

# 现场物体计数系统测量标准 200 L 钢桶 放射性物质活度的不确定度分析

易珂<sup>1</sup>, 王德忠<sup>1,\*</sup>, 李厚文<sup>2</sup>, 刘诚<sup>1</sup>, 钱楠<sup>1</sup>, 王斌<sup>2</sup>

(1 上海交通大学, 上海 200240; 2 秦山第三核电有限公司, 浙江 海盐 314300)

**摘要:** 利用蒙特卡罗方法评估秦山第三核电有限公司现场物体计数系统(ISOCS)测量标准 200 L 钢桶活度时由于放射性物质随机分布而导致的测量结果的不确定度, 并采用蒙特卡罗方法模拟计算钢桶内为 4 种密度填充物及 10 种核素时 ISOCS 测量结果的偏差, 对 ISOCS 的测量提出修正。

**关键词:** 活度测量; 随机分布; 蒙特卡罗方法; 现场物体计数系统; 标准钢桶

中图分类号: X837

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2009)10-0865-06

## Uncertainty Analysis of in Situ Object Count System Activity Measurement for Standard 200 L Barrel

YI Ke<sup>1</sup>, WANG De-zhong<sup>1,\*</sup>, LI Hou-wen<sup>2</sup>, LIU Cheng<sup>1</sup>, QIAN Nan<sup>1</sup>, WANG Bin<sup>2</sup>

(1 Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China;

2 Third Qinshan Nuclear Power Co. Ltd., Haiyan 314300, China)

**Abstract:** Monte-Carlo method was used to evaluate the uncertainty of the activity measurement which was caused by the random distribution of radioactive substance in standard 200 L barrel in normal in situ object count system. The correction coefficient of the measurement results of ten different nuclide species in four different densities was calculated by Monte-Carlo method in simulation models.

**Key words:** activity measurement; random distribution; Monte-Carlo method; in situ object count system; standard barrel

根据《中低放射性固体废物近地表处置规定》<sup>[1]</sup> 及国家相关标准和要求<sup>[2]</sup>, 在放射性废物处置过程中, 须根据其活度水平来判断其类别, 因此, 固体废物的活度测量是其处理的重要环节。

根据环境影响评价的要求, 秦山第三核电有限公司采用现场物体计数系统(in situ object count system, ISOCS)对存放可压缩中低放射性固体废物的标准 200 L 钢桶桶内活度进行桶外测量。在样品内放射性物质分布等情况已知

收稿日期: 2008-08-01; 修回日期: 2008-09-08

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10675084)

作者简介: 易珂(1985—), 男, 湖南怀化人, 硕士研究生, 核能科学与工程专业

\*通信作者: 王德忠, 教授, 核能科学与工程专业, E-mail: dzwang@sjtu.edu.cn, 021-34205303

©1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

的前提下,使用 ISOCS 能准确测量得出样品的活度。而在对实际废物桶测量时发现,桶内填充物材质未知,废物来源很多,中低放射性物质分布随机,使得桶内放射性物质分布等情况未知,故在实际测量时,一般假设桶内放射性物质均匀分布。这样就会由于实际桶内放射性物质分布与假设不一致而使得测量结果存在一定的不确定度。

本工作采用蒙特卡罗方法研究放射性物质分布随机而导致的测量结果不确定度,并提出修正方法,以提高实际废物桶活度测量的准确性。

1 原理

在使用 ISOCS 进行测量前,首先要通过探测器表征,用户输入源的几何数据后,由刻度软件完成无源效率刻度。刻度软件采用模拟计算的方法得出环境样品的探测效率,实现无源刻度,从而在测量中得到精确定量的  $\gamma$  分析测量结果<sup>[3]</sup>。可见,在实际测量中,只有当被测样品条件精确确定时才能获得精确的测量结果。

