

DOI:10.19431/j.cnki.1673-0062.2023.06.014

放射性金属废物再利用的表面剂量率接收限值研究

王 琪^{1,2}, 任丽丽³, 姚振宇²

(1. 中核环保有限公司, 北京 100045; 2. 中核智慧环境科技有限公司, 江苏 常州 213164;
3. 中核环保工程有限公司, 北京 100024)

摘 要: 本文采用倒推法, 从放射性金属再利用最终产品所遵从的照射剂量率约束值出发, 确定了熔炼后中间产品中的放射性核素活度浓度限值, 最后推导出了熔炼厂接收放射性金属废物的表面剂量率限值(简称: 表面剂量率接收限值)。表面剂量率满足该限值的废金属, 再利用得到的最终产品满足规定的照射剂量率要求。

关键词: 放射性金属废物; 活度浓度; 表面剂量率接收限值

中图分类号: X591 **文献标志码:** A

文章编号: 1673-0062(2023)06-0093-06

Study on Acceptance Limits of Surface Dose Rate for Reuse of Radioactive Metal Waste

WANG Qi^{1,2}, REN Lili³, YAO Zhenyu²

(1. CNNC Environmental Protection Co., Ltd., Beijing 100045, China; 2. CNNC Intelligent Environmental Co., Ltd., Changzhou, Jiangsu 213164, China; 3. CNNC Environmental Protection Engineering Co., Ltd., Beijing 100024, China)

Abstract: By the inverse method, starting from the restrictive radiation dose rate followed by the final product reusing nuclear facility waste metal, the concentration limit of radioactive nuclide activity in intermediate ingot after melting, is determined. Finally, the surface dose rate limit (referred to as the surface dose rate acceptance limit) for receiving nuclear facility waste metal in melting plant is derived. The waste metal with a surface dose rate that meets the limit is reused to obtain a final product that meets the regulation requirements of irradiation dose rate.

key words: radioactive metal waste products; activity concentration; acceptance limit of surface dose rate

收稿日期: 2023-12-11

作者简介: 王 琪(1983—), 男, 高级工程师, 主要从事核环保工程及技术方面的研究。E-mail: wangqi@cepc.bj.cn

0 引言

随着我国核设施中放射性污染废金属产生量逐年增加,开展废金属熔炼再利用工作,具有以下几方面的必要性:1)减少放射性废物的处置空间及成本;2)消除大众对废金属流向的顾虑;3)提高废金属材料的利用价值且符合循环经济的理念。

对放射性污染废金属的处理,目前国内外主要采用直接处置、表面去污和熔炼去污等方法。直接处置是一种资源浪费,而且为了降低处理处置对环境的潜在危险,必须进行长时间的监护;表面去污对几何形状简单的部件的表面污染较为有效,但对复杂形状部件难以奏效,且去污效果有限;熔炼去污过程中,核素经过重新分配进入气相或熔渣中,金属则被铸成锭,可进行合理的再利用。气体经过净化后排放。体积很小的熔渣则作为放射性固体废物处理处置。

因此,对放射性污染废金属而言,“熔炼前预处理→熔炼去污→再利用”被认为是一种最优的废金属处理方法^[1-4]。其中,预处理后的废金属将作为熔炼的原料,被金属冶炼厂所接收。废金属放射性表面剂量率接收限值将直接影响冶炼中的辐射防护、熔炼后钢锭及再利用产品的质量和使用范围。

本文旨在推导出放射性金属废物表面剂量率接收限值,并以限值为控制指标,代替传统的表面污染水平测量或体活度浓度取样测量,在确保放射性安全的基础上大大简化了废金属监测和筛选流程,降低成本,提高废金属再利用的经济性。

1 核设施放射性污染金属的分类及其快速分类及接收的方法

1.1 根据核设施放射性污染的程度分类

1)低水平表面污染。涉及与一次冷却剂,冷却剂废物流和具有放射性水平的其他介质完全隔离的系统,此类别中的大部分废金属将表现出仅限于外表面的污染,通过常规去污,可达到再循环再利用安全要求水平。

