

回收铀贫料容器辐射水平分析及防护建议

宋芳媛, 聂兰强

中国核电工程有限公司郑州分公司, 河南 郑州
Email: nielqcnpe@163.com

收稿日期: 2021年5月26日; 录用日期: 2021年7月14日; 发布日期: 2021年7月21日

摘要

我国目前正在大力推进闭式燃料循环, 若对堆后铀进行再循环, 将操作回收铀, 需考虑回收铀贫料的放射性对工作人员的外照射影响。本文将分别对回收铀中各核素对于剂量的贡献及回收铀、天然铀贫料容器的表面辐射水平进行计算分析, 并给出外照射防护建议。文中重点对U-238和U-232衰变子体对 γ 剂量率的影响进行了分析计算, 并根据计算结果对回收铀的操作和贮存方式提出了防护建议。

关键词

回收铀, 衰变子体, 韧致辐射

Analysis of Radiation Level and Protection Suggestion for Recuperated Uranium Depleted Material Containers

Fangyuan Song, Lanqiang Nie

Zhengzhou Branch of China Nuclear Power Engineering Corporation Ltd., Zhengzhou Henan
Email: nielqcnpe@163.com

Received: May 26th, 2021; accepted: Jul. 14th, 2021; published: Jul. 21st, 2021

Abstract

At present, China is vigorously promoting the closed fuel cycle. If the uranium is recycled after the reactor and the uranium will be recovered, it is necessary to consider the influence of the radioactivity of the depleted uranium material on the workers' external radiation. In this paper, the contribution of each nuclide in the recovered uranium is calculated and analyzed respectively, and

the suggestions for external radiation protection are given. The effects of U-238 and U-232 decay daughters on the gamma dose rate are analyzed and calculated, radiation protection recommendations for the operation and storage methods of recovered uranium are proposed based on the calculation results.

Keywords

Uranium Recovery, Decay Daughter, Bremsstrahlung

Copyright © 2021 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

2021年1月30日, 福清核电站5号机组正式投入商业运行, 至此, 我国在运核电机组数量已达49台, 总装机容量5105.816 kW, 并且还有14台核电机组正在建设当中。核电站运行过程中产生了大量的乏燃料。有些国家选择一次通过式燃料循环, 在地质构造中直接处置乏燃料; 有些国家选择闭式燃料循环, 对乏燃料进行处理, 将易裂变物质再循环并将裂变产物当作高放废物进行处置。从可持续发展的角度看, 再循环对于提高铀资源利用率和减少放射性废物是一种非常吸引人的选择, 并能降低整个燃料循环对环境的影响。

我国正在大力推进闭式燃料循环, 目前正在开展核燃料后处理工程、示范快堆工程及示范快堆MOX组件生产线工程的建设, 可对乏燃料进行后处理, 并将回收的钚产品制成MOX燃料, 作为快堆的燃料, 回收的铀产品则考虑暂存。我国后处理工程建成后, 将产生大量回收铀, 必将开展回收铀的循环利用工作[1]。

从乏燃料回收的铀, 其U-235富集度在0.8%~1.3%之间, 高于天然铀中U-235的富集度。若将堆后铀转化成 UF_6 , 再进行浓缩, 浓缩产生的精料部分将通过粉末制备工艺转化为 UO_2 , 用于燃料元件制造, 可提高铀资源利用率。但浓缩过程产生的贫料部分(即回收铀贫料), 则需长时间储存。闭式核燃料循环示意图见图1。

