

文章编号: 1007-4627(2018)01-0053-08

## 卵石材料在中子场下的次级放射性分析

颜永刚<sup>1,2</sup>, 骆鹏<sup>1,†</sup>, 黄郁旋<sup>1</sup>, 张艳斌<sup>1</sup>, 金锦<sup>1</sup>, 黄思洋<sup>1,2</sup>, 徐俊奎<sup>1</sup>, 王志光<sup>1</sup>

(1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

**摘要:** 由中国科学院近代物理研究所负责设计和建设的加速器驱动嬗变研究装置 (CiADS) 将建于广东省惠州市。作为一个核装置, CiADS 在运行过程中会对环境造成次级放射性影响, 因此评估 CiADS 对环境造成的次级放射性影响水平不仅对公众健康有重要意义, 对屏蔽设计也具有一定的指导作用。利用  $^{241}\text{Am}$ -Be 中子源对兰州重离子加速器研究装置 (HIRFL) 附近的卵石材料进行了辐照实验, 测量和分析了辐照后卵石样品内产生的  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  的比活度等相关信息。通过对实验数据与利用蒙特卡罗程序 Geant4 模拟得到的各放射性核素比活度的比较, 验证了 Geant4 模拟分析中子场下环境介质次级放射性这一方法的可靠性。进而利用 Geant4 模拟研究了 CiADS 质子加速器 HEFT 隧道底部屏蔽层外的中子能谱以及隧道底部屏蔽层外卵石层因中子活化产生的主要放射性核素的饱和比活度。分析结果表明, 在合理的屏蔽设计条件下, CiADS 运行期间泄露到屏蔽层外的中子活化环境中卵石材料造成的环境影响几乎可以忽略。

**关键词:** CiADS; 中子活化; 卵石; 辐射危害

**中图分类号:** TL75<sup>+</sup>2.2

**文献标志码:** A

**DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.35.01.053

### 1 引言

由中国科学院近代物理研究所负责设计和建设的加速器驱动嬗变研究装置 (China initiative Accelerator Driven System, CiADS) 是一个由加速器、散裂靶和次临界反应堆分系统集成的加速器驱动嬗变原理验证装置, 是加速器驱动嬗变工业示范装置的前期预研工程<sup>[1]</sup>。CiADS 的总体设计指标: 质子加速器束流能量 500 MeV、束流强度 5 mA, 散裂靶可承载质子束流功率 2.5 MW, 次临界快中子反应堆热功率 10 MW。CiADS 的主体工程大部分位于地下, 质子加速器隧道底板主要落在中、微风化岩上, 隧道周围回填土壤和风化岩。在 1 W/m 的束流损失设计条件下, 500 MeV 质子加速器隧道屏蔽层外会产生一个混合次级粒子场<sup>[2-4]</sup>, 在这些次级粒子中, 高能光子、电子和中子等粒子会与环境中的物质相互作用, 产生多种放射性核素<sup>[5, 6]</sup>。针对质子加速器而言, 在屏蔽层外主要考虑由中子引起的核反应<sup>[4]</sup>, 就中子注量率和环境介质的化学成分而言, 单位时间内中子活化产生的放射性核素是相当少的<sup>[8]</sup>, 但考虑 CiADS 将长期运行, 周围环境中的物质长期受中子场作用, 因此, 中子活化产生的放射性

不容忽视。

过去的几十年中, 科研工作者已做了大量关于高能加速器和散裂中子源等核设施放射性环境影响评估的工作。20 世纪 70 到 80 年代, 人们主要利用理论或经验公式计算环境介质中放射性核素的活度, 评估核装置对环境的放射性影响水平<sup>[9, 11-13]</sup>。例如, Hoyer<sup>[10]</sup> 在 1968 年通过比较 CERN 28 GeV 质子同步加速器隧道顶部土壤屏蔽层中  $^{22}\text{Na}$  和  $^{45}\text{Ca}$  的比活度测量值和计算值, 验证了计算方法的可靠性后, 计算给出了  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$  和  $^{54}\text{Mn}$  等核素的饱和放射性比活度, 进而评估了该质子加速器以及其升级到 300 GeV 时对环境的放射性影响水平。近年来, 人们利用 FLUKA 等蒙特卡罗程序开展了大量关于加速器等射线装置放射性影响的研究工作<sup>[15-19]</sup>。例如, Tesch<sup>[7]</sup> 在 1997 年使用蒙特卡罗程序 FLUKA 计算 DESY 电子对撞机束流捕集器周围土壤中的中子能谱和  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  和  $^{55}\text{Fe}$  等核素的饱和放射性活度, 评估了对撞机附近土壤和地下水的放射性水平; 2001 年, Rokni 等<sup>[16]</sup> 在斯坦福加速器中心开展了电子束流轰击铜靶产生的次级场辐照土壤和水等环境介质实验, 验证了 FLUKA 在剩余放射性研究方面的可靠性。上述研究工作主要针对环境中的空

收稿日期: 2017-09-24; 修改日期: 2017-12-05

基金项目: 国家自然科学基金重大研究计划项目 (91426301)

作者简介: 颜永刚(1989-), 男, 四川泸州人, 硕士研究生, 从事辐射防护研究; E-mail: yanyonggang@impcas.ac.cn

† 通信作者: 骆鹏, E-mail: luopeng@impcas.ac.cn.

