

基于 BIXS 方法的气体中高浓度氚在线测量技术

杨 阳, 赖财锋, 黄 坡, 李 余, 陈志林*

中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621999

摘要: 工艺气体中高浓度氚的在线测量要求探测器具有体积小、密封性好、稳定性高等特点。针对该需求, 本工作基于氚 β 射线诱发 X 射线谱测量方法(BIXS)建立了高浓度氚在线测量实验系统, 采用 PENELOPE 程序建立了理论计算模型, 对系统中 5 个关键参数进行了设计优化, 搭建了 1.77 mL 小体积 BIXS 实验系统, 使用含氚的氢氩混合气体对实验系统进行了响应能谱测量, 并对获得的 BIXS 能谱谱形进行了初步分析。实验结果表明, 对于含氚的氢氩混合气体, BIXS 系统重复测量结果显示全谱计数率偏差 $< 0.8\%$, Ar 的 K_{α} 峰计数率偏差 $< 1.3\%$, Au 的 M_{α} 峰偏差 $< 3.8\%$, 整体稳定性较好; 不同压强下 BIXS 实验系统测量结果显示, BIXS 能谱总计数率、Ar 的 K_{α} 峰强度以及韧致辐射谱强度随压强增加呈线性上升趋势, 但 Au 的 M_{α} 峰强度在该气氚下几乎不随氚的分压改变。

关键词: 氚测量; 在线测量; β 射线诱发 X 射线

中图分类号: TL81 文献标志码: A 文章编号: 0253-9950(2021)03-0263-06

doi: 10.7538/hhx.2021.43.03.0263

On-Line Measurement of High Concentration Tritium Based on BIXS Method

YANG Yang, LAI Cai-feng, HUANG Po, LI Yu, CHEN Zhi-lin*

Institute of Nuclear Physics and Chemistry,
China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, China

Abstract: The high concentration tritium on-line measurement in tritium processing system requires the detector to have the characteristics of small volume, good sealing and high stability. Therefore, the on-line tritium measurement system is established based on β -ray induced X-ray spectrometry(BIXS) in this paper. The key parameters of this system was optimized by PENELOPE code. And the system is built and the volume of BIXS measurement chamber is 1.77 mL. The response of this system was evaluated by using hydrogen and argon mixed gas containing tritium. The results of repeated experiments show that the deviations of total counting rate of BIXS spectra and the characteristic X-ray of Ar and Au are less than 0.8%, 1.3%, 3.8%, respectively. In addition, the counting rate of BIXS spectra, characteristic peak of argon and bremsstrahlung linearly increase with pressure, however the

收稿日期: 2021-03-16; 修订日期: 2021-05-18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11922509)

* 通信联系人: 陈志林

intensity of characteristic peak of Au hardly changes with the tritium partial pressure in this atmosphere.

Key words: tritium measurement; on-line measurement; β -ray induced X-ray

随着聚变能源项目的逐级推进,氚操作量也将从实验室级逐渐推进到聚变堆级。而氚准确测量是聚变堆氚安全、工艺控制以及燃料衡算的基础。聚变堆氚工艺系统中的氚浓度范围覆盖 15 个数量级,涉及到工艺系统内、手套箱及流出物的分析测量。手套箱及流出物内氚含量较低,防护级及流出物中的氚测量技术能够满足测量需求,但工艺系统内高浓度氚的在线测量技术尚需展开深入研究。工艺级气体中的氚测量气量少,氚含量高(可高达纯氚级),因此需要探测器具有体积小、密封性好、稳定性高等特点。