2)中等水平表面污染。与主冷却剂和低放射性废液介质直接接触的金属部件,其内、外部具有一定的表面污染水平,这类废金属也需要一定的去污工作。

3)高水平表面污染。此类废金属因为暴露于主冷却剂和接触放射性废液而受到污染,导致

较高的污染水平。其中一部分金属可能通过去污,达到运行再利用水平。

4)活化污染。接近反应堆堆芯的部件可以包含体积分布的活化产物,其中一些组分也可能具有较高水平的表面污染,通过一般工艺是难以去除体分布污染物的。

1.2 根据金属材料类型的分类

1)活化不锈钢。由奥氏体不锈钢组成的反应堆对内构件由堆芯中子活化。放射性核素具有很高的比活度,并固化在耐腐蚀的金属内部。

2)活化碳钢。反应器压力容器由碳钢制成,被中子轰击而活化,具体的活度比不锈钢内部低得多,结合基质的耐蚀性要小得多。

3)活化钢结构、钢筋和混凝土。在反应堆堆腔内,这些组件由从反应堆容器中逃逸出来的中子激活,显著的活化反应发生在垂直于以反应堆堆芯为中心的深堆腔内以及在混凝土的深处。

4)管道和设备的受污染的内表面。活化腐蚀和裂变产物通过电厂中的放射性液体系统传播,在管道和设备的内表面形成一种致密金属氧化物层。

5)受污染的外部表面。外部表面可能会在核电站寿命内受到污染,主要是由于反应堆冷却剂的泄漏、溢出和空气中放射性核素的迁移。比活度比较低,但很容易引起污染,且非常普遍。

1.3 快速分类和接收的实际做法

根据以上分类初步分拣后的废金属,决定其熔炼工艺及过程辐射防护、熔炼后去向(再利用或处置)的主要因素是核素活度浓度。

然而,对于大量不同类型、材质及形状的废金属,逐件进行活度浓度取样分析显然不现实(方法复杂、耗时长等),而表面剂量率的获得很简单、耗时短、易于连续多方位测量。

因此,通过建立产品核素活度浓度与废金属表面剂量率的联系,现场测量废金属表面剂量率,可以快速判定某个金属部件是否能够被冶炼厂接收。

2 放射性废金属再利用的表面剂量率接收限值

2.1 表面剂量率接收限值的分析原理

2.1.1 污染废金属再利用技术路线

1)第一种途径是对表面去污后放射性水平不满足直接解控的要求,但可以满足相关再循环再利用的要求,放射性废金属被送往由监管部门

批准的专门处理设施熔炼后,根据金属锭产品的放射性水平不同进行无条件解控进入公共领域进行再利用。

2)第二种途径是污染水平较高,送往专设的放射性废金属熔炼后的金属锭产品在核工业体系内部再循环再利用,如用于生产废物桶、钢箱等废物包装容器或屏蔽体针。

对第二种途径废金属再利用方式,可从产品适用准则出发,推导出废金属表面剂量率接收限值。这是本文的研究重点。

2.1.2 再利用过程

首先,进行去污以去除表面的非固定沾污。之后,测量表面剂量率,对低于表面剂量率接收限值的废金属,可送往熔炼设施;对高于表面剂量率接收限值的废金属,则根据其放射性水平进行暂存衰变或直接作为放射性废物处理处置。废金属

在熔炼设施熔炼之后的中间产品钢锭,应进行取样测量放射性活度浓度,根据放射性水平决定其最终用途。

2.1.3 表面剂量率接收限值的推导原理

放射性废金属熔炼后进入核工业体系再利用的研究思路是从废金属熔炼后最终产品钢桶、钢箱和屏蔽体所导致的个人照射剂量率约束值出发,确定中间产品钢锭的放射性核素活度浓度限值。然后通过大量调研放射性废金属的种类、形态和源项,以及国内外废金属熔炼过程中不同核素的分配因子等关键参数,推导出熔炼前废金属表面剂量率接收限值,低于该限值的废金属在熔炼后制造的最终产品满足相关的剂量率准则。放射性废金属表面剂量率接收限值推导过程见图1所示。

