尾矿砂放射性物质豁免标准制定中的理论研究

杨师俨^①, 周程^②, 朱晓翔^②, 苑超^①, 戴耀东^{①*}

① 南京航空航天大学材料科学与技术学院, 南京 210016;

② 江苏省核与辐射安全监督管理局, 南京 210019

* E-mail: yd_dai@nuaa.edu.cn

收稿日期: 2015-04-26; 接受日期: 2015-07-22

江苏省环保科研基金(批准号: 201429)、江苏省自然科学基金(批准号: BK2012799)和教育部博士学科点专项科研基金(批准号: 2012321811008)资助项目

摘要 从理论上建立了稀土尾矿砂天然放射性物质(NORM)的活度浓度与等效组织吸收剂量率间的关系式, 由此计算出单位活度浓度样品到等效组织中的吸收剂量率转换系数. 研究了样品所发射 γ 光子注量率的空间角分布, 结合 MCNP 对样品有效厚度等理论计算结果, 给出了尾矿砂放射性现场测量模型的几何参数. 参考国际原子能机构(IAEA)报告, NORM 样品对公众造成的 γ 外照射剂量上限为人均 0.3 mSv y^{-1} , 以此值作为控制目标, 计算了在此标准下几种不同活度浓度样品造成的空气吸收剂量率, 提出了尾矿砂排放的豁免水平: 扣除现场本底后, 测量得到的空气吸收剂量率低于 55 nGy h^{-1} . 依据理论推导给出的相关参数, 进行了现场验证实验, 同时对所测样品取样进行实验室分析, 最终结果表明两者所测得数据基本符合, 相对误差为 15.8%.

关键词

尾矿砂

γ 吸收剂量率

MCNP

1 引言

尾矿是在开采、分选矿石后产生的, 暂时不能被利用的固体或粉状废料, 属于天然放射性物质(NORM). 尾矿会对其周围的土壤、水源造成放射性污染, 增加周围公众的外照射剂量, 不能随意排放, 在排放前需对样品进行放射性评估^[1]. 目前, 关于 NORM 的放射性评估有理论计算与实验测量两种方法. 理论计算主要是采用蒙特卡罗方法模拟 NORM 样品发射的 γ 能谱^[2,3], 计算射线的剂量、能量沉积等信息^[4,5]. 实验测量则是现场取样, 经实验室处理利用谱仪分析样品的活度浓度等信息^[6-8].

尾矿大都具有放射性, 国际原子能机构(IAEA)

建议对于附近公众造成年有效剂量超过 0.3 mSv 的 NORM 样品应该纳入管理范围, 并指出 NORM 样品对公众造成的额外 γ 外照射剂量上限为人均 0.3 mSv y^{-1} ^[9], 国际辐射防护委员会报告^[10](ICRP 77)指出: 正常情况下取高于本底 0.3 mSv y^{-1} 的有效剂量作为公众所接受的最大剂量限值合适的. 我国每年尾矿产量近亿吨, 缺乏相应的管理、排放标准. 本文研究的主要目的是参考 IAEA 给出的 NORM 剂量限值, 研究尾矿可排放的豁免标准, 控制我国尾矿的排放. 为此, 从一个理想的无限大 γ 源入手, 通过理论推导, 结合基于蒙特卡罗方法的 MCNP 模拟^[11], 得到单位活度浓度样品与等效组织吸收剂量率间的转换系数, 在此基础上对探测高度, 含水量等参数进

引用格式: 杨师俨, 周程, 朱晓翔, 等. 尾矿砂放射性物质豁免标准制定中的理论研究. 中国科学: 技术科学, 2015, 45: 1157–1166
Yang S Y, Zhou C, Zhu X X, et al. Theoretical study of tailings radioactive substances exemption standards-setting (in Chinese). Sci Sin Tech, 2015, 45: 1157–1166, doi: 10.1360/N092014-00419

光子在样品中能穿过的厚度是一定的, 当样品的尺寸大于该厚度时, 样品即可当成一个无限大的源, 对(4)式进行三重积分计算得

$$\dot{\phi} = \frac{S_V}{2\mu_a} E_2(\mu_a \cdot h), \quad (5)$$

其中 $E_2(\mu_a \cdot h) = \mu_a \cdot h \int_{\mu_a h}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t^2} dt$, 这是一个单调递减的函数, 当且仅当 $\mu_a \cdot h = 0$ 时取得最大值 1, 即 $E_{\max}(0) = 1$, 而 $t = \frac{\mu_a h}{\cos \theta}$.