然而,在实际测量中,由于废物桶内情况未知,被测样品条件如桶内材料分布、材料组成和桶内放射性物质分布等均很难精确确定。

研究发现,当废物桶在匀速旋转时对其进行测量,可近似认为桶内材料为均匀分布<sup>[4-5]</sup>。因此,可通过测量时将废物桶匀速旋转来减少由于桶内材料实际分布与假设的均匀分布不同而产生的测量偏差,并达到测量要求。

另外,由于桶内实际填充物一般为手套、口罩、大褂、塑料袋等棉及化纤制品,材料对  $\gamma$  射线吸收大小主要取决于其线性衰减系数  $\mu$ ,通过查表和计算<sup>[6]</sup>得出的一些化纤材料在同等密度条件下的  $\mu$  差别不大。故在考虑桶内各种材料对  $\gamma$  射线吸收效应时,可在一定误差范围内,将这些材料视为同一种等效模拟材料。在实际测量中,以此等效模拟材料代替桶内的各种填充物材料,以满足 ISOCS 无源效率刻度要求,获得较为准确的测量结果。

由于  $\mu$  与  $\gamma$  射线能量、吸收材料种类、吸收材料密度  $\rho$ 、射线穿过材料的厚度  $h$  等因素有关,所以,不同核素在桶内不同位置发出的  $\gamma$  射

线在经过不同密度材料时,被吸收情况不同。在实际测量中,由于桶内放射性物质分布未知而被假设为均匀分布,故会由于放射性物质分布实际与假设不同而使测量结果存在一定的不确定度。

本工作采用蒙特卡罗方法,模拟计算桶内放射性物质分别为随机分布和均匀分布时,发出的  $\gamma$  射线经不同密度桶内填充物吸收后所得的测量结果。再通过对结果的分析评估实际测量模型下测量结果的不确定性。

2 模拟材料选取

由于聚乙烯与实际填充物中的各种棉及化纤材料的线性衰减系数最为接近,故首先假设其作为代替实际废物桶中填充物的等效模拟材料,并通过计算和实验加以验证。

2.1 模拟计算

首先使用 MCNP 程序模拟计算废物桶内均匀分布密度为  $0.058\text{ g/cm}^3$  (不压缩情况)的聚乙烯、放射源在桶中不同位置时探测器测量到的计数率。

由于核电厂中低放固体废物中所带有的主要代表性核素的  $\gamma$  射线能量基本在  $80 \sim 1\,700\text{ keV}$  之间,而  $^{152}\text{Eu}$  的  $\gamma$  射线的特征能量峰值在  $121 \sim 1\,470\text{ keV}$  分布较多,因此,采用该核素作为模型和实验中的放射源核素。

模型中探测器尺寸为 ISOCS GC1518 型探头的尺寸,如图 1 所示。废物桶尺寸与核电厂标准 200 L 钢桶尺寸相同。各设备几何位置分布如图 2 所示。探测器中心轴对准桶中心轴;探测器准直器张角覆盖整桶;放射源安放在桶中心平面,即图 2 中的 6 个点上,各点间隔为  $46.6\text{ mm}$ 。

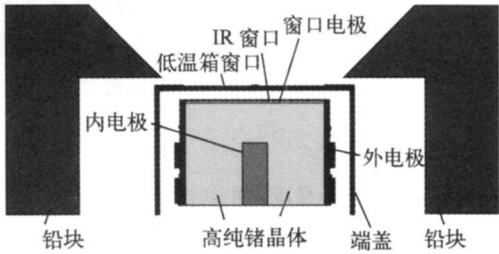


图 1 MCNP 模拟计算模型中的高纯锗探测器

Fig. 1 HPGe detector in MCNP simulation model

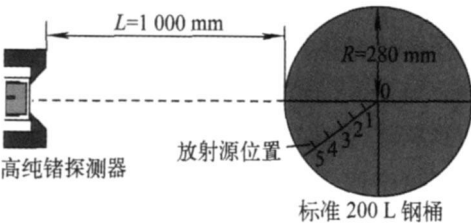


图2 模拟计算中各设备的几何相对位置关系  
Fig. 2 Relative position of equipments  
in simulation model