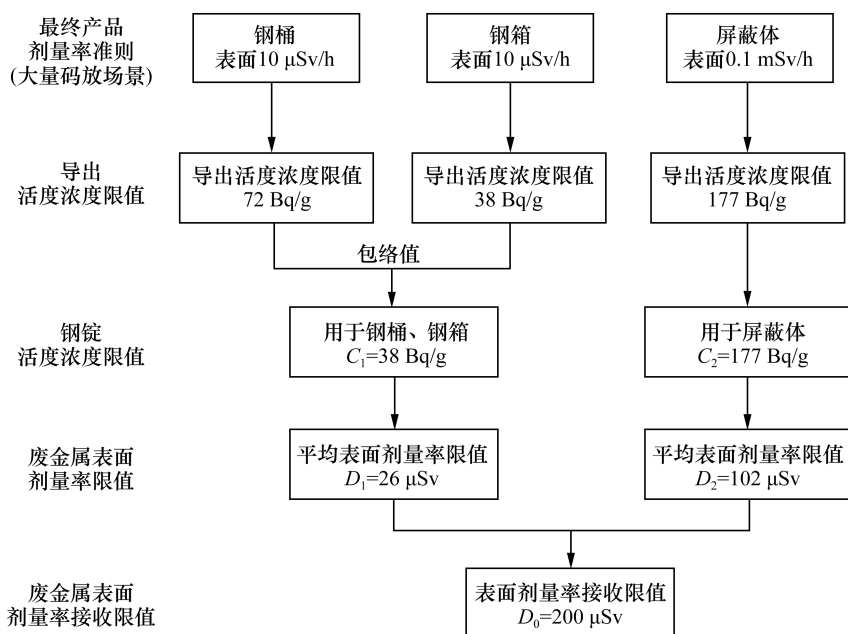


图1 放射性废金属表面剂量率接收限值推导过程示意图

Fig.1 Schematic diagram of derivation process of surface dose rate acceptance limits for radioactive waste metals

按照上述研究思路,从最终产品钢桶、钢箱和屏蔽体的剂量准则出发,推导出了废金属的表面剂量率接收限值,该值是单件废物污染水平平均值的限值。考虑实际情况表面污染并非均匀分布,熔炼过程实际上是放射性核素的均匀化,允许剂量率较高的热点存在。因此,熔炼厂接收废金属表面剂量率接收限值暂可以设为表面剂量率计算平均值的2倍,待积累到大量数据,得到经验值

时再进行修正。

2.2 最终产品的表面剂量率限值确定

通过调查核设施在废物处理和设施运行中对钢桶、钢箱和屏蔽体的需求量,上述产品可以作为放射性废金属熔炼后产品的重要出路。放射性水平较低的钢锭可用于制造钢桶和钢箱,放射性水平较高的钢锭则可用于屏蔽体的制造。因此,从以下三个方面对上述产品的使用场景进行了表面

剂量准则分析:

1) GB 18871—2002《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》^[5]所规定的产品在监督区和控制区使用的分区准则;

2) γ 辐射水平比 GB 11806—2019《放射性物品安全运输规程》^[6] 运输控制准则(表面 2 mSv/h, 1 m 处 0.1 mSv/h)低一个数量级;

3) 产品运输时总活度满足 GB 11806—2019《放射性物品安全运输规程》^[6] 中规定的运输豁免准则。

基于上述准则,对最终产品的表面剂量率限值定为:

- 1) 对于钢桶和钢箱,表面剂量率低于 10 $\mu\text{Sv/h}$;
- 2) 对于屏蔽体,表面剂量率低于 0.1 mSv/h。

2.3 中间产品钢锭中的核素活度浓度

根据最终产品的限制条件:

1) 对于钢桶和钢箱,保守考虑在宽度为 100 m、高度为 10 m 的空间码放时,表面剂量率低于 10 $\mu\text{Sv/h}$;

2) 对于屏蔽体,同样保守考虑在宽度为 100 m、高度为 10 m 的空间码放时,表面剂量率低于 100 $\mu\text{Sv/h}$ 。

推导上述剂量准则下钢锭中核素活度浓度的上限,需计算以钢桶、钢箱和屏蔽体为源,附近空间一点的剂量率。计算基本思路和假设如下:

对于 1 Bq 的点源,假设在 1 m 远处的剂量率为 d ,则在距离为 r 的场点处剂量率为 d/r^2 。假设核素 γ 射线在经过某种介质时强度的半衰减厚度为 $t^{1/2}$,则经过一定厚度 t 后,剂量率衰减为 $2^{-t/t^{1/2}}$ 。对钢桶、钢箱和屏蔽体分割为足够小的体元,则空间中场点处的剂量率为所有体元在该场点处剂量率的加和。足够小的物理意义是体元的尺度远小于源点到场点的距离,具体的判据为继续缩小体元时,场点剂量率收敛于一个稳定值。

