天然铀存储库辐射屏蔽计算方法优化研究

苏晓书[1],刘 颖[1],王兴华[1],冀 东[1],刘晓超[1],高朋杰[1],王金明[1],王 龙[2]

(1.中核第四研究设计工程有限公司,河北 石家庄 050021;
2.中国铀业有限公司,北京 100013)

摘要:为实现天然铀存储库辐射屏蔽最优化,以天然铀存储库屏蔽体外剂量率设计限值为参考控制目标,在分析现有屏蔽计算方法准确性的基础上,利用 Microshield 软件对天然铀存储库辐射屏蔽计算方法及源项模型进行了优化,该方法以单个存储桶体源模型为基础,重点考虑铀子体及多个存储桶叠加的影响,其计算结果与实际监测结果接近,计算方法可靠,能够为天然铀存储库辐射屏蔽方案设计提供有效支撑。

关键词:天然铀;存储库;辐射屏蔽;优化

中图分类号:P619.14 **文献标志码**:A **文章编号**:1000-8063(2023)02-0069-07

DOI:10.13426/j.cnki.yky.2022.12.03

天然铀是重要的军民两用战略资源[1],对核能发展和国防安全具有非常重要的作用[2]。建设天然铀存储库可完善天然铀储备体系,保障天然铀供应安全。天然铀存储库需在辐射防护最优化原则[3]下精准设计,使其既不会因屏蔽过度导致建设成本增加,也不会因屏蔽不足造成剂量率超标。

目前,对于天然铀存储库墙体屏蔽设计主要是利用已运行存储库内 γ 剂量率监测数据,结合点源或半无限体源计算模型,以标准限值 2.5 μGy/h[4]为基础并考虑 2 倍安全系数,即以 1.25 μGy/h 作为控制水平推导库房墙体厚度。该计算方法有一定局限性,需要拟建库房与现有库房在天然铀总存储量、单桶金属铀含量、库区平面布局等关键参数方面基本一致,否则作为初始输入条件的库区内 γ 剂量率等数据便不再具备使用条件;另外,由于存储桶与墙外计算点距离较近(不大于辐射源本身最大尺寸的 5 倍)[5]79,视为点源不合理。半无限体源计算模型亦存在天然铀核素能量选取平均化、铀衰变子体影响难以全面考虑、桶与桶之间缝隙及货架之间通道在计算时无法体现等问题。

因此,为保证辐射屏蔽方案合理可行,笔者在研究库区屏蔽体外剂量率影响因素的基础上,结合单桶天然铀存储量、活度,以及存储桶体积、个数、码放方式、存储桶距墙体的距离等基本参数,利用 Microshield 软件计算并考虑多桶叠加的影响,对天然铀存储库辐射屏蔽计算过程进行优化。

1 存储库源项

存储库中的天然铀存储形式为 U_3O_8 粉末,包装容器为天然铀专用钢桶,由桶盖和桶体组成,通过扣件拉紧螺栓连接,桶盖和桶体连接部分采用橡胶密封。桶盖、桶底钢板厚 2 mm,桶身钢板厚 1.5 mm;桶外部高 900 mm,净高 896 mm;桶外径 559 mm,内径 556 mm;桶盖外径 600 mm。桶容积 210 L、质量≤35 kg,满载 U_3O_8 粉末的桶总质量 485 kg,桶中物料密度为 2.14 g/cm^3。

单桶天然铀中的理论金属铀质量分数约为 85%,核素^{234}U、^{235}U、^{238}U 的相对丰度分别为 0.005 4%、0.720 4%、99.274 2%,根据《实用辐射安全手册》(第二版)[6]3中提供的质量与活度转化关系,单桶天然铀核素^{234}U、^{235}U、^{238}U 活度分别为 4.71×10^9、2.18×10^8、4.73×10^9 Bq。除去杂质、水分等,单桶天然铀中的实际金属铀质量分数约为 80%。因此,以理论值进行分析计算是合

收稿日期:2022-12-19

第一作者简介:苏晓书(1984—),男,河北石家庄人,硕士,高级工程师,主要从事辐射防护及环境保护相关工作。

通信作者简介:刘颖(1990—),女,河北石家庄人,硕士,工程师,主要从事辐射防护设计与环境影响评价工作。

理且安全的。

2 存储库基本布局

存储库充分利用垂向及纵向空间，一般分为转运区、存储区、运行调度区。为便于存储桶进出及取样分析，存储区通常设计为规则矩形，存储桶在存储区内智能立体货架上多层码放，立体货架可设置成 n 排、m 列、i 层。

