

放射性核素岸滩沉积模式中的几个问题

严源, 张永兴

(中国原子能科学研究院 保健物理部, 北京 102413)

摘要: 文章涉及目前国际上使用的两种放射性核素岸滩沉积模式, NRC 岸滩沉积评价模式和 IAEA 岸滩沉积模式, 指出了这两个模式中存在的某些问题, 并基于用射线的线衰减系数的倒数 μ^{-1} 值代替沉积物的有效沉积厚度 d , 提出了一种推荐模式。此外, 对合理选择评价模式参数提出了建议。

关键词: 放射性核素; 岸滩沉积; 沉积厚度; 评价模式

中图分类号: TL941.19 文献标识码: A 文章编号: 1000-6931(2006)02-0158-04

Some Questions Related to Radionuclide Shore/Beach Sediment Models

YAN Yuan, ZHANG Yong-xing

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-24, Beijing 102413, China)

Abstract: The paper concerns in the two kinds of radionuclide shore/beach sediment models at present, NRC and IAEA shore/beach sediment models. Some existent questions in the two models are pointed, and a recommendable model is put forward, in which the thickness of sediment layer is replaced by the reciprocal of attenuation coefficient $1/\mu$. In addition, some recommendations on model parameters choice are given in the paper.

Key words: radionuclide; shore/beach sediment; thickness of sediment layer; assessing model

核设施放射性液体流出物向环境接纳水体排放时, 如果接纳水体有滩涂带, 将对停留在滩涂和岸边沉积带的公众构成外照射。一些环境影响报告^[1]及相关的研究报告^[2]指出, 在评价放射性液体流出物对环境的影响时, 岸边沉积对公众的照射可能是一关键途径。

目前, 放射性核素岸滩沉积影响的评价模式主要有美国核管理委员会管理导则 1.109^[3]和国际原子能机构安全报告丛书 No. 19^[4]两种。这两种评价模式均存在着某些问题。本工

作试图通过另一种推导方式并结合现有资料, 推荐一种新的放射性核素岸滩沉积模式。

1 现有放射性核素岸滩沉积模式

1.1 NRC 岸滩沉积评价模式

在美国核管理委员会管理导则 1.109^[3]的放射性核素岸滩沉积模式(NRC 岸滩沉积评价模式)中, 放射性核素 i 的岸滩沉积底部有效沉积量 S_i ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$) 的表达式为:

$$S_i = 100T_{1/2,i}C_{iw}\omega(1 - e^{-\lambda_i t_b}) \quad (1)$$

式中: $T_{1/2,i}$ 为放射性核素 i 的半衰期(d); ω 为岸宽几何因子; C_{iw} 为放射性核素 i 在水中的浓度($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$); t_b 为底部沉积物在水中的有效沉积时间,通常取为 $1.314 \times 10^5 \text{ h}$; λ_i 为放射性核素 i 的衰变常量(h^{-1})。

在 J. F. Fletcher 等^[5]开发的“HERMES”评价模式基础上给出的放射性核素 i 在底部沉积物中的浓度 C_{is} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) 为:

$$C_{is} = k_c C_{iw} (1 - e^{-\lambda_i t_b}) / \lambda_i \quad (2)$$

式中: k_c 为单位时间内放射性核素由水相向沉积物的转移常数($\text{L} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$)。

根据美国核管理委员会(NRC)的推荐,并考虑到放射性核素岸滩沉积对剂量的贡献仅存在于岸滩表面 2.5 cm 厚的沉积层中(该厚度以下的部分对剂量的贡献可忽略不计),当有效沉积厚度 d 取为 2.5 cm、沉积物的密度 ρ 取为 1600 kg/m^3 时,推导出的放射性核素的底部有效沉积量 S_i ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$) 为:

$$S_i = \rho d C_{is} \omega = 1600 \times 2.5 \times 10^{-2} \times k_c \omega C_{iw} (1 - e^{-\lambda_i t_b}) / \lambda_i = 1385.28 k_c T_{1/2,i} C_{iw} \omega (1 - e^{-\lambda_i t_b}) \quad (3)$$

