

200 L 桶装 废物检测装置的研制

王效忠¹, 隋洪志¹, 刘功发², 贾向军¹, 许小明¹, 赵荣生¹, 刘大鸣¹, 乔盛忠¹

(1. 中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413;

2. 中国科学技术大学 国家同步辐射实验室, 安徽 合肥 230029)

摘要:研制了 200 L 桶装 废物检测装置, 给出了装置性能的初步测试结果。装置可工作于无源和有源两种方式, 适合测量 220 L 以下桶装 废物。无源工作方式下的探测下限为 $1 \text{ mg } ^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ 。

关键词: 废物; 有源/无源方式; 探测下限

中图分类号: O614.35; TL816.3

文献标识码: A

文章编号: 1000-6931(2002)01-0005-05

Development of a Passive-active Shuffler for 200 L Drum

WANG Xiao-zhong¹, SUI Hong-zhi¹, LIU Gong-fa², JIA Xiang-jun¹,
XU Xiao-ming¹, ZHAO Rong-sheng¹, LIU Da-ming¹, QIAO Sheng-zhong¹

(1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-48, Beijing 102413, China;

2. University of Science and Technology of China, P. O. Box 6022, Hefei 230029, China)

Abstract: A passive-active shuffler for measuring 200 L drum containing uranium and transuranic waste has been constructed. Its principle, configuration, specifications and preliminary test results are described. The instrument can work at two modes: passive mode and active mode. At passive assay mode, the detection limit is about $1 \text{ mg } ^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$. It can work at the active mode with a ^{252}Cf source.

Key words: uranium and transuranic waste; passive-active mode; detection limit

核设施运行和退役过程中产生的核废物需分类处置。废物、高放废物(GB9133-1995)必须进行地质处置。这类核废物的基体材料成分较为复杂,有布纤维、塑料、混凝土、金属铁屑以及铝合金等,核废物的包装桶有 50、200、220、400 L 等几种规格。

桶装 废物检测装置采用非破坏性分析方法(NDA),通过探测中子确定核废物的放射性活度。对桶装 废物进行准确检测是确定最佳处置方案、提高核材料衡算精度之必需。

1 测量原理

1.1 钚的无源测量

钚的偶核素均有很高的自发裂变中子发射率,如 ^{240}Pu ,其自发裂变中子发射率为 $1.02 \times 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$ 。因此,对于含钚废物,可采用无源方式直接测量总的自发裂变中子。通常采用有效 ^{240}Pu 质量 $m(^{240}\text{Pu}_{\text{eff}})$ 表示废物中的钚量^[1]:

$$m(^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}) = 2.43 m(^{238}\text{Pu}) + m(^{240}\text{Pu}) + 1.69 m(^{242}\text{Pu})$$

收稿日期:2001-02-15;修回日期:2001-07-04

作者简介:王效忠(1941—),男,江苏武进人,研究员,核物理专业

利用标准工作样品,在不同测量条件下进行系列刻度。如果已知钚的同位素丰度,则可利用测量得到的 $^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ 质量计算出废物中的总钷量。

1.2 铀的有源测量

铀同位素自发裂变中子发射率相对较低^[2],对含铀废物,通常采用有源方式测量。有源方式是由外加中子源(如 ^{252}Cf)诱发样品中的可裂变物质(如 ^{235}U)产生诱发裂变,测量裂变产物释放的缓发中子。利用标准工作样品的刻度曲线计算废物中的铀含量。

2 装置的设计要求

2.1 探测下限

探测下限与探测效率、废物基体成分和环境本底等有关。按照核废物处置标准的要求,将装置的探测下限定为 $4\text{ mg }^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ 。

2.2 探测效率

装置对热中子的总探测效率应大于 15% ^[3]。装置中采用慢化材料(聚乙烯等)将中子慢化成热中子。采用热中子探测器 ^3He 正比计数管组成近 4 立体角探测几何。在 4 测量条件下,减小测量室体积有利于提高探测效率。