为满足存储需求，一般会根据工程场地建设条件及工艺流程确定存储区长、宽、高等建筑尺寸，并在其中放置相应存储能力的智能立体货架，货架距四周屏蔽墙内侧的距离一般为人、物流通道或检修通道宽度。设计的存储区净尺寸为 91 m(长)×34 m(宽)×19 m(高)，其平面布置示意见图 1，剖面示意见图 2，存储区共计码放 32 排、102 列、9 层存储桶。

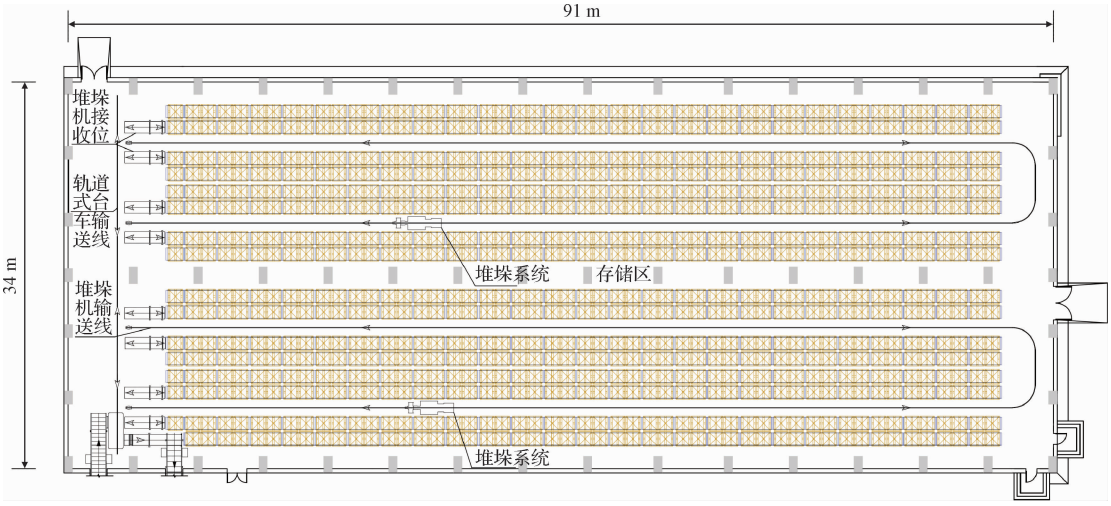


图 1 存储区平面布置图

Fig. 1 The repository layout plan

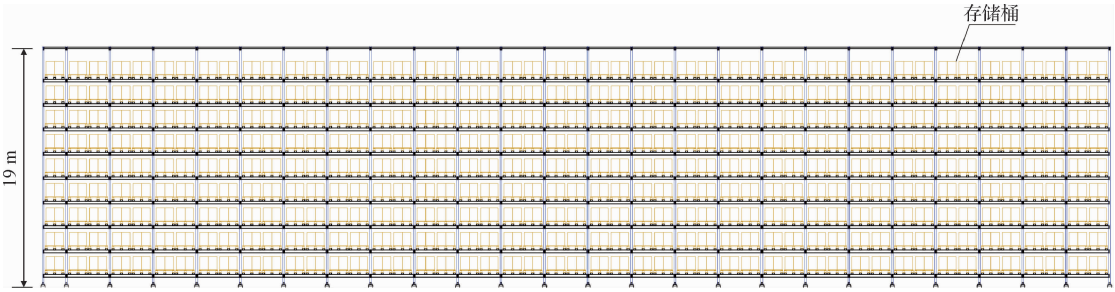


图 2 存储区剖面布置图

Fig. 2 The repository section plan

3 屏蔽计算方案

3.1 源项模型

为充分利用存储库容积，库内通道宽度一般为 1.5～3.0 m，此时存储桶与墙外 30 cm 处关注点间的距离不大于辐射源本身最大尺寸的 5 倍，不满足使用点源模型的条件；若将库区内所有存储桶所在区域看做 1 个半无限体源，其内部细节无法体现，为满足半无限体源计算模型的使用条件，仅能计算较近距离处关注点剂量率，且无法体现其内部细节，计算结果存在一定偏差。

