

气载氚监测仪现场校准技术

洪永侠, 程 瑛, 漆明森, 吴甜甜

中国核动力研究设计院, 四川 成都 610005

摘要:为解决国内气载氚监测仪量值溯源难题,开展了气载氚监测仪现场校准技术研究。简述了气载氚标准装置以及气载氚监测仪现场校准装置的研制过程、现场校准方法的建立、影响校准结果主要因素的实验研究、校准结果及不确定度评定和现场校准方法的验证。验证结果表明,现场校准方法是可行的。

关键词:气载氚标准装置;现场校准装置;校准技术

中图分类号:X85 **文献标志码:**A **文章编号:**0253-9950(2016)01-0038-05

doi:10.7538/hhx.2016.38.01.0038

Field Calibration Technique of Gas Tritium Monitor

HONG Yong-xia, CHENG Ying, QI Ming-sen, WU Tian-tian

Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610005, China

Abstract: Field calibration technique was studied in order to solve the problem of the value traceability of gas tritium monitor in China. The paper described the process of development of the standard device and field calibration device of gas tritium monitor, calibration method, and influence factors of the calibration, calibration results and its uncertainty, verification of field calibration method. Verification results show that the method is feasible.

Key words: standard device of gas tritium; field calibration device; calibration technique

目前,核设施及部分放射性同位素生产场所中均安装了大量的气载氚监测仪,为事故工况及环境监测提供重要的分析数据。然而,在量值溯源方面,这些气载氚监测仪作为工艺系统监测的一部分,在设备安装调试运行后,由于不便拆卸及运行后存在污染等原因,不宜送至实验室进行,而是需要进行现场校准。但是,由于现场校准的复杂性,国内计量技术机构尚未建立相应的标准,气载氚监测仪的现场校准工作还没有开展,其测量结果的准确性不能得到保证。为了解决国内气载氚监测仪量值溯源问题,在研制气载氚监测仪校准装置的基础上,拟对气载氚监测仪现场校准技术进行研究。

1 校准装置的研制

1.1 装置构成

校准装置由气载氚标准装置和气载氚监测仪现场校准装置构成,气载氚标准装置在实验室产生恒定的标准氚气流,用来校准传递仪器;气载氚监测仪现场校准装置在现场校准时,携带至现场为被校仪器和传递仪器提供氚气流。两套装置原理相同但配置不同,技术指标也不同,现场校准装置小巧轻便。

1.2 气载氚标准装置

1.2.1 装置组成及工作原理 采用鼓泡法^[1]原理确定了图 1 所示的结构。装置由空气过滤干燥

单元、流量计、恒温器、鼓泡器、缓冲瓶、回收单元、动力单元组成。另外,温度传感器和压力传感器用来测定鼓泡器入口的温度和压力。

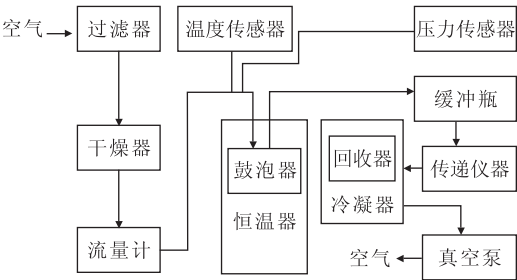


图 1 气载氚标准装置框图
Fig.1 Structure diagram
of the standard device for gas tritium

1.2.2 非标设备的研制

(1) 空气过滤干燥单元

空气过滤干燥单元由过滤器和干燥器组成。过滤器用于滤除空气中的尘埃、胶质等颗粒杂质,过滤网直径为 0.5 μm ,材料为不锈钢和玻璃纤维。干燥器去除空气中水分,由有机玻璃和铝制成,圆柱形,干燥剂为变色硅胶。

(2) 鼓泡器

鼓泡器设计的合理性直接决定了是否能够鼓泡成功。鼓泡器包括套装的外管、内管,在内管的

末端设置有鼓泡球,在鼓泡球上,采用预先布点、激光定位的技术进行均匀打孔。材料选用无氧铜,使其有良好的导热性,在外管内壁和内管的内外壁镀金,提高光洁度。

(3) 回收单元

回收单元由回收器和液氮冷凝器组成。回收器采用进气口大、出气口小的方式,在大的圆柱形外筒内设置小的圆柱形内桶,以增加气体经过的路径,从而增加了冷却的过程。工作时,回收器浸在液氮内。