2.3 诱发中子源

有源工作方式采用 ^{252}Cf 作为诱发中子源。根据探测下限和使用年限(10年)以及辐射剂量要求, ^{252}Cf 中子源强度选定为 10^9 s^{-1} 。

2.4 中子本底

本底中子主要来自 ^{252}Cf 中子源、源周围的裂变材料及宇宙射线等。宇宙射线的影响与测量地点的海拔高度有关。设计中使用中子慢化体(聚乙烯)和中子吸收体(Cd片),以减小中子本底,提高装置探测灵敏度(探测下限)。选择强度适宜的 ^{252}Cf 中子源和测量地点有助于降低中子本底。

2.5 辐射安全

^{252}Cf 中子源屏蔽体内层采用高密度钨-镍-铁合金,外层采用硼化聚乙烯,并实现远距离控制和测量,以便将操作人员所受辐射剂量降至安全水平。

借助于蒙特卡罗 MCNP 程序,对装置进行最优化设计,并进行实验验证。对装置的辐射屏蔽分别采用作图法和蒙特卡罗方法进行了估

算,两种结果基本符合^[4]。

3 装置简述

装置包括测量室、 ^{252}Cf 中子源贮存室、电气控制和数据采集4个部分^[5]。

3.1 测量室

测量室由62支 ^3He 正比计数管和聚乙烯屏蔽体组成。 ^3He 管深嵌在中子慢化体聚乙烯中,分布在测量室底部、顶部和四周。废物桶位于测量室底部的转动平台上。进行有源测量时,外加质询中子源均匀辐照废物桶。

测量室内另有一支包镭 ^3He 管和一支裸露 ^3He 管,用于测量室内的中子谱比。

3.2 中子源贮存室

^{252}Cf 中子源贮存室位于测量室上方,主要由硼化聚乙烯和聚乙烯混合构成。内层为高密度钨-镍-铁合金,用于屏蔽 ^{252}Cf 中子源的辐射。外层聚乙烯厚度约70cm,用以慢化、屏蔽 ^{252}Cf 中子。贮存室装有 $\phi 10\text{ mm}$ 管道与测量室连通, ^{252}Cf 源储存在贮存室的中心位置。进行有源测量时, ^{252}Cf 源通过管道进入测量室。

3.3 电气控制系统

电气控制系统组成示于图1。系统的核心部分是P315X型多功能控制器(Indexer)。P315X带有精密驱动器,可驱动直接相连的步进电机;编码器留有接口,通过RS-232串行口与PC机实现通讯。 ^{252}Cf 安装在软轴的一端,通过步进电机驱动软轴运动,实现 ^{252}Cf 源的移动。对 ^{252}Cf 源的监测采用了冗余设计,5个传感器实时监测 ^{252}Cf 源的位置移动,其中的3个红外传感器用于监测 ^{252}Cf 返回贮存室的位置。管道两端分别安装限位开关,以便在系统失控时进行断电保护。

测量室门和实验大厅门的开/关、旋转平台的转/停可通过计算机控制或手动方式控制(电气控制台)。另有3个传感器分别用来监测测量室门、实验大厅门及旋转平台的状态。

3.4 数据采集系统^[5]

将64根 ^3He 管分为10组,通过8031单片机对10路输出信号分别进行显示、计数,实时监视装置工作状态。利用中子符合分析仪JSR-12输出获取中子信号,并进行处理。8031单片机和JSR-12能够与主机串行通讯(图1)。

数据采集采用手动或计算机控制两种方式。

电气控制和数据采集系统的自动化程度高,符合程控化设计要求。

4 装置性能测试

4.1 无源中子本底

中子本底与环境温度、湿度等有关。经长期测定,装置的中子本底约为 3.0 s^{-1} 。

4.2 无源探测效率

利用 ^{252}Cf 源对装置探测效率的空间效应进行了模拟测量。测量点位置示于图 2。空桶、360 kg 铁屑和 260 kg 混凝土 3 种基体条件下的无源探测效率的测量结果示于图 3。由图 3 可看出:

