

ADS 散裂靶产生的放射性毒性

龚学余¹, 樊胜², 宋英明¹, 杨磊¹, 罗璋琳²

(1. 南华大学核科学技术学院, 湖南衡阳 421001;

2. 中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要:利用 SHIELD 程序计算不同能量质子照射不同靶产生的散裂产物分布。采用年摄入量限值 (ALI) 标准定义的放射性毒性, 对散裂靶中散裂产物产生的放射性毒性进行研究分析。研究结果表明: 散裂产物具有较大的毒性, 特别是在加速器驱动的次临界系统 (ADS) 要求的入射粒子 (质子) 能量下, 产生了一些处于稀土区长寿命的 α 放射性核素。这些核素若不能在辐射场中被嬗变掉, 其毒性将对生物环境产生长期的影响。

关键词:加速器驱动次临界系统; 放射性毒性; 年摄入量限值

中图分类号: TL7 文献标识码: A 文章编号: 1000-6931(2006)02-0180-06

Radiological Toxicity of Spallation Targets in Accelerator-Driven Sub-critical System

GONG Xue-yu¹, FAN Sheng², SONG Ying-ming¹,
YANG Lei¹, LUO Zhang-lin²

(1. School of Nuclear Science and Technology, Nanhua University, Hengyang 421001, China;

2. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The spallation products from spallation reaction of spallation target triggered by high energy protons in accelerator-driven sub-critical system (ADS), were calculated under different material targets and various energy incident protons respectively using SHIELD code. Then the radiological toxicity of spallation products was studied by applying the concept of annual limit of intake (ALI). It reveals that the toxicity of the spallation products is often on high-rate, especially those alpha emitting rare earths (RE) caused by the incident proton under the ADS required energy largely contribute into overall toxicity of spallation targets. These nuclides will exert a radiological hazard on the biotic environment, if do not transmute them in the radiant field.

Key words: accelerator-driven sub-critical system; radiological toxicity; annual limit of intake

加速器驱动次临界系统(ADS)由于具有良好的资源效益和环境效益,近年来在国际上形成了一个研究热点^[1-3]。由于 ADS 是新的概念,许多问题有待分析和研究^[4]。尽管 ADS 可用来嬗变核废料,但 ADS 在嬗变核废料的过程中,高能质子与靶进行散裂反应,又不断产生具有放射性的核废料。为此,有必要对散裂靶产生的放射性进行研究。

1 散裂产物的质量分布

高能质子与靶发生散裂反应的实验数据非常少。在绝大多数情况下,对散裂产物的分析是利用物理模型进行数值计算,并将计算结果与已有的实验结果进行比较来判断模型的正确性。由此已开发了多个程序^[5],主要有 LAHET、CASCADE 或 CASCADE/INPE、SHIELD 等。本工作利用 SHIELD 程序来研究散裂产物。

SHIELD 程序是用蒙特卡罗方法模拟强子运输的程序,主要用于研究中高能质子入射到厚靶上的中子产生、能量沉积、碎片分布及由入射粒子和次级粒子在靶材上引起的辐射损伤、加速器和空间粒子引起的辐射防护等方面的研究^[3]。

研究选用圆柱形固态靶,靶长 60 cm,直径 20 cm。图 1 示出 1.6 GeV 质子轰击铅-铋靶和天然铀靶得到的散裂产物分布。由图 1 可知,散裂产物主要分布在 3 个不同质量区域。第 1 个区域以轻核为主,第 2 个包含了由裂变和蒸

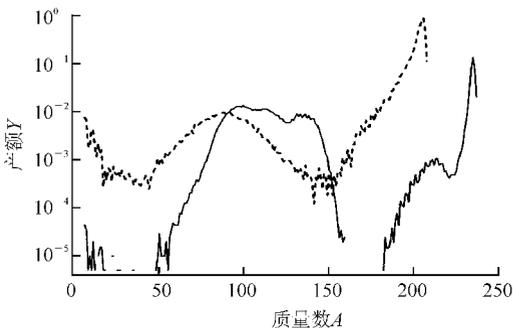


图 1 1.6 GeV 质子入射铅-铋靶和天然铀靶引起的碎片分布

Fig. 1 Mass distributions of spallation product in Pb-Bi target and natural U target irradiated by 1.6 GeV protons
实线——天然铀靶;虚线——铅-铋靶

