

大面积流气式电离室的研制及性能测试

党云博, 丁有钱, 孙宏清, 马 鹏, 黄 昆, 张生栋

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:核设施退役过程中, 超铀核素放射性样品的无损测量一般通过 γ 能谱法实现, 但由于超铀核素的 γ 射线发射几率一般较低, 因此这种测量方法的探测限较高, 不适用于溶解后低水平放射性样品的测量。本工作建立的大面积流气式电离室, 通过探测 α 粒子电离空气的原理进行多孔样品的间接无损测量, 方法探测限低, 可以分析放射性活度低至百 Bq 级别的样品板。

关键词:超铀核素; 无损测量; 流气式电离室

中图分类号:P204 **文献标志码:**A **文章编号:**0253-9950(2020)05-0391-06

doi:10.7538/hhx.2020.YX.2020055

Development and Performance Test of Large Area Flow Gas Ionization Chamber

DANG Yun-bo, DING You-qian, SUN Hong-qing, MA Peng,
HUANG Kun, ZHANG Sheng-dong

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(126), Beijing 102413, China

Abstract: In the process of decommissioning of nuclear facilities, the nondestructive measurement of transuranic nuclide radioactive samples is generally realized by gamma spectrometry. However, the detection limit of this measurement method is high and it is not suitable for the measurement of low-level radioactive samples after dissolution because the probability of transuranic nuclide gamma ray emission is generally low. The method based on large area flow gas ionization chamber was established in this work and can be used for indirect nondestructive measurement of surface irregular samples by detecting the principle of α particle ionized air. The detection limit of the method is low, and the sample plate with radioactivity as low as 100 Bq can be analyzed.

Key words: transuranic nuclide; nondestructive measurement; flow gas ionization chamber

核设施退役过程中, 样品表面超铀核素放射性的测量一般使用 γ 能谱法, 这种测量方法具有现场检测、快速分析等特点, 同时不会有破坏性分析方法取样难、周期长、改变样品物理和化学特性

等问题, 从而被广泛应用^[1]。然而超铀核素衰变产生的 γ 射线发射几率一般非常低, 因此这种测量方法的探测限较高, 样品活度至少为几万 Bq 以上。如样品清洗较为充分, 则样品表面残留放

射性水平会非常低,无法直接使用 γ 能谱法进行测量。这种情况一般只能测量发射几率较大的 α 粒子,传统的 α 粒子探测器,如半导体探测器、闪烁探测器、正比计数器及屏栅电离室只能测量入射到探测器内的 α 粒子,测量时需要将探测器放置在样品表面,因此对于表面不规则的样品,这些 α 粒子探测器无法进行测量。

20世纪90年代初期,为快速监测大面积 α 表面污染、不规则曲面 α 污染、管道内表面 α 污染,美国洛斯阿拉莫斯实验室 Macarthur^[2-4]和 Bolotn^[5]等提出了流气式电离室的概念(又称长程 α 粒子探测器(long range alpha detector, LRAD))。流气式电离室不直接探测 α 粒子,它利用 α 粒子在空气中的电离密度大这一特点收集由其产生的电子离子对,再根据电离电流测量值推算 α 源活度。基于这种测量原理,他们提出了收集二次空气离子的方法,优化了电离室的内部结构,两带孔电极间加入300 V的高压,测量时将离子化的空气分子用气流吸入两个带孔电极之间的区域,高压极吸引负离子并将正离子排斥到负极。在感应栅极上收集的电荷通过灵敏静电计即可直接读取离子的数量,该探测器探测灵敏度可达 (3.78 ± 0.18) fA/Bq。Naito等^[6]对 α 粒子电离空气分子的复杂行为进行了研究,基于空气动力学建立了电离空气输运 α 放射性测量(alpha radioactivity measurement using ionized air transportation, AMAT)的理论模型。该模型由三部分构成:(a)离子产生、输运模型;(b)电离室中离子监测过程模型;(c)在电离室内置放射源离子输运过程模型。AMAT模型可定性预测被测离子电流对空气流速的依赖程度,模型计算值与实际测量值在40%的误差范围内,较为成功地解释了LRAD技术的物理现象,并解释了 α 粒子放射性活度与离子电流关系的深层次关系,为流气式电离室的设计奠定了理论基础。