气、土壤和地下水。

Geant4 是一款由 CERN 开发的基于蒙特卡罗方法的用于粒子在物质中输运的模拟程序, 广泛应用于高能核物理、加速器物理和空间科学等领域<sup>[20, 21]</sup>。它具有编写自由、物理模型丰富等特点。基于 CiADS 系统构成的复杂性, 本工作选择 Geant4 作为模拟工具来分析 CiADS 运行所导致的环境影响问题。考虑到 CiADS 建设地的地质条件, 本工作以卵石材料为主要研究对象, 开展中子辐照实验和 Geant4 模拟研究工作, 其研究结果不仅可以用于评估 CiADS 长期运行可能造成的放射性环境影响, 也可用于评价兰州重离子研究装置(HIRFL) 经过长期运行后产生的环境影响, 检验现有辐射防护措施的有效性。

## 2 中子核反应

中子具有电中性, 与卵石材料相互作用时主要与原子核发生相互作用。对于能量低于 500 MeV 的中子, 中子核反应类型主要有: 中子弹性散射 (n, n)、中子非弹性散射 (n, n\*), (n,  $\gamma$ ), (n, p), (n,  $\alpha$ ), (n, 2n), (n, 3n), (n, np) 等, 核反应可能会生成具有放射性的新核素<sup>[22]</sup>。低能中子与靶核可能发生如 (n,  $\gamma$ ), (n, p), (n,  $\alpha$ ) 等俘获反应。当中子能量在几个 MeV 以上时, 中子与原子核作用会将核中 2 个或 3 个中子轰出来, 用 (n, 2n), (n, 3n) 表示, 类似在中子能量更高时还会有如 (n, np), (n, n $\alpha$ ) 等反应<sup>[23, 24]</sup>。

中子辐照卵石产生的放射性核素的活度主要取决于卵石的化学成分、中子能谱与卵石所处位置的中子注量率、辐照时间和冷却时间等<sup>[25]</sup>。一般而言, 卵石材料主要含 O, Si, Al, Na, Mg, Mn 和 Fe 等元素<sup>[26]</sup>。卵石在 0~500 MeV 的中子辐照下, 会产生多种放射性核素(如表 1 所列), 其中 <sup>3</sup>H, <sup>7</sup>Be, <sup>22</sup>Na, <sup>24</sup>Na, <sup>54</sup>Mn, <sup>56</sup>Mn, <sup>55</sup>Fe 和 <sup>45</sup>Ca 等是可能造成环境影响的主要放射性核素<sup>[7, 10, 14]</sup>。

## 3 实验研究

实验测量了辐照前卵石样品的质量、密度和化学成分等, 为 Geant4 模拟建模提供基本数据。实验分析了 <sup>241</sup>Am-Be 中子辐照卵石产生的放射性核素种类和活度, 为验证蒙特卡罗程序 Geant4 模拟中子轰击卵石靶输出剩余核的可靠性提供实验数据。

### 3.1 样品分析

采集了 17 个不同的卵石样品, 样品呈薄饼状, 每个样品质量约 200 g。样品分为 2 组, 第 1 组(1~12号)

表 1 能量低于 500 MeV 的中子与卵石作用产生较长寿命放射性核素的主要核反应<sup>[27]</sup>

元素	核反应
O	<sup>16</sup> O(n, x) <sup>3</sup> H; <sup>16</sup> O(n, x) <sup>7</sup> Be; <sup>16</sup> O(n, 2n) <sup>15</sup> O
Si	<sup>28</sup> Si(n, p $\alpha$ ) <sup>24</sup> Na; <sup>28</sup> Si(n, p $\alpha$ 2n) <sup>22</sup> Na; <sup>28</sup> Si(n, x) <sup>3</sup> H; <sup>28</sup> Si(n, x) <sup>7</sup> Be; <sup>30</sup> Si(n, $\alpha$ ) <sup>27</sup> Mg
Al	<sup>27</sup> Al(n, $\alpha$ ) <sup>24</sup> Na; <sup>27</sup> Al(n, $\alpha$ 2n) <sup>22</sup> Na; <sup>27</sup> Al(n, p) <sup>27</sup> Mg; <sup>27</sup> Al(n, x) <sup>18</sup> F
Ca	<sup>44</sup> Ca(n, $\gamma$ ) <sup>45</sup> Ca; <sup>40</sup> Ca(n, $\alpha$ ) <sup>37</sup> Ar
Mg	<sup>26</sup> Mg(n, $\gamma$ ) <sup>27</sup> Mg; <sup>24</sup> Mg(n, p) <sup>24</sup> Na
Fe	<sup>54</sup> Fe(n, p) <sup>54</sup> Mn; <sup>56</sup> Fe(n, p) <sup>56</sup> Mn; Fe(n, x) <sup>52</sup> Mn; <sup>54</sup> Fe(n, $\alpha$ ) <sup>51</sup> Cr
Na	<sup>23</sup> Na(n, $\gamma$ ) <sup>24</sup> Na; <sup>23</sup> Na(n, 2n) <sup>22</sup> Na
Ti	<sup>48</sup> Ti(n, np) <sup>47</sup> Sc; <sup>48</sup> Ti(n, p) <sup>48</sup> Sc; <sup>48</sup> Ti(n, $\alpha$ ) <sup>45</sup> Ca; <sup>46</sup> Ti(n, p) <sup>46</sup> Sc
Mn	<sup>55</sup> Mn(n, 2n) <sup>54</sup> Mn; <sup>55</sup> Mn(n, $\gamma$ ) <sup>56</sup> Mn; <sup>55</sup> Mn(n, 4n) <sup>52</sup> Mn
K	<sup>39</sup> K(n, p) <sup>39</sup> Ar; <sup>39</sup> K(n, 2 $\alpha$ ) <sup>32</sup> P

采集于中国科学院近代物理研究所重离子加速器园区周边, 第 2 组(13~17)号采集于所区外。采集两组卵石主要有 2 个目的: (1) 对比两组样品的放射性水平, 评估 HIRFL 长期运行对所区的放射性影响水平; (2) 为辐照实验提供样品。样品经切割、清洗和干燥后, 利用分析天平、密度计和电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES) 分别测量其质量、密度和化学成分。测量结果显示, 样品的密度范围在 2.6~3.1 g/cm<sup>3</sup> 之间, 主要含 Al, Ca, Na, Fe, K, Mg 和 Mn 等元素。在 Geant4 模拟分析中, 每个样品的元素成分信息都分别作了考虑, 以保证实验与模拟结果对比的一一对应。表 2 列出样品中各元素质量分数的平均值, 以作参考。