发或只由蒸发产生的以靶核质量数一半为峰的中间产物区,第 3 个由以初始靶核质量数为峰值的区。

图 2 示出 0.6、0.8 和 1.6 GeV 质子照射铅-铋靶得到的散裂产物的分布。由图 2 可知,随着入射质子能量的增加,分布曲线的宽度展宽,峰的高度增加。这一分布规律显示,质子能量的增加,散裂反应产生的核子数目增多,相应的远离靶核质量数目的余核也相应增多。从图 2 还可知,随入射粒子能量增加,稀土区(质量数 $A \approx 150$ 的区域)的核素增加,如¹⁵⁰Gd 和¹⁵⁴Dy 等。将 SHIELD 计算结果与 CASCADE/INPE 计算结果进行了比较,两者在整体分布上是一致的,但在轻核区域上稍有差别。这些差别对靶的放射性毒性分析不会产生大的影响。

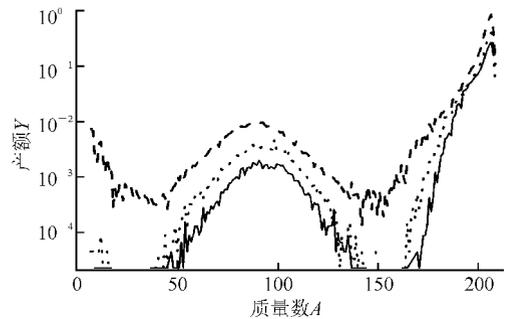


图 2 不同能量质子入射铅-铋靶引起的碎片分布

Fig. 2 Mass distributions of spallation product in Pb-Bi target irradiated by protons with various energy

实线——0.6 GeV;短虚线——0.8 GeV;长虚线——1.6 GeV

2 散裂靶的毒性

放射性元素通过衰变释放能量。衰变能被人体或其它生物体吸收将引起生物效应,造成不良反应。为形象描述放射性核素产生的生物效应大小,引入了放射性毒性概念。放射性毒性通常定义为放射源的活度与具体的放射性核素指导标准(radioactivity guide)之比。由于指导标准定义的不同,出现了不同的放射性毒性概念。在这里,选取年摄入量限值(ALI)作为放射性指导标准。某一种核素的 ALI,是指在不超过规定的放射性个人剂量限值情况下允许

摄入这种核素的放射性活度的最大值。参考文献[5]给出了 ADS 分析中重要核素的 ALI 值。处在稀土(RE)区的 ^{150}Gd 和 ^{154}Dy 是散裂产物中长寿的 α 发射体,半衰期分别为 1.8×10^6 和 3.0×10^6 a,是散裂靶中产生的重要放射性核素,须给出其 ALI 值,然而,文献[6]以及其它报告中均未提及。本工作按照文献[5]的假定,取 ^{150}Gd 和 ^{154}Dy 的年摄入量限值 $\text{ALI} = 2.2 \times 10^3$ Bq,其理由[5]是, α 发射体的 ALI 总体上比 β 发射体的低 2~5 个数量级,而且,超铀元素的肠转化因子和 RE 区元素的肠转化因子大致相同,故认为 ^{150}Gd 和 ^{154}Dy 摄入 50 a 后的能量沉积与 ^{244}Cm 相似,它们的 ALI 期望值处在 3.7×10^2 Bq(与 ^{244}Cm 的 ALI 相同)和 2.2×10^3 Bq(与 RE 中 α 发射体 ^{146}Sm 的 ALI 相同)之间。