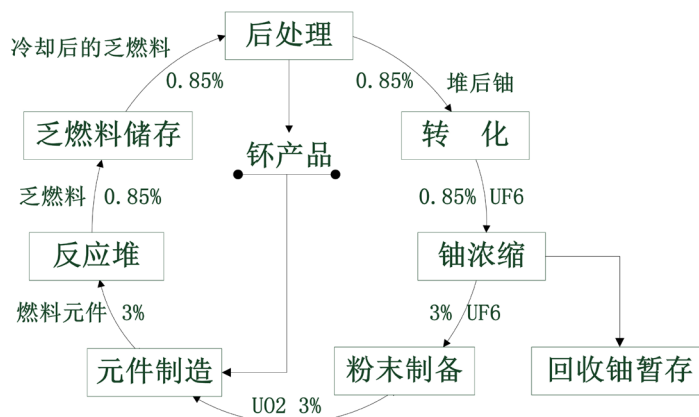


Figure 1. Flow chart of recycled uranium recycling
图1. 堆后铀再循环流程图

目前国际上很多国家已经开展了回收铀的再循环利用工作, 如: 英国对 Magnox 反应堆乏燃料后处理产生的约 1600 t 回收铀进行了再浓缩, 用于制造燃料组件; 法国电力公司(EDF)从 1997 年开始在 Cruas-3 和 Cruas-4 反应堆大批量使用回收铀燃料; 德国已在轻水堆机组使用了大量的回收铀; 俄罗斯拥有工业规模的回收铀加工设施; 日本也开展了回收铀再浓缩制成燃料组件的试验工作[2]。我国正在秦山第三核电有限公司重水堆核电站开展等效天然铀棒束的应用研究工作。

由于回收铀中含有 U-232 等放射性核素, 相比天然铀贫料, 对回收铀贫料进行操作、贮存时, 需额外考虑回收铀贫料的放射性对工作人员的外照射影响。本文将分别对回收铀中各核素对于剂量的贡献及回收铀、天然铀贫料容器的表面辐射水平进行计算分析, 并给出防护建议。

2. 回收铀中主要核素的剂量贡献

2.1. 计算程序

本文采用 MCNP 程序对模型进行剂量率计算, 该程序利用蒙特卡罗方法完成粒子输运计算, 是辐射屏蔽计算中最常用的程序之一。

剂量率计算中的粒子为光子, 光子外照射放射防护的剂量转换系数见 GBZ/T 144-2002《用于光子外照射放射防护的剂量转换系数》中“表 A1 单能光子自由空气比释动能 K_a 、光子注量 Φ 和照射量 X 之间的转换系数” [3]。

2.2. 计算模型

回收铀及天然铀贫料都以固体 UF_6 形式贮存于 3 m^3 UF_6 容器内, 本文以单个 3 m^3 UF_6 容器为分析对象。

3 m^3 UF_6 容器内径为 $\phi 1200\text{ mm}$, 壁厚 16 mm, 材质为 16 MnDR, 容器结构详见图 2。 3 m^3 UF_6 容器最大装料量为 9.5 t UF_6 。计算时, 容器内径取 $\phi 1200\text{ mm}$, 长度取 2940 mm, 容器壁为 16 mm 厚的 16 MnDR; 由于物料对 γ 射线有自吸收作用, 计算时按物料均匀分布在容器内考虑, 则 UF_6 密度取 3.167 g/cm^3 ; 探测点取在容器长度方向中心位置、距容器壁外 2 cm (探测点 1)、5 cm (探测点 2)、30 cm (探测点 3)、100 cm (探测点 4)处。