表 2 17 个卵石样品中部分元素质量分数的平均值

元素	质量分数
Al	0.058 75
Ca	0.038 00
Fe	0.029 38
K	0.023 01
Mg	0.016 37
Mn	0.000 59
Na	0.034 70
Ti	0.002 85

使用带有低本底铅室的高纯锗探测器(HPGe) 测量了卵石样品的本底  $\gamma$  谱, 典型的本底  $\gamma$  谱如图 1 所示。利用 Gamma-w 软件分析了测量得到的本底  $\gamma$  谱, 发现两组卵石样品本底  $\gamma$  光谱中, 除天然放射性系中 <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>212</sup>Pb, <sup>208</sup>Tl 和 <sup>40</sup>K 等核素的  $\gamma$  特征峰外, 未

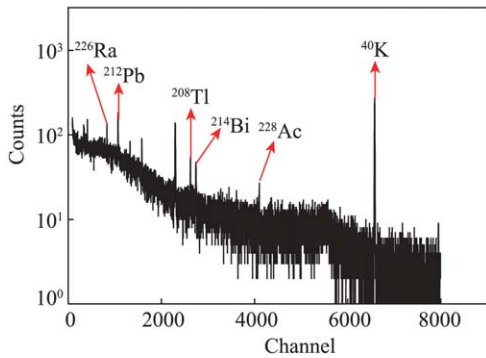


图 1 (在线彩图) 卵石样品本底  $\gamma$  谱

发现人工放射性核素的  $\gamma$  特征峰。样品中  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  和  $^{40}\text{K}$  的比活度测量结果如表 3 所列, 结果显示, 两组样品的天然放射性水平没有显著差异; 与王南萍等<sup>[28]</sup>测量的花岗岩放射性水平一致; 与张洁等<sup>[29]</sup>所测量的国内花岗岩放射性水平相比较, 本工作所测得的  $^{226}\text{Ra}$  和  $^{232}\text{Th}$  比活度值略低, 而  $^{40}\text{K}$  比活度稍高; 与黄丽华等<sup>[30]</sup>测量的国外花岗岩放射性水平相比, 本工作测得的放射性水平略低。由此可见, HIRFL 长期运行对园区环境介质的活化影响几乎可以忽略, 充分说明现行的辐射防护措施是安全可靠的。

表 3 卵石样品天然放射性水平

采集位置	样品数	$A(^{40}\text{K})/(\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1})$		$A(^{232}\text{Th})/(\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1})$		$A(^{226}\text{Ra})/(\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1})$	
		范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值
加速器附近	12	177~5 594.9	1 350.8	1.2~ 81.6	28.6	4.5~35.1	21.7
所区外	5	193~2 785.6	1 452.0	4.3~115.9	49.1	5.7~101.1	41.1
总体	17	177~5 594.9	1 380.6	1.2~115.9	34.6	4.5~101.1	27.4

### 3.2 中子辐照实验

辐照实验所使用的中子源是 10 Ci 的  $^{241}\text{Am-Be}$  中子源。样品放在距离中子源 6 cm 的球面上。每个样品的质量、密度和化学成分等各不相同, 辐照时间也不相同。从辐照第二天开始, 连续取出样品测量, 直至所有样品取完, 辐照实验一共持续了 26 d, 各个样品的辐照时间如图 2 所示。采用低本底高纯锗探测器测量了辐照样品的  $\gamma$  能谱。测量时样品放在探测器上方 5 cm 的位

置, 测量时间为 12 h。图 3 给出了测量得到的辐照样品的典型  $\gamma$  能谱, 从  $\gamma$  能谱中可以明显地看到  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  4 种核素的  $\gamma$  特征峰。

## 4 Geant4 模拟

采用 Geant4 模拟  $^{241}\text{Am-Be}$  中子源辐照卵石实验, 以验证 Geant4 模拟分析中子场下卵石材料次级放射性这一方法的可靠性。此外, 利用 Geant4 模拟 CiADS 质子加速器高能传输段 (HEBT) 隧道底部屏蔽层外不同厚度卵石层外的中子能谱以及 HEBT 隧道底部屏蔽层外第 1 个 10 cm 卵石层中因中子活化产生的主要次级放射性核素的饱和比活度。

### 4.1 中子辐照实验的 Geant4 模拟

根据中子辐照实验的实际情况, 建立如图 4 所示的模拟几何模型, 中子源位于聚乙烯棒中, 中子源能谱如图 5 所示<sup>[31]</sup>。模型中卵石质量、密度和元素成分等参数根据实验测量结果来设置。

为保证输出数据统计误差在可接受范围内且足够小, 模拟使用  $2 \times 10^7$  个中子打卵石靶。输出中子打卵石产生的原子核  $i$  的个数并归一化为单位时间原子核  $i$  的生成个数  $P_i$ , 即原子核  $i$  的产生率, 由下列方程描述<sup>[7]</sup>,

$$P_i = \sum_j n_j \int \sigma_{i,j}(E) \phi(E) dE, \quad (1)$$

其中:  $n_j$  表示样品中原子核  $j$  的原子密度;  $\sigma_{i,j}(E)$  代表能量为  $E$  的中子和原子核  $j$  反应产生原子核  $i$  的反应截面;  $\phi(E)$  代表能量为  $E$  的中子注量率。