2.2 实验验证

在设备几何尺寸、设备几何位置关系及源的位置分布等与 MCNP 模型相同的实验条件下,使用 ISOCS GC1518 型探头,采集活度为  $1.85\times10^7$  Bq 的 Eu 源发出的  $\gamma$  射线经桶内密度为  $0.058\text{ g/cm}^3$  的核电厂实际填充物后的计数率。

通过分析 MCNP 模拟计算得到的计数率和实验中测得的计数率之间的偏差(表 1),判断在一定的误差范围内,以聚乙烯作为模拟材料的假设是否可信。

由表 1 中数据可看出,计算和实验所得的各点各能量计数率偏差均较小,均小于 9.7%,大都在 5% 以内。即使考虑了在 MCNP 模拟计算中所存在的固有统计误差(5%左右)和实验中不可避免的误差,也可认为计数率偏差较小。故可认为在一定误差范围内,以聚乙烯作为代替实际填充物的模拟材料的假设可信。

3 测量结果不确定度计算

在选定模拟材料后,再利用 MCNP 研究在废物桶内填充物为不同密度材料时,由于放射性核素空间分布随机而造成的测量结果不确定。

3.1 放射性物质均匀分布

由于实际对特定核素的测量中,首先假设桶内填充物及放射性物质均匀分布而进行无源效率刻度得到探测效率  $\eta$ ,再通过  $\eta$  对测量计数率  $C_c$  进行计算而得出活度测量结果  $I_j$ ,其关系式为:

$$C_c = I_j \eta_j Y \tag{1}$$

其中:Y 为对应核素的分支比。

测量时探测器所采集到的  $C_c$  是一定的,Y 为常数,因而在不同的模型条件下,计算所得的不同测量结果 I 是由于各模型的探测效率不同所致。故首先计算不同模型下的探测效率。

模拟计算的模型中设备的几何尺寸、设备的几何位置关系及源的位置分布等与模拟材料选取计算中的模型相同。根据核电厂实际测量情况,选取特征能量峰分布在 86 788 ~ 1 691 keV 之间的 8 个代表性核素。

另外,考虑到实际中低放废物桶内填充物密度一般为  $0.1\sim0.8\text{ g/cm}^3$ ,故模拟计算桶内材料密度分别为  $0.1,0.3,0.5,0.8\text{ g/cm}^3$  时的情况。

模拟计算的结果如表 2 所列。

表 1 模拟材料验证数据  
Table 1 Data of computation to verify simulation substance

特征能量/ MeV	不同位置处实验测量与计算得到的计数率的相对偏差/%					
	位置 0	位置 1	位置 2	位置 3	位置 4	位置 5
121.78	-2.71	-3.77	-2.59	-3.53	-6.48	-8.83
244.69	-4.82	-6.07	-5.14	-6.50	-6.17	-2.48
344.27	-4.78	-2.52	-4.37	-5.27	-6.25	-7.88
411.11	-8.55	0.43	0.50	-2.18	-2.74	-8.34
443.98	-0.42	2.00	-4.51	-1.98	1.48	-2.38
778.89	-0.33	0.22	-4.06	-2.82	-6.52	-5.98
867.32	-3.68	-7.17	-7.93	-6.94	-9.69	-5.29
964.01	-4.33	-3.27	-5.81	-7.78	-5.84	-6.34
1 085.78	-2.88	-4.25	-0.73	-5.45	-5.04	-4.60
1 112.02	-3.82	-1.51	-5.19	-6.74	-7.45	-9.07
1 407.95	0.55	1.54	0.08	-1.42	3.64	-1.37

