# 基于 ISOCS 的箱装废物测量方法研究

聂 鹏 鲁 谨 郭亚平 任 韧 张立军 (中国原子能科学研究院 北京 102413)

摘要 核设施退役过程产生大量放射性废物,根据废物装载要求,不可压废物直接装入钢箱,目前使用比较多的是FA-IV型钢箱,外部尺寸为1567 mm×1573 mm×1331 mm。由于钢箱的体积大,测量过程需要进行复杂的自吸收和几何体积校正,给废物测量带来了新的要求。本项目采用现场物体计数系统(In Situ Objects Counting System,ISOCS)对钢箱废物进行直接测量,应用无源效率刻度软件对测量结果进行了自吸收及几何体积的校正;并用标准放射源模拟测量,对ISOCS系统的测量误差进行了判断,初步确定了ISOCS系统直接测钢箱的误差约为30%,该结论为ISOCS系统是否可以正确合理地确定箱装废物的核素组成和活度浓度提供了基础数据支撑。

关键词 钢箱,废物测量,就地测量系统,方法 中图分类号 TL81 DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.100502

## Study on approach for measurement of radioactive waste in steel box based on ISOCS

NIE Peng LU Jin GUO Yaping REN Ren ZHANG Lijun (China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

**Abstract** [Background] Decommissioning of nuclear facilities generates large quantities of different types of radioactive material. According to the requirement of the waste packaging, most incompressible waste must be put into steel boxes directly, which makes it difficult to measure and obtain the activity of the radioactive material in the steel boxes. [Purpose] This study aims to establish an approach for measuring radioactive waste in steel box based on the in situ objects counting system (ISOCS). [Methods] In this work, ISOCS was used to characterize the radioactive material in steel boxes. The corrections for the absorption coefficients and the geometry factors of the big bulky sources were calculated using the ISOXSW (ISOCS Calibration SoftWare) in situ efficiency calibration without a radioactive source software. The verification experiments were carried out using standard sources with similar size and geometry. [Results] The results show that the measurement error of six symmetrical positions of steel box with standard <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co radioactive source by ISOCS is less than 30%. [Conclusions] The study verifies that ISOCS software is able to accurately estimate the composition and activity of radioactive material in a steel box.

Key words Steel box, Waste measurement, ISOCS, Approach

根据国家放射性废物管理有关规定,放射性废物最终送至废物处置场贮存,为了运输和处置需要,对产生的中低放废物必须用标准的包装体(钢桶或钢箱等)进行包装,并给出包装体内的放射性核素种类及活度浓度<sup>[1]</sup>。101重水研究堆是我国第一座研究堆,1958年第一次达到临界,2007年12月永久性

关闭,运行了近50年<sup>[2]</sup>,目前正在实施重水研究堆退 役第一阶段内容。退役过程中产生大量放射性废物 需要考虑到废物最小化,要根据放射性活度进行分 类处理处置。FA-IV钢箱在退役过程应用非常广 泛,可直接装不可压缩废物,也可装载超压后的废物 桶,为解决钢箱内废物的放射性核素种类及活度浓

第一作者:聂鹏,男,1980年出生,2017年于中国原子能科学研究院获博士学位,研究领域为核设施退役与放射性废物治理

收稿日期: 2022-03-29, 修回日期: 2022-05-08

First author: NIE Peng, male, born in 1980, graduated from China Institute of Atomic Energy with a doctoral degree in 2017, focusing on nuclear facility decommissioning and radioactive waste treatment

Received date: 2022-03-29, revised date: 2022-05-08

度的测量问题,引入了现场物体计数系统(In Situ Objects Counting System, ISOCS)<sup>[3]</sup>。

采用无损测量技术<sup>[4]</sup>,利用辐射场"单扫描"高 分辨率γ谱仪对废物钢箱进行精确测量,采用衰减 技术以校正废物基体对测量的影响,是目前废物钢 箱测量的主流技术,已成为许多国家快速检测放射 性废物钢箱的标准方法。国内也有无源效率刻度在 核电废物分拣中的应用<sup>[5]</sup>,用的是溴化镧探测器,相 比较 ISOCS 系统有配套的无源效率刻度软件<sup>[6]</sup>及更 好分辨率的 HPGe γ谱仪,可以应用于钢箱废物的 测量。