本计算以 Co-60 为源,相对其他废金属中可能的核素,Co-60 在熔炼时几乎不能去除,且其在钢铁中的衰减较弱,因此计算结果具有更大的保守性。对于 Co-60 活度浓度为 1 Bq/g 的钢锭制造的钢桶、钢箱和屏蔽体,其计算的外照表面剂量率如表 1 所示。

根据前面确定的最终产品表面剂量率限值:钢桶和钢箱为 10 $\mu\text{Sv/h}$ 、屏蔽体为 100 $\mu\text{Sv/h}$,反推出上述限值下的中间产品钢锭中 Co-60 活度浓度,如表 2。

表 1 最终产品的表面剂量率

Table 1 Surface dose rate of final product			
最终产品 ^①	钢桶	钢箱	屏蔽体
活度浓度 ^② /(Bq · g ⁻¹)	1	1	1
表面剂量率/($\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$)	0.14	0.26	0.56

①由 Co-60 活度浓度为 1 Bq/g 的钢锭制造。

②钢锭中 Co-60 的活度浓度(计算输入值)。

表 2 由最终产品表面剂量率限值反推的钢锭中 Co-60 活度浓度

Table 2 Co-60 activity concentration in ingot derived from surface dose rate limits of final product			
最终产品	钢桶	钢箱	屏蔽体
表面剂量率限值 ^① /($\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$)	10	10	100
活度浓度 ^② /(Bq · g ⁻¹)	72	38	178

①已确定的最终产品限值 $\mu\text{Sv/h}$ 。

②限值下中间产品钢锭中的 Co-60 核素。

钢锭中的活度浓度限值应取上表计算值的包络值且取整,即用于制造钢桶和钢箱时,钢锭中活度浓度应低于 40 Bq/g;用于制造屏蔽体时,钢锭中活度浓度应低于 180 Bq/g。

2.4 熔炼前的废金属表面剂量率接收限值

从核素分布的角度看,熔炼过程是将放射性核素的面分布均匀化为体分布,因此有以下的放射性活度关系式:

$$\sigma \cdot S = C \cdot V \cdot \rho = C \cdot M \quad (1)$$

式中: σ 为废金属表面的核素活度浓度面密度平均值,单位 Bq/cm²; S 为单件废金属可污染的总表面积,单位 cm²; C 为熔炼后钢锭中的核素活度浓度,单位 Bq/cm³; V 为单件废金属总体积,单位 cm³; ρ 为金属密度,单位 g/cm³; M 为单件废金属总质量,单位 g。

定义单件废金属的比表面积:

$$S_m = \frac{S}{M} = \frac{S}{\rho \cdot V} \rightarrow \frac{1}{\rho \cdot d} \quad (2)$$

用于表征单位质量或体积的废金属提供的潜在污染面积。式(1)最右边的意义是, V/S 得到的值对应该物件的尺度 d ,定性而言,就是越“扁”或越薄的物件具有更大的比表面积,即钢板的比表面积大于钢锭。则:

$$\sigma = \frac{C}{S_m} \quad (3)$$

由于面源附近剂量率与放射性核素的面密度正相关,以 1 Bq/cm² 的正方形 Co-60 面源为例,

不同边长的面源分别与距表面 0.5 ~ 5 cm 产生的剂量率关系曲线见图 2。

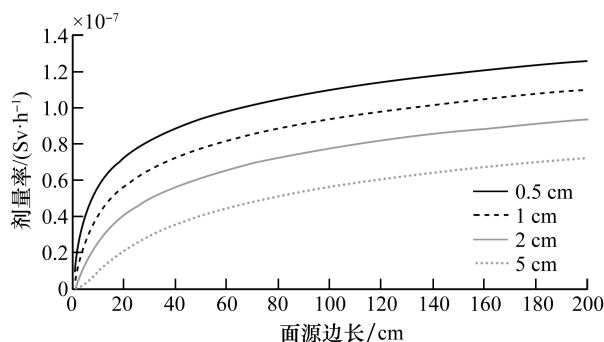


图 2 源强 $1\text{Bq}/\text{cm}^2$ 的正方形面源中心附近的剂量率
Fig. 2 Dose rate near the center of a square surface source with strength of $1\text{Bq}/\text{cm}^2$