国内对流气式电离室的研究开始于20世纪90年代末期,1998年中国辐射防护研究院的韩景泉^[7]在国内首先自制了一台DL-01型流气式LRAD探测器。电离室有效通过尺寸为64 mm $\times$ 64 mm,探测限为35 fA,灵敏度为 (6.66 ± 0.12) fA/Bq,并且还对与电离室研制相关的刻度、离子寿命和材料等问题进行了深入探讨。2011年中国核动力研究设计院的穆克亮^[8]在前人对流气式LRAD技术研究的基础上,利用 α 标准面源,在管

道口进行实验,对电离空气的几何分布进行了对比研究,结果发现标准面源与进气管界面的距离对测量结果有很大影响,LRAD测量系统收集离子对时与电离区域及空气流向有关,在一些要求较高的测量场合,可选用 α 粒子收集器进行舱式测量,提高离子对的探测效率。2016年张丽然等^[9]以被测管管径、管长、测量距离、风速、空气流量五个测量因素为输入,测量结果以电离电压值为输出,利用RBF神经网络对LRAD测量结果进行预测。在活度为523.3 Bq的²³⁹Pu α 放射源环境下,测量220组数据,将BP神经网络与RBF网络对比,两者的平均绝对误差分别为5.65%、4.35%。实验结果表明,RBF神经网络对LRAD测量结果的非线性校正效果优于BP神经网络。除此之外,国内还有成都理工大学及中国工程物理研究院等单位对流气式电离室的研制和应用进行了深入研究^[10-12]。

本工作拟针对低水平放射性的大面积多孔超铀核素样品,研制大面积流气式电离室,系统研究不同的电离室结构对电离室性能的影响,以及在不同气流流速和极板偏压下的电离室响应曲线,并将研制的电离室应用于样品测量。

1 材料和仪器

BNC、SHV、TRLAX接口母座,SHV电缆、TRLAX三同轴电缆,均为美国Keithley公司生产。

556H台式高压电源,美国ORTEC公司;6430型亚飞安源表,美国Keithley公司;流气式电离室主体,非标件,自制;GL2020型平面高纯锗探测器,Canberra公司。

2 基本原理

流气式电离室是一种电流电离室,利用电离室收集由 α 粒子电离空气产生的电子离子对^[2],再根据所测电离电流值推算出样品的放射性活度。电离电子离子对总数(N)根据电离公式(1)计算。

$$N = E/\omega \quad (1)$$

式中: E 为 α 粒子能量; ω 为 α 粒子在空气中的平均电离能,约为35 eV。可知一个5 MeV的 α 粒子在空气中大约能产生150 000个电子离子对,这些电子离子对通过气流载带或者是通过静电场传送到电离室的收集极附近,收集极收集电子或者正离子,同时使用静电计测量收集极的电离电

流,电离室经刻度后,可根据平均电离电流计算放射源活度。流气式电离室的原理图示于图 1。由图 1 可知,流气式电离室由两个栅网状的电极组成,高压极施加一定的偏置高压,信号极测量电流信号,两个电极通过适当的输出电路连接,当电离空气依次穿过信号极(阴极)和高压极(阳极),引起输出回路中累计电流的变化,该变化值由微电流表进行测量。

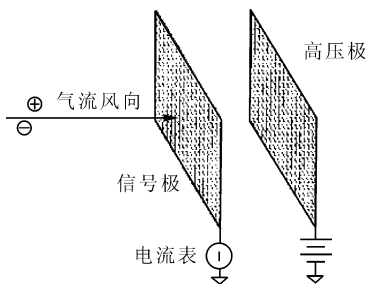


图 1 流气式电离室结构示意图
Fig. 1 Schematic diagram of flow gas ionization chamber

传统的 α 探测器是在真空条件下使 α 粒子直接与探测器感应元件发生相互作用,从而测量出放射源活度。由于 α 粒子与物质发生相互作用的截面较大、射程短、穿透能力弱,传统 α 探测器只能进行近距离(cm 量级)的测量,并且只能进行规则样品的面源活度的测量,对于实际的复杂表面样品的探测效率较低。流气式电离室是通过气流载带的方式,利用气体将 α 粒子的电离离子传送到几十 cm 甚至几 m 外的电离室中进行采集和分析,因此相比传统 α 探测器而言,流气式电离室能够监测到不规则面源的 α 放射性污染,且源探距更长,较传统 α 探测器更加灵活且适用性更强。