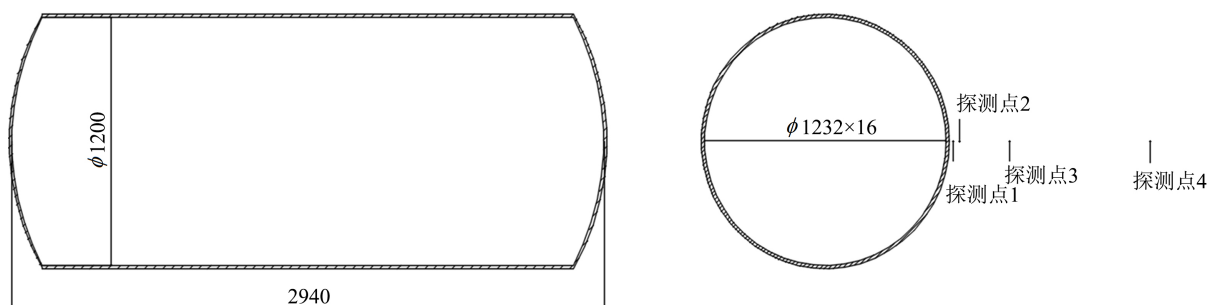


Figure 2. Schematic diagram of 3 m^3 cylinder of uranium hexafluoride

图 2. 3 m^3 UF_6 容器示意图

2.3. 辐射特性说明

经后处理后, 回收铀中含有超铀核素(Np-237、Pu-239、Pu-240 等)和裂变核素(Tc-99、Ru-106 等)。根据放射性核素辐射特性可知, 回收铀贫料中对剂量影响较大的核素主要是 U-232、U-234、U-235、U-236、U-238、Np-237 和 Pu-239。尤其是 U-232 的衰变子体(Bi-212、Tl-208)衰变时, 产生能量为 1.62 MeV 和 2.614 MeV 的 γ 射线, 较难屏蔽。回收铀中 U-232 的含量低于 0.0572 ppb, 在分离后, 预计回收铀贫料中

U-232 的含量低于 0.01 ppb。本文中回收铀贫料中 U-232 的含量取 0.01 ppb。

2.4. 主要核素对剂量贡献的计算

回收铀中主要核素含量见表 1, 初始时刻、衰变 1 个月及衰变 1 年, UF_6 容器外表面剂量计算结果见表 2, 不同核素对剂量率的贡献见图 3。由表 2 及图 3 可知, U-238 核素对剂量贡献最大; 由于 U-232 核素含量低至 $1E-11$ g/gU, 对总的辐射剂量贡献较小。除 U-232 核素, 回收铀贫料中大部分核素的衰变链在一年时已达到平衡状态, 十年时的剂量贡献与一年时基本没有差别, 因此仅计算至 1 年时刻。U-232 在十年后将达到平衡状态, 根据计算结果, 到第 10 年时, U-232 所致容器外表面剂量率略有增加。

Table 1. The composition of the covered depleted uranium at the initial moment

表 1. 初始时刻的回收铀贫料成分

核素	质量含量, g/gU	比活度, Bq/gU
U-232	1E-11	7.92E+00
U-234	1.7E-05	3.93E+03
U-235	3.13E-03	2.50E+02
U-236	7E-03	1.68E+04
U-238	0.99685	1.24E+04
Np-237	/	38.72
Pu-239	/	43.06

Table 2. Contribution of each nuclide to the dose rate of the outer surface of the cylinder with recovered depleted uranium

表 2. 各核素对于回收铀贫料容器外表面辐射剂量的贡献

核素	衰变时间	容器表面 2 cm		容器表面 5 cm		容器表面 30 cm	
		$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ
U-232	1 个月	1.43E-02	0.0338	1.29E-02	0.0183	8.37E-03	0.0060
	1 年	1.82E-01	0.0230	1.65E-01	0.0116	1.05E-01	0.0055
	10 年	5.69E-01	0.0351	4.98E-01	0.0173	3.13E-01	0.0042
U-234	1 个月	3.70E-06	0.5800	6.30E-06	0.3918	1.74E-05	0.3346
	1 年	3.71E-06	0.5798	6.30E-06	0.3917	1.70E-05	0.3411
U-235	1 个月	5.37E-02	0.0924	5.20E-02	0.0459	3.42E-02	0.0238
	1 年	5.37E-02	0.0924	5.20E-02	0.0459	3.42E-02	0.0238
U-236	1 个月	6.49E-05	0.1870	5.11E-05	0.1163	3.07E-05	0.0457
	1 年	6.49E-05	0.1870	5.11E-05	0.1163	3.07E-05	0.0457
U-238	1 个月	6.43E+00	0.0650	6.01E+00	0.0446	4.10E+00	0.0319
	1 年	1.10E+01	0.0609	1.04E+01	0.0429	7.13E+00	0.0305
Np-237	1 个月	3.02E-02	0.2611	2.11E-02	0.0445	1.36E-02	0.0151
	1 年	6.17E-02	0.3410	3.81E-02	0.0399	2.56E-02	0.0190
Pu-239	1 个月	1.16E-05	0.3579	1.14E-05	0.2965	5.28E-06	0.1139
	1 年	1.16E-05	0.3579	1.14E-05	0.2965	5.28E-06	0.1139