比较式(3)和(1),则 $k_c = 0.07 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ 。

需要指出的是,NRC 岸滩沉积评价模式^[3]中 k_c 的取值虽来自于诸多放射性核素实验测量的结果,但对于不同核素及水体, k_c 值存在很大差异,它实际上与放射性核素有关。从沉积的机理分析,影响 k_c 的因素很多,放射性核素在底部沉积物中的分配系数、放射性核素沉积特征速度、水体特征尺度、水中悬浮物的浓度等都是 k_c 的重要影响因素。因此,NRC 岸滩沉积评价模式中的 k_c 取为常数显然不尽合理。

1.2 IAEA 岸滩沉积评价模式

文献[4]推荐的放射性核素岸滩沉积评价模式,即 IAEA 岸滩沉积评价模式中,放射性核素在水中、水中悬浮物上以及底部沉积物中的浓度分别为 C_{iw} ($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$)、 C_{is} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)、 C'_{is} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)、 k'_d 为放射性核素在悬浮物上的分配系数($\text{L} \cdot \text{kg}^{-1}$),则有:

$$k'_d = C'_{is} / C_{iw} \quad (4)$$

变换式(4),则得:

$$C'_{is} = k'_d C_{iw} \quad (5)$$

根据式(4)得出的放射性核素在底部沉积物上的浓度 C_{is} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) 为:

$$C_{is} = 0.1 k'_d C_{iw} (1 - e^{-\lambda_i T_e}) / \lambda_i T_e \quad (6)$$

式中: λ_i 为放射性核素 i 的衰变常量, s^{-1} ; T_e 为有效累积时间,取 IAEA 的推荐值 $3.15 \times 10^7 \text{ s}$ 。

放射性核素 i 的底部有效沉积量 S_i ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$) 为:

$$S_i = \rho d C_{is} = 60 \times 0.1 k'_d C_{iw} (1 - e^{-\lambda_i T_e}) / \lambda_i T_e \quad (7)$$

式(7)中的常数 $60 (\text{kg} \cdot \text{m}^{-2})$ 是文献[3]推荐的放射性核素底部有效沉积厚度 d (5 cm) 和沉积物密度 ρ ($1200 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$) 的乘积; 常数 0.1 是将放射性核素底部沉积物上的分配系数 k_d 转换为悬浮物上的分配系数 k'_d 而引入的系数。

某核电厂周围海域实验测量^[1]表明,放射性核素在沉积物上的分配系数 k_d 与在悬浮物上的分配系数 k'_d 之比值大于 0.1 (表 1)。从表 1 所列测量值可看出: 对于元素 I, 悬浮物上与沉积物中的分配系数相等; 对于元素 Cs、Cr、Mn、Co、Sr, 沉积物中和悬浮物上的分配系数之比值则分别为 0.32、0.15、0.15、0.13、0.40。这一结果表明,分配系数之比值随元素有异,且均大于文献[3]中所推荐的 0.1。

另外,在缺少详细的厂址特征参数情况下对核电厂进行环境影响预评价时,采用 IAEA 推荐的放射性核素在底部沉积物上的分配系数值还是基本保守的。当由该模式得到的结果已非常接近核电厂的管理目标值时,则需对 IAEA 推荐模式中的参数进行修正。

表 1 放射性核素在悬浮物上和沉积物中的分配系数比较

Table 1 Comparison between apparent k_a values for bottom sediment and associated suspension sediment

元素	分配系数/ $(\text{L} \cdot \text{kg}^{-1})$	
	悬浮物上 IAEA 推荐值	实验测量值 ^[1] 悬浮物上 沉积物中
I	20	100 100
Cs	3 000	1 500 477
Cr	50 000	10 000 1 500
Mn	200 000	10 000 1 500
Co	200 000	11 134 1 500
Sr	1 000	213 85

2 放射性核素岸滩沉积推荐模式

对于放射性活度 a ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) 均匀、厚度为 R (m)、密度为 ρ ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)、 γ 射线的平均能量为 \bar{E}_γ (MeV) 的放射性沉积层, 假设在无自吸收情况下该放射性沉积物在沉积层表面上的 γ 射线能量注量率 Ψ ($\text{MeV} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 为:

$$\Psi = a\rho R \bar{E}_\gamma \quad (8)$$

考虑到放射性沉积物的自吸收后, 该放射性沉积层的表面 γ 射线能量注量率 Ψ_1 ($\text{MeV} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 则为:

$$\Psi_1 = a\rho \bar{E}_\gamma \int_0^R e^{-\mu x} dx = a\rho \bar{E}_\gamma \frac{1 - e^{-\mu R}}{\mu} \quad (9)$$