实际情况下, 样品所发射的 γ 光子能量并不是单一的, 而是以一定的概率呈离散分布, 能量离散情况下探测点处的 γ 注量率可表示为

$$\dot{\phi}(E_i) = \sum_i \frac{A \cdot f_i}{2 \left(\frac{\mu(E_i)}{\rho} \right)} \cdot E_2(\mu_a \cdot h), \quad (6)$$

A 表示核素的活度浓度, 单位为 Bq/kg, f_i 表示放射性核素衰变过程中对能量为 E 的第 i 种射线的发射概率,

$A \cdot f_i = \frac{S_V}{\rho}$, ρ 表示样品密度, g/cm³.

当探测点在样品表面或距离样品表面较近时(6)式可以近似表示为

$$\dot{\phi}(E_i) = \sum_i \frac{A \cdot f_i}{2 \left(\frac{\mu(E_i)}{\rho} \right)}. \quad (7)$$

对存在于稀土尾矿渣样品中的天然放射性核素 ⁴⁰K, ²³⁸U 和 ²³²Th 系来说, 样品发射的能量低于 3 MeV 的光子, 有多达 804 个光电峰(²³⁸U 446 个、²³²Th 357 个、⁴⁰K 1 个)^[13], 所以计算的过程是相当复杂的. 实际计算中, 我们对核素进行了筛选, 只对感兴趣的核素进行模拟计算(表 2 所示), 主要依据核素发射的 γ 光子的能量和强度进行筛选: (1) 能量低于 0.2 MeV 的 γ 光子穿透力有限及对外照射贡献较小, 所以忽略该能量段内的光子; (2) 能量介于 0.2~1 MeV 的 γ 光子主要考虑发射强度, 选取发射强度大于 3% 的 γ 光子进行模拟计算; (3) 选取所有能量大于 1 MeV 且发射强度大于 1% 的 γ 光子. 各个核素所对应的分支比参考 IAEA^[14]和贝克实验室数值^[15]. 不同能量 γ 射线在等效组织和空气中的质量吸收系数通过文献[16]中已知数据插值求出, 依据(1)和(2)式可得出相同探测点处等效组织与空气中吸收剂量率间的

关系:

$$\dot{D}_a = 1.609 \dot{D}. \quad (8)$$

γ 射线在样品中的质量衰减系数由 MCNP 程序模拟得出, MCNP 是蒙特卡罗计算方法的一种, 通过对大量粒子行踪进行模拟统计, 记录粒子运动过程中的信息, 给出相关物理参数, 从而计算中子, 光子或中子-光子耦合输运问题, 广泛应用于反应堆模拟^[17], 材料的屏蔽性能计算^[18], 质量衰减系数计算^[19]等.

模拟时, 输入样品尺寸为 10 cm×10 cm, 对入射能量低于 200 keV 的 γ 光子, 厚度为 1 cm, 能量介于 200 keV~1 MeV 的光子, 厚度为 1.5 cm, 能量高于 1 MeV 的光子厚度设为 2 cm, 材料的组分及密度如表 1 所示. γ 源距离样品表面 1 cm 处, 通过添加 VEC 和 DIR 卡使粒子垂直入射到样品表面, 通过添加 F2 卡记录样品入射面和出射面的粒子注量, 通过(9)式得出样品的质量衰减系数:

$$I = I_0 \exp(-\mu_m \rho x), \quad (9)$$

其中 I 为 F2 记录的出射面粒子注量, I_0 表示 F2 记录的入射面粒子注量, 单位为: 粒子数 cm⁻², x 为样品厚度, ρ 为样品密度, μ_m 表示样品的质量衰减系数, 单位为 cm² g⁻¹.

通过计算, 根据(1)和(7)式得到了单位活度浓度样品发射的 γ 射线到等效组织中的剂量率转换系数, 如表 2 最后一列所示.