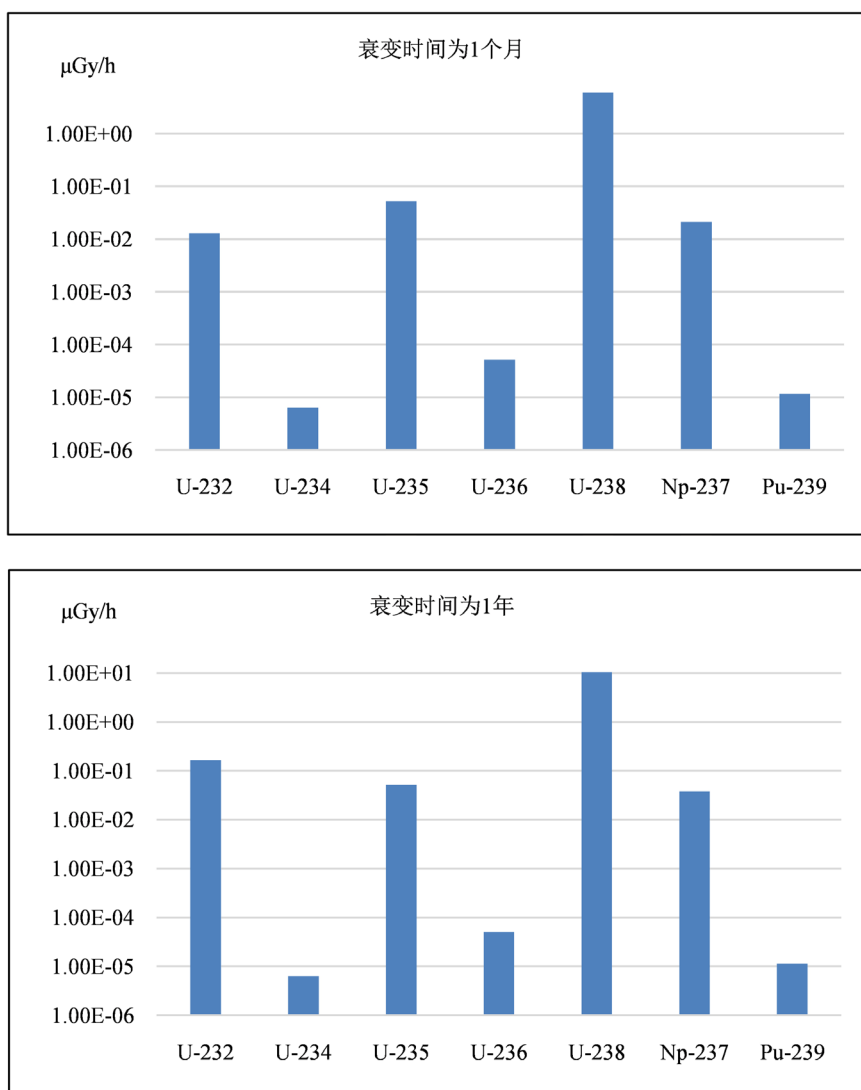


Figure 3. Contribution of each nuclide to the dose rate of the outer surface of the cylinder
图 3. 各核素对于容器外表面剂量的贡献