由上图的曲线可以看出,源强 $1\text{Bq}/\text{cm}^2$ 的 Co-60 面源在表面的剂量率 $\leq 0.15\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h}$ 。则对于面活度浓度为 σ 的 Co-60 面源,在表面附近的剂量率 D 应有:

$$D \leq \sigma \times 0.15\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h} \quad (4)$$

不妨设 $Kd\sigma = 0.15\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h}$,则式(4)简化为:

$$D \leq \sigma \cdot K_{d\sigma} \quad (5)$$

代入 σ 的表达式有:

$$D \leq \frac{C}{S_m} \cdot K_{d\sigma} \quad (6)$$

由于 C 必须低于钢锭中的活度浓度限值 C_0 ,因此,上式可以确定废金属的表面剂量率接受限值 D_0 :

$$D_0 = \frac{C_0}{S_m} \cdot K_{d\sigma} \quad (7)$$

其中,最终产品剂量率适用准则导出的中间 C_0 为由产品钢锭中的活度浓度上限,对钢桶和钢箱取 $40\text{ Bq}/\text{g}$,对屏蔽体取 $180\text{ Bq}/\text{g}$; $K_{d\sigma}$ 为 $1\text{ Bq}/\text{cm}^2$ 的 Co-60 面源在表面处产生的最大剂量率,取 $0.15\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h}$; S_m 为单件废金属的比表面积,表征单位质量或体积的废金属提供的潜在污染面积。

通过上面 S_m 的定义可知,对于薄板形的废金属,其比表面积最大,其他废金属的比表面积一般小于该值。这样,就可以用薄板估算出 S_m 的上限。

核设施产生的废金属,存在有大量的金属块,薄板只占一部分。美国国家环境保护局 (USEPA) 提出了一个折合平均几何厚度的概念,来解决这个问题。其在 2001 出版的技术报告 *Potential Recycling of Scrap Metal from Nuclear Facilities* [7] 中提供了 PWR 和 BWR 产生废金属的相关数据: $2.38 \times 10^5\text{ t}$ 产生于 PWR 的废金属,折合平均几何厚度 1.93 cm ; $2.31 \times 10^5\text{ t}$ 产生于 BWR 的废金属,折合平均几何厚度 0.36 cm ;全部废金属的平均几何厚度约 0.6 cm 。因此,本文中保守地将废金属的厚度值取为 0.6 cm 。

因此,用于制造钢桶和钢箱的废金属表面剂量率接收限值 D_1 :

$$D_1 = \frac{C_0}{S_m} \cdot K_{d\sigma} = 26\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h} \quad (8)$$

同理,用于制造屏蔽体的废金属表面剂量率接收限值 D_2 :

$$D_2 = \frac{C_0}{S_m} \cdot K_{d\sigma} = 102\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h} \quad (9)$$

二者的包络值取 D_2 。

注意,从计算过程容易看出,上述限值实质上是平均值的概念。核设施产生的废金属通常都存在热点,由于废金属熔炼过程实际上是放射性核素的去除和均匀化,因此在保证平均值满足限值的前提下,可以允许热点处具有较高的剂量率。保守地将热点剂量率限值取为平均值的 2 倍,则废金属的表面剂量率接收限值可设置为:

$$D_0 = 2D_2 = 200\text{ }\mu\text{Sv}/\text{h} \quad (10)$$

2.5 表面剂量率接收限值在核设施中应用的考虑

作为对比,表 3 中列出了国内外主要熔炼设施的废金属接收限值 [8] (表面剂量率或核素活度浓度) 和本文的结果。

表 3 国内外主要熔炼设施的废金属接收限值和本文结果

Table 3 Acceptance limits for major smelting facilities and this paper

设施	地点	产品形式	接收限值
INFANTE Plant	Marcoule, 法国	钢锭、屏蔽体、废物容器	Co-60 最高 $250\text{ Bq}/\text{g}$, 其他核素限值不同
STUDSVIK Melting Facility	瑞典	钢锭	表面剂量率 $D_0 < 0.2\text{ mSv}/\text{h}$, 热点处 $D_0 < 0.5\text{ mSv}/\text{h}$; 1 m 处剂量率 $D_1 < 0.1\text{ mSv}/\text{h}$
CARLA Plant	Siempelkamp, 德国	钢锭、屏蔽体、废物容器	β - γ 核素最高 $1\text{ 000 Bq}/\text{g}$, α 核素最高 $100\text{ Bq}/\text{g}$, U 另设置限值