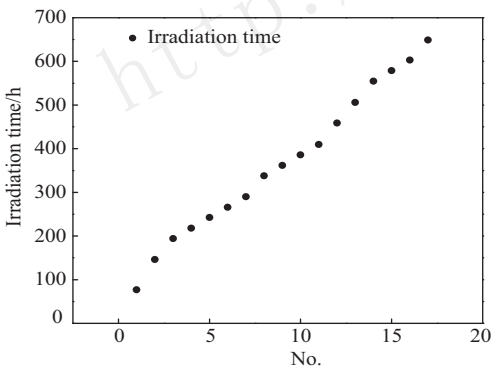


图 2 样品的辐照时间图

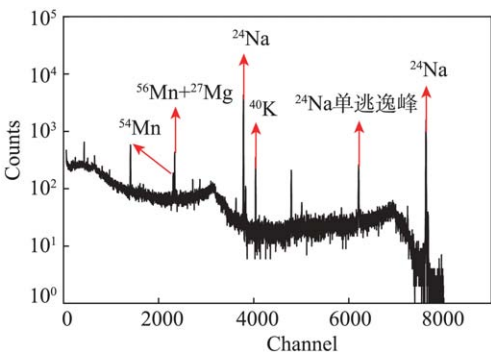


图 3 (在线彩图) 卵石样品辐照后的  $\gamma$  谱



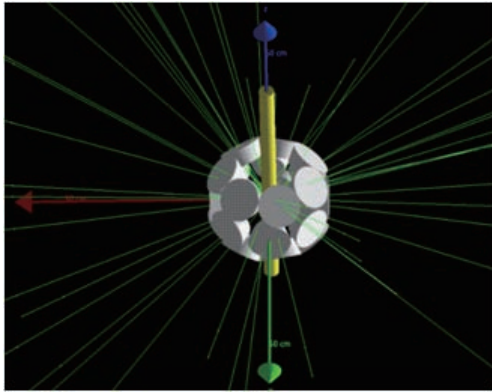


图 4 (在线彩图) 中子辐照卵石实验的 Geant4 几何模型

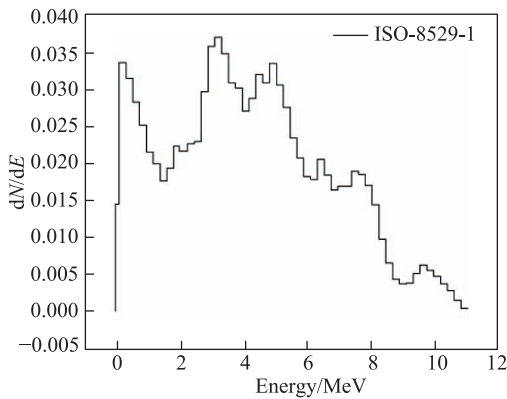


图 5  $^{241}\text{Am-Be}$  中子源能谱图

考虑到生成的放射性原子核也在衰变，核反应产生的原子核  $i$  的变化率可用式 (2) 表示<sup>[32]</sup>,

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i N_i + P_i, \quad (2)$$

其中:  $N_i$  代表核反应产生的原子核  $i$  的个数;  $\lambda_i$  代表核素  $i$  的衰变常数。

根据式 (1) 和 (2), 可以推导出描述核反应产生的核素  $i$  的活度与辐照时间和冷却时间的关系式, 即

$$A_i(t_{\text{irr}} + t_{\text{cool}}) = P_i(1 - e^{-\lambda_i \cdot t_{\text{irr}}})e^{-\lambda_i \cdot t_{\text{cool}}}, \quad (3)$$

其中:  $A_i(t_{\text{irr}} + t_{\text{cool}})$  代表辐照  $t_{\text{irr}}$  并冷却  $t_{\text{cool}}$  后核素  $i$  的放射性活度;  $t_{\text{irr}}$  和  $t_{\text{cool}}$  分别代表辐照时间和冷却时间。利用式 (3) 和模拟得到的原子核产生率  $P_i$  可计算出卵石中各放射性核素的活度。由式 (3) 可看出, 在核装置运行时间内, 长寿命核素的活度要积累到一定的放射性水平需要很长的辐照时间, 而半衰期较短的核素在停机后会很快衰变到较低的放射性水平。

#### 4.2 CiADS 质子加速器高能传输段的模拟计算

CiADS 质子加速器主要包括常温加速器前端 (RT Front end)、超导加速段 (SC)、HEBT 及束流收集终

端, 其中 HEBT 质子束能量最大设计值为 500 MeV。一般来说, 加速器 HEBT 损失的束流能量最高、对环境介质的活化最严重<sup>[18]</sup>, 具有一定的代表性, 对环境影响的评估也相对保守。因此, 本工作选择研究 HEBT 隧道屏蔽层外卵石的活化情况, 评估 CiADS 在屏蔽层外产生的中子活化环境中卵石引起的次级放射性影响。

根据 HEBT 隧道的设计参数, 建立一个如图 6 所示的简化模型。HEBT 隧道长宽高分别为 10, 7.5 和 8 m。隧道顶部和右侧混凝土屏蔽层厚度均为 1.5 m, 左侧混凝土屏蔽层厚度为 2 m, 底部混凝土屏蔽层厚 0.5 m。该模型假设隧道底部混凝土屏蔽层外为卵石层, 两侧和顶部屏蔽层外为土壤。简化的束流管道距隧道底部和左侧的距离分别是 1.5 和 2 m。束流管道内径和外径分别是 50 和 51.5 mm, 束流管道材料设为铁。

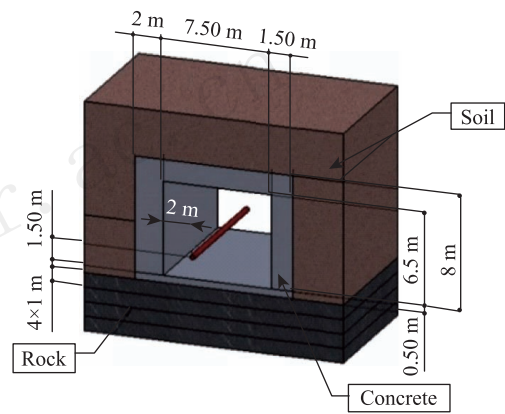


图 6 (在线彩图) 质子加速器高能束流传输段隧道几何模型

源参数设置为: 质子能量为 500 MeV, 设  $(x, y, z)$  是质子的初始位置坐标, 由方程 (4) 描述,  $(u, v, w)$  是质子的初始动量方向, 由方程 (5) 描述<sup>[18]</sup>,

$$\begin{cases} x = R_0 \cos(2\pi\mu_1) \\ y = R_0 \sin(2\pi\mu_1) \\ z = L(\mu_2 - 0.5) \end{cases}, \quad (4)$$

$$\begin{cases} u = \sin \theta_0 \cdot \cos(2\pi\mu_1) \\ v = \sin \theta_0 \cdot \sin(2\pi\mu_1) \\ w = \cos \theta_0 \end{cases}, \quad (5)$$