3. 回收铀贫料容器辐射水平分析计算

3.1. 计算说明

回收铀的 γ 辐射由衰变及裂变 γ 射线和韧致辐射两部分组成。下面将分别计算衰变及裂变 γ 射线和韧致辐射所造成的剂量率。

3.2. 衰变及裂变 γ 射线

回收铀经分离后, 初始时刻回收铀贫料成分见“表 1 初始时刻的回收铀贫料成分”。 γ 射线主要是铀同位素及其子体的衰变产生, 有少量的裂变 γ 射线。计算时, 假定所有铀的衰变子体均进入到精料中, 贫料中初始时刻无铀的衰变子体核素。

按照“2.1 模型说明”中描述的模型, 计算得到 U-232 含量 $1\text{E}-11$ g/gU 时, 单个容器不同位置的剂量率见表 3。储存时间取 1 年, 容器辐射场剂量率分布详见图 4。

Table 3. Dose rate at different positions of the cylinder with recovered depleted uranium when the U-232 content is $1E-11$ g/gU*
表 3. U-232 含量为 $1E-11$ g/gU 时回收铀贫料容器不同位置的剂量率*

时间	2 cm		5 cm		30 cm		100 cm	
	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ
1/12a	6.88	0.0680	6.34	0.0484	4.14	0.0298	1.91	0.0104
0.25a	10.5	0.0660	9.65	0.0446	6.57	0.0316	3.06	0.0083
0.5a	11.4	0.0674	10.5	0.0521	7.11	0.0145	3.31	0.0082
1a	11.5	0.0652	10.6	0.0444	7.17	0.0314	3.32	0.0070
10a	11.6	0.0630	10.9	0.0434	7.42	0.0309	3.42	0.0070