气体中高浓度氚在线测量技术主要有拉曼光谱法^[1]、电离室法^[2]和 β 射线诱发 X 射线谱测量方法(β -ray induced X-ray spectrometry, BIXS)^[3],其测量范围、响应时间、工作气氛、工作气压各不相同。其中 BIXS 方法的工作气压为 $10^{-3} \sim 10^5$ Pa,能够在其余两种方法无法工作的气压下($10^{-2} \sim 10^3$ Pa)进行氚浓度测量,即该方法对工作气压与工作气氛无特殊要求。BIXS 方法由日本富山大学氢同位素研究中心提出,早期仅通过 BIXS 能谱的总计数计算气体中氚的分压,没有进行能谱分析^[4]。德国卡尔斯鲁厄氚实验室(TLK)基于该方法搭建了高浓度氚在线测量系统,使用 Geant4 程序进行模拟优化^[5],并分析了不同测量室材料对氚记忆效应的影响^[6],系统对氚分压的探测下限为 7.1×10^{-3} Pa^[7]。国内方面,中国原子能科学研究院基于 NaI 探测器建立了 BIX 氚分压测量系统,基于能谱总计数获得测量室内氚的分压,并对氚分压为 $1 \sim 1 \times 10^5$ Pa 范围内的含氚气体进行实验测量^[8]。为了进一步提升该方法的探测效率,分析 BIXS 能谱与氚分压及气氛的关系,本工作基于高分辨硅漂移探测器(silicon drift detector, SDD)建立 BIXS 测量系统,优化测量室关键参数,实验测量该系统在不同压强下的响应并对测量能谱进行初步分析。

1 基于蒙特卡洛方法的 BIXS 实验系统设计及优化

1.1 BIXS 计算模型

BIXS 方法通过测量氚 β 射线在测量室室壁

材料中诱发的 X 射线谱计算测量室内气体氚浓度。图 1 为基于 PENELOPE 程序^[9]而建立的 BIXS 方法的蒙特卡洛(Monte Carlo, MC)计算模型。BIXS 系统主要由测量室、探测器、探测器真空室三部分构成。测量室为 BIXS 系统设计的关键,测量室为圆柱腔室,主材料为不锈钢,内壁镀有金层,一方面能够提高 β 射线-X 射线转换效率,另一方面能够减小氚的记忆效应;测量室底部为镀有金层的铍窗,在密封测量室的同时提高 X 射线的透过率;此外,为提高探测效率,探头处于低真空环境。影响系统探测效率的参数主要为测量室尺寸(高度及直径)、测量室镀金层厚度(图 1 中 Au 层-1 厚度)、铍窗厚度、铍窗镀金层厚度(图 1 中 Au 层-2 厚度)、探测器到测量室的距离,因此本工作详细讨论了上述 5 个参数对探测效率的影响。

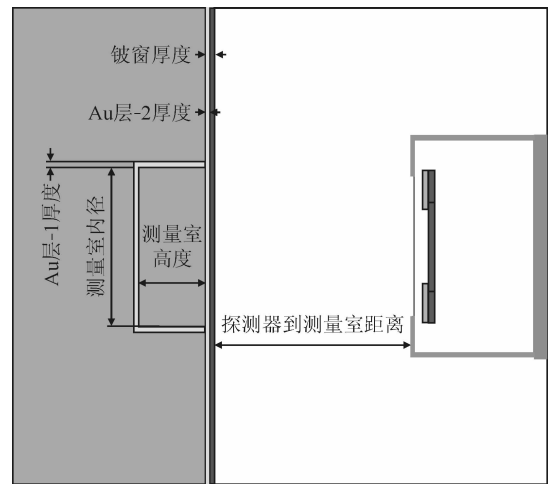
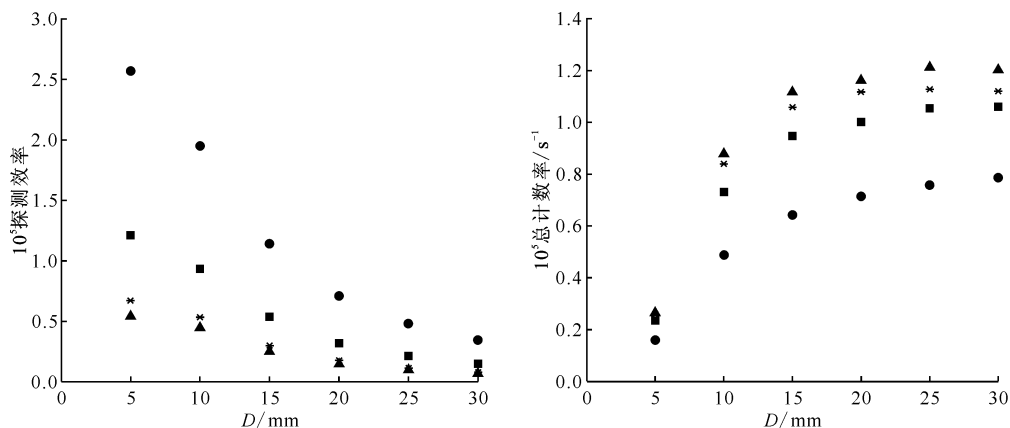