国内还没有直接进行废物钢箱测量的相关研究,本文介绍了ISOCS系统测量钢箱的研究工作,是ISOCS系统在国内应用的一次推广。

## 1 ISOCS测量系统

现场物体计数系统如图1所示,将HPGeγ谱仪 测量、屏蔽、准直等技术集于一身,能在一个系统内 实现多种功能,解决实际工作中的一些复杂的测量 问题。系统配备无源效率刻度软件,预置多种几何 模型,有简单箱体、复杂箱体、简单圆柱、复杂圆柱、 马林杯、简单管道、复杂管道、圆形平面和矩形平面 等22种,是退役实施过程中不可或缺的测量工具。



图1 现场物体计数系统 Fig.1 In situ objects counting system

ISOCS带有环状准直器,如图2所示。环状准 直器通过两根不锈钢棒插入底部固定孔内进行组 装、固定,与探测器连接成一个整体,再用两根不锈 钢棒将探测系统固定在检测平台上。

ISOCS测量系统的准直器带有45°和60°的张角,通过调节探测器与测量物体的距离来确定测量 范围<sup>[6]</sup>。用于废物钢箱测量时,应用45°张角的准直器,将探测器与钢箱的距离调节为1m,测量示意图 如图3所示。

根据源项调查结果,101 堆退役废物检测主要 是测量废物中的γ核素,ISOCS系统配备的探头是 用于测量γ核素的HPGeγ探测器,能满足废物中γ



图 3 ISOCS 系统测量废物钢箱示意图 Fig.3 Diagram showing steel box measurement using ISOCS

射线探测的要求;ISOCS系统的无源效率刻度曲线 拟合只需要探测器参数、几何模型以及一些样品的 物理参数<sup>[8]</sup>,无需使用标准源,减少了标准源制作过 程的辐射照射,节省了制作不同标准源所需的时间 和费用,更是解决了一些复杂样品难于制备的问题。 在钢箱测量过程中,ISOCS系统的屏蔽模块可以屏 蔽周围射线,探测到的都是钢箱范围内γ射线,再根 据 ISOCS系统自带的无源效率刻度软件进行几何 体积和自吸收的修正。

## 2 实验测量

#### 2.1 ISOCS测量结果修正方法

ISOCS系统通过自身的屏蔽及准直单元将射线 来源限制在钢箱范围内,测量获得数据,通过ISOCS 系统自带的无源效率校准软件对钢箱的几何因子和 自吸收因子进行修正,软件自动完成计算给出结果, 计算步骤如下:

1)将测量对象进行小体积元分割,形成大量的 小体积源当成点源;

2)利用 MCNP 的 MESH 卡对钢箱进行网格划 分<sup>[10]</sup>, MESH 卡可以生成独立于几何建模的三维空 间网格,每个网格是一个小体积源, 根据小体积源距 离探测器的远近进行单个效率计算;

3)对点源(小体源)相对探测器的效率进行积分 计算,考虑以下校正因素:

- a. 体源本身的吸收;
- b. 在射线路径上的容器和其他材料上的吸收;
- c. 探测器准直器的吸收。
- 4)γ射线穿过吸收物质时的强度衰减[11];

设一束准直的能量为E的 $\gamma$ 射线沿水平方向穿 过吸收物质,如图4所示。在物质表面(t=0)处,入 射 $\gamma$ 射线束的强度为 $I_0$ ;在物质中深度t处的强度变 为 $I^{(12)}$ , $\gamma$ 射线穿过物质时其强度随穿过的深度t的增 加而呈指数衰减。



图 4 γ射线穿过吸收物质时的强度衰减 Fig.4 The decay of the  $\gamma$  ray through the absorber

$$I = I_0 e^{-\mu t} \tag{1}$$

式中: $\mu$ 为线性衰减系数,又称为线性吸收系数, cm<sup>-1</sup>;t单位为cm。

5)对体源进一步细分,并进行积分计算;

利用点源积分得到体源样品的探测效率,即是 对样品空间中各位置点源探测效率进行积分<sup>[13]</sup>:

$$\varepsilon_{\rm vol}(E) = \int_{V} \varepsilon_p(E, r) f(r) dV \qquad (2)$$

式中: $\varepsilon_{vol}(E)$ 为体源效率; $\varepsilon_p(E, r)$ 为体源样品中位 置处点源效率;f(r)为放射性分布因子(即活度分布 因子)。

6)对所有能量,重复以上过程;