等效组织中的吸收剂量率与活度浓度之间的关系可表示为

$$\dot{D} = 0.209 A_U + 0.296 A_{Th} + 0.026 A_K, \quad (10)$$

其中 A_K , A_U , A_{Th} 分别表示 ⁴⁰K, 铀系和钍系中任意核素的活度浓度值, 单位为 Bq kg⁻¹.

等效组织中的年有效剂量限值(mSv)与吸收剂量率之间可以表示为

$$E = 0.876 \dot{D} \times 10^{-2} \text{ mSv y}^{-1}. \quad (11)$$

2.3 吸收剂量率与活度浓度转换系数的修正

通过注量率与剂量率之间函数关系式, 得到两者间的转换系数, 从而建立了样品活度浓度与吸收剂量率的关系式(10), 但该式是基于以下理想假设得出的: (1) 探测点距离样品较近; (2) 样品含水量较少可忽略; (3) 样品无限大或半无限大, 这时样品发射的所有射线都能对吸收剂量率做出贡献. 但在实际测量中, 为防止沾污, 探测器不可能紧贴样品表面, 且样品含水量也不可忽略, 水分会影响样品对射线

表 2 核素的选取以及其在样品中的质量衰减系数

母体	子体核素	E_i (keV)	f_i (%)	$\frac{\mu(E_i)}{\rho}$ (cm ² g ⁻¹)	剂量率转换因子 (nGy h ⁻¹ /Bq kg ⁻¹)	
					单个核素转换因子	总转换因子
²³⁸ U	²¹⁴ Pb	241.99	7.25	0.1958	0.0008	0.2091
	²¹⁴ Pb	295.22	18.42	0.1494	0.0033	
	²¹⁴ Pb	351.93	35.60	0.1231	0.0092	
	²¹⁴ Bi	609.32	45.49	0.0800	0.0318	
	²¹⁴ Bi	768.36	4.89	0.0694	0.0049	
	²¹⁴ Bi	934.06	3.11	0.0621	0.0041	
	²¹⁴ Bi	1120.29	14.92	0.0562	0.0252	
	²¹⁴ Bi	1155.2	1.63	0.0552	0.0029	
	²¹⁴ Bi	1238.12	5.83	0.0532	0.0116	
	²¹⁴ Bi	1280.98	1.43	0.0523	0.0029	
	²¹⁴ Bi	1377.67	3.99	0.0504	0.0089	
	²¹⁴ Bi	1401.52	1.33	0.0499	0.0030	
	²¹⁴ Bi	1407.99	2.39	0.0498	0.0055	
	²¹⁴ Bi	1509.21	2.13	0.0482	0.0053	
	²¹⁴ Bi	1661.27	1.05	0.0460	0.0030	
	²¹⁴ Bi	1729.60	2.88	0.0451	0.0085	
	²¹⁴ Bi	1764.50	15.30	0.0447	0.0461	
	²¹⁴ Bi	1847.43	2.03	0.0438	0.0065	
²³² Th	²¹⁴ Bi	2204.06	4.92	0.0408	0.0191	0.2963
	²¹⁴ Bi	2447.71	1.55	0.0392	0.0067	
	²²⁸ Ac	209.25	3.89	0.2485	0.0003	
	²¹² Pb	238.63	43.6	0.2001	0.0045	
	²²⁴ Ra	240.99	4.1	0.1971	0.0004	
	²²⁸ Ac	270.25	3.46	0.1671	0.0005	
	²⁰⁸ Tl	277.37	3.77	0.1615	0.0006	
	²¹² Pb	300.09	3.3	0.1464	0.0006	
	²²⁸ Ac	338.42	11.26	0.1287	0.0027	
	²²⁸ Ac	463.10	4.5	0.0967	0.0020	
	²⁰⁸ Tl	510.77	8.42	0.0900	0.0044	
	²⁰⁸ Tl	583.19	30.58	0.0822	0.0199	
	²¹² Bi	727.33	6.64	0.0717	0.0061	
	²²⁸ Ac	794.95	4.25	0.0681	0.0044	
	²⁰⁸ Tl	860.56	4.5	0.0651	0.0053	
	²²⁸ Ac	911.16	26.60	0.0630	0.0338	
	²²⁸ Ac	964.64	5.05	0.0611	0.0069	
	²²⁸ Ac	968.97	16.32	0.0609	0.0226	
⁴⁰ K	²²⁸ Ac	1588.20	3.22	0.0470	0.0085	0.0255
	²¹² Bi	1620.50	1.47	0.0465	0.0040	
	²²⁸ Ac	1630.63	1.51	0.0464	0.0041	
	²⁰⁸ Tl	2614.60	35.80	0.0383	0.1646	

