1.87 \times 10^{-5}$$

3 校正实验

3.1 探测效率和吸收因子关系的检验、校正

利用已知活度的实验源(由¹³⁷Cs 标液制作,购于原子高科股份有限公司,总活度为 8.325×10⁴ Bq)与均匀介质制作模拟废物,实验源固定分布(相对均匀,“枣糕”式分布)。改变介质密度进行系列实验,拟合探测效率与吸收因子的关系。

探测效率按下式计算:

$$\eta = N/(0.851tA)$$

式中:η为该状态下探测器对¹³⁷Cs 661.65 keV 的特征射线的探测效率;N 为测量时间内 661.65 keV 感兴趣区内的净计数;t 为测量时间;A 为桶内¹³⁷Cs 的真实活度。

实验数据列于表 2,拟合曲线与无源效率刻度拟合曲线的对比示于图 3。

表 2 实验测量数据

Table 2 Experiment data

介质密度/(g·cm ⁻³)	⁶⁰ Co 净计数	¹³⁷ Cs 净计数	测量时间/s	吸收因子	真实活度/Bq	10 ⁵ 探测效率
0.124	92 255	9 269	1 200	0.424 2	83 250	10.903 00
0.241	97 624	12 037	1 800	0.773 136	83 250	9.439 13
0.542	45 079	9 751	1 800	1.545 843	83 250	7.646 50
0.689	36 134	9 140	1 800	1.767 025	83 250	7.167 37
0.819	19 384	8 411	2 400	2.677 493	83 250	4.946 78
1.348	9 861	9 425	3 600	3.758 819	83 250	3.695 43
1.538	8 537	12 919	5 400	4.308 462	83 250	3.376 92
1.613	7 552	12 601	5 400	4.431 059	83 250	3.293 80
1.761	7 655	13 267	7 200	4.705 194	83 250	2.600 92

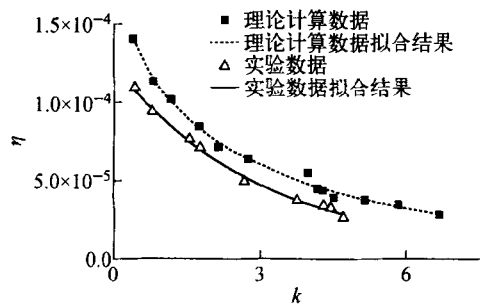


图3 实验值与计算值拟合曲线比较
Fig.3 Comparison between experiment and theory fitting curves

η 与 k 的拟合公式如下,相似度为 0.990 84。
$$\eta = 2 \times 5.976\ 34 \times 10^{-5} \exp(-k/2.887\ 14) + 5.045\ 96 \times 10^{-6}$$

利用实验源与不同密度的均匀介质制作模拟废物进行测量分析,放射性分布分为某几种固定分布、随机分布,活度计算中的探测效率利用无源效率刻度软件与实验拟合的公式得到,结果表明利用理论计算拟合的公式误差范围大致在-20%~-40%,整体偏小,故需校正探测效率,校正因子取 0.7。

3.2 计数影响因子

在理想情况下,分层扫描测量认为每一层是独立的,不受上下层的影响。而实际情况并非如此,平板准直器并非无限宽,不能完全屏蔽测量层上下层对被测层的影响,如图 4 中,横条纹部分也能被探测到。因此,被测核素感兴趣区内的计数需要校正。

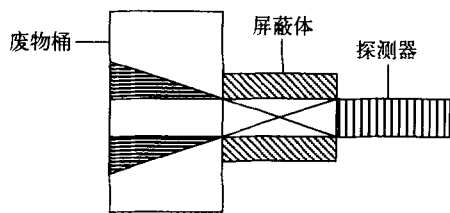


图4 层间影响示意图
Fig.4 Impression chart of different layers

实验方法如下:放射源按固定分布(如沿直径分布)与某均匀介质模拟 1 桶单层的高度为 10 cm 的废物,例如废物层中心距桶底的距离为 10 cm,放置于旋转台上测量,探测器中心距桶底的距离为 10 cm,转速 5 r/min,被测核素

感兴趣区净计数率为 n_1 ;测量完毕后,放射源按同样的分布与同一均匀介质模拟 1 桶单层的废物,废物层中心距桶底的距离为 20 cm,放置于旋转台上测量,探测器中心距桶底的距离为 10 cm,转速 5 r/min,被测核素感兴趣区净计数率为 n_2 ,定义 $f(f=n_2/n_1)$ 为影响因子。实验数据列于表 3,拟合的 $f-k$ 曲线示于图 5。