7) 拟合以上数据获取效率刻度曲线。

以上的效率刻度修正方法已融入 ISOCS 效率 刻度软件中,只要在无源效率刻度软件界面输入测 量物项参数,就可以通过调用数据库的参数拟合出 效率刻度曲线。无源效率刻度软件效率校准曲线拟 合界面见图5。

软件存储了各种元素的反应截面,可模拟10~7000 keV能量范围,使用时输入材料元素种类及其 原子比或质量比即可定义材料,另外软件预置了44 种常用材料以便使用。

在几何形状内输入各参数<sup>[14]</sup>,钢箱几何参数信息编辑见图6,图6中①表示钢箱外壁,可通过对话框编辑几何尺寸和材料信息,图6中②~⑪表示钢箱 内部不同填充物,可通过对话框编辑几何尺寸和相

K MultiEfficiency		×			
Mode of Multi-Efficiency calculation G Sum C Average C Weighted Average C Weighted Sum	Mass or Area Multiplier © None C Area, cm <sup>2</sup> C Mass, grams Value: 1	Close Calculate Help			
Information for MultiEfficiency Comment Description T A B L E (list of ECC files for Multiefficiency calculation) Control Add ECC file Load Table Save Table As Erase					
Path		File Name			

图 5 无源效率刻度软件效率刻度曲线拟合界面 Fig.5 Simulation curve interface for the efficiency calibration without a radioactive source

应材料。参数设置完成后编辑成模型,进行几何修 正,自吸收修正后,自动生成效率刻度曲线,如图7 所示。

材料类型可根据箱装废物的重量除以钢箱体积 获得的密度来选择。







图7 效率刻度曲线 Fig.7 Using ISOCS for efficiency calibration

ISOCS系统完成钢箱测量后,调出效率刻度曲 线进行计算,获得钢箱内废物放射性核素种类及放 射性总活度。

#### 2.2 测量方法

大体积放射源探测效率模拟方法是将虚拟点源 放置在图8所示的各点,计算这些点的探测效率,找 到各点的探测效率与中心位置的关系,然后进行积 分,获得体源的探测效率<sup>[15]</sup>。

基于上述体源探测效率模拟方法,本研究提出 了用标准放射源进行体源效率刻度验证的方法。



图8 利用点源模拟体源效率刻度示意图 Fig.8 Schematic diagram of simulation volume source efficiency calibration with point source

根据源项测量结果,钢箱内所装物项主要γ核 素为<sup>137</sup>Cs和<sup>60</sup>Co,使用<sup>137</sup>Cs和<sup>60</sup>Co的标准放射源进 行实际测量,并用无源效率刻度对结果进行校正。

先用 ISOCS 系统测量箱装废物,获得特征核素 特征峰计数A。测量完成后,将钢箱均匀分成6个体 积元,每个体积元内布置相应核素和已知活度的标 准点源,再次测量钢箱(两次测量时间相等),获得带 标准源钢箱特征核素的特征峰计数B,已知标准点 源总活度为C,通过计算可得到钢箱中相应核素的 放射性活度,计算公式如下:

$$D = A \times \frac{C}{B - A} \tag{3}$$

式中:D为钢箱中相应核素的放射性活度水平,Bq; A为钢箱测量核素的特征峰计数,s<sup>-1</sup>;B为带放射源 钢箱测量相应核素的特征峰计数,s<sup>-1</sup>;C为放射源活 度,Bq。

实验测量步骤如下:

1)调节 ISOCS 高度,使得 HPGe 探头对准钢箱 正中心位置,测量γ核素特征峰计数不小于10000;

2) 先测量本底;

3)本底测量完后,保存为本底γ谱;

4)然后在钢箱内6个位置依次放置标准放射源 后测量特征γ射线的特征峰净计数,测量过程中探 测器位置固定;

5)测量完6个位置后,获取γ谱,减去原有的本 底谱后解谱,无源效率刻度校准后获得标准放射源 在相应位置的放射性活度的校准值;

6)将在钢箱不同6个位置测量获得的标准放射 源的活度相加后除以6,该活度是放置在钢箱6个位 置的放射源经过校正后的活度;

7)该活度与标准源活度的偏差就是测量误差;8)根据测量误差来判断测量结果的准确性。

## 2.3 实验测量结果

测量本底保存本底谱后,在钢箱内6个位置依次放置标准<sup>137</sup>Cs、<sup>60</sup>Co放射源后进行测量,测量时间2h,<sup>137</sup>Cs、<sup>60</sup>Co放射源布置图如图9所示。