的质量衰减系数, 从而影响 γ 光子的注量率((6)式). 此外我们进行现场实验时, 由于客观条件的限制, 现场模型的尺寸不可能做到无限或者半无限大, 这就与理想模型尺寸不符. 基于以上原因, 要对转换系数进行修正. 值得注意的是质量衰减系数与密度无关仅与废渣的组分有关, 但废渣组分的不同对光子注

量率改变并不是最主要的影响因素^[20,21].

2.3.1 探测高度的修正

如图 2 所示, 在非理想情况下, $E_2(\mu_a \cdot h) \neq 1$. 在相同的探测高度下, 能量越低的 γ 光子需要修正的值越大, 但低能 γ 光子穿透能力有限: 对于能量为 500

keV 的 γ 光子, 其在所选取的样品中的十分之一衰减厚度仅为 17 cm, 所以对于能量较低的 γ 射线来说修正是可以忽略的, 对于高能的 γ 光子来说, 在 100 cm 的探测范围内 E_2 的真实值与 1 相差不大, 可以认为 $E_2(\mu_a \cdot h)=1$. 对于相同的能量的 γ 光子, 随着探测高度的增加, 需要修正的系数也逐渐越大, 但是探测高度在 0~100 cm 的范围内变动时, 实际值与理想值相差并不大, 这种变化也可忽略, 取 $E_2(\mu_a \cdot h)=1$.

2.3.2 含水量的修正

图 3 表示放射性平衡时进行含水量修正后的单位活度浓度样品与等效组织吸收剂量率之间的转换系数. 考虑含水量修正时, 样品的组分及密度依据表 1 数值和含水量进行重新分配计算.

从图 3 可以看出, 随着样品含水量的增加, 单位活度浓度样品到等效组织吸收剂量率的转换系数逐渐减小. 水对 γ 射线具有较好的屏蔽效果, 水分的存

图 2 探测高度的修正

(a) 不同能量相同高度修正; (b) 相同能量不同高度修正

图 3 含水量修正图

(a) 钍系含水量修正系数; (b) 铀系含水量修正系数; (c) K-40 含水量修正系数

在,增加了样品的自屏蔽,使吸收剂量率减少.在实际计算时,可以对含水量先进行评估,然后根据图 3 选择更接近于真实情况的转换系数.

2.3.3 注量的角分布

现场探测器探测到的 γ 射线可以分为两类,一类是样品发射未经散射直接进入探测器,另一类是经过多次散射之后最终进入探测器被探测到.在进行现场探测时,测量仪器的高度固定以后,其所能探测到的样品的面积就确定了,换句话说,仪器探测的空间角是有限的.制作现场模型时,在保证仪器探测效率精确度不变的情况下,我们希望模型的尺寸尽可能的小,这就要考虑探测高度,探测空间角以及现场模型之间的关系.表 3 列出了探测高度为 10 cm 时,未散射的 γ 光子注量率随探测角分布的百分比变化情况.

从表 3 中可以看出,探测器探测到的未散射的 γ 光子主要与探测角有关,主要分布在 $50^{\circ}\sim 80^{\circ}$ 左右的探测角,与入射光子的能量无关.

通过改变探测高度,得到了不同探测高度下,未散射的 γ 光子数与空间角之间的关系,如图 4 所示.从图中可以看出对于 5 cm 的探测高度,样品半径为 0.6 m 左右能探测到的 γ 光子数相当于无限大样品在相同高度探测到所发射 γ 光子数的 92%,而对于 10 cm 的探测高度,相同比率下需要的样品半径大约为 1.1 m,对于 1 m 的探测距离样品的半径则需要 12 m 左右.