表3 影响因子与吸收因子对应数据
Table 3 Influence factor and absorptive factor data

介质密度/(g·cm ⁻³)	k	f
0.124	0.465 061	0.737 404
0.215	0.732 701	0.674 214
0.396	1.264 501	0.634 787
0.542	1.605 944	0.608 824
0.591	1.934 711	0.551 248
0.632	2.089 712	0.534 759
0.819	2.658 484	0.386 518
0.885	2.807 451	0.360 714
1.274	3.774 124	0.335 773
1.348	3.923 709	0.290 392
1.538	4.556 527	0.286 644
1.761	4.645 731	0.254 169

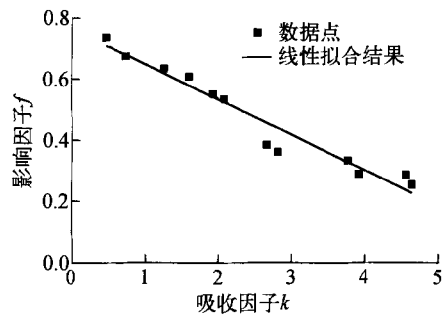


图5 影响因子与吸收因子拟合曲线
Fig.5 Fitting curve between influence factor and absorptive factor

拟合的 f 与 k 的相似度为 0.941 48,关系如下:

$$f = -0.115\ 58k + 0.764\ 66$$

4 模拟实验验证

利用实验源、均匀介质、铝棒(模拟存在结块情况)、废物桶随机制作模拟废物,因源数量限制,模拟废物高度为 30 cm,分 3 层测量,部分模拟样测量结果列于表 4。

表 4 模拟样测量结果
Table 4 Measurement results of imitated barreled radwaste

密度/(g·cm ⁻³)		Co 净计数	Cs 净计数	测量时间/s	单层活度/Bq	总活度/Bq	相对偏差/%
0.124	第 1 层	23 381	1 438	300	33 043.06	86 667.16	4.10
	第 2 层	24 103	1 736	300	27 527.23		
	第 3 层	23 788	1 147	300	26 096.87		
0.124	第 1 层	23 091	1 542	300	35 684.37	95 355.50	14.54
	第 2 层	23 806	1 954	300	31 207.66		
	第 3 层	24 149	1 262	300	28 463.47		
0.124 (插入 4 根铝棒)	第 1 层	20 618	1 433	300	35 881.68	92 921.11	11.62
	第 2 层	21 023	1 865	300	32 637.56		
	第 3 层	20 671	976	300	24 401.87		
0.819	第 1 层	2 090	587	300	37 697.41	89 560.94	7.58
	第 2 层	2 378	728	300	35 429.3		
	第 3 层	2 337	263	300	16 434.23		
0.819	第 1 层	2 375	498	300	30 995.33	84 870.28	1.95
	第 2 层	2 315	588	300	28 805.92		
	第 3 层	2 017	387	300	25 069.03		
0.819	第 1 层	2 223	440	300	27 834.4	67 685.32	-18.70
	第 2 层	2 441	402	300	19 437.98		
	第 3 层	2 176	321	300	20 412.94		
1.348 (插入 4 根铝棒)	第 1 层	1 865	1 306	1 200	32 158.81	86 324.16	3.69
	第 2 层	2 315	1 759	1 200	32 985.97		
	第 3 层	2 350	923	1 200	21 179.38		
1.348	第 1 层	2 101	1 519	1 200	36 070.16	93 258.9	12.02
	第 2 层	2 595	1 927	1 200	34 675.58		
	第 3 层	2 558	1 007	1 200	22 513.16		
1.538 (插入 4 根铝棒)	第 1 层	736	1 105	1 200	35 940.32	81 675.79	-1.89
	第 2 层	953	1 237	1 200	32 023.58		
	第 3 层	715	418	1 200	13 711.89		
1.538	第 1 层	874	1 128	1 200	34 872.1	75 297.12	-9.55
	第 2 层	1 086	1 161	1 200	28 655.16		
	第 3 层	772	367	1 200	11 769.86		
1.538	第 1 层	1 130	1 137	1 200	32 562.95	99 801.48	19.88
	第 2 层	1 055	1 669	1 200	41 631.09		
	第 3 层	1 121	892	1 200	25 607.44		
1.538 (插入 4 根铝棒)	第 1 层	1 004	1 087	1 200	32 248.6	92 912.67	11.61
	第 2 层	1 035	1 471	1 200	36 949.57		
	第 3 层	961	789	1 200	23 714.5		
1.761	第 1 层	2 616	4 537	4 800	38 195.28	91 586.16	10.01
	第 2 层	3 273	5 910	5 400	37 544.16		
	第 3 层	2 371	1 988	5 400	15 846.72		