笔者根据源项基本参数，利用 Microshield 软件建立单桶模型，特别考虑存储桶内铀核素子体的影响，铀核素衰变产生子体的时间取常规存储

周期(1 年)。一般情况下存储时间大于 200 d 后，桶内源项趋于稳定，^{234}U、^{235}U、^{236}U、^{234}Th、^{231}Th、^{234m}Pa等活度占比极高的核素不再增加，但其他核素仍然缓慢增长并对桶外剂量率产生影响；312 d 后，其他核素由于相对增长量变低，对桶外剂量率不再产生影响。因此，计算时考虑铀核素子体的影响，衰变时间以取 1 个常规存储周期(1 年)为宜。

源项中核素特性见表 1[6-8]，单桶表面剂量率计算模型参数见表 2，各级能量对存储桶表面剂量率的贡献见表 3，源项变化趋势见图 3，桶外剂量率变化趋势见图 4。

表 1　源项中的核素特性

Table 1　Nuclide properties in the source term

核素分类	核素名称	半衰期	主要 γ、X 能量/MeV	强度/%
初始核素	^{234}U	2.44×10^{5} a	0.121	0.034
			0.053	0.123
	^{235}U	7.04×10^{8} a	0.205	5.000
			0.186	57.20
			0.163	5.080
			0.144	10.96
			0.093(X)	5.810(X)
	^{238}U	4.47×10^{9} a	0.114	0.010
			0.050	0.064
重要子体核素	^{214}Bi	1.99×10^{1} min	0.609	16.10
			0.768	1.940
			1.120	15.10
			1.238	5.780
			1.378	4.000
			1.764	15.10
			2.204	5.080
	^{234}Pa	6.70 h	0.100	50.00
			0.126	26.00
			0.220	14.00
			0.360	13.00
			0.560	15.00
			0.700	24.00
			0.900	70.00
			1.080	12.00
	^{234m}Pa	1.17 min	0.767	0.200
			0.810	0.500
			1.001	0.600
	^{210}Po	1.38×10^{2} d	0.803	0.001
	^{214}Po	1.64×10^{-4} s	0.799	0.014

注：(X)为 X 射线能量及强度，其余为 γ 能量及强度。

表 2 单桶表面剂量率计算模型参数

Table 2 Parameters of single bucket surface dose rate calculation model

桶高度/cm	桶半径/cm	桶壁厚度/cm	关注点坐标/cm			关注点距桶表面距离/cm
			x	y	z	
89.6	27.8	0.15	32.95	44.8	0	5

表 3 单桶表面剂量率计算结果

Table 3 Calculation results of dose rate on the surface of single bucket

能量分级/MeV	能量强度/%	剂量率/(μGy·h^{-1})	能量分级/ MeV	能量强度/%	剂量率/(μGy·h^{-1})
0.015	14.249	1.849×10^{-23}	0.200	15.970	1.099
0.020	≈0	2.119×10^{-31}	0.300	0.097	1.477×10^{-2}
0.030	0.562	3.722×10^{-18}	0.400	0.109	2.607×10^{-2}
0.040	≈0	3.305×10^{-12}	0.500	0.202	6.370×10^{-2}
0.050	0.163	9.999×10^{-6}	0.600	0.992	3.719×10^{-1}
0.060	6.553	1.469×10^{-2}	0.800	7.369	3.374×10^{-1}
0.080	1.516	4.112×10^{-2}	1.000	29.450	1.507×10^{1}
0.100	18.478	1.002	1.500	0.932	5.161×10^{-1}
0.150	3.197	1.205×10^{-1}	2.000	0.160	8.560×10^{-2}