3 现场模型的建立

当样品的尺寸大于其所发射的任意能量的 γ 射线在其中所能穿过的有效厚度时,样品就可以看作

是一个无限大的源,为符合理论推导,并尽可能地接近真实情况,现场模型的尺寸应大于有效厚度.此外,考虑探测高度与半径之间的关系,既保证结果的准确性又可使模型尺寸尽可能小.

利用 MCNP 模拟计算了密度为 1.5 g/cm^3 的样品发射的 γ 光子数目减少到 5% 的厚度,并定义该厚度为样品的有效厚度.如图 5 所示,样品对铀系和钍系的有效厚度约为 17 cm, K-40 约为 28 cm.

据理论推导,参考有效厚度等相关参数,按照保守原则,给出了现场模型的基本参数如表 4 所示.

图 4 注量与探测角分布关系

图 5 样品厚度与 γ 光子透过率强度关系曲线

表 3 探测高度 $h=10\text{ cm}$ 未散射光子数的百分比

$\theta (^{\circ})$	$r=h\tan\theta\text{ (cm)}$	E				
		200 keV	500 keV	800 keV	1460 keV	2500 keV
90	∞	100	100	100	100	100
85	114.3	91.9	91.8	91.7	91.6	91.5
81	63.1	85.1	85	84.9	84.8	84.7
75	37.3	74.7	74.6	74.5	74.4	74.4
70	27.5	66.4	66.3	66.2	66.1	66.1
60	17.3	50.4	50.3	50.3	50.2	50.2
50	11.9	36	36	35.9	35.9	35.8
45	10	29.6	29.5	29.5	29.4	29.4
30	5.8	13.5	13.5	13.5	13.5	13.4
20	3.6	6.1	6.1	6.1	6.1	6.1

表 4 现场模型参数

名称	参数	备注
有效厚度	28 cm	穿出样品的光子数占发射总数 5%
形状	圆柱形	表面尽可能平整, 均匀
密度	1.5 g/cm ³	依据现场模型质量与体积之间的关系控制
高度	75~100 cm	大于有效厚度 2.5 倍
半径	100~120 cm	主要考虑探测高度的影响
现场测量高度	5 cm≤h≤10 cm	高度指与圆柱上表面的距离, 位置为圆柱轴心

4 豁免水平的提出

参考 IAEA 对 NORM 样品推荐的豁免标准: 样品对附近公众所造成的 γ 外照射剂量上限为人均 0.3 mSv y⁻¹, 以此值作为尾矿砂排放的豁免标准. 基于以上理论推导, 在理想情况下做出以下几种假设, 求得相应的空气吸收剂量率. 其中 A_i 表示任意核素的活度浓度, A 表示总的活度浓度, $\dot{D}_a$ 表示空气吸收剂量率.

假设样品处于放射性平衡, 只含单一放射系, 根据(10)式可计算出各个核素的活度浓度, 由(2)和(7)式求出样品在空气中的吸收剂量率, 如表 5 所示.

同理, 假设样品达到长期平衡且只有钍系和铀系, 根据 Ivanovich^[22]的研究: 自然条件下 ²³²Th/²³⁸U 的活度浓度比大约为 3.5, 计算得出相应结果如表 6 所示.

依据 UNSCEAR 2008 统计数据, 我国天然土壤中 ⁴⁰K, 铀系和钍系活度浓度比近似满足这样的关系式: $A_U:A_{Th}A_K=1:1:10$, 同理计算得到结果如表 7 所示.