*关注点位于容器轴向中心截面上。

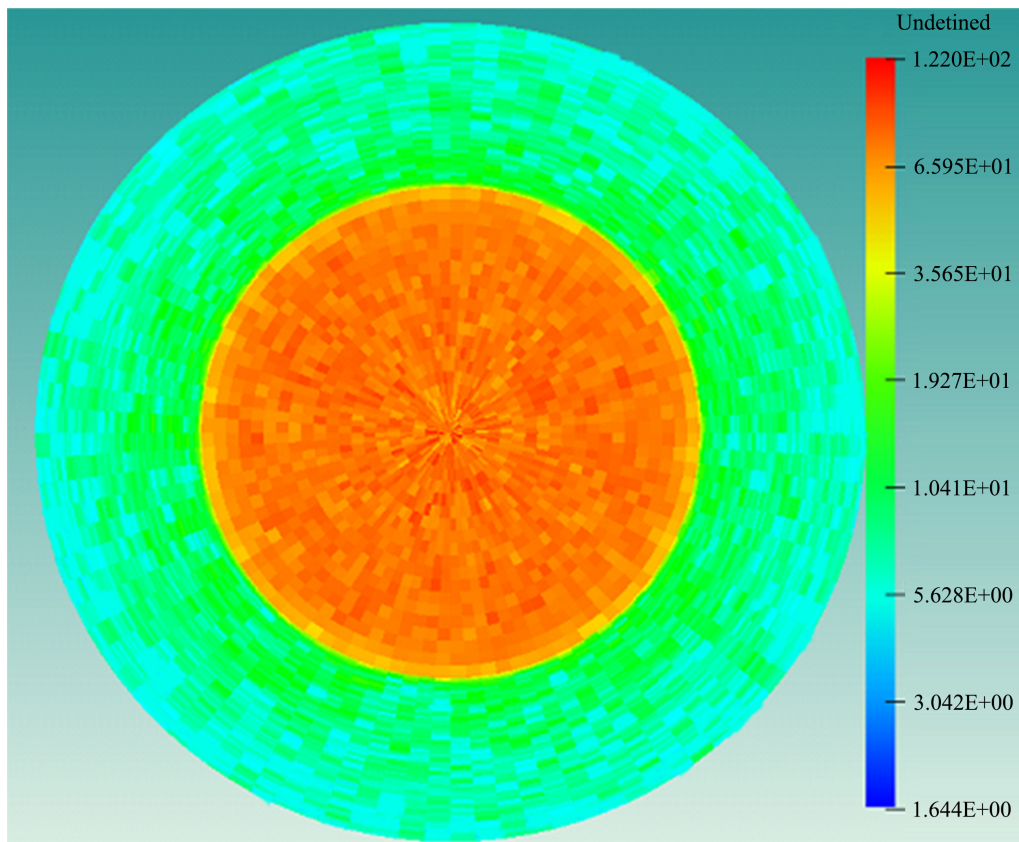


Figure 4. Dose rate distribution chart of the cylinder with recovered depleted uranium when the U-232 content is $1E-11$ g/gU (Bremsstrahlung radiation not considered, Sectional view of the cylinder in the radial direction, the area size is $r = 1$ m)

图 4. U-232 含量为 $1E-11$ g/gU 时, 回收铀贫料容器剂量率分布图(不考虑韧致辐射, 容器径向方向截面图, 区域大小为 $r = 1$ m)

3.3. 韧致辐射

U-238 的初始 α 衰变产物是 Th-234, 在其子体产物中, Pa-234m 衰变 β 射线能量为 2.29 MeV, 由 β 射线产生的韧致辐射, 对外照射贡献较大。Pa-234m 每次 β 衰变转移给韧致辐射能量为 0.045 MeV。

参考《辐射防护手册第一分册辐射源与屏蔽》中给出的放射性核素的基本辐射特性可知, U-238 和 Pa-234m 达到长期平衡约需要 1 年, 即 1 年后韧致辐射水不变化[4]。U-238 含量为 0.99685 g/gU, 比活度为 $1.24\text{E}+04$ Bq/gU, 分别计算 1 月、3 月和 1 年时的韧致辐射的剂量率。

计算得 U-238 和 Pa-234m 达到平衡之后, 由韧致辐射所致容器外表面剂量率见表 4。

Table 4. The dose rate of different positions on the outer surface of the cylinder with recovered depleted uranium caused by Bremsstrahlung radiation
表 4. 韧致辐射所致回收铀贫料容器外面表不同位置的剂量率

时间	2 cm	5 cm	30 cm	100 cm
	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$
1/12a	3.65	3.40	2.23	1.06
0.25a	5.79	5.42	3.55	1.68
0.5a	6.24	5.81	3.81	1.81
1a	6.25	5.84	3.83	1.82
10a	6.25	5.84	3.83	1.82

4. 小结

回收铀的 γ 辐射由衰变及裂变 γ 射线和韧致辐射两部分组成, 将这两部分剂量率求和, 计算结果见表 5。

Table 5. Total dose rate at different positions of the cylinder with recovered depleted uranium when the U-232 content is $1\text{E}-11$ g/gU
表 5. U-232 含量为 $1\text{E}-11$ g/gU 时回收铀贫料容器外表面不同位置的总剂量率

关注点距容器 表面距离, cm	2	5	30	100
	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$
1/12a	10.53	9.74	6.37	2.97
0.25a	16.29	15.07	10.12	4.74
0.5a	17.64	16.31	10.92	5.12
1a	17.75	16.44	11	5.14
10a	17.85	16.74	11.25	5.24

U-232 含量为 $1\text{E}-11$ g/gU 时 0~1 年容器不同位置的剂量率见图 5。在 0~1 年的时间段, 剂量率随着时间逐渐增加, 主要是 U-238 核素子体及 Pa-234m 衰变 β 射线的韧致辐射贡献。而在 1~10 年时间段内, 剂量率变化较小, 基本趋于平衡。而根据“表 2 各核素对于外表面辐射剂量的贡献”可知 1~10 年之后的容器表面剂量率的增加几乎全部是 U-232 导致的。该核素对容器表面剂量率贡献最大为 $5.69\text{E}-01$ $\mu\text{Gy/h}$ (第 10 年), 但对总剂量率的贡献很小。但是 U-232 的含量每增加 10 倍, 该核素对储存容器表面剂量率贡献也将相应增加 10 倍, 即 U-232 含量为 $1\text{E}-10$ g/gU, 其对储存容器表面剂量率最大为 5.69 $\mu\text{Gy/h}$, 对总剂量率的贡献显著增加; 若 U-232 含量提高到 $1\text{E}-9$ g/gU, 其对储存容器表面剂量率最大将达 56.9 $\mu\text{Gy/h}$, 将成为影响剂量率的主要核素。因此, 应当严格控制回收铀中 U-232 的含量。