表 2 放射性物质均匀分布时不同密度及不同核素对应的探测效率

Table 2 Detection efficiencies for uniform distribution of radioactive material

at different densities and different nuclides

核素	特征能量峰/ keV	10 <sup>5</sup> 不同密度对应的探测效率			
		0.1 g/cm <sup>3</sup>	0.3 g/cm <sup>3</sup>	0.5 g/cm <sup>3</sup>	0.8 g/cm <sup>3</sup>
<sup>160</sup> Tb	86 788	3 081 0	1 722 5	1 125 0	0 757 7
<sup>57</sup> Co	122.06	3 868 0	2 245 0	1 479 0	1 000 1
<sup>51</sup> Cr	320.08	2 188 0	1 394 2	0 989 2	0 672 1
<sup>137</sup> Cs	661.65	1 130 0	0 777 5	0 582 5	0 397 8
<sup>95</sup> Zr	756.71	1 010 0	0 700 0	0 520 8	0 374 2
<sup>58</sup> Co	810.76	0 955 0	0 679 0	0 514 0	0 350 0
<sup>60</sup> Co	1 332.5	0 609 2	0 480 8	0 386 7	0 276 7
<sup>124</sup> Sb	1 691	0 480 0	0 378 3	0 311 3	0 235 0

3 2 放射性物质点源分布

实际中,桶内放射性物质为均匀分布的情况很少,而非均匀分布的极端情况是点源分布,即所有的放射性物质集中在桶内一点上。

由公式:

$$C_c = I_k \eta_k Y \tag{2}$$

可得,在  $C_c$  与  $Y$  确定时,不同位置对应的测量结果  $I_k$  ( $k=1, 2, 3, \dots, 8$ ) 随着其测量效率  $\eta_k$  的改变而改变。

所以,为计算在极端情况下由均匀分布假设而产生的测量结果的偏差,就需首先利用 MCNP 计算点源在桶内不同位置时的测量效率。由于测量时,桶匀速旋转,探头中心轴对准桶中心轴,故放射源在同半径或关于桶中心平面对称的位置上时,测量效率相同,因此,选取如图 3 所示的 9 个点源位置计算。

3 3 测量结果修正系数

定义测量结果修正系数为:

$$G = \frac{I_i}{I_k} \tag{3}$$

比较式 (1)、(2) 可知,在相同测量计数率  $C_c$  情况下,测量结果的修正系数为:

$$G = \frac{\eta_k}{\eta_j} \tag{4}$$

其中,桶内密度为 0.1 g/cm<sup>3</sup> 时对应的修正系数如表 3 所列。

其他密度条件下对应的平均修正系数如表 4 所列。

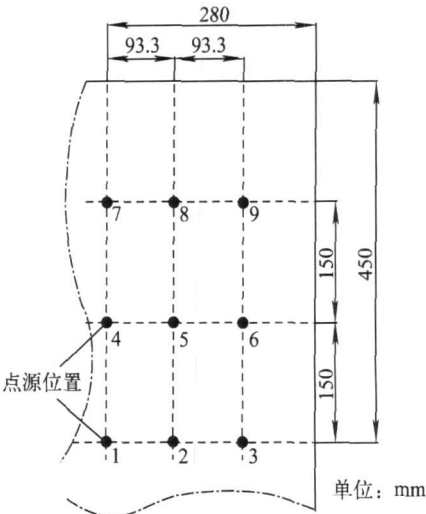


图 3 点源分布示意图

Fig. 3 Positions of point sources

通过对表 4 中数据的分析发现,密度较小,如为 0.1 g/cm<sup>3</sup> 时,其修正系数接近 1,即 ISOCS 的实际测量结果与源总活度偏差不大,无需修正;密度为 0.3 g/cm<sup>3</sup> 时,各位置上各核素测量结果偏差较 0.1 g/cm<sup>3</sup> 的大,但仍较小,可以接受;密度为 0.5 g/cm<sup>3</sup> 时,<sup>124</sup>Sb、<sup>60</sup>Co、<sup>58</sup>Co 和 <sup>95</sup>Zr 等高能区核素对应的测量结果偏差较小外,其他核素偏差较大,需对测量结果进行修正;当密度为 0.8 g/cm<sup>3</sup> 时,各核素测量结果偏差均较大,均需修正。