对于某一种放射性核素 i ,设它的活度为 a_i ,所对应的年剂量限值为 ALI_i ,则它的放射性毒性可表示为:

$$T_{i,R} = \frac{a_i}{\text{ALI}_i} \quad (1)$$

如果是一系列核素,则总的放射性毒性可以对各个核素毒性直接求和得到:

$$T_R = \sum_i T_{i,R} = \sum_i \frac{a_i}{\text{ALI}_i} \quad (2)$$

这种毒性定义的物理意义在于:相同活度的放射性核素,如果它的年剂量限值越大,则放射性毒性越小,反之越大。散裂靶中放射性核素 i 随时间变化的微分方程为:

$$\frac{dN_i}{dt} = IY_i - (\lambda_i + \sigma_i\varphi)N_i \quad (3)$$

式中: N_i 为散裂产物 i 的数量; I 为质子束流强; Y_i 为 1 个入射粒子产生的散裂产物产额; λ_i 为其衰变常量; φ 为嬗变场中子通量密度; σ_i 为该产物与中子作用截面。

式(3)右边第 1 项代表散裂产物 i 的产生率,第 2 项代表该产物自然衰变率和人工嬗变率,当二者达到平衡时,式(3)左侧项等于 0。

为了区分 1 个质子与靶作用产生某种核素的毒性和靶受质子照射趋近于饱和时的毒性,引入两种毒性概念,产生毒性 T_i 和平衡毒性 $T_{i,\text{eq}}$ 。产生毒性 T_i 定义为:

$$T_i = \frac{\lambda_i Y_i}{\text{ALI}_i} \quad (4)$$

式(4)给出 1 个质子在某一时刻产生的某种核素 i 的毒性。若无人工嬗变,平衡毒性 $T_{i,\text{eq}}$ 定义为:

$$T_{i,\text{eq}} = I \frac{Y_i}{\text{ALI}_i} \quad (5)$$

式(5)表征的是产生的放射性核素在趋近于饱和时的毒性大小的自然变化。两种毒性均由活度控制, T_i 主要突出了短寿命核素,而 $T_{i,\text{eq}}$ 强调了核素的产生在趋于饱和时的自然变化趋势,即靶经过长时间照射或冷却后其中的放射性毒性将趋于缓慢。散裂产物对环境的危害主要是一些长寿的核素,选定半衰期处在 $12.3 \sim 4.47 \times 10^9$ a 内的散裂产物进行研究。在以下计算中,取质子流强 $I = 1$ mA。

图 3a 示出 1.6 GeV 质子轰击铅-铋靶时产生的长寿命散裂产物的产生毒性和平衡毒性各占的份额。在产生毒性计算时,加入了 ^{60}Co ($T_{1/2} = 5.3$ a)产生的放射性毒性。从图 3a 可知,无论是产生毒性还是平衡毒性, α 发射体稀土元素(RE) ^{148}Gd 的放射性毒性均占很大份额,长寿的 ^{150}Gd 和 ^{154}Dy 也占相当大份额。因此,在 ADS 研究过程中,不能忽视散裂反应产生的 RE 元素对环境生物产生的影响。作为对比研究,图 3b 示出 0.8 GeV 质子轰击铅-铋靶时产生的长寿命散裂产物的产生毒性和平衡毒性各占的份额。由图 3 可知,能量较低的质子比能量高的质子轰击铅-铋靶所产生的长寿命核素的放射性毒性小 1 个数量级以上,但低能质子产生的散裂中子数目少,1.6 GeV 质子产生的中子数为 38 个,而 0.8 GeV 质子仅为 13 个。除此之外,各核素的毒性所占的比重有很大差别。在图 3b 中, α 发射体稀土元素的影响已基本不存在,取而代之的是 ^{194}Hg 、 ^{90}Sr 等核素的放射性毒性占主导地位。这说明,入射质子能量在 0.8 GeV 以下时, α 发射体稀土元素的贡献基本上可忽略不计,这与文献[5]的结果一致。

图 4 示出了 1.6 GeV 质子轰击天然铀靶中产生的长寿命核素的产生毒性和平衡毒性。与图 3a 相比,就毒性大小而言,两者的差别很大。无论是产生毒性还是平衡毒性,天然铀靶的毒性皆比铅-铋靶的高 4 个数量级。由此可知,采用不同的靶材料产生的散裂毒性是不一