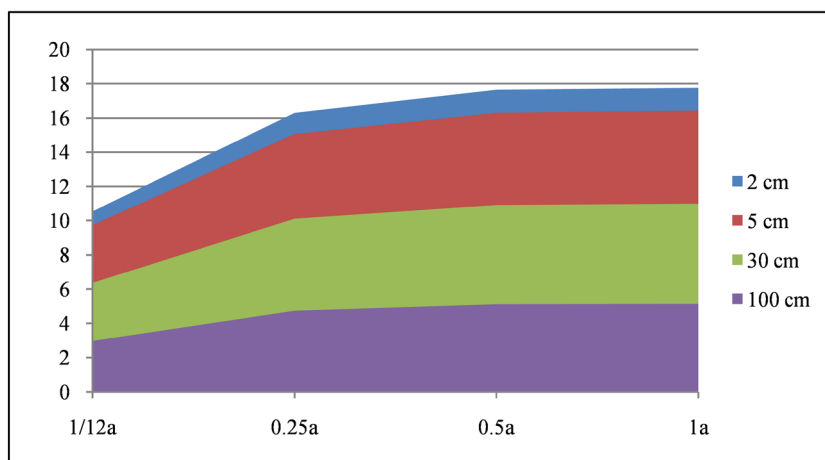


Figure 5. The dose rate of different positions on the outer surface of the cylinder during 0~1 years when the U-232 content is $1E-11$ g/gU

图 5. U-232 含量为 $1E-11$ g/gU 时 0~1 年容器外表面不同位置的剂量率

5. 天然铀 UF_6 贫料容器辐射水平分析计算

1) 衰变及裂变 γ 射线

天然铀经分离后, 初始时刻天然铀贫料成分见表 6。 γ 射线主要是铀同位素及其子体的衰变产生, 有少量的裂变 γ 射线。在计算不同时间的能谱时, 考虑了放射性衰变链的影响。计算时, 假定所有铀的衰变子体均进入到精料中, 贫料中初始时刻无铀的衰变子体核素。

Table 6. The composition of natural depleted uranium at the initial moment

表 6. 初始时刻的天然铀贫料成分

核素	质量含量, g/gU	比活度, Bq/gU
U-234	$1.7E-05$	$3.93E+03$
U-235	$3.13E-03$	$2.50E+02$
U-238	0.99685	$1.24E+04$

天然铀贫料计算模型同回收铀贫料, 计算得到物料储存不同时间时, 单个容器外表面剂量率见表 7。

Table 7. The dose rate on the outer surface of the cylinder with natural depleted uranium (bremsstrahlung radiation not considered)

表 7. 天然铀贫料容器外表面剂量率(不含韧致辐射)

时间	2 cm		5 cm		30 cm		100 cm	
	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ	$\mu\text{Gy/h}$	σ
1/12a	6.82	0.0673	6.29	0.048	4.15	0.0309	1.93	0.0118
0.25a	10.5	0.0659	9.69	0.0445	6.57	0.0319	3.08	0.0131
0.5a	11.3	0.653	10.4	0.0443	7.08	0.0317	3.32	0.0135
1a	11.4	0.0657	10.5	0.0443	7.11	0.0317	3.33	0.0134
10a	11.4	0.0657	10.5	0.443	7.11	0.0317	3.33	0.0134