其中:  $R_0$  为束流管道内径;  $\mu_1$  和  $\mu_2$  是两个 0 到 1 的随机数;  $L$  是束流管道长度;  $\theta_0$  是质子发射角。在隧道底部混凝土屏蔽层外放置多个 SD 探测器记录中子信息。

在 1 W/m 的束流损失设计条件下, 模拟得到 HEBT 隧道底部 0.5 m 混凝土屏蔽层外不同厚度卵石

层外的中子能谱, 如图 7 所示。由模拟结果可以得出, 混凝土屏蔽层外中子注量率约为  $2.6 \times 10^5 \text{ n}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ , 中子能量在  $0 \sim 500 \text{ MeV}$  范围内。随着卵石层厚度的增加, 中子注量率和中子能量均在减小。在  $3 \text{ m}$  厚卵石层外, 几乎所有的中子能量都小于  $10 \text{ MeV}$ , 且中子注量率也降到了很低水平。

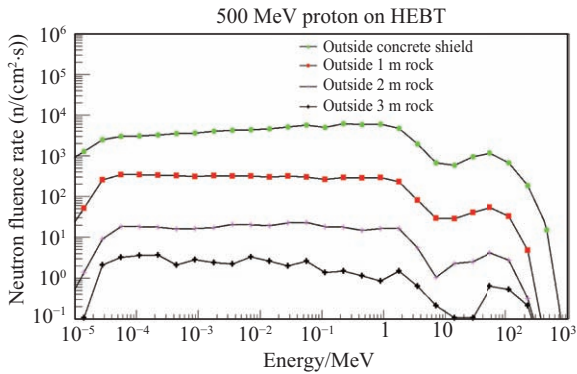


图 7 (在线彩图) CiADS 质子加速器  $500 \text{ MeV}-1 \text{ W}/\text{m}$  HEBT 隧道底部  $0.5 \text{ m}$  混凝土屏蔽层外不同厚度卵石层外的中子能谱

同样, 根据图 6 的 HEBT 模型, 计算 HEBT 底部屏蔽层外第一个  $10 \text{ cm}$  卵石层因中子活化产生的主要放射性核素的饱和比活度。在隧道模型底部屏蔽层外设置

一个  $10 \text{ cm}$  厚的探测器, 探测器材料设为卵石, 记录探测器内产生的放射性核素的原子核数目, 计算出放射性核素的活度。

### 5 结果和讨论

经冷却时间修正、测量死时间修正和样品自吸收修正, 通过数据处理得到的辐照样品中  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  比活度如图 8 所示。其中,  $^{24}\text{Na}$  的半衰期为  $14.9 \text{ h}$ , 经过约  $60 \text{ h}$  辐照后, 样品中的  $^{24}\text{Na}$  达到饱和, 辐照样品中  $^{24}\text{Na}$  的比活度范围在几十~几千  $\text{Bq}/\text{kg}$ 。 $^{54}\text{Mn}$  半衰期为  $312 \text{ d}$ , 样品中  $^{54}\text{Mn}$  的比活度整体随辐照时间的增加而增大, 实验测量最大值约为  $28.2 \text{ Bq}/\text{kg}$ 。 $^{56}\text{Mn}$  的半衰期只有  $2.6 \text{ h}$ , 辐照  $10 \text{ h}$  后,  $^{56}\text{Mn}$  就能达到饱和, 样品中  $^{56}\text{Mn}$  的比活度在几十~几百  $\text{Bq}/\text{kg}$  范围内。 $^{27}\text{Mg}$  的半衰期仅有  $9.5 \text{ min}$ , 辐照  $1 \text{ h}$  左右,  $^{27}\text{Mg}$  就能达到饱和,  $^{27}\text{Mg}$  比活度在几千  $\text{Bq}/\text{kg}$  范围内。

从图 8 可以看出, 样品在经过  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  的 5 倍半衰期辐照后, 它们的比活度并没有呈水平趋势, 而样品中  $^{54}\text{Mn}$  的比活度也没有与辐照时间呈严格的正相关关系, 造成这些现象的主要原因是每个卵石样品的化学成分有较大的差异。