3 组成结构

流气式电离室主要由电离室主体(包括两个以上的带孔电极)、抽气系统及数据采集系统三部分组成,其中带孔电极、样品板以及电离室外壳等结构组成了电离室主体。样品板放置在电离室主体最下部,靠近样品板的带孔电极为信号极,通过三同轴电缆接入亚飞安表。靠近抽气风机的带孔电极为高压极,通过高压线连接至高压电源,以提供平行板电极间所需的偏置电压。带孔电极上部为风速可调的抽气风机,给电离室内部提供均匀

稳定的气流。流气式电离室的输出回路示意图示于图 2。



图 2 流气式电离室的输出回路
Fig. 2 Output circuit of flow gas ionization chamber

3.1 电离室主体

电离室主体包括密封壳和电极系统两大部分。考虑到电离室材料本底计数、质量及灵敏体积等问题,电离室密封壳材料为铝合金,厚度 5 mm。电离室上盖板通过法兰与抽气装置连接,为便于电离室内气流均匀穿过样品孔隙,样品托盘也为带孔结构。电离室的灵敏面积一般根据样品的实际尺寸而定,以尽量保持样品测量区域电场和气场均匀,使得放射性样品板均暴露在样品室中。基于大面积多孔样品的实际尺寸,本流气式电离室的灵敏直径为 500 mm,才可以确保收集的电离电流与放射性活度成正比。

为适应大面积多孔样品的测量需求,流气式电离室采用了两个以上的平行板带孔铜板作为电极,电极材质为黄铜,厚度 2 mm,孔直径 4 mm,间距 6 mm。电离室研制初期,为保证较大的离子捕集效率和较小的气流死体积,选用 80 目铜网作为电离室电极。但这种结构受气流作用引起的栅丝震颤效应明显,底噪值较高($\approx 1\,000\text{ fA}$),同时这种电极结构悬空后易变形,影响电场均匀性。因此改进的电离室中选用了铜板打孔这种方法,电场均匀性得以改善,极大减弱了电极震颤,仪器的底噪值明显下降。

由探测器电离室静电场仿真模拟(使用有限元分析软件 Ansoft Maxwell 模拟)结果进行探测器电离室极板的加工和极板间距的选择。模拟结果显示 10 mm 极板间距的电离室静电场内部电场畸变和电场边缘效应均较弱,流气式气体电离室极板间距以此为设计依据。

为进一步降低底噪,防止外界电磁场的干扰,在电极周围使用了法拉第笼的结构,使用密集带

孔的金属网将电极围拢,这样可以滤掉外界环境中的部分电磁波,从而降低仪器的本底噪声。基于电流电离室对绝缘性能的要求,电离室绝缘材料选用机械应变电流小的陶瓷绝缘子。在电离室极板周围设置了法拉第笼屏蔽结构和保护环结构,有效减小了外环境电磁信号及漏电流引起的噪声的干扰,底噪值降至约 200 fA,极大地提高了整套系统的信噪比。

3.2 输出回路

电离室内部的信号极和高压极分别通过引线连接至电离室外部,高压线采用 SHV10 高压专用线连接到电离室外的高压电源盒,由高压电源盒给电离室高压极供电。采用 BNC 数据线与微电流表,采集极板上的电流信号。