式中, μ 为 γ 射线的线衰减系数 (m^{-1})。

当 $R \rightarrow \infty$ 时, 则有:

$$\Psi_1 = a\rho \bar{E}_\gamma \frac{1}{\mu} \quad (10)$$

由式(10)可看出, 考虑了放射性沉积物的自吸收后, 无穷厚的沉积层表面处的能量注量率等价于 $1/\mu$ (m) 厚、无自吸收时的表面处的能量注量率。因此, 根据这一规律, 在岸滩沉积评价模式中, 可用 $1/\mu$ (m) 厚度来代替沉积层厚度 d (m), 而不采用文献[3]的有效沉积层厚度 d 为 5 cm 的推荐值。这样, 有可能获得更为合理的评价结果。

表 2 列出了某核电厂放射性液态流出物的几种主要核素在砂石中不同能量下的 $1/\mu$ 值。

表 2 砂石中不同能量 γ 射线的 $1/\mu$ (cm)

Table 2 $1/\mu$ value in sand for different energy γ -rays

核素	能量/MeV	μ^{-1}/cm
^{58}Co	1.332 00	11.0
^{51}Cr	0.320 08	5.9
^{124}Sb	1.691 00	12.7
^{54}Mn	0.834 83	9.2
^{60}Co	1.173 20	10.6
^{131}I	0.364 48	6.2
^{137}Cs	0.661 65	8.2

从表 2 可看出, 对 γ 射线能量较高的核素, 砂石中对应的 $1/\mu$ 值皆大于 5 cm; 当能量约为 0.3 MeV 时, $1/\mu$ 值接近于 5 cm; 若 γ 射线能量低于 0.2 MeV, 在砂石中的 $1/\mu$ 值可能小于

5 cm。也就是说, 当用文献[3]中所推荐的底部沉积层的有效沉积厚度为 5 cm 进行评价时, 对 γ 射线能量高于 0.2 MeV 的核素, 计算出的底部沉积量可能不太保守, 而对于 γ 射线能量低于 0.2 MeV 的核素, 取底部沉积物的有效厚度为 5 cm 则过于保守。

因此, 本工作以 γ 射线的线性衰减系数的倒数 μ^{-1} (m) 代替沉积厚度 d (m), 且不采用 5 cm 的固定 d 值, 提出如下放射性核素岸滩沉积推荐模式:

$$S_i = k_d \rho \frac{1}{\mu} C_{iw} \frac{1 - e^{-\lambda_i T_e}}{\lambda_i T_e} \quad (11)$$

式中: S_i 为放射性核素 i 在沉积层中的有效沉积量 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$); k_d 为放射性核素在底部沉积物中的分配系数 ($\text{L} \cdot \text{kg}^{-1}$); C_{iw} 为放射性核素 i 在水中的浓度 ($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$); ρ 为沉积物密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$); λ_i 为放射性核素 i 的衰变常量 (h^{-1}); T_e 为有效累积时间 (同于 IAEA 岸滩沉积评价模式中的推荐值, 取为 3.15×10^7 s)。

根据式(1)、(7)、(11), 分别计算 NRC 模式、IAEA 模式和本工作的推荐模式下放射性核素水中浓度为 1 Bq/L 时的岸滩沉积量, 计算结果列于表 3。

表 3 不同评价模式下的岸滩沉积量

Table 3 Effective contaminations for different shore/beach sediment models

核素	放射性核素岸滩沉积量 $S_i/(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2})$		
	NRC 模式	IAEA 模式	本工作推荐模式
^{58}Co	7.08×10^3	3.32×10^5	3.05×10^5
^{60}Co	1.66×10^5	1.10×10^6	2.54×10^5
^{131}I	8.04×10^2	3.60	9.92×10^3
^{51}Cr	2.72×10^3	3.30×10^4	1.42×10^5
^{54}Mn	3.13×10^4	8.16×10^5	2.21×10^5
^{137}Cs	3.20×10^5	1.80×10^4	6.26×10^4