- 1) 1# 测点的探测效率最低;
- 2) 轴向探测效率有一定差异,说明装置结构上下不对称(图 3a);
- 3) 对于铁屑基体,探测效率的空间效应相

对均匀,且高于空桶的探测效率,说明中子在铁基体中被充分散射和慢化(图 3b);

4) 混凝土基体条件下的探测效率较低,且 1# 测点的探测效率更低,说明混凝土对中子具有很好的慢化和吸收作用,是较好的中子屏蔽防护材料(图 3c)。

实用的平均效率 $\bar{\nu}$ 按下式计算:

$$\bar{\nu} = \frac{\int \nu(r, \theta, H) dr d\theta dH}{\int dr d\theta dH}$$

式中: r 、 θ 、 H 分别为圆柱体坐标的 3 个分量。利用图 3 中的数据计算得到空桶、混凝土和铁屑 3 种基体条件下的 $\bar{\nu}$ 分别为 19.6%、16.0% 和 19.7%。 ^{252}Cf 源置于无基体的空桶中心位置时测得探测效率 $\bar{\nu} = 19.3\%$ 。实际测量中,应根据基体材料种类等具体测量条件对探测效率进行必要的修正。

4.3 无源探测下限^[6,7]

无源测量时,对有效 ^{240}Pu ($^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$) 的探测