为提高离子捕集效率,同时进一步降低系统的底噪值,研究了双极板电离室结构和三极板电离室结构。两种电极结构的区别在于,双极板电离室的两个极板分别为高压极和信号极,高压供电单元与信号获取单位是两台不同的仪表,而三极板将上下两个极板作为形成电场回路的接地极,中间极板既做高压极,又为信号采集极,这样的好处是使用一台仪表实现源表和电流表的功能,同一仪表内部回路可以使系统的底噪值更低,而且三个极板的捕集效率会更高。因此通过对不同极板结构的测试,选择了更具优势的三极板电离室结构(底噪值约为 160 fA)。

3.3 抽气系统

气流速率对探测器 α 粒子的收集效率、电子离子对复合数目和仪器的信噪比有较大影响^[5]。抽气单元采用一款可在电离室内部获取 0~3 m/s 风速的风机(采用电动机调速方式实现调速),抽气单元与电离室之间采用法兰连接,缝内塞有氟橡胶,避免风机对电离室的振动影响。

3.4 电子学系统

电子学系统包括两部分,分别是检测弱电流的电流表和用于提供电极偏压的高压电源。弱电

流信号检测和获取单元所用仪器均为 6430 型亚飞安表。该静电计的前置放大器输入阻抗为 1 016 Ω,最小量程为 1 pA,本底噪声约为 0.4 fA,最小可探测器电流为 10^{-15} A,是市面上在售的灵敏度最高的静电计。根据实验室现有条件选用 556H 台式高压电源作为流气式电离室的直流电压源,其输出电压范围为 $\pm 10 \sim \pm 3\,000$ V,电压输出稳定纹波峰间值小于 10 mV,可以用于光电

倍增管、微通道板、正比计数管和半导体探测器等器件的供电。由于 6430 型亚飞安表也可作为 200 V 以内的电压源表使用,556H 台式高压电源仅作为 200 V 以上实验的电压源。

本工作根据任务中样品的尺寸,建立了大面积流气式电离室,实物装配图示于图 3。由图 3 可知:电离室上部铝桶为管道式抽气风机,中间腔室为电离室主体。下部为电离室支架,因为电离室为流气式装置,必须架高使用,以保持电离室内部的气流稳定。

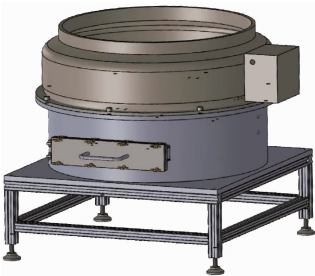


图 3 流气式电离室装配图
Fig. 3 Assembly drawing
of flow gas ionization chamber

4 仪器性能

4.1 电离室的工作条件

流气式电离室工作条件的选择主要包括气流流速和工作电压两个方面,最佳工作条件下,电离室的信噪比最佳,粒子捕集效率最高。严格意义的双参数条件实验,需同时改变两组变量值以获得变量与函数的关系,为提高筛选效率,本实验采用文献^[5]数据,固定工作电压值为 204 V,选择活度已知的²⁴¹Am电镀源(活度为 525 Bq),在线性可编程交流电源产生的电压下启动风扇排风,通过改变电压值调节风速,观测电离电流随风速值的变化曲线,结果示于图 4。由于 fA 量级的弱信号测量信号非常不稳定,因此电离电流的数据获取从开始测量 5 min 后进行记录,仪器读数稳定后自动获取数据,每隔 1 s 记录一个数据,获取 100 个计数后取平均。由图 4 可知,电离室的本底电流和电离电流随风速值的增加而增加,约 0.10 m/s 后达到饱和,在风速较低时,电流随电压的增加而增加。这是由于正、负离子在随气流迁移过程中自身不断复合,离子由产生到被电离室收集的时间经历越长,离子复合的数目越多,相

应的电离电流越小;相反,加大风速,离子在电离室中的运动时间变短,复合数目减少,电离电流则越大。风速达到一定程度后,电离电流趋于最大值。外环境辐射造成大气中具有一定浓度的正、负离子,这些离子不断产生,也在不断复合,在短时间

内可达到平衡,离子浓度基本上不再变化。当被气流带入电离室后即形成本底电流,它随通风电压的增加而增加,形成图 4 中的本底电流曲线。由图 4 可看出电离室工作时的风速值应控制在 0.2~0.3 m/s。本电离室的工作风速为 0.20 m/s。