2) 韧致辐射影响

天然铀贫料和回收铀贫料中, U-238 含量相同, 因此, 韧致辐射所致容器表面辐射水平相同, 见“表 4 韧致辐射所致容器不同位置的剂量率”。

3) 小结

天然铀贫料的辐射主要是 U-238 衰变子体产生的 γ 射线和 Pa-234m 衰变 β 射线产生的韧致辐射, 天然铀贫料容器外表面总剂量率见表 8。

Table 8. The dose rate on the outer surface of the cylinder with natural depleted uranium (bremsstrahlung radiation not considered)

表 8. 天然铀贫料容器外表面总剂量率

时间	2 cm	5 cm	30 cm	100 cm
	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$	$\mu\text{Gy/h}$
1/12a	10.47	9.69	6.38	2.99
0.25a	16.29	15.11	10.1	4.76
0.5a	17.54	16.21	10.9	5.13
1a	17.65	16.34	10.9	5.15
10a	17.65	16.34	10.9	5.15

6. 辐射防护分析及建议

6.1. 辐射源分析

根据上文对回收铀贫料和天然铀贫料容器剂量率分析计算, 可得到以下结论:

1) 天然铀贫料的辐射主要是 U-238 衰变子体的 γ 射线辐射和 Pa-234m 衰变 β 射线产生的韧致辐射, U-238 与 Pa-234m 达到平衡需 1 年的时间, 衰变时间从 1 个月至 1 年, 容器外表面剂量率有较快的增长, 容器表面 5 cm 位置处, 第 1 个月时为 10.47 $\mu\text{Gy/h}$, 至 1 年时达到 17.65 $\mu\text{Gy/h}$, 在随后的相当长时间内韧致辐射剂量不变。这是由于 U-238 衰变子体 Pa-234m 衰变产生的 β 射线能量很高, β 射线的韧致辐射产生的 γ 射线能量也较高, 对辐射水平影响较大。从辐射防护角度考虑, 在 U-238 衰变未建立平衡前进行操作更有利于外照射防护。

2) 回收铀贫料的辐射是在天然铀贫料的基础上叠加了 U-232 及其子体贡献。衰变时间从 1 年至 10 年, 大部分核素已达到平衡态, 剂量率增加的部分几乎全部由 U-232 及其子体贡献, 剂量率增加值与 U-232 的含量成正比关系。因此, 操作回收铀, 最关键的是控制 U-232 含量, 然后根据 U-232 的含量、物料贮存时间、操作方式等, 从时间、距离、屏蔽方面采取针对性防护措施。

3) 由于 Np-237 和 Pu-239 衰变产生的 γ 射线能量较低, 且含量很少, 辐射危害很小, 可忽略 Np-237 和 Pu-239 对外照射的影响。

6.2. 防护建议

通过辐射源分析结果, 提出对操作和贮存回收铀贫料过程的以下防护建议:

经浓缩后, 贫料中衰变子体被去除, 而再次达到平衡需要一定的时间。因此, 在短时间内操作和转移回收铀贫料或天然铀贫料, 所受外照射剂量均相对较低。随着物料贮存时间增加, 外照射水平受 U-238 衰变子体 Pa-234m 韧致辐射及 U-232 及其衰变子体的影响, 容器外表面剂量率有所增加。

为实现辐射防护最优化, 在操作回收铀贫料容器以及容器贮存期间巡检时, 需采取适宜的辐射防护措施, 如采用自动化存储设施、远程监控、规划巡检通道等, 增加工作人员与物料间的距离, 控制工作人员近距离操作的时间。

参考文献

- [1] 胡晓丹, 丁戈龙, 刘文彬. 堆后铀的管理——现状及应用前景(IAEA-TECDOC-1529) [M]. 北京: 原子能出版社, 2009.
- [2] 刘伟. 回收铀利用现状浅析[J]. 中小企业管理与科技, 2017, 503(5): 172-173.
- [3] 杨国山, 郭勇, 等. GBZ/T 144-2002, 用于光子外照射放射防护的剂量转换系数[S]. 北京: 军事医学科学院放射医学研究所, 2002.
- [4] 李德平, 潘自强. 辐射防护手册第一分册辐射源与屏蔽[M]. 北京: 原子能出版社, 1987.