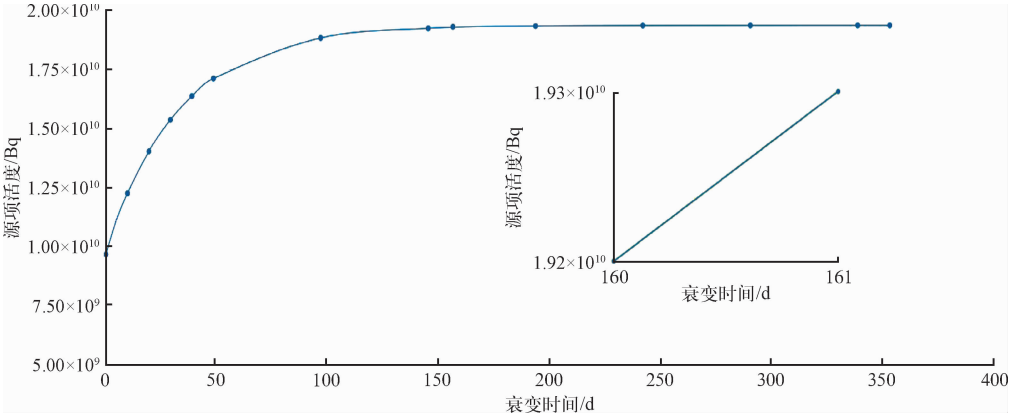


图 3 存储桶内源项变化趋势

Fig. 3 Change trend of source items in a bucket

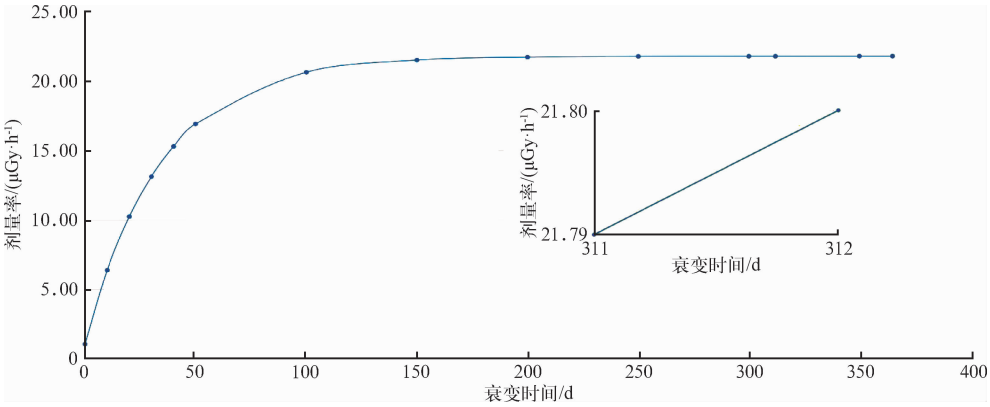


图 4 存储桶表面剂量率变化趋势

Fig. 4 Change trend of storage bucket surface dose rate

经计算，当考虑铀核素衰变子体时，单桶表面 5 cm 处剂量率为 21.80 μGy/h，与国内已运行天然铀存储企业提供的存储桶表面 5 cm 处剂量率为 15.0～25.0 μGy/h 的实测数据较为符合；当不考虑铀核素衰变子体时，存储桶表面5 cm处剂量率为 1.08 μGy/h，与实测数据差距较大。能级分析表明，0.2、0.6、0.8、1.0、1.5、2.0 MeV 等 6 个能级对剂量率贡献最大，上述能级分别对应的核素有^{234}Pa、^{235}U；^{214}Bi；^{234m}Pa、^{210}Po、^{214}Po；^{214}Bi、^{234}Pa、^{234m}Pa；^{214}Bi；^{214}Bi。

3.2　屏蔽计算

3.2.1　单桶所致墙体外剂量率

对于天然铀存储库的建设，墙体材料一般为混凝土或实心砖，选择 2 个典型混凝土厚度（16 cm和 25 cm）进行计算。考虑混凝土、砖、灰泥、泥土等常用建筑材料，均由硅、钙、铝、铁等低原子序数物质组成；对于这类物质，康普顿散射占主要优势的能量范围很宽，所以可根据材料厚度与密度的乘积相等来估算砖、灰泥、泥土、混凝土之间的等效厚度[5]88。2 个典型混凝土厚度对应实心砖的常见规格为 24 cm 和 37 cm。

货架四周人、物流通道或检修通道宽度按 1.5 m 最不利情况计算，建立的模型见图 5，单桶所致墙外剂量率计算模型参数见表 4，计算结果见表 5。涉及具体工程时，可根据存储桶实际布置情况调整各项参数。