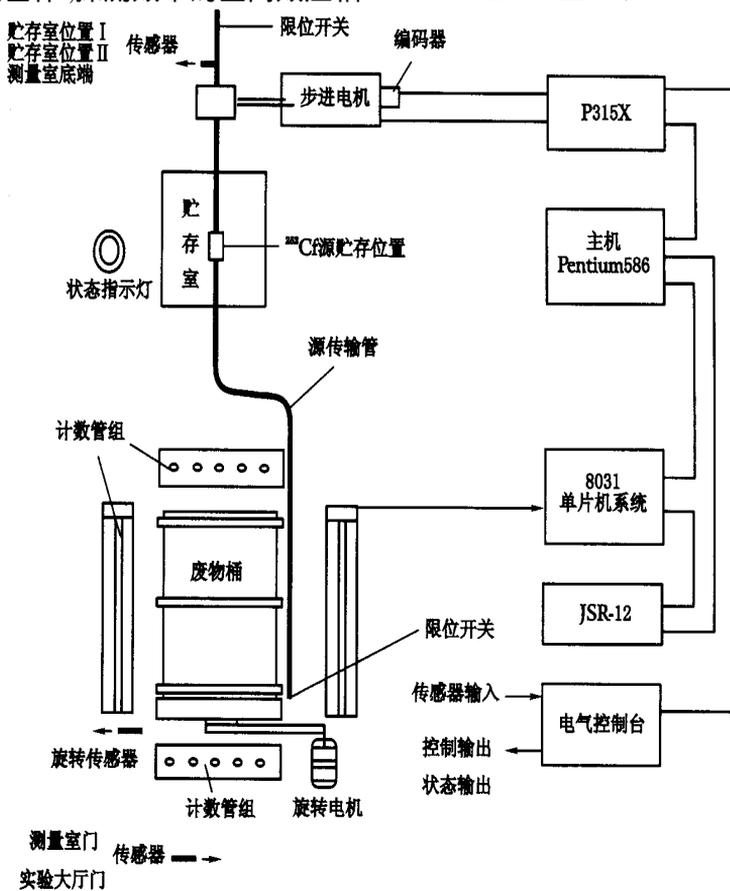


图 1 电气控制与数据采集系统方框图

Fig. 1 Block diagram of the electric control and the data acquisition system

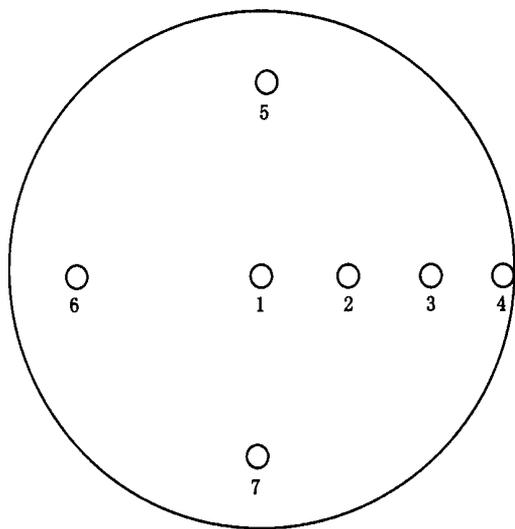


图2 测量点位置分布图

Fig. 2 Position of the measurement points

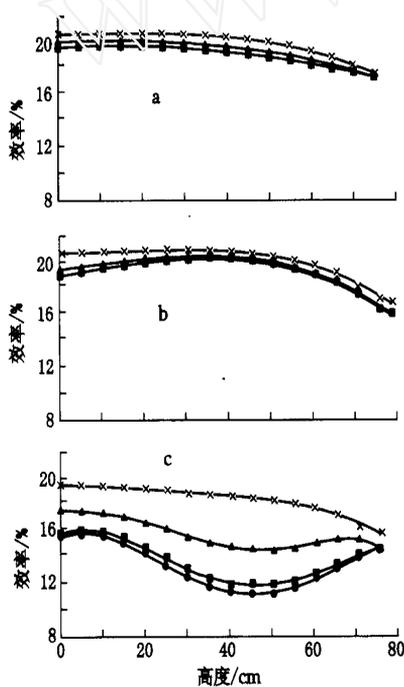


图3 不同基体条件下探测效率的空间效应曲线

Fig. 3 Spatial response of detection efficiency for different matrices

a——空桶(无基体); b——铁基体
c——混凝土基体;

测点序号: —1; —2; —3; x—4

下限 m_s 按下式计算:

$$m_s = \frac{1 + \sqrt{1 + 4 \frac{2}{T} T_c b}}{2 \frac{2}{T} T_c k_T}$$

式中: T 取为 $1/3$; T_c 为测量时间, $1\ 000\ s$; b 为本底中子计数率, $3.0\ s^{-1}$; k_T 为刻度系数, $0.2\ s^{-1} \cdot mg^{-1}$ 。

根据上述参数计算出该装置在无源方式下的探测下限约为 $1\ mg\ ^{240}Pu_{eff}$ 。

4.4 无源方式模拟测量

1) ^{238}U 的自发裂变中子发射率为 $1.36 \times 10^{-2}\ s^{-1} \cdot g^{-1}$ 。对 10 个同等质量的低浓铀元件 (^{238}U 丰度为 97%, 每根含 U 量 360 g, 相当于 $^{240}Pu_{eff}$ 质量 4.7 mg) 进行了模拟测量。测得 ^{238}U 质量与自发裂变中子计数关系示于图 4。模拟实验结果表明: 在 $^{240}Pu_{eff}$ 质量 4.7 mg 范围内, 装置探测的自发裂变总中子计数与 ^{238}U 质量之间有良好的线性关系。

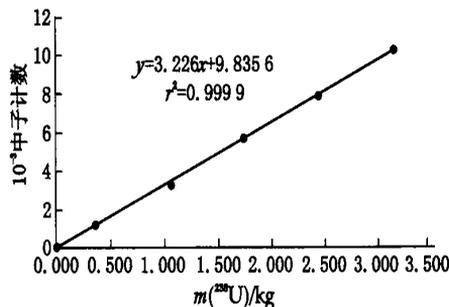


图4 中子计数与 ^{238}U 质量的关系

Fig. 4 Relation between the neutron counts and the ^{238}U mass

2) 用 153 个低浓铀工作样品 (^{235}U 丰度约 3%, 各含铀 2 g, 总量相当于 $4\ mg\ ^{240}Pu$) 均匀分散在桶中, 分别模拟测试在空桶、混凝土及铁屑 3 种基体条件下装置的探测下限。结果列于表 1。