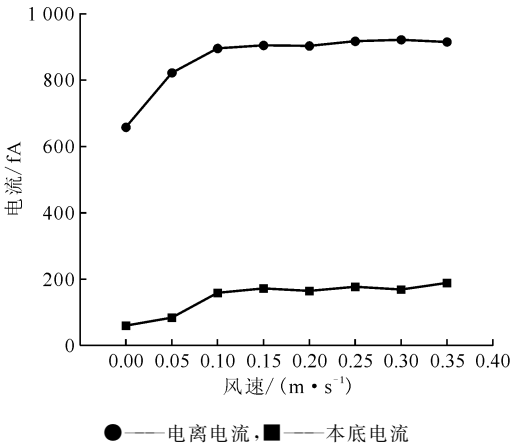


图 4 电离电流随风速变化曲线

Fig. 4 Curve of ionization current with wind speed

对工作电压的选择中,分别测量本底电流和已知活度的²⁴¹Am(525 Bq)电镀源引起的电离电流随偏置高压的变化,变化曲线示于图 5。由图 5 可知,电离室偏置高压增至 50 V 后,电离电流趋于饱和,之后随偏置高压增至 250 V 过程中,电流值变化非常缓慢,即达到了饱和区。本底电流随

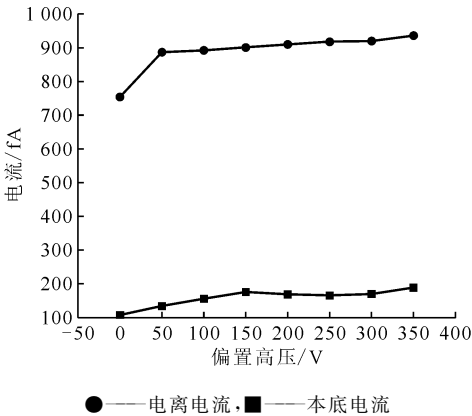


图 5 电离室饱和特性曲线

Fig. 5 Saturation characteristic curve of ionization chamber

偏置高压值的变化在 0~150 V 一直攀升,至 150 V 后进入饱和区。因此本电离室选择共同的饱和区作为工作电压,工作电压为 200 V。

4.2 电离室的线性关系

为了测试仪器对 α 粒子的响应能力,验证流气式电离室测量 α 放射性的可行性,采用不同活度的 α 电镀源(²⁴¹Am、²³⁹Pu 或两种核素的混合源)检测仪器的灵敏度和标定活度响应线性区域。在风速为 0.20 m/s、电压为 200 V 时,测试不同活度放射源与电流值的对应关系,结果列入表 1。由表 1 可见,电离室对放射性活度在几十 Bq~几千 Bq 区间内的放射源产生的电流值变化,具有较好的线性关系,随着放射源活度的增强,生成的离子密度变大,复合效应变大,因此电离电流值线性系数变大,因此流气式电离室测量较强活度的放射源时,需进行相应的刻度。

表 1 不同活度放射源(电镀源)的电流值
Table 1 Current values of radioactive source with different activities

源编号	活度/Bq	电流/fA	线性系数/(Bq·fA ⁻¹)
1	76	133	0.574
2	525	910	0.577
3	1 300	2 259	0.575
4	1 830	3 179	0.576
5	5 800	9 999	0.580
4+5 *	7 630	13 100	0.582
3+4+5 **	8 930	15 188	0.588
			(0.579)

注: * 为 4 号源和 5 号源叠加使用; * * 为 3 号源、4 号源和 5 号源叠加使用;括号中数值为平均值

4.3 探测器对模拟样品的响应测试

为了验证流气式电离室对多孔样品上 α 粒子的响应能力,使用经溶解工序分析已知其表面放射性活度的表面不规则样品板(样品编号 1、2、3、4、5、6、7)刻度电离室的效率曲线。在电压为 200 V、风速为 0.20 m/s 的情况下,测试不同活度放射源与电流值的对应关系,结果列入表 2。由表 2 可知,样品 1 和样品 2 的线性系数相比其他样品的线性系数约有 1.6% 的差异,这种差异在高活度样品中表现的更为强烈,因此