续表

设施	地点	产品形式	接收限值
Scientific Ecology Group (SEG) Oak Ridge,美国 Plant		钢锭、屏蔽体、废物容器、钢筋	表面 2 mSv/h,超过时需单独批准
Centracco	法国	钢锭、钢管	α 核素 370 Bq/g, β - γ 核素 20 k Bq/g
xxx	中国	钢桶	表面剂量率 $\leq 15\mu\text{Sv/h}$, γ 核素 1 kBq/g
本文	中国	钢桶、钢箱和屏蔽体	Co-60 平均活度浓度 $<180\text{ Bq/g}$,表面剂量率 $<200\mu\text{Sv/h}$

结合我国田湾、大亚湾和秦山存量废金属的剂量率水平统计情况^[8]看,约 1 400 t 存量废金属中:约 200 t 废金属,表面剂量率超过 200 $\mu\text{Sv/h}$,目前不宜送冶炼厂熔炼;约 1 200 t 废金属,可以通过熔炼后制造钢桶、钢箱或屏蔽体的方式实现再利用。

3 结 论

从废金属熔炼后最终产品的表面剂量率限值出发,反推出了中间产品钢锭的放射性核素活度浓度限值,继而确定了熔炼前废金属的表面剂量率接收限值。

1) 最终产品的表面剂量率限值为:对于钢桶和钢箱,表面剂量率低于 10 $\mu\text{Sv/h}$;对于屏蔽体,表面剂量率低于 100 $\mu\text{Sv/h}$ 。

2) 用于制造钢桶和钢箱的钢锭中 Co-60 活度浓度应低于 40 Bq/g;用于制造屏蔽体的钢锭中 Co-60 活度浓度应低于 180 Bq/g。由此得到的废金属表面剂量率的包络值计算值 100 $\mu\text{Sv/h}$ 。

3) 废金属表面剂量率接收限值可保守设定为上述计算值的 2 倍,即 $D_0=200\mu\text{Sv/h}$ 。

4) 结合我国田湾、大亚湾和秦山存量废金属的剂量率水平统计情况看,1 400 t 存量废金属中,约有 200 t 表面剂量率超过 200 $\mu\text{Sv/h}$,不宜冶炼再利用;其余约 1 200 t 废金属均可以通过熔炼后制造钢桶、钢箱或屏蔽体的方式实现再利用。

参考文献:

[1] 王晓黎,林良元,罗西林.放射性污染金属的再利用[C]//中国核学会.小型循环经济学术研讨会论文集汇编.北京:中国核学会辐射防护分会,2008:108-111.

[2] 杨洁,杨彪,赵杨军,等.放射性废金属熔炼去污分配系数研究[J].四川环境,2019,38(1):125-131.

[3] QUADE U. Recycling by melting 20 years operation of the melting plant CARLA by Siempelkamp Nukleartechnik GmbH[J]. ATW-international journal for nuclear power,2009,54:1-8.

[4] LIDAR P. Themetal recycling process and its nuclide distribution[C]//Proceedings of symposium on recycling of metals,2014:1-9.

[5] 全国核能标准化技术委员会. 电离辐射防护与辐射源安全基本标准:GB18871—2002[S]. 北京:中国标准出版社,2004:8-13.

[6] 生态环境部,国家市场监督管理总局. 放射性物品安全运输规程:GB 11806—2019[S]. 北京:中国环境出版社,2019:8-9.

[7] ANIGSTEIN R,THURBER W C,MAURO J J,et al. Potential recycling of scrap metal from nuclear facilities, part I: Radiological assessment of exposed individuals[R]. Washington, D. C:USEPA,2001:4-22.

[8] 祝兆文,邬强,恽为荣,等. 核电厂废金属熔炼再循环再利用情况调研报告[R]. 北京:中国核能行业协会,2018:56.