修正的方法是将 ISOCS 在假设条件的测量结果除以所得的各密度的平均修正系数,以得到相对更加准确的测量结果。

表 3 修正系数  
Table 3 Coefficient of correction

点源位置	对不同核素的修正系数							
	<sup>160</sup> Tb	<sup>57</sup> Co	<sup>51</sup> Cr	<sup>137</sup> Cs	<sup>95</sup> Zr	<sup>58</sup> Co	<sup>60</sup> Co	<sup>124</sup> Sb
1	0 997 1	0 994 3	1 031 1	1 031 9	1 006 9	1. 030 4	1 060 5	1 067 7
2	1 055 3	1 030 2	1 059 0	1 053 0	1 061 9	1. 055 1	1 048 4	1 088 5
3	1 090 2	1 084 2	1 113 7	1 070 6	1 051 8	1. 052 4	1 087 1	1 101 9
4	1 014 6	0 987 6	1 017 3	0 955 0	0 944 7	0. 924 1	0 942 5	1 037 5
5	1 018 7	0 990 8	1 032 0	0 990 7	0 990 3	0. 985 0	1 003 3	1 044 2
6	1 051 1	1 051 0	1 079 4	1 038 6	1 019 3	1. 017 2	1 054 8	1 076 5
7	0 917 2	0 889 8	0 920 6	0 927 0	0 929 0	0. 910 1	0 925 9	0 984 7
8	0 909 3	0 890 5	0 911 9	0 901 7	0 890 0	0. 888 7	0 913 9	0 973 3
9	0 925 8	0 925 7	0 950 5	0 913 6	0 902 3	0. 904 7	0 937 0	0 941 1
	(0 997 7)	(0 982 7)	(1 012 8)	(0 986 9)	(0 977 4)	(0. 974 2)	(0 997 0)	(1 035 0)

注: 括号内为平均值

表 4 平均修正系数  
Table 4 Average coefficient of correction

密度/ (g·cm <sup>-3</sup> )	对不同核素的平均修正系数							
	<sup>160</sup> Tb	<sup>57</sup> Co	<sup>51</sup> Cr	<sup>137</sup> Cs	<sup>95</sup> Zr	<sup>58</sup> Co	<sup>60</sup> Co	<sup>124</sup> Sb
0 1	0 997 7	0 982 7	1 013	0 986 9	0 977 4	0. 974 2	0 997 0	1 035
0 3	0 798 8	0 801 2	0 899 1	0 940 5	0 941 7	0. 925 7	0 929 9	0 994 2
0 5	0 578 8	0 606 3	0 741 0	0 821 7	0 846 9	0. 825 5	0 857 5	0 934 9
0 8	0 338 9	0 368 7	0 529 1	0 680 3	0 690 8	0. 718 7	0 775 0	0 816 9

3 4 放射性物质随机分布

为描述实际桶中放射性物质随机分布的测量情况, 计算在桶内随机选取若干点源时的活度测量结果。其活度测量结果与测量计数率有如下关系:

Cc = (I1η1 + I2η2 + I3η3 + ... + Inηn)Y (5)

在桶内 15 个位置随机选取 10 个点源, 8 个核素共随机选取 8×10×4 个随机数。点源活度为 3.7×10<sup>7</sup>、2×3.7×10<sup>7</sup>、3×3.7×10<sup>7</sup>、...、10×3.7×10<sup>7</sup> Bq, 总活度 I0=55×3.7×10<sup>7</sup> Bq=2.035×10<sup>9</sup> Bq。

其测量偏差如表 5 所列。

由表 5 可知, 利用修正系数对测量结果进行修正后, 测量值更加准确。密度高时修正效果更加明显, 以 0.8 g/cm<sup>3</sup> 时为例, 修正后测量值与准确值的偏差较修正前的偏差均减少

20%左右。得到修正后的测量值在各密度条件下均较为准确, 尤其对应高能区核素的测量值更为准确, 大多在 5%以内。

以上研究表明, 使用本方法对测量值进行修正后, 测量值与准确值的偏差明显减少, 效果显著。

4 结论

研究结果表明, 在实际生产中利用 ISOCS 对不同活度标准 200 L 废物桶进行测量时, 低密度情况下测量结果较为准确可信, 而当密度增加时, 测量结果出现明显偏差。总体上偏差随着射线特征能量的降低而增大, 尤其当能量在 122 keV 附近时, 偏差达到最大。通过本项目的研究, 可进一步提高秦山三期 ISOCS 测量钢桶废物的准确性, 以满足固体废物的测量要求。