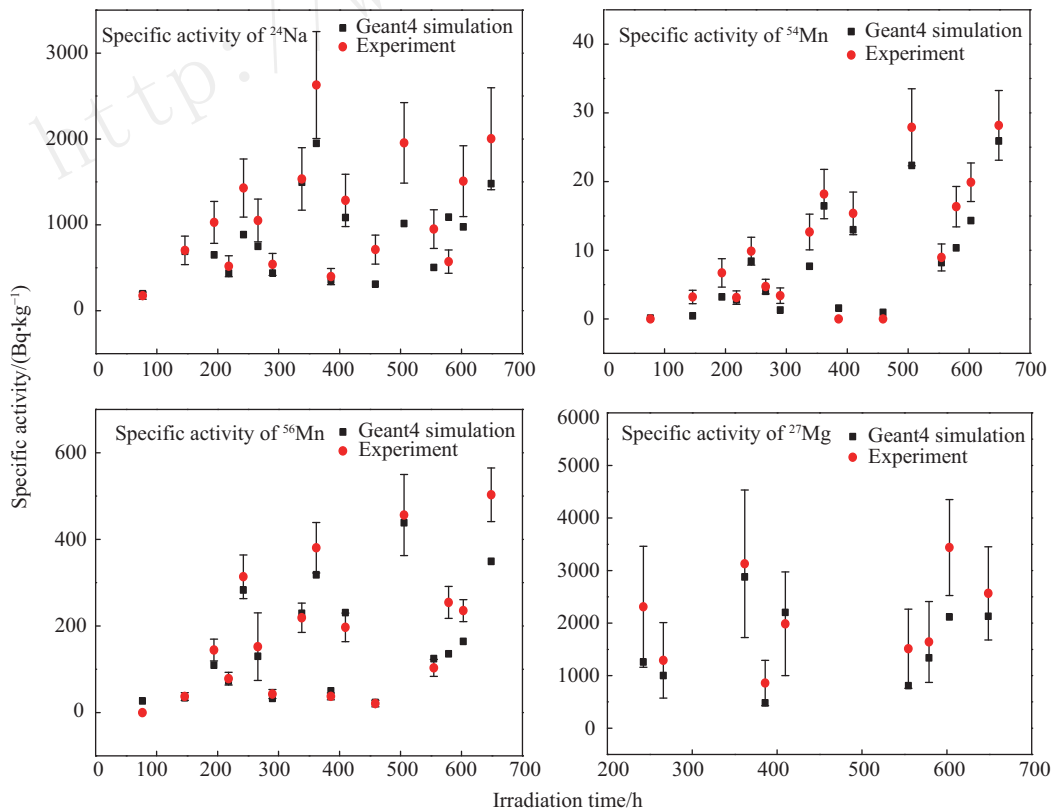


图 8 (在线彩图) 样品中  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  的实验与模拟比活度结果

比较实验和模拟结果,发现  $^{24}\text{Na}$  和  $^{27}\text{Mg}$  相对  $^{54}\text{Mn}$  和  $^{56}\text{Mn}$  吻合较差,可能的原因是  $^{24}\text{Na}$  和  $^{27}\text{Mg}$  主要由  $^{23}\text{Na}$ ,  $^{24}\text{Mg}$ ,  $^{27}\text{Al}$  和  $^{28}\text{Si}$  等原子核与中子核反应产生,而 ICP-OES 在测量样品元素成分的过程中,Na, Mg 和 Al 等元素分析线受到其它元素干扰相对较大,此外,在液体样制备过程中也容易引入 Na, Mg 和 Al 等元素<sup>[33, 34]</sup>。而另一方面,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{54}\text{Mn}$  主要由中子与  $^{55}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Fe}$  和  $^{54}\text{Fe}$  等原子核反应产生,而 Fe 和 Mn 元素测量结果的干扰性较小,引入的误差小。总的来说,比活度模拟结果和实验值吻合较好,利用 Geant4 模拟分析中子场下卵石的次级放射性具有较好的可靠性。

在 1 W/m 的束流损失设计条件下, Geant4 计算出的 CiADS 质子加速器 HEBT 隧道底部 0.5 m 混凝土屏蔽层外第一个 10 cm 卵石层因中子活化产生的重要放

射性核素的饱和比活度如表 4 所列。假设 CiADS 连续运行 5 年,质子加速器屏蔽层外卵石中绝大多数因中子活化产生的次级放射性核素达到饱和。停机后,卵石内对环境放射性贡献较大的核素有  $^3\text{H}$ ,  $^{15}\text{O}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{27}\text{Mg}$ ,  $^{37}\text{Ar}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{55}\text{Fe}$ , 其中  $^{15}\text{O}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{27}\text{Mg}$  和  $^{56}\text{Mn}$  半衰期很短,它们会在停机后几小时内衰变到一个极低的值,会长期对环境造成放射性影响的核素主要是  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{37}\text{Ar}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  和  $^{55}\text{Fe}$ 。如表 4 所列,卵石层中各放射性核素的饱和比活度远小于国家豁免标准 GB18871-2002 规定的豁免水平<sup>[35, 36]</sup>。此外,相对整个加速器周围环境中卵石活化程度而言,HEBT 屏蔽层外第一个 10 cm 卵石层的活化最严重<sup>[35]</sup>。综上所述, CiADS 运行多年后,加速器束流损失产生的中子活化周围环境中卵石产生的次级放射性核素造成的环境放射性影响几乎可以忽略。

表 4 CiADS 加速器 HEBT (500 MeV-1 W/m) 隧道底部 0.5 m 混凝土屏蔽层外第一个 10 cm 卵石层因中子活化产生的重要放射性核素的饱和和放射性比活度均值