(4) 缓冲瓶

鼓泡开始时,系统内外突然产生的压差可能造成鼓泡器内氚化水直接压出,为防止冲出的氚化水对与管道连接的测量设备造成损害,设置了缓冲瓶。缓冲瓶材料为不锈钢,圆柱形。

1.2.3 标准设备选型 气载氚标准装置中,标准设备选型列于表 1。

1.3 气载氚监测仪现场校准装置

在气载氚标准装置的基础上将其小型化,并与传递仪器串联组成现场校准装置,总质量 27 kg。其中,传递仪器为美国 SP1400DD 便携式氚监测仪,其量程范围为 $1\times 10^4\sim 1\times 10^7\text{ Bq/m}^3$,质量为 7.3 kg。

1.4 装置性能测试

对研制的气载氚标准装置和现场校准装置进行了性能测试,结果完全满足设计要求(表 2)。

表 1 标准设备配备清单
Table 1 List of standard equipment

序号	名称	型号规格	主要技术指标
1	恒温器	TL-101N	显示分辨率: $\pm 0.001\text{ }^{\circ}\text{C}$
2	压力传感器	JPG35G	绝压范围: $0\sim 100\text{ kPa}$
3	温度传感器	PPM-WZPB	测量范围: $0\sim 50\text{ }^{\circ}\text{C}$,测量精度: $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$
4	质量流量计	D07	流量范围: $0\sim 10\text{ L/min}$
5	真空泵	MOA-P101-CD	流速范围: $0\sim 10\text{ L/min}$

表 2 装置性能测试结果
Table 2 Test results of device performance

装置	测试项目	结果
气载氚标准装置	气密性	不漏气
	回收效率	$\geq 98.1\%$
	氚气流活度浓度范围及合成标准不确定度	$10^2\sim 10^7\text{ Bq/m}^3$, $\leq 3.9\%$
现场校准装置	气密性	不漏气
	回收效率	$\geq 99.4\%$
	氚气流活度浓度测量范围及合成标准不确定度	$10^4\sim 10^7\text{ Bq/m}^3$, $\leq 6.6\%$

2 现场校准技术

2.1 校准方法

首先在实验室对传递仪器进行校准,得到其校准因子。然后将传递仪器与现场的被校仪器串联,同时测量现场校准装置产生的氚气流活度浓度。通过二者读数就可计算被校仪器的校准因子。

2.2 影响校准结果的主要因素

现场校准时,影响校准结果的主要因素有同位素分馏系数、饱和系数、鼓泡时的流速以及氚气流的稳定性,具体研究内容及结果如下。

表 3 10 ℃下同位素分馏系数测定结果
Table 3 Isotope fractionation factor at 10 ℃

序号	气态氚样品质量/g	气态氚活度/Bq	液态氚样品质量/g	液态氚活度/Bq	同位素分馏系数
1	1.690 6	2.31×10^2	1.976 6	3.16×10^2	0.852
2	1.973 2	2.71×10^2	1.981 9	3.21×10^2	0.848
3	1.975 4	2.72×10^2	1.982 4	3.21×10^2	0.850
4	1.492 8	4.00×10^4	1.534 1	4.80×10^4	0.856
5	1.494 7	4.01×10^4	1.514 2	4.79×10^4	0.850
6	1.493 5	4.01×10^4	1.516 6	4.79×10^4	0.850

2.2.2 饱和系数 饱和系数反映了鼓泡器产生标准氚气流的饱和程度^[3],该值直接参与氚气流活度浓度的计算。假设 m_1 为鼓泡时鼓泡器失去水的质量, m_2 为鼓泡器内鼓入空气应带走的水的质量(按相对湿度为 100% 计算),则 m_1 与 m_2 之比就是饱和系数。 m_1 可以通过差重法