表 5 放射性物质随机分布时的测量偏差

Table 5 Measurement deviations of random distribution of radioactive material

密度/ (g ° cm <sup>-3</sup> )	核素	测量偏差 P/ %	修正后的 测量偏差 P' / %	密度/ (g ° cm <sup>-3</sup> )	核素	测量偏差 P/ %	修正后的 测量偏差 P' / %
0.1	<sup>160</sup> Tb	1.671	1.474	0.3	<sup>160</sup> Tb	21.92	2.260
	<sup>57</sup> Co	4.472	2.752		<sup>57</sup> Co	16.86	-3.784
	<sup>51</sup> Cr	1.081	2.359		<sup>51</sup> Cr	14.20	4.570
	<sup>137</sup> Cs	2.310	0.983		<sup>137</sup> Cs	6.978	1.130
	<sup>95</sup> Zr	0.934	-1.376		<sup>95</sup> Zr	9.681	4.079
	<sup>58</sup> Co	7.764	5.356		<sup>58</sup> Co	3.980	-3.735
	<sup>60</sup> Co	5.111	4.816		<sup>60</sup> Co	6.437	-0.590
	<sup>124</sup> Sb	0.147	3.538		<sup>124</sup> Sb	3.636	3.096
0.5	<sup>160</sup> Tb	36.02	-10.57	0.8	<sup>160</sup> Tb	54.72	-33.56
	<sup>57</sup> Co	46.49	11.79		<sup>57</sup> Co	69.99	18.62
	<sup>51</sup> Cr	29.44	4.816		<sup>51</sup> Cr	39.90	-13.61
	<sup>137</sup> Cs	21.23	4.128		<sup>137</sup> Cs	27.91	-5.946
	<sup>95</sup> Zr	13.46	-2.162		<sup>95</sup> Zr	28.70	-3.243
	<sup>58</sup> Co	14.89	-3.096		<sup>58</sup> Co	34.89	9.435
	<sup>60</sup> Co	16.90	3.096		<sup>60</sup> Co	26.63	5.356
	<sup>124</sup> Sb	5.553	-1.032		<sup>124</sup> Sb	16.27	-2.506

参考文献:

[ 1 ] 国家环境保护部. GB 9132—1988 低中水平放射性固体废物的浅地层处置规定[ S]. 北京: 中国标准出版社, 1990.

[ 2 ] GB 11806—2004 放射性物质安全运输规程[ S]. 北京: 中国标准出版社, 2005.

[ 3 ] 朱文凯, 陈军, 熊建平, 等. ISOCS 系统无源效率刻度测量方法的准确性检验[ J]. 核电子学与探测技术, 2005, 25(3): 287-290.  
ZHU Wenkai, CHEN Jun, XIONG Jianping, et al. Test of accuracy for ISOCS measurement method by efficiency calibration without a radioactive source[ J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2005, 25(3): 287-290(in Chinese).

[ 4 ] 朱荣保, 谭亚军, 袁晓鑫, 等. 大型高分辨分段  $\gamma$  扫描装置的研制[ J]. 原子能科学技术, 1994, 28(1): 16-26.  
ZHU Rongbao, TAN Yajun, YUAN Xiaoxin, et al. Development of a segmented gamma rays scanning system[ J]. Atomic Energy Science and Technology, 1994, 28(1): 16-26(in Chinese).

[ 5 ] TRAN Q D. Some theoretical results of gamma techniques for measuring large samples[ J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 1998, 416: 505-515.

[ 6 ] 李德平, 潘自强, 吴德强, 等. 辐射防护手册: 第一分册[ M]. 北京: 原子能出版社, 1987: 278-286.