核素	半衰期	饱和比活度/(Bq·kg <sup>-1</sup> )	豁免比活度 <sup>[33, 34]</sup> /(Bq·kg <sup>-1</sup> )	饱和比活度/豁免比活度	衰变类型
$^3\text{H}$	12.32 a	581.68	$1 \times 10^9$	$5.82 \times 10^{-7}$	$\beta^-$
$^7\text{Be}$	53.22 d	4.95	$1 \times 10^6$	$4.95 \times 10^{-6}$	EC
$^{15}\text{O}$	122.24 s	1 061.88	$1 \times 10^5$	$1.06 \times 10^{-2}$	EC
$^{22}\text{Na}$	2.602 7 a	841.58	$1 \times 10^4$	$8.42 \times 10^{-2}$	EC和 $\beta^+$
$^{24}\text{Na}$	14.997 h	175.74	$1 \times 10^4$	$1.76 \times 10^{-2}$	$\beta^-$
$^{27}\text{Mg}$	9.458 m	212.87	0	-	$\beta^-$
$^{52}\text{Mn}$	5.591 d	24.75	$1 \times 10^4$	$2.48 \times 10^{-3}$	$\beta^+$
$^{54}\text{Mn}$	312.05 d	108.91	$1 \times 10^4$	$1.08 \times 10^{-3}$	EC和 $\beta$
$^{56}\text{Mn}$	2.578 9 h	61.88	$1 \times 10^4$	$6.19 \times 10^{-3}$	$\beta^-$
$^{37}\text{Ar}$	35.011 d	438.12	$1 \times 10^9$	$4.38 \times 10^{-7}$	EC
$^{46}\text{Sc}$	83.78 d	2.48	$1 \times 10^4$	$2.48 \times 10^{-4}$	$\beta^-$
$^{47}\text{Sc}$	3.349 2 d	19.80	$1 \times 10^5$	$1.98 \times 10^{-4}$	$\beta^-$
$^{48}\text{Sc}$	46.67 h	2.48	$1 \times 10^4$	$2.48 \times 10^{-4}$	$\beta^-$
$^{55}\text{Fe}$	2.744 a	220.29	$1 \times 10^7$	$2.20 \times 10^{-5}$	EC
$^{51}\text{Cr}$	27.701 d	34.65	$1 \times 10^6$	$3.47 \times 10^{-5}$	EC
$^{45}\text{Ca}$	162.61 d	4.95	$1 \times 10^7$	$4.95 \times 10^{-7}$	$\beta^-$
$^{32}\text{P}$	14.263 d	34.65	$1 \times 10^6$	$3.47 \times 10^{-5}$	$\beta^-$
$^{48}\text{V}$	15.973 5 d	12.38	$1 \times 10^4$	$1.24 \times 10^{-3}$	$\beta^+$
$^{49}\text{V}$	330 d	17.33	0	-	EC

## 6 结论

本工作主要目的是通过卵石样品辐照实验来验证蒙特卡罗程序 Geant4 用于研究和分析环境介质在中子场照射下的感生放射性问题的可行性,进而利用经验证后的 Geant4 程序和模拟方法来分析和评估我国第一台加速器驱动嬗变研究装置 CiADS 的环境影响问题。通过对采集自 HIRFL 园区周边多个卵石样品中子辐照前后的  $\gamma$  能谱的测量与细致分析,得到卵石样品中由于中子活化产生的  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  和  $^{27}\text{Mg}$  的比活度信

息。这些实验结果与 Geant4 模拟得到的分析结果基本趋于一致,验证了 Geant4 程序用于 CiADS 环境影响评估的可行性。此外,实验测量得到的卵石样品的本底放射性结果也充分说明 HIRFL 经过数十年的运行后所导致的放射性环境影响是可以忽略的。利用 Geant4 模拟计算了 CiADS 质子加速器高能传输段在 1 W/m 的束流损失设计条件下,隧道底部不同深度的中子能谱,并计算了混凝土屏蔽层外第一个 10 cm 卵石层因中子活化产生的重要放射性核素的饱和比活度。由于这些核素的饱和比活度远小于国家标准所规定的豁免水平,因而它们

不会对环境造成过量的放射性影响。在今后的工作中,我们将基于此次工作的研究成果以及 CiADS 辐射场的特点,开展更高能量范围中子辐照实验,并对土壤、地下水等多种环境介质开展次级放射性的系统研究,以全面评估 CiADS 的环境影响问题。