2.2.1 同位素分馏系数 同位素分馏系数是反映鼓泡过程中气相同液相中的氚放射性之比的量^[2],该结果可直接用来计算标准氚气流的比活度。在设定温度下,用不同比活度的氚水进行鼓泡,鼓泡结束后,用日本 ALOKA 公司型号为 LSC-6100 的液闪分析仪对回收器内收集的氚气流冷凝水和鼓泡器内剩余氚水定值,两者比值即为分馏系数。结果列于表 3。由表 3 可以看出,一定温度下利用两种不同比活度的氚化水鼓泡过程中,同位素分馏系数并无明显变化,因此,系统的同位素分馏系数与氚化水的比活度无关。

得到, m_2 可由鼓入鼓泡器内空气体积经计算得到。表 4 为气载氚标准装置饱和系数测定结果。由表 4 可以看出,在一定流速范围内,饱和系数随鼓泡流速的增大而减小,这是由于鼓泡过程中流速越大气流与鼓泡器内氚水的接触越不充分而导致的。

表 4 气载氚标准装置饱和系数测定结果
Table 4 Saturation coefficient of standard device of gas tritium

鼓泡流速/(L·min ⁻¹)	鼓泡器失水质量/g	标态体积/L	通过鼓泡器的空气体积/L	应带走水质量/g	饱和系数
0.5	3.19	95.50	341.50	3.21	0.994
0.5	3.20	95.82	341.75	3.21	0.997
0.75	4.36	140.5	465.87	4.38	0.995
0.75	4.35	140.0	464.24	4.36	0.998
0.9	4.92	166.7	526.21	4.94	0.996
0.9	4.93	166.2	526.92	4.95	0.996
1.0	5.71	180.9	618.43	5.81	0.983
1.5	7.28	271.4	817.33	7.68	0.948
2.0	8.32	360.7	960.47	9.03	0.921

2.2.3 鼓泡流速 在鼓泡起始时,空气的流动使鼓泡器内温度失去平衡,在重新恢复平衡的这段时间内,鼓泡器单位时间内的失水量会发生变化,从而影响氚气流活度浓度的计算值。为此,进行了不同鼓泡流速下对鼓泡器失水量影响的实验,结果列于表 5。由表 5 可看出,鼓泡流速越小,鼓泡器失水量的修正值越大,对产生的氚气流活度浓度计算值的影响也越大;当流速达到 1.0 L/min 时,其影响可忽略。

表 5 鼓泡流速对氚气流活度浓度计算值的影响

Table 5 Effects of bubbling velocity on tritium gas activity concentration calculation

鼓泡流速/ (L·min ⁻¹)	鼓泡器失水质量 修正值/g	对计算值 的影响/%
0.5	0.09	1.1
0.75	0.03	0.3
1.0	0.01	忽略
1.5	0.002	忽略

2.2.4 气流稳定性 采用现场校准装置进行鼓泡,在被校仪器最灵敏量程内对传递仪器读数,鼓泡平衡后,测量得到其短期稳定性为 4.3%。

2.3 校准结果及不确定度评定

2.3.1 传递仪器校准因子 将传递仪器与气载氚标准装置连接,使活度浓度已知的标准氚气流经过传递仪器,待读数稳定后,读取传递仪器的读数,计算其校准因子,结果列于表 6。从表 6 得出,该台仪器校准因子的平均值为 0.651。在量程范围内,各校准因子与校准因子平均值最大偏差仅为 1.22%,具有较好的一致性。

2.3.2 被校仪器校准因子 将传递仪器与现场的被校仪器串联,同时测量现场校准装置产生的氚气流活度浓度。传递仪器读数乘以相应的校准因子,之后与被校仪器读数的比值即为被校准仪器的校准因子,结果列于表 7。由表 7 的校准因

子得出,该仪器校准因子的平均值为 0.614,在量程范围内,各校准因子与校准因子平均值最大偏差仅为 1.95%,具有较好的一致性。

表 6 传递仪器校准因子

Table 6 Calibration factors of the transfer instrument

氚气流活度浓度/ (MBq·m ⁻³)	传递仪器读数/ (MBq·m ⁻³)	传递仪器本底/ (MBq·m ⁻³)	校准 因子
0.118 9	0.22	0.04	0.659
1.189	1.89	0.04	0.644
11.89	18.32	0.04	0.650