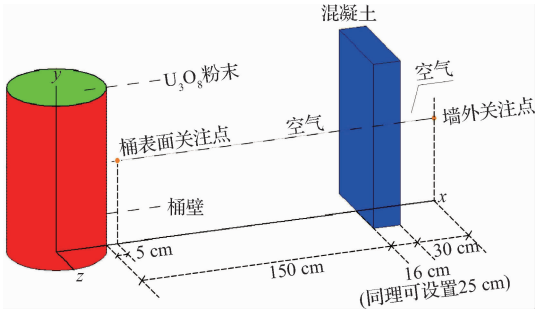


图 5　单桶所致墙体外剂量率计算模型

Fig. 5　Calculation model for dose rate outside the wall caused by a single bucket

表 4　单桶所致墙外剂量率计算模型参数

Table 4　Parameters of calculation model for dose rate outside the wall caused by a single bucket

桶高度/cm	桶半径/cm	墙体厚度/cm	关注点坐标/cm			关注点距桶表面距离/cm
			x	y	z	
89.6	27.8	16	223.95	44.8	0	30

注：墙体厚度也可设置为 25 cm。

表 5　单桶所致墙体外剂量率计算结果

Table 5　Calculation results of dose rate outside the wall caused by a single bucket

源项	墙体材质	墙体厚度/cm	桶距内墙垂直距离/cm	桶至关注点路径	关注点剂量率/(μGy·h^{-1})
单桶	混凝土	16	150	0.15 cm 钢板→150 cm 空气→16 cm 混凝土→30 cm 空气	1.098×10^{-1}
		25		0.15 cm 钢板→150 cm 空气→25 cm 混凝土→30 cm 空气	3.699×10^{-2}

3.2.2　多桶所致墙体外剂量率

确定剂量率满足设计控制值的天然铀存储库墙体厚度时，应考虑墙体外 30 cm 处关注点受其周围多个存储桶的叠加影响。利用 Microshield 软件建模计算了正对关注点处 1 列、第 1 排、垂直方向 9 层，以及关注点两侧各 13 列、第 1 排、垂直方向 9 层，共计 1 排、27 列、9 层、243 个存储桶对关注点的叠加影响（图 6、表 6）。可以看出，16 cm

混凝土(24 cm 实心砖)外剂量率为 7.423×10^{-1} μGy/h,考虑一定计算冗余性,数值接近设计控制值,符合辐射防护最优化原则;25 cm 混凝土(37 cm 实心砖)外剂量率为 2.073×10^{-1} μGy/h,数值接近本底水平,在某些对放射性工作场所周围剂量率要求较严格的地域可以采用。

经数据分析,对于 16 cm 混凝土(24 cm 实心砖)、25 cm 混凝土(37 cm 实心砖),第 1 排、第 1 层边缘处的存储桶对墙外关注点剂量率分别为 10^{-6} μGy/h 量级和 10^{-8} μGy/h 量级;后 1 排存储桶受到自屏蔽、前排桶屏蔽、距离增加等因素影响,对关注点处剂量率的贡献分别为 10^{-3} μGy/h 量级和 10^{-4} μGy/h 量级,且随着排数增加、存储桶对关注点剂量率的贡献呈指数规律快速下降;次要区域对墙外剂量率的贡献占比仅为 $1/10^{2}$～$1/10^{7}$。因此,对关注点剂量率有较大贡献的存储桶基本分布在第1排的中间列及两侧各8列、垂直方向 1～5 层,考虑此部分存储桶的辐射影响即可得到较可靠的墙体厚度。在精度要求较高时,可逐一计算所有存储桶对墙外的叠加影响,确定墙体厚度。

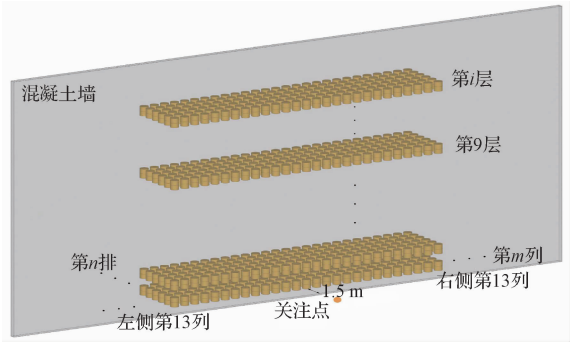


图 6 多桶所致墙体外剂量率叠加计算示意图

Fig. 6 Schematic diagram of superposition of external dose rate caused by multiple buckets