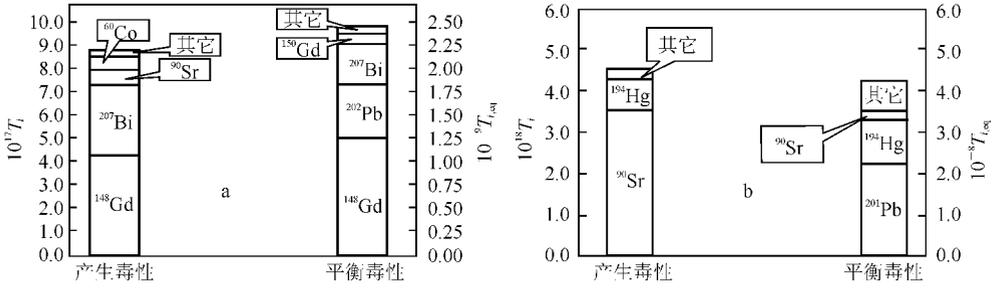


图3 1.6、0.8 GeV 质子轰击铅-铋靶产生的长寿命散裂产物毒性

Fig. 3 Radiological toxicities of long-lived spallation products in Pb-Bi target irradiated with 1.6, 0.8 GeV protons
a—1.6 GeV; b—0.8 GeV

样的。

除此之外,在天然铀靶的产生毒性中,²²⁷Ac 的毒性占绝大部分,而这种产物在铅-铋靶中是不可能产生的。但由于²²⁷Ac 的寿命相对较短($T_{1/2}=21.773$ a),故在平衡毒性中它所占的比重仅为 3.91%;在平衡毒性中,²³⁶U 所占比重较大,这主要是由于它的半衰期较长($T_{1/2}=2.342 \times 10^7$ a),因此,平衡毒性较大。

图 5 分别示出铅-铋散裂靶内的产生毒性和平衡毒性随入射质子能量的变化曲线。由图 5 可看出,在铅-铋靶内,平衡毒性和产生毒性均随入射质子能量升高而增大。图 6 示出天然铀散裂靶内的产生毒性和平衡毒性随入射质子能量的变化。由图 6 可知,对天然铀靶,放射性毒性也随入射质子能量的升高而增大。

在不考虑散裂产物由中子引起的人工嬗变情况下,根据人工放射性同位素生长规律,在流

强为 I 的质子束照射下,散裂靶内所产生的放射性核素 i 的活度随时间 t 的变化为:

$$a_i = IY_i(1 - \exp(-\lambda_i t)) \quad (6)$$

放射性毒性随照射时间的变化规律类似,为:

$$T_{i,R} = T_{i,eq}(1 - \exp(-\lambda_i t)) \quad (7)$$

靶内总的放射性毒性随照射时间的变化为:

$$T_R = \sum_i T_{i,R} = \sum_i T_{i,eq}(1 - \exp(-\lambda_i t)) \quad (8)$$

图 7 示出 1.6 GeV 质子轰击铅-铋靶散裂靶内放射性毒性随质子照射时间的变化。从图 7 可知,散裂靶产生的毒性相当大,是由这些核素的半衰期相对较长所致。从堆芯取出的散裂靶将对环境产生长期影响。

如果散裂靶处在嬗变场中,那么,部分散裂产物将被嬗变掉,这时,散裂产物平衡毒性可表示为:

$$T_{i,eq} = I \frac{Y_i}{\text{ALI}_i(1 + \sigma_i \varphi / \lambda_i)} \quad (9)$$

设靶中中子通量密度为 $2.4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (该值对应于堆功率为 1 GW,其中子通量密度为 $10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 量级),¹⁵⁰Gd 和¹⁵⁴Dy 的作用截面分别为 2.44×10^{-24} 和 $7.26 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ [5],¹⁵⁰Gd 和¹⁵⁴Dy 的寿命分别为 5.42 和 1.82 a。在这样的条件下,如果靶不能长期放在辐射场中,而在受质子照射一段时间后将靶取出,由于散裂产物未被完全嬗变,这时的放射性核素将自然衰变。图 8 示出铅-铋靶受 1.6 GeV 质子照射半年取出后,长寿命散裂产物¹⁵⁰Gd 和¹⁵⁴Dy 的毒性随时间的变化。从图 8 可知,散裂产物中仍存在长寿命 α 发射体¹⁵⁰Gd 和¹⁵⁴Dy,相对无嬗