2.3.3 不确定度评定 被校仪器校准结果不确定度包括传递仪器校准因子、现场校准时传递仪器和被校仪器计数统计引入的不确定度,其结果分别为 5.0%、3.1%和 3.5%。其中,传递仪器的校准因子不确定度分量包括气载氚标准装置(直接引用该装置的不确定度 3.9%)和校准传递仪器时传递仪器读数的计数统计不确定度(贝塞尔公式);现场校准时传递仪器和被校仪器计数统计引入的不确定度由贝塞尔公式计算。由于校准过程中各不确定度分量互不相关,因此被校仪器校准因子的合成标准不确定度为 6.9%。

2.4 校准方法验证

2.4.1 标准氚气流活度浓度 在校准过程中,标准氚气流的活度浓度采用理论计算值。该值的准确性将直接影响校准结果。将气载氚标准装置产生的氚气流冷凝回收,待其溶化后取一定量制成样品用液体闪烁分析仪(已校准)进行测量,得到氚气流的总活度。氚气流总活度与流经鼓泡器的空气体积(标态下)的比值即为氚气流的活度浓度。验证结果列于表 8。由表 8 结果可知,对于不同量级活度浓度的标准氚气流,其活度浓度理论计算值与实测值最大偏差为-1.3%,该值包含在液体闪烁分析仪测量结果的不确定度(2%)以内,说明采用理论计算值作为标准气体源活度参考值是可靠的。

表 7 被校仪器校准因子

Table 7 Calibration factors of apparatuses

传递仪器读数/(MBq·m ⁻³)	传递仪器校准因子	氚气流活度浓度/(MBq·m ⁻³)	被校仪器读数/(MBq·m ⁻³)	校准因子
0.17	0.659	0.112 0	0.18	0.622
1.83	0.644	1.179	1.91	0.617
18.10	0.650	11.76	19.55	0.602

表 8 氚气流活度浓度验证结果
Table 8 Verification results of tritium gas flow activity concentration

氚气流的总活度/Bq	流经鼓泡器的空气体积/m ³	氚气流活度浓度/(MBq·m ⁻³)		活度浓度偏差
		测量值	计算值	
4.019×10 ³	341.5	0.117 7	0.118 9	-1.0%
4.095×10 ⁴	342.1	1.197	1.189	0.7%
4.027×10 ⁵	343.0	11.74	11.89	-1.3%

2.4.2 被校仪器校准因子的验证 为了对现场校准这一校准方法进行验证，对于同一台被校仪器，比较通过现场校准装置得到的校准因子 k_1 和通过气载氚标准装置得到的校准因子 k_2 ，计算其偏差，结果列于表 9。

表 9 被校仪器校准因子验证结果
Table 9 Verification results
of apparatus calibration factors

被校仪器量程/ (MBq·m ⁻³)	校准 因子 k_1	校准 因子 k_2	偏差/%
0.01~1	0.622	0.618	0.7
1~10	0.617	0.615	0.3
10~200	0.602	0.610	-1.3

由表 9 可知，两种方法得到的校准因子最大偏差为-1.3%，远远小于校准结果的不确定度。

3 结 论

在装置研制的基础上对现场校准技术进行了研究，得出以下结论：

- (1) 气载氚标准装置可产生活度浓度恒定的氚气流，为气载氚监测仪的现场校准提供标准源；
- (2) 在国内首次研制了气载氚监测仪现场校准装置，其小巧轻便，满足现场校准的要求；
- (3) 对气载氚监测仪现场校准方法进行了实验验证，验证结果表明现场校准方法是可行的。

参考文献：

[1] 赵亚民. 氟化水蒸气的鼓泡法制备和鼓泡法取样的研究[J]. 核防护, 1980, 39(6): 1-25.

[2] 杨怀元. 氟化水蒸气鼓泡法取样的理论计算及其定量计算的公式推导[J]. 辐射防护通讯, 1981, 6: 24-27.

[3] 程瑛. 氚气流发生器饱和系数的测定[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(3): 263-265.