表 6 多桶所致墙体外剂量率叠加计算结果

Table 6 Superposition calculation results of external wall dose rate caused by multiple buckets

源项	墙体材质	墙体厚度/cm	桶数/个	桶中心距关注点距离/cm	关注点剂量率/(μGy·h^{-1})	墙外剂量率控制值/(μGy·h^{-1})
多桶	混凝土	16	243	223.95～1 695.33	7.423×10^{-1}	1.25
		25		232.95～1 696.55	2.073×10^{-1}	1.25

4 误差分析

单桶表面剂量率及多桶所致墙体外剂量率的误差分析结果见表 7～表 8。计算数据与国内某已运行天然铀存储企业实测数据的误差均低于 10%,计算结果较可靠,误差可以接受。

表 7 单桶表面剂量率误差分析结果

Table 7 Analysis results of surface dose rate error of single bucket

源项	关注点位置	剂量率/(μGy·h^{-1})			剂量率相对误差/%
		计算值	实测值	实测均值	
单桶	桶表面 5 cm 处	21.80	15.0～25.0	20.0	−8.26

表 8 多桶所致墙体外剂量率误差分析结果

Table 8 Analysis results of wall external dose rate error caused by multiple buckets

源项	桶数/个	墙体材质	墙体厚度/cm	关注点位置	剂量率/(μGy·h^{-1})			剂量率相对误差/%
					计算值	实测值	实测均值	
存储桶	243	混凝土	16	墙外 30 cm 处	7.423×10^{-1}	0.35～1.02	0.69	−7.01
			25		2.073×10^{-1}	0.14～0.24	0.19	−8.34

5　结论

建立的天然铀存储库墙体屏蔽计算方法，解决了类比条件不具备或误差较大时，源项核算及屏蔽计算问题。该计算方案既能保证墙体外剂量率达标，又能降低工程投资，符合辐射防护最优化原则，可为同类工程辐射防护设计提供可靠依据。

参考文献：

[1] 李晓翠，李林强，蔡煜琦. 中国天然铀资源保障策略研究[J]. 铀矿地质，2020，36(3)：183-189.

[2] 邹泳萱，王又华. 提高我国天然铀供应能力的措施[J]. 现代矿业，2016，566(6)：292-293＋296.

[3] 刘华. 辐射防护最优化方法及其应用[J]. 核安全，2007(2)：1-7.

[4] 北京市辐射安全研究会. 天然铀存储场所辐射安全管理要求：T/BSRS 024—2020[S]. 北京：中国环境出版集团，2020.

[5] 方杰. 辐射防护导论[M]. 北京：中国原子能出版社，1991.

[6] 从慧玲. 实用辐射安全手册[M]. 北京：中国原子能出版社，2005.

[7] 卢玉楷. 简明放射性同位素应用手册[M]. 北京：科学出版社，2004.

[8] 马崇智. 放射性同位素手册[M]. 北京：科学出版社，1979.

Research on Optimization of Calculation Method of Radiation Shielding in Natural Uranium Repository

SU Xiaoshu[1], LIU Ying[1], WANG Xinghua[1], JI Dong[1], LIU Xiaochao[1], GAO Pengjie[1], WANG Jinming[1], WANG Long[2]

(1. The Fourth Research and Design Engineering Corporation, CNNC, Shijiazhuang 050021, China;
2. China National Uranium Co., Ltd., CNNC, Beijing 100013, China)

Abstract: In order to optimize the radiation shielding of natural uranium repository, taking the design limit of the external dose rate of the shielding of natural uranium repository as the reference control objective, and on the basis of analyzing the accuracy of existing shielding calculation methods, Microshield software is used to optimize the radiation shielding calculation method of natural uranium repository, especially the source term model. This method is based on the single storage barrel source model, the influence of uranium daughter and the superposition of several storage barrels is mainly considered. The calculation results are close to the actual monitoring results, and the calculation method is reliable, which can provide effective support for the radiation shielding design scheme of natural uranium repository.

Key words: natural uranium; repository; radiation shield; optimize