图 1 BIXS 测量系统计算模型

Fig. 1 Calculation model of BIXS system

1.2 BIXS 测量室尺寸

在气氛为氢气、测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 500 nm、铍窗厚度为 $125 \mu\text{m}$ 、铍窗镀金层厚度为 100 nm 的条件下,使用 PENELOPE 程序分别模拟了不同测量室高度($H = 3.2, 10, 20, 25$ mm)及内径($D = 5, 10, 15, 20, 25, 30$ mm)对 BIXS 能谱探测效率与能谱计数率的影响,结果示于图 2。由图 2 可以看出,随着测量室高度与内



1×10^5 Pa 氢气, 测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 500 nm, 铍窗厚度为 125 μm , 铍窗镀金层厚度为 100 nm, 探测器到测量室距离为 2 mm
H, mm: ●——3.2, ■——10, *——20, ▲——25

图 2 BIXS 测量室高度及内径对探测器探测效率(a)与总计数率(b)的影响

Fig. 2 Influence of height and diameter of BIXS measurement chamber on detection efficiency(a) and total counting rate(b)

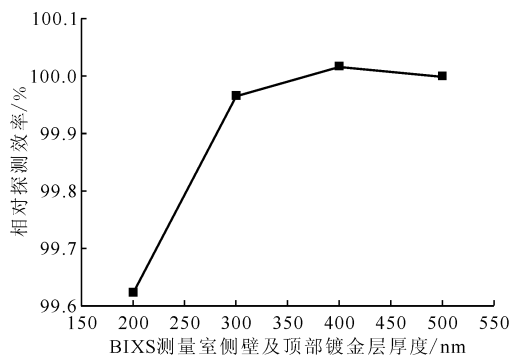
径的增加, 探测效率逐渐减小, 但同时由于测量室的体积增加, 即测量室内部的氡总量增加, 计数率又呈上升趋势。综合考虑计数率与探测效率以及测量室装配的可行性, 选择高度为 10 mm、内径 15 mm 作为 BIXS 测量室内部尺寸, 即 BIXS 测量室灵敏体积为 1.77 mL。

1.3 BIXS 测量室镀金层厚度

氡 β 射线在 Au 中的最大射程为 310 nm, 因此讨论了 BIXS 测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 200、300、400、500 nm 下探测器的相对探测效率, 结果示于图 3。图 3 模拟结果表明, 测量室侧壁及顶部镀金层厚度在 200~500 nm 范围内对相对探测效率影响不大。为减小不锈钢材料特征 X 射线对 BIXS 能谱影响, 同时考虑镀金工艺, 选择 400 nm 作为 BIXS 测量室侧壁及顶部镀金层厚度。

1.4 铍窗镀金层厚度

BIXS 测量室铍窗镀金层对能谱中 Au 的特征 X 射线贡献最大。若其厚度太小, 则将降低 β 射线到 X 射线的转换效率, 进而降低探测器探测效率。而铍窗镀金层太厚则会阻挡低能 X 射线到达探测器, 同样降低探测器探测效率。因此, 本工作计算了 20~400 nm 范围内铍窗镀金层厚度对探测器相对探测效率的影响, 计算结果示于图 4。由图 4 可以看出, 铍窗镀金层厚度在 20~400 nm 间变化时, 相对探测效率的最大值出现在 100 nm 处, 因此铍窗镀金层厚度选择为 100 nm。



1×10^5 Pa 氢气, 测量室高度为 10 mm、内径为 15 mm, 铍窗厚度为 125 μm , 铍窗镀金层厚度为 100 nm, 探测器到测量室距离为 2 mm