在不同活度样品的测量中,建议根据样品活度大小分区域进行电离室表征。

表 2 不同活度放射源(表面不规则)的电流值

Table 2 Current values of radioactive source with different activities(irregular surface)

样品 编号	活度/ Bq	电流/ fA	线性系数/ (Bq·fA ⁻¹)	平均线性系数/ (Bq·fA ⁻¹)
1	2.38×10 ²	9.68×10	2.459	2.456
2	4.27×10 ³	1.74×10 ³	2.452	
3	6.60×10 ⁴	2.67×10 ⁴	2.472	2.477
4	1.33×10 ⁵	5.39×10 ⁴	2.469	
5	4.78×10 ⁴	1.92×10 ⁴	2.488	
6	3.65×10 ⁷	1.47×10 ⁷	2.475	
7	5.10×10 ⁷	2.06×10 ⁷	2.479	

在实际样品的测量中,用 10⁴~10⁷ Bq 对应的线性系数表征电离室,得出的平均线性系数为 2.477 Bq/fA,对一未知活度的多孔样品进行测量,其电流值为 1.35×10⁶ fA,计算其活度值为 3.35×10⁶ Bq,与高纯锗 γ 能谱法测量得出的活度值 3.29×10⁶ Bq 在误差范围内一致。

5 结 论

本工作针对低水平放射性的大面积多孔超铀核素样品研制了一套大面积流气式电离室,研究了不同电离室结构和输出回路对电离室性能的影响,测试了流气式电离室的工作条件、线性关系以及对多孔样品的响应,该电离室对 10²~10⁷ Bq 活度范围的多孔超铀核素样品线性良好,可满足核设施退役中对大面积多孔样品的分析要求。

参考文献:

[1] 田东风. 核材料 γ 特征谱的探测和分析技术[M]. 北京:国防工业出版社,2005:21-22.
[2] Macarthur D W, Allander K S, Bounds J A. Long

range alpha detector, LA-12073-MS[R]. New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 1991.
[3] Macarthur D W, Allander K S, Bounds J A. Small long range alpha detector with computer readout, LA-12119-MS[R]. New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 1991.
[4] Macarthur D W, Allander K S, Bolton R D. Alpha detection for characterization of D&D sites[C] // Winter Meeting of the American Nuclear Society, Nov 13-18, 1994, Washington, DC (United States). Washington: Transactions of the American Nuclear Society, 1994.
[5] Bolotn R D. Radon monitoring using long range alpha detector-based technology[C]. Proceedings of 1994 IEEE Nuclear Science Symposium: NSS'94, Norfolk, VA, USA, Oct. 30-Nov. 4, 1994. USA, 1994: 940-944.
[6] Naito S, Sano A, Izumi M, et al. Development of ion current prediction model in alpha radioactivity measurement using ionized air transportation[J]. Transactions of the Atomic Energy Society of Japan, 2005, 4(1): 7-15.
[7] 韩景泉. 离子收集式 α 探测器[J]. 原子能科学技术, 1998, 32(6): 503-509.
[8] 穆克亮. LRAD 测量系统开发及关键因素特征研究[D]. 成都:成都理工大学,2010.
[9] 张丽然,颜瑜成,刘良柱,等. RBF 神经网络校正长距离 α 测量的非线性研究[J]. 核电子学与探测技术, 2016, 36(7): 726-728.
[10] 付军. 长距离 α 污染测量仪的研制[D]. 成都:成都理工大学,2008.
[11] 谭昭怡,常瑞敏,李烨. 电离法测量管道内壁 α 污染水平初探[J]. 电子测量与仪器学报, 2008, 22(6): 108-111.
[12] 付军,庾先国,廖哲,等. LRAD 技术在 α 表面污染监测中的应用[J]. 核电子学与探测技术, 2007, 27(5): 830-832, 851.