注: 放射性核素水中浓度为 1 Bq/L

从表 3 可看出, 除核素 ^{131}I 外, 对 ^{58}Co 、 ^{60}Co 、 ^{51}Cr 、 ^{54}Mn 、 ^{137}Cs 等 5 种放射性核素, NRC 评价模式的岸滩沉积量计算值相对偏低, 而 IAEA 评价模式的岸滩沉积量计算结果则相对偏高, 本工作推荐模式的岸滩沉积量计算值

介于这两者之间。

基于式(10),可推导出该沉积层对岸边造成的沉积外照射剂量率 \dot{D} ($\text{Gy} \cdot \text{a}^{-1}$) 为:

$$\dot{D} = wDFS_i \quad (12)$$

式中:岸宽几何因子 w 取为 1;DF 为沉积外照射剂量转换因子 ($\text{Gy} \cdot \text{a}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{m}^2$)。

3 种评价模式下的沉积外照射剂量率列于表 4。由 4 可见,本工作推荐模式的沉积外照射剂量率计算值介于 NRC 评价模式和 IAEA 评价模式计算值之间。

3 应用于实际厂址的参数调查

IAEA 岸滩沉积评价模式作为一种筛选模式是相当保守的,它有一定的实际应用范围。

当运用该模式得到的结果已极其接近管理目标值而需进一步采用厂址特征参数和较精细模式时,可采用式(10)和(11)对具体厂址作环境影响评价。模式中的相关量平均值选取原则如下。

1) 在无法获取所研究的放射性核素在现场水体底部沉积物中的分配系数 k_d 值的情况下,可用悬浮物上的分配系数 k'_d 值代替;有实测值时,则采用实测值。

2) 评价区域有放射性核素岸滩沉积有效沉积厚度观测值 d (cm),则直接选用该值;无该值,则用放射性核素的 $1/\mu$ (cm) 值计算有效沉积量。

3) 参考 NRC 评价模式中的取值,将式(8)中沉积物的密度 ρ 取为 $1\ 600\ \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

表 4 不同评价模式下的沉积外照射剂量率

Table 4 External exposure dose ratio in shore/beach sediment for different models

核素	DF/($\text{Gy} \cdot \text{a}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{m}^2$)	\dot{D} /($\text{Gy} \cdot \text{a}^{-1}$)		
		NRC 模式	IAEA 模式	本工作推荐模式
^{58}Co	3.0×10^{-8}	2.12×10^{-4}	9.96×10^{-3}	9.15×10^{-3}
^{60}Co	7.5×10^{-8}	1.25×10^{-2}	8.25×10^{-2}	1.91×10^{-2}
^{131}I	1.1×10^{-8}	8.84×10^{-6}	3.96×10^{-8}	1.09×10^{-4}
^{51}Cr	9.8×10^{-10}	2.67×10^{-6}	3.23×10^{-5}	1.39×10^{-4}
^{54}Mn	2.6×10^{-8}	8.14×10^{-4}	2.12×10^{-2}	5.75×10^{-3}
^{137}Cs	1.9×10^{-8}	6.08×10^{-3}	3.42×10^{-4}	1.19×10^{-3}

注:DF 沉积外照射剂量转换因子选用文献[1]中某电厂周围海域中的值

4 结论

1) 对于滨海核电站,如果存在滩涂带,在放射性液态流出物对公众的外照射中,岸边沉积为关键途径,因此,岸滩沉积外照射模式显得尤为重要。

2) 本工作推荐的沉积模式不采用 NRC 岸滩沉积模式中的转移常数 k_c 值,并在 IAEA 评价模式的基础上对其底部沉积量的表达式进行改进,以求达到更合理有效的评价岸滩沉积外照射对公众的辐射剂量。

参考文献:

[1] 核工业第二研究设计院. 田湾核电站环境影响报告[R]. 北京:北京核工程研究设计院,2003.
[2] 张永兴,魏国强,严源,等. 秦山核电公司液体流

出物排放限值研究[R]. 北京:中国原子能科学研究院,2003.

[3] NRC. Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluation compliance with 10 CFR, Part 50, Appendix I: NRC regulatory guide 109 [R]. USA:NRC,1997.
[4] IAEA. Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment: IAEA safety report series No.19[R]. Vienna:IAEA,2001.
[5] FLETCHER J F, DOTSON W L. HERMES—A digital computer code for estimating regional radiological effects from the nuclear industry USAEC report: HEDL-TME-71-168 [R]. USA: USAEC,1971.