注:因实验中标液源数量有限,结果与源位置相关,故每种介质模拟几次,每次源放于不同的位置

在放射源集中于桶边的情况下,被测核素感兴趣区内的计数率最大,在放射源集中于中心区域的情况下,被测核素感兴趣区内的计数率最小;相对偏差范围与介质密度相关,介质密度越大,相对偏差范围也越大。因此,放射源集中于桶边的情况下活度计算值最大,放射源集中于中心区域的情况下活度计算值最小。

利用自制的 Cs 实验源(总活度为 83 250 Bq)

和密度为 1.538 g/cm³的均匀介质制作放射源集中于桶边、放射源集中于中心区域的模拟废物,测量结果列于表 5。

对于由密度为 1.538 g/cm³的介质形成的桶装废物,其测量相对偏差大致在-76%~152%内。介质密度越低对射线的影响越小,故对于由密度低于 1.538 g/cm³的介质形成的桶装废物,其测量相对偏差也在-76%~152%内。

表 5 相对偏差范围实验结果

Table 5 Relative deviation range of experiment results

源位置	Co 净计数	Cs 净计数	测量时间/s	活度计算值/Bq	相对偏差/%
集中在中心	12 931	4 706	9 000	19 997.58	-75.98
集中在桶边	2 670	17 223	3 600	209 756.8	151.96

5 结语

在模拟样制作中,存在两个明显的问题:

1) 源分布不均,实验源共 17 个,平均每层源个数不足 6 个,放射性分布随机性强;2) 介质为密度均匀物质,与实际废物情况不相符。

在核设施退役实施过程中,严格按照实施方案执行,被污染物件先尽可能地去污,达不到清洁解控的才作为放射性废物,然后对放射性废物进行分类,再进行简单处理(例如大尺寸的需解体)、装桶,按载体密度桶装废物大致分为 3 类:低密度的,以劳保、防护用品为主;中密度的,以土壤、建筑剥离物为主;高密度的,以设备、设施切割件为主。对于形成的中、低密度的桶装废物,桶内废物的载体密度大致相当,桶内放射性基本是处处分布的(但单位体积内强度可能不同),不存在极端分布情况(放射性集中在某处)。实际废物与模拟样相比,介质密度的分布略差,但放射性分布相对较好,因此模拟样在一定程度上具有代表性。

本工作是根据自身实际需求开展的,与其它效率校正研究相比较粗糙,最终结果的误差范围较大,对于低、中密度的放射性废物,可能最大误差在倍数范围内,而各级废物之间存在数个量级的差别,因此该方法用于放射性废物的分级是可行的。

参考文献:

[1] 苏容波,黄宪果,涂俊,等. 桶装放射性废物非破坏分析系统测量模式设计[J]. 原子能科学技术, 2010,44(增刊):591-595.

SU Rongbo, HUANG Xianguo, TU Jun. Design of measure mode for barreled radwaste non-destructive assay system[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2010, 44(Suppl.): 591-595(in Chinese).

[2] 杨明太,张连平. 桶装废物的非破坏分析[J]. 核电子学与探测技术,2003,23(6):600-603.

YANG Mingtai, ZHANG Lianping. Non-destructive assay of barreled radwaste[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2003, 23(6): 600-603(in Chinese).

[3] GB 9133—1995 放射性废物的分类[S]. 北京: 中国标准出版社,1995.

[4] 许淑艳. 蒙特卡罗方法在实验核物理中的应用[M]. 北京:原子能出版社,1996.

[5] 武祯,李君利. 用于探测器校正因子计算的 Monte-Carlo 方法[J]. 清华大学学报:自然科学版,2006,46(9):1 585-1 588.

WU Zhen, LI Junli. Monte Carlo method for calculating particle radiation detector correction factors[J]. Journal of Tsinghua University: Science and Technology, 2006, 46(9): 1 585-1 588(in Chinese).

[6] HENDRICKS J, MCKINNEY G W. MCNPX user's manual, version 2.5.0[R]. U S; Los Alamos National Laboratory, 2005.