3) 取含 $4\ mg\ ^{240}Pu$ 的 Pu 溶液, 封装在塑料容器中, 制成工作试样, 置于测量室中央, 模拟测量在空桶及铁屑 2 种基体条件下总中子计数。测量结果同列于表 1。

表 1 数据表明: 用低浓铀模拟 $4\ mg$ 有效 ^{240}Pu 分散在整个桶内的实际模拟探测下限低于设计限值 ($4\ mg\ ^{240}Pu_{eff}$), Pu 溶液在测量室中心位置的模拟探测下限也远低于此限值。

表1 低浓铀和钚溶液模拟测量结果

Table 1 Measured results of the U samples and the Pu solution

实验样品	基体	总中子计数 N	本底计数 b	$N - b$
低浓铀粉末, 135个样品, 每个样品2g	空桶 混凝土	3 600 3 330	2 739 2 663	861 667
含4 mg ^{240}Pu 的溶液	铁屑 铁屑	4 119 5 147	3 351 3 084	768 2 063

注:总中子计数时间为1 000 s

5 结束语

1) 研制的基于中子测量原理的200 L桶装废物检测装置在无源方式下只能给出有效 $^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ 质量,不能对发射中子的核素加以鉴别。因此,要使装置具有实用性,还须做到以下两点:(1) 测量废物的各同位素丰度;(2) 制备工作标样或参考样品。

2) 利用 ^{252}Cf 源对装置探测效率的空间效应进行了模拟测量,并对3种不同基体条件下的平均探测效率进行了模拟计算。实际应用中,需根据基体材料种类等具体测量条件对探测效率进行必要的修正。根据中子本底和探测效率,计算得到无源方式下装置的探测下限为1 mg有效 $^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ 。装置的控制和数据获取实现了程控化,可用于现场测量。安装 ^{252}Cf 源后,可以进行有源方式下含铀废物测量。

3) 宇宙射线的干扰会降低装置的探测灵敏度。在高海拔处使用该装置,需要建造专用厂房,以有效屏蔽宇宙射线,降低中子本底。

吕钊和马子云等同志完成了装置机械设计,朱荣保和李泽同志参加了部分工作。

参考文献:

- [1] Reilly D, Ensslin N, Smith H, et al. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials [M]. USA: VS Government Printing Office, 1991. 411.
- [2] 刘圣康. 中子物理 [M]. 北京:原子能出版社, 1992. 138.
- [3] Rinard PM, Adams EL, Menlove HO, et al. The Nondestructive Assay of 55-Gallon Drums Containing Uranium and Transuranic Waste Using Passive-active Shufflers: LA-12446-MS [R]. USA, LA: Los Alamos National Laboratory, 1992.
- [4] 刘功发. 大型桶装铀及超铀废物分类装置的研制 [D]. 合肥:中国科学技术大学, 1999.
- [5] 刘功发, 王效忠, 隋洪志, 等. 桶装铀及超铀废物分类装置的数据获取系统的研制 [J]. 原子能科学技术, 1998, 32(3): 229 ~ 232.
- [6] 刘功发, 王效忠, 李泽, 等. 桶装铀及超铀废物分类装置探测灵敏度的蒙特卡罗计算 [J]. 原子能科学技术, 2001, 35(3): 234 ~ 238.
- [7] 王效忠, 隋洪志, 贾向军, 等. 大型桶装铀及超铀废物检测装置 [R]. 北京:中国原子能科学研究院核保障重点实验室, 1998.