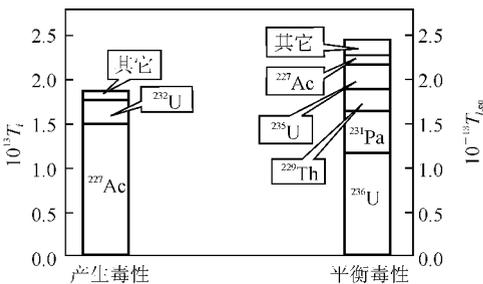


图4 1.6 GeV 能量质子轰击天然铀靶产生的长寿命散裂产物毒性

Fig. 4 Radiological toxicities of long-lived spallation products in natural U target irradiated with 1.6 GeV protons

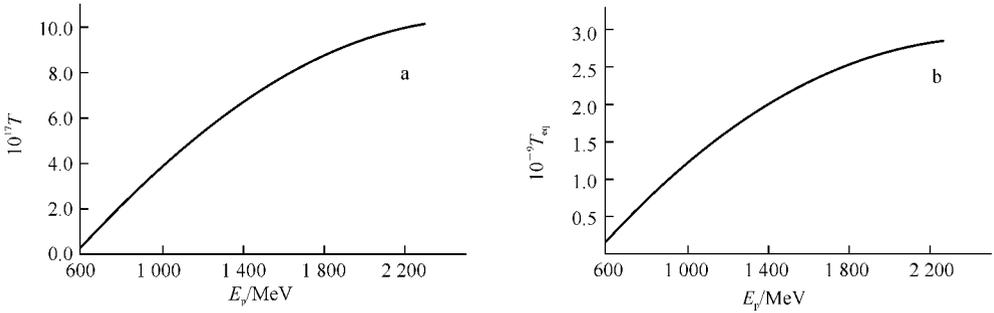


图5 铅-铋靶内产生毒性(a)和平衡毒性(b)随入射质子能量的变化

Fig. 5 Generated(a) and equilibrium(b) toxicities in Pb-Bi target versus energy of incident proton

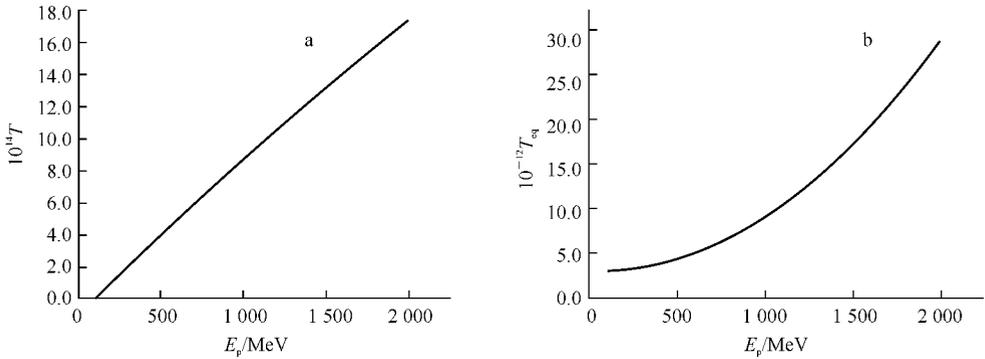


图6 天然铀靶内产生毒性(a)和平衡毒性(b)随入射质子能量的变化

Fig. 6 Generated(a) and equilibrium(b) toxicities in natural U target versus energy of incident proton

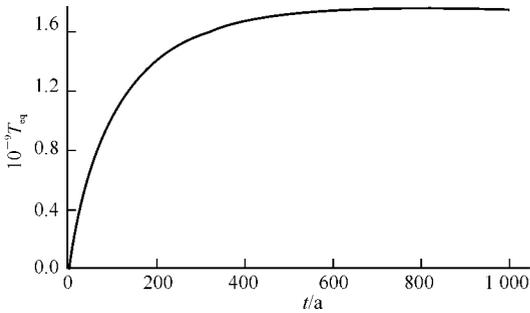


图7 1.6 GeV 质子轰击铅-铋靶内放射性毒性随时间的变化

Fig. 7 Radiological toxicities in Pb-Bi target irradiated with 1.6 GeV protons versus time