图 9 <sup>137</sup>Cs、<sup>60</sup>Co放射源在钢箱内的布置图 Fig.9 Diagram showing the distribution of the standard radioactive source

	表1 <sup>13</sup> Cs、 <sup>60</sup> Co放射源在钢箱6个不同位置的平均测量值与标准值比较			
Table 1	Comparison between measured (average over 6 positions in a steel box) and standard values			
for a <sup>137</sup> Cs and a <sup>60</sup> Co source				

序号	源位置	<sup>137</sup> Cs放射性活度	<sup>60</sup> Co放射性活度
Serial number	Source position	Radioactivity of <sup>137</sup> Cs / Bq	Radioactivity of 60Co / Bq
1	位置1 Position 1	2.22×10 <sup>7</sup>	2.06×10 <sup>4</sup>
2	位置2 Position 2	2.04×10 <sup>7</sup>	2.59×10 <sup>4</sup>
3	位置3 Position 3	1.93×10 <sup>8</sup>	1.94×10 <sup>5</sup>
4	位置4 Position 4	2.00×10 <sup>8</sup>	1.81×10 <sup>5</sup>
5	位置5 Position 5	$1.05 \times 10^{8}$	3.73×10 <sup>5</sup>
6	位置6 Position 6	1.55×10 <sup>8</sup>	3.88×10 <sup>5</sup>
平均测量值 Average values		1.16×10 <sup>8</sup>	1.97×10 <sup>5</sup>
活度标准值Standard value of activity		9.01×10 <sup>7</sup>	1.51×10 <sup>5</sup>
相对偏差Relative deviation		28%	30%

通过基于标准<sup>137</sup>Cs、<sup>60</sup>Co放射源对钢箱6个对称 位置的测量,测量过程及结果符合体源效率刻度过 程中虚拟点源方法的计算规律和抽样算法<sup>[16]</sup>,得到 测量误差<30%的结论,该研究过程及结论将作为放射性废物送储是否满足放射性评价要求的依据,对

钢箱废物的直接测量具有重要指导意义。

# 3 结语

通过应用 ISOCS 测量钢箱废物,用无源效率刻 度软件进行了钢箱的自吸收校正和几何体积校正, 并用标准放射源对无源效率刻度的模拟结果进行了 验证,确定了该测量方法的误差,初步确定了 ISOCS 系统对钢箱进行直接测量误差约为 30%,该结论为 ISOCS 测量系统是否可以正确合理地确定钢箱废物 的核素组成和活度浓度提供了基础数据支撑。

作者贡献声明 聂鹏:整体方案策划,实施方案编制 实施;鲁谨:现场数据测量;郭亚平:测量数据处理; 任韧:现场安全管理;张立军:总体工作协调。

#### 参考文献

国家质量监督检验检疫总局,中国国家标准化管理委员会.放射性物质安全运输规程:GB 11806-2004[S].北京:中国标准出版社,2005.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Regulations for the safe transport of radioactive material: GB 11806—2004[S]. Beijing: Standards Press of China, 2005.

2 聂鹏.反应堆石墨中<sup>14</sup>C生成及滞留机制的分析和探讨 [J].核技术, 2017, **40**(11): 110606. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.110606.

NIE Peng. Study on production and retention of <sup>14</sup>C in thermal column graphite of HWRR[J]. Nuclear Techniques, 2017, **40**(11): 110606. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.110606.

- 3 Canberra. User's manual of model S573 ISOCS calibration software[M]. USA, 2002.
- 4 任永, 徐惠丽, 李进. 低、中放废物桶γ无损测量(NDA) 技术的应用分析[J]. 科技创新与应用, 2020(36): 140-141, 144. DOI: 2095-2945(2020)36-0140-03.
  REN Yong, XU Huili, LI Jin. Applied analysis of nondestructive measurement technology of γ ray for low and intermediate level radioactive waste barrel[J].
  Technology Innovation and Application, 2020(36): 140-141, 144. DOI: 2095-2945(2020)36-0140-03.
- 5 寇子琦,李绪平,朱晨晨.无源效率刻度在核电站废物 分拣中的应用[J]. 广州化工, 2020, 48(18): 104-106.
  DOI: 1001-9677(2020) 18-0104-03.
  KOU Ziqi, LI Xuping, ZHU Chenchen. Application of

passive efficiency calibration in waste sorting of nuclear power plant[J]. Guangzhou Chemical Industry, 2020, **48** (18): 104–106. DOI: 1001-9677( 2020) 18-0104-03.