表 5 只含单一放射系时, 计算得到的活度浓度限值

Series	A_i (Bq g ⁻¹)	A (Bq g ⁻¹)	$\dot{D}_a$ (nGy h ⁻¹)
U-series	0.1671	2.6732	55.292
Th-series	0.1173	1.1730	55.843
K-40	1.3700	1.3700	55.740

表 6 只含钍系和铀系时, 计算得到的活度浓度限值

Series	A_i (Bq g ⁻¹)	A (Bq g ⁻¹)	$\dot{D}_a$ (nGy h ⁻¹)
U-series	0.0279	0.4464	9.232
Th-series	0.0977	0.9770	46.512

表 7 铀系钍系和 ⁴⁰K 都存在时, 计算得到的活度浓度限值

Series	A_i (Bq g ⁻¹)	A (Bq g ⁻¹)	$\dot{D}_a$ (nGy h ⁻¹)
U-series	0.0459	0.7336	15.188
Th-series	0.0459	0.4590	21.852
K-40	0.4590	0.4590	18.675

从以上表中可以看出, 在年有效剂量为 0.3 mSv 豁免标准下, 随着样品中铀, 钍及 ⁴⁰K 的活度浓度比例的改变, 求出的空气吸收剂量率相差不大. 在此标准下, 对尾矿砂进行现场取样测量, 对于扣除现场本底之后, 测量得到空气吸收剂量率小于 55 nGy h⁻¹ 的样品均可豁免排放.

5 现场实验验证

为验证理论推导的正确性, 选择江苏某稀土厂进行现场验证实验. 从废渣堆放库均匀取样, 将样品碾碎混合均匀, 选择厂区外距离渣库较远的某点, 制作现场模型. 以编制袋为模具, 根据模型的几何参数, 通过所加样品质量来控制现场模型的密度.

实际现场模型结构为圆柱形, 高 88 cm, 半径 100 cm. 用热电公司生产的型号为 FH40G 的 γ 剂量率仪进行空气吸收剂量率探测.

为保证样品的均匀性, 先选择三个位置探测样品的空气吸收剂量率, 分别为: 高度 44 cm, 半径 100 cm 处, 高度 88 cm, 半径 100 和 50 cm 处样品表面的 4 个对称方向. 如图 6 所示, 每个点记录 10 组数据, 计数时间间隔 5 s, 取平均值. 若每个位置所得计数两两之差小于各点计数的 10%, 则认为样品混合均匀, 否则重新混合装袋. 测量结果如表 8 所示.

从现场模型的表面, 中间和底部各取约 1 kg 样品带回实验室, 按照标准制样法制样, 取 100 g 制得的样品装入标准样品盒中, 用石蜡封存 20 天后, 利用谱仪测量样品中特征放射性核素的活度. 实验采用美国 Canberra 公司的 HPGe γ 能谱仪, 探测器类型为宽能型, 相对效率 49%, 能量分辨率(⁶⁰Co 发出的 1.33 MeV) FWHM=1.48 keV, 峰康比(⁶⁰Co)84:1, 全谱(20 keV~2 MeV)本底为 0.78 cps, 峰漂(连续 100 小时)低于 0.24 道. 测量时间超过 4 小时. 谱图分析采用 Genie 2000 分析软件, 所得结果如表 9 所示. 将处理

图 6 现场探测位置示意图

表 8 现场吸收剂量率测量结果

位置标识	最小空气吸收剂量率(nGy h^{-1})	最大空气吸收剂量率(nGy h^{-1})	平均吸收剂量率(nGy h^{-1})	备注
—	57	65	61	本底
A0	158	172	165	$h=44 \text{ cm}$, $R=100 \text{ cm}$, 紧贴样品侧面探测
A1	156	176	166	
B0	153	167	161	
B1	163	167	164	
D0	134	143	139	$h=88 \text{ cm}$, $R=100 \text{ cm}$, 探测位置距离样品 上表面 5 cm
E0	130	145	140	
F0	129	140	134	
G0	127	137	133	
D1	186	209	197	$H=88 \text{ cm}$, $R=50 \text{ cm}$, 探测位置距离样品 上表面 5 cm
E1	190	211	201	
F1	178	198	191	
G1	179	195	189	
O	209	227	216	几何中心, 距上表面 5 cm

表 9 核素活度浓度能谱分析结果

	核素	活度浓度 (Bq g ⁻¹)	空气吸收剂量率 (nGy h ⁻¹)	
铀系	²¹⁴ Pb	0.09	29.8	184
	²¹⁴ Bi	0.09		
	²¹² Pb	0.12		
钍系	²¹² Bi	0.13	149.6	
	²⁰⁸ Tl	0.04		
	²²⁸ Ac	1.12		
K-40		0.10	4.0	

后的样品溶解, 利用 ICP-AES 分析仪对样品进行放射性物质组分分析, 得到样品中总铀, 总钍, 总铅的浓度分别为 0.416, 0.617 和 1.588 ppm.