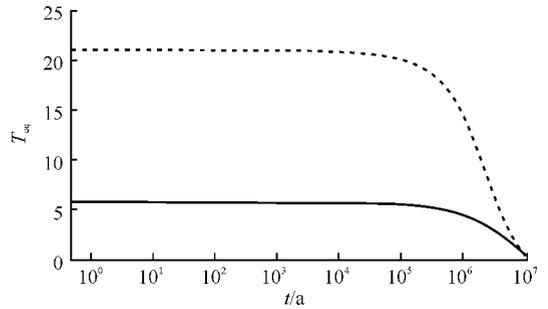


图8 考虑人工嬗变后铅-铋靶内个别核素毒性随时间的变化

Fig. 8 Radiological toxicities of selected fission products in Pb-Bi target applying artificial transmutation versus time

实线—— ^{154}Dy ; 虚线—— ^{150}Gd

变情况,其平衡毒性已大为降低,从而对环境的影响大大减少。所以,考虑了散裂靶可在嬗变场中嬗变这一事实后,由散裂靶产生的放射性相对于 ADS 嬗变掉的核废料的放射性是很小的。

3 结论

利用 SHIELD 程序计算了不同能量质子照射不同靶时产生的散裂产物的分布。在 ADS 要求的质子入射粒子能量下,产生了一些

处于稀土区的长寿命的 α 放射性核素。这些 α 核素若不能在辐射场中嬗变掉,将对环境产生长期影响。但散裂靶本身已处在嬗变场中,所产生的一些核素将在嬗变场中被嬗变掉。降低入射质子能量和采用不同的靶材料可减少散裂靶产生的放射毒性。因此,考虑到散裂靶本身处在嬗变场中,其产生的放射性核素可被嬗变掉这一事实,故由散裂靶产生的放射性核素对环境的影响就 ADS 将来实际应用而言可不必过分忧虑。

参考文献:

- [1] 丁大钊. 未来核能利用的方案探讨——加速器驱动放射性洁净核能系统[C]// 加速器驱动放射性洁净核能系统概念研究论文集. 北京:原子能出版社,2000:3-16.
DING Dazhao. A new option for exploitation of future nuclear energy—Accelerator driven radioactive clean nuclear power system[C]// The papers collection for the conceptual research of accelerator driven radioactive clean nuclear power system. Beijing: Atomic Energy Press, 2000: 3-16 (in Chinese).
- [2] SALVATORES M, SLESSAREV I, TCHISTIAKOV A. The transmutation of long-lived fission products by neutron irradiation[J]. Nuclear Science and Engineering, 1998, 130(11): 309-319.
- [3] 樊胜,叶沿林,赵志祥. 中能质子引起散裂反应的碎片分布研究[C]// 加速器驱动放射性洁净核能系统概念研究论文集. 北京:原子能出版社,2000: 260-269.
FAN Sheng, YE Yanlin, ZHAO Zhixiang. Fragment mass distribution of proton-induced spallation reaction with intermediate energy[C]// The papers collection for the conceptual research of accelerator driven radioactive clean nuclear power system. Beijing: Atomic Energy Press, 2000: 260-269(in Chinese).
- [4] 龚学余,马长利,尹陈艳,等. ADS 质子束管产生的辐射剂量[J]. 原子能科学技术, 2005, 39(3): 209-213.
GONG Xueyu, MA Changli, YIN Chenyan, et al. Radiation dose on accelerator-driven sub-critical system proton tube[J]. Atomic Energy Science And Technology, 2005, 39(3): 209-213 (in Chinese).
- [5] SAITO M, ARTISYUK V, STANKOVSKII A. Radiological hazard of long-lived spallation products in accelerator-driven system [J]. Nuclear Science and Engineering, 2002, 142(1): 1-11.
- [6] GB8703—88, 辐射防护标准[S].
GB8703—88, The standards of radiation protection[S](in Chinese).