6 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. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2005. 03.016.

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. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2005.03.016.

- 7 雷强,刘哲,蒋婧,等.核电厂放射性固体废物桶外γ测量重要影响因素的探讨[J].辐射防护通讯,2020,40(3): 9-14. DOI: 10.3969/j.issn.1004-6356.2020.03.002.
  LEI Qiang, LIU Zhe, JIANG Jing, *et al.* Discussion on out-of-barrel gamma measurement of NPP solid radioactive wastes[J]. Radiation Protection Bulletin, 2020, 40(3): 9-14. DOI: 10.3969/j.issn.1004-6356.2020. 03.002.
- 8 易珂, 王德忠, 李厚文, 等. 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[J]. 原子能 科学技术, 2009, 43(10): 865-870. DOI: 1000-6931(2009) 10-0865-06.

YI Ke, WANG Dezhong, LI Houwen, *et al.* Uncertainty analysis of in situ object count system activity measurement for standard 200 L barrel[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2009, **43**(10): 865 – 870. DOI: 1000-6931(2009)10-0865-06.

9 付杰,徐翠华.无源效率刻度技术研究进展及其应用概况[J].核电子学与探测技术,2007,27(4):799-804.DOI: 0258-0934(2007)04-0799-06.

FU Jie, XU Cuihua. Research and application of souceless efficiency calibration technic[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2007, **27**(4): 799 – 804. DOI: 0258-0934(2007)04-0799-06.

10 李长楷, 汤晓斌, 岳爱忠. 深贯穿问题脉冲高度计数减 方差技巧[J]. 核技术, 2015, **38**(3): 030501. DOI: 10. 11889/j.0253-3219.2015.hjs.38.030501.

LI Changkai, TANG Xiaobin, YUE Aizhong. Pulse-height tally variance reduction in deep penetration problem[J]. Nuclear Techniques, 2015, **38**(3): 030501. DOI: 10.11889/ j.0253-3219.2015.hjs.38.030501.

11 丁富荣, 班勇, 夏宗璜. 辐射物理[M]. 北京: 北京大学出版社, 2004.

DING Furong, BAN Yong, XIA Zonghuang. Radiation

physics[M]. Beijing: Peking University Press, 2004.

- 12 Liao Y C, Xu D G, Zhang P C. Preparation and characterization of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/XNBR flexible films for attenuating gamma rays[J]. Nuclear Science and Techbniques, 2018, **29**(7): 99. DOI: 10.1007/s41365-018-0436-7.
- 13 熊文彬, 仇春华, 段天英, 等. 基于虚拟点探测器模型的 HPGe 探测器体源效率刻度[J]. 原子能科学技术, 2011, 45(8): 999-1004. DOI: 1000-6931(2011)08-0999-06.
  XIONG Wenbin, QIU Chunhua, DUAN Tianying, *et al.* Peak efficiency calibration of HPGe detectors for volume sources based on virtual point detector model[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2011, 45(8): 999-1004. DOI: 1000-6931(2011)08-0999-06.
- 14 宋卫杰,郭金森,段娓桢,等. ISOCS 无源效率刻度在就 地测量中的准确性检验[J].核电子学与探测技术,2014, 34(4): 531 - 533. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2014. 04.026.

SONG Weijie, GUO Jinsen, DUAN Weizhen, et al. Test of accuracy of ISOCS efficiency calibration without a radioactive source in situ measuring[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2014, **34**(4): 531 – 533. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2014.04.026.

15 田自宁,欧阳晓平.大面积及大体积放射源HPGe探测器效率刻度[J].现代应用物理,2015,6(1):1-7.DOI:2095-6223(2015)01-001-07.
TIAN Zining, OUYANG Xiaoping. Efficiency calibration of HPGe detectors for large disk and volume radioactive

sources[J]. Modern Applied Physics, 2015, **6**(1): 1 – 7. DOI: 2095-6223(2015)01-001-07.

16 龙斌, 贾明雁, 李公平. 长方形废物箱测量中探测效率 刻度的抽样算法[J]. 核电子学与探测技术, 2011, 31(3): 337-343. DOI: 0258-0934(2011)03-0338-06.

LONG Bin, JIA Mingyan, LI Gongping. The sampling algorithm of the detection efficiency calibration for the measurement of rectangular waste container[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2011, **31**(3): 337 – 343. DOI: 0258-0934(2011)03-0338-06.