根据(8)和(10)式可求得样品造成的空气吸收剂量率见表 9 后两列(不包括本底贡献), 最后一列表示空气总吸收剂量率. 其中钍系核素活度浓度采用平均活度浓度.

由表 8 和 9 数据知, 该稀土废渣超过我们提出的限值, 不能豁免排放, 并求得两组数据的相对误差为

15.8%, 综合考虑误差等因素, 可认为两组数据基本符合, 理论推导基本正确并具有一定的实际应用价值. 造成误差的原因主要有以下几点.

(1) 理论推导假设样品呈光滑均匀分布, 通过分析现场模型测得的空气吸收剂量率可看出现场模型并不能做到完全混合均匀(表 8), 此外模型尺寸较大, 制作时不能完全保证模型几何形状为标准圆柱形, 表面也不可能做到绝对光滑.

(2) MCNP 在模拟的过程中, 对样品发射的 γ 射线是均匀抽样的, 现场样品并不能保证完全碾碎成颗粒状, 块状样品的存在破坏了其所发射的 γ 光子各向同性的均匀分布.

(3) 理论推导时, 假设 3 个系处于放射性平衡状态, 但实际测得 γ 能谱数据显示, 样品并非处于放射性平衡状态, 这是由于稀土在冶炼过程中, 某些核素被提走, 导致放射性平衡破坏, 某些核素的半衰期较长, 需要很长时间才能建立起新的放射性平衡.

(4) 现场模型的实际密度约为 1.35 g/cm^3 和理想密度 1.5 g/cm^3 有一定的差距, 此外废渣有一定的含水量, 这都会影响样品的有效厚度和穿出样品的 γ 光子数。

6 结论

通过理论计算, 建立了稀土尾矿砂样品活度浓度与吸收剂量率间的转换关系, 并由此计算了理想情况下两者间的转换系数, 接着对转化系数进行了修正, 发现探测高度对转化系数的影响可以忽略, 考虑含水量的影响, 计算了不同含水量下的转化系数。

通过 MCNP 模拟计算了样品的有效厚度, 研究了注量率随空间角分布, 给出了现场模型的基本参数。参考 IAEA 报告中的 NORM 样品排放豁免标准值, 以此值作为尾矿排放的豁免值, 通过计算提出尾矿砂排放的豁免标准参考值为: 扣除现场本底后, 测量得到的空气吸收剂量率上限为 55 nGy h^{-1} 。为对理论进行验证, 依据现场模型参数, 进行了现场验证实验, 同时对所测样品进行实验室分析, 最终结果表明两者所测得数据基本符合, 相对误差为 15.8%, 综合考虑误差等因素, 认为本文理论推导正确, 并具有一定的实际应用价值, 提出的现场模型及豁免限值对尾矿砂的豁免排放标准制定具有一定的参考意义。