**致谢** 感谢中国科学院近代物理研究所嬗变化学研究室和辐射安全与防护室工作人员的大力支持。

#### 参考文献:

- [1] LUO Peng, WANG Sicheng, HU Zhengguo, *et al.* *Physics*, 2016, **45**(09): 569. (in Chinese)  
(骆鹏, 王思成, 胡正国, 等. *物理*, 2016, **45**(09): 569.)
- [2] BILLINGE R, BLEWETT M H, HARDT W, *et al.* Report on the Design Study of a 300-GeV Proton Synchrotron[R]. European Organization for Nuclear Research, Geneva (Switzerland), 1967.
- [3] FASSÒ A. *Health Physics*, 2005, **88**(2): 175.
- [4] FORKELWIRTH D, ROESLER S, SILARI M, *et al.* *arXiv*, 2013.
- [5] GOLLON P J. *Soil Activation Calculations for The Anti-Proton Target Area*[R]. Fermi National Accelerator Laboratory (FNAL), Batavia, IL, 1978.
- [6] GABRIEL T A. *Nucl Instr and Meth*, 1971, **91**(1): 67.
- [7] TESCH K. Production of Radioactive Nuclides in Soil and Groundwater Near the Beam Dump of a Linear Collider[R]. DESY D3-86, 1997.
- [8] XU Bing, LI Yuxiong, LI Juexin, *et al.* Radialization Protection, 2004(05): 321. (in Chinese)  
(许炳, 李裕熊, 李珏忻, 等. *辐射防护*, 2004(05): 321.)
- [9] AWSCHALOM M. Calculation of the Radionuclide Production in the Surroundings of the NAL Neutrino Laboratory[R]. Fermi National Accelerator Laboratory (FNAL), Batavia, IL, 1971.
- [10] HOYER F E. Induced Radioactivity in the Earth Shielding on Top of High-energy Particle Accelerators[R]. CERN, 1968.
- [11] THOMAS R H. *Possible Contamination of Ground Water System by High Energy Proton Accelerators*[M]. Lawrence Radiation Laboratory, University of California, 1970.
- [12] STAPLETON G B, THOMAS R H. *Health physics*, 1972, **23**(5): 689.
- [13] TOOHIGH T E. TM-284, January, 1971.
- [14] BORAK T B, AWSCHALOM M, FAIRMAN W, *et al.* *Health Physics*, 1972, **23**(5): 679.
- [15] ROKNI S, LIU J C, ROESLER S. Initial Estimates of the Activation Concentration of the Soil and Groundwater Around the NLC Beam Delivery System tunnel[C]//Proceedings of the Fifth Specialists Meeting on Shielding Aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities (SATIF-5). 2000: 115.
- [16] ROKNI S H, FASSO A, GWISE T, *et al.* *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2002, **484**(1): 680.
- [17] WANG Qingbin, WU Qingbiao, MA Zhongjian, *et al.* *Chinese physics C*, 2010, **34**(7): 1029.
- [18] WU Qingbiao, WANG Qingbin, WU Jingmin, *et al.* *Chinese physics C*, 2011, **35**(6): 596.
- [19] LEI Fuan, XU Junkui, LIANG Shibiao, *et al.* *Nuclear Safety*, 2013, **12**(03): 74. (in Chinese)  
(雷富安, 徐俊奎, 梁士彪, 等. *核安全*, 2013, **12**(03): 74.)
- [20] [http://geant4.cern.ch/\[2017-09-15\]](http://geant4.cern.ch/[2017-09-15]).
- [21] MAIRE M, WRIGHT D H, URBAN L, *et al.* GEANT4 Physics Reference Manual: Version GEANT4 8.3.USA: SLAC, 2004.
- [22] LI Dehong, SU Tongling. *College Physics*, 2005(06): 56. (in Chinese)  
(李德红, 苏桐龄. *大学物理*, 2005(06): 56.)
- [23] DING Dazhao, YE Chuntang, ZHAO Kexiang, *et al.* *Neutron Physics. Principles and Applications*[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2001: 178. (in Chinese)  
(丁大钊, 叶春堂, 赵克祥, 等. *中子物理学. 原理方法与应用*[M]. 北京: 原子能出版社, 2001: 178.)
- [24] KNOLL G F. *Radiation Detection and Measurements*, John Wiley & Sons, New York, 1989.
- [25] VINCKE H, THEIS C, ROESLER S. *Radiation protection dosimetry*, 2011, **146**(4): 434.
- [26] MCCONN R J, GESH C J, PAGH R T, *et al.* *Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling*[R]. Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Richland, WA (US), 2011.
- [27] [www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm](http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm) [2017-04-20].
- [28] WANG Nanping. *Building Materials Geology*, 1992(06): 30. (in Chinese)  
(王南萍. *建材地质*, 1992(06): 30.)
- [29] ZHANG Jie, CHENG Wuyi, XIE Ruinan, *et al.* *Chin J Radiol Health*, 2015, **24**(02): 127. (in Chinese)  
(张洁, 程五一, 谢润楠, 等. *中国辐射卫生*, 2015, **24**(02): 127.)
- [30] HUANG Lihua, XU Liya, LING Meirong, *et al.* *Occupation and Health*, 2004(01): 99. (in Chinese)  
(黄丽华, 徐利亚, 林美榕, 等. *职业与健康*, 2004 (01): 99.)
- [31] ISO 8529, Reference Neutron Radiations-Part 1: Characteristics and methods of production (2001)[S].
- [32] LU Xiting. *Nuclear Physics*[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2001: 32. (in Chinese)  
(卢希庭, *原子核物理*[M]. 北京: 原子能出版社, 2001: 32.)
- [33] LIU Hongwei, QIU Zonghui, XIE Hualin, *et al.* *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2013, **33**(01): 224. (in Chinese)  
(刘宏伟, 秦宗会, 谢华林, 等. *光谱学与光谱分析*, 2013, **33**(01): 224.)
- [34] WANG Xiaoping, LI Bai, *et al.* *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2010, **30**(08): 2260. (in Chinese)  
(王小平, 李柏. *光谱学与光谱分析*, 2010, **30**(08): 2260.)
- [35] WU Qingbiao. *Study on Induced Radioactivity of the CSNS*[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2014. (in Chinese)



(吴青彪. 中国散裂中子源的感生放射性研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2014.)

- [36] National standard of People's Republic of China. GB 18871-2002, Basic Standards for Protection against Ion-izing Radiation and for the Safety of Radiation Sources[S]. General

Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, 2002. (in Chinese) (中华人民共和国国家标准. GB 18871-2002 《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》[S]. 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 2002.)

## Analysis of Induced Radioactivity in Pebbles Caused by High Energy Neutrons

YAN Yonggang<sup>1,2</sup>, LUO Peng<sup>1,†</sup>, HUANG Yuxuan<sup>1</sup>, ZHANG Yanbin<sup>1</sup>, JIN Jing<sup>1</sup>, HUANG Siyang<sup>1,2</sup>, XU Junkui<sup>1</sup>, WANG Zhiguang<sup>1</sup>

(1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** The China initiative Accelerator Driven System (CiADS) is the first integrated ADS facility designed to study the safety disposal of nuclear waste. As a nuclear facility, it will cause radiological impact on the environment. Therefore, the assessment of radiological impact on the environment around this facility will not only meaningful to the public health, but also offers significant guides to the shielding design of CiADS. Pebble samplings were collected around the campus of the Heavy Ion Research Facility in Lanzhou (HIRFL) and irradiated by a  $^{241}\text{Am}$ -Be neutron source. Based on the  $\gamma$ -spectrum measured by a HPGe detector before and after the neutron irradiation, the specific activities of induced radionuclides  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  and  $^{27}\text{Mg}$  in these samples were analyzed and compared with the Monte-Carlo simulation values obtained with the Geant4 toolkit. The comparison between the experimental and simulated results indicates that Geant4 toolkit is feasible for radiation impact assessment of nuclear facilities, such as CiADS. Then the neutron spectrum outside the concrete shielding of HEBT tunnel of the CiADS have been simulated by the Geant4 toolkit, and the saturation activities of the induced nuclides in the first 10 cm pebble layer have been predicted. The results show that the saturation activities of induced radionuclides in pebbles outside the CiADS shielding are much lower than their exemption values and their radiation impacts to the environment could be ignored.

**Key words:** neutron; CiADS; pebble; radiation hazard

**Received date:** 24 Sep. 2017; **Revised date:** 5 Dec. 2017

**Foundation item:** Major Research Plan of National Natural Science Foundation of China(91426301)

† **Corresponding author:** LUO Peng, E-mail: [luopeng@impcas.ac.cn](mailto:luopeng@impcas.ac.cn).