参考文献

- Javed S, Tufail M, Asghar M. Hazard of NORM from phosphorite of Pakistan. *J Hazard Mater*, 2009, 176: 426–433
- Vlastou R, Ntziou I Th, Kokkoris M, et al. Monte Carlo simulation of γ -ray spectra from natural radionuclides recorded by a NaI detector in the marine environment. *Appl Radiat Isot*, 2005, 64: 116–123
- Krstic D, Nikezic D. Calculation of the effective dose from natural radioactivity in soil using MCNP code. *Appl Radiat Isot*, 2010, 68: 946–947
- Askari B, Manai K, Trabelsi A, et al. Optimal geometry to calculation dose rate conversion coefficient for external exposure to photons. *Radiat Prot Dosim*, 2007, 128: 279–288
- Wallace J D. Monte Carlo modelling of larger scale NORM sources using MCNP. *J Environ Radioact*, 2013 126: 55–60
- Mabit L, Dornhofer P, Martin P, et al. Depth distribution of selected geogenic radionuclides (^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th) and anthropogenic ^{137}Cs in an undisturbed forest soil in East Slovenia. *Indian J Pure Appl Phys*, 2012, 50: 45–48
- Jabbar A, Ahmad S S, Dilband M. Measurement of soil radioactivity levels and radiation hazard assessment in mid Rechna interfluvial region. *J Radioanal Nucl Chem*, 2009, 283: 371–378
- Alaamer A S. Characterization of ^{137}Cs in Riyadh Saudi Arabia soil samples. *World J Nucl Sci Technol*, 2012, 2: 161–164
- IAEA. Regulatory and management approaches for the control of environmental residues containing naturally occurring radioactive material (NORM). IAEA-TECDOC-1484, 2006. 1–13
- ICRP Publication 77. Age Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5—Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. *Annals of the ICRP*, Vol. 26, No.1, 1996
- X-5 Monte Carlo Team. MCNP—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 (Vo. I Vol. II). 2003
- Lamarsh J R, Baratta A J. Introduction to Nuclear Engineering. New York: Prentice Hall, 2001. 511–515
- 高宝龙. 利用蒙特卡罗方法进行伽马能谱全谱重叠峰模拟分解初步研究. 硕士学位论文. 北京: 中国地质大学, 2006
- International Atomic Energy Agency. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/reCenter.jsp?n=143&z=91>
- The Berkeley Laboratory Isotopes Project's. <http://ie.lbl.gov/education/isotopes.htm>
- Argonne National Laboratory. Reactor Physics Constants (Washington). 1963. 654
- Song Y S, Ye Y L, Ge Y C, et al. Monte Carlo simulation of the property of a scintillation bar in the multi-neutron correlation spectrometer. *Chin Phys C*, 2009, 33: 860–865
- Kim B S, Moon J H. Use of a genetic algorithm in the reach for a near-optimal shielding design. *Ann Nucl Energy*, 2010, 37: 120–129
- Esfandiari M, Shirmardi S P, Medhat M E. Element analysis and calculation of the attenuation coefficients for gold, bronze and water matrixes using MCNP, WINXCom and experiment date. *Radiat Phys Chem*, 2014, 99: 30–36
- Clouvas A, Xanthos S, Domis M A, et al. Monte Carlo calculation of dose rate conversion factors for external exposure to photon emitters in soil. *Health Phys*, 2000, 78: 295–302
- Beck H L, Decapo J, Gogolak C. *In situ* Ge (Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry (New York). New York: Health and Safety

Laboratory (AEC), 1972. 6–28

22 Ivanovich M. Uranium series disequilibrium: Concepts and application. *Radiochim Acta*, 1994, 64: 81–94

Theoretical study of tailings radioactive substances exemption standards-setting

YANG ShiYan¹, ZHOU Cheng², ZHU XiaoXiang², YUAN Chao¹ & DAI YaoDong¹

¹ *Institute of Material Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China;*

² *Nuclear and Radiation safety supervision and administration Bureau of Jiangsu Province, Nanjing 210019, China*

A relationship between activity concentration of rare earth tailings naturally occurring radioactive material and equivalent tissue absorbed dose rate has been established from theory, according to it we calculated the conversion factor from unit activity concentration sample to absorbed dose rate of equivalent tissue. Then, considering the angular distribution of gamma rays flux which emitting from sample and combining with the result of effective thickness theoretical calculation with MCNP code, the geometric parameters of model that measures the radioactivity of tailings *in-situ* are obtained. According to a report that the limit of external gamma radiation dose is 0.3 mSv y⁻¹ received per head from the naturally occurring radioactive material by International Atomic Energy Agency (IAEA), this value selected as control target and air absorbed dose rate of several samples of different activity concentration was calculated under this standard, finally, the release limits of tailings was get, the sample could be released if air absorbed dose rate which not includes controbution of background is less than 55 nGy h⁻¹ caused by it. We constructe an *in-situ* model according to the parameters deduced from theoretical calculation and make a experiment, part of the sample was taken to laboratory analysis, the result shows final date measured from the two methods are basic agreement, the relative error is 15.8%.

tailings, Gamma absorbed dose rate, MCNP

doi: 10.1360/N092014-00419