图 3 BIXS 测量室侧壁

及顶部镀金层厚度对相对探测效率的影响

Fig. 3 Influence of thickness of Au on side and top of inner wall of BIXS measurement chamber on relative detection efficiency

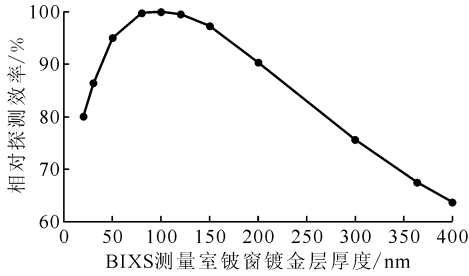
1.5 铍窗厚度

设铍窗厚度为 125 μm 时, 探测器相对探测效率为 100%。经过模拟计算, 探测器相对探测效率与铍窗厚度的变化曲线示于图 5。图 5 计算结果表明, 铍窗厚度越薄, 探测器相对探测效率越大, 但基于铍窗机械强度以及稳定性考虑, 最终选择 100 μm 作为 BIXS 测量室铍窗厚度。

1.6 BIXS 测量室到探测器距离

确定 BIXS 测量室参数后, 为搭建 BIXS 实验系统, 还需明确探测器与 BIXS 测量室距离对测量结果的影响。假设探测器与 BIXS 测量室距离为

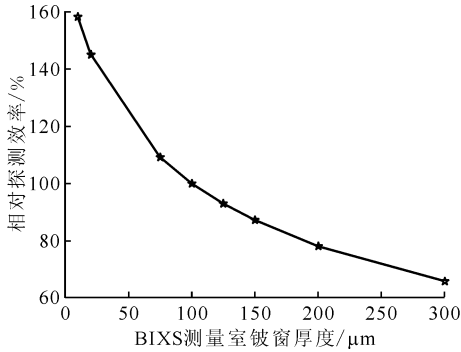
5 mm时,相对探测效率为 100%,则该距离与相对探测效率的关系示于图 6。由图 6 可以看出,随着探测器到 BIXS 测量室距离的增加,相对探测效率呈减小趋势。由于刀口法兰装配与铍窗支撑件限制,最终确定探测器与测量室的距离为 6 mm。



1×10^5 Pa 氢气,测量室高度为 10 mm、内径为 15 mm,测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 500 nm,铍窗厚度为 $125 \mu\text{m}$,探测器到测量室距离为 2 mm

图 4 BIXS 测量室铍窗镀金层厚度对相对探测效率的影响

Fig. 4 Influence of thickness of Au on Be window in BIXS measurement chamber on relative detection efficiency



1×10^5 Pa 氢气,测量室高度为 10 mm、内径为 15 mm,测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 500 nm,铍窗镀金层厚度为 100 nm,探测器到测量室距离为 2 mm

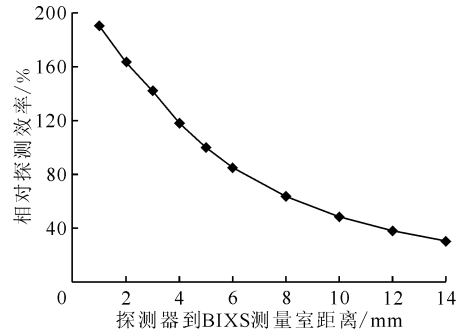
图 5 BIXS 测量室铍窗厚度对相对探测效率的影响

Fig. 5 Influence of thickness of Be window on relative detection efficiency

2 BIXS 实验测量系统

基于上述关键参数与高分辨 SDD 探测器搭建了 1.77 mL 小体积 BIXS 实验测量系统(图 7),其中图 7(a)为 BIXS 测量室照片,图 7(b)为 BIXS 实验测量系统。BIXS 测量室内嵌在一个定制的 CF25 盲法兰中,进气管道与出气管道均为外径 3.175 mm 不锈钢管道,通过焊接固定在测量室两侧;BIXS 测量室通过 CF25 刀口法兰与探头真空

室密封连接;SDD 探测器探头位于探头真空室中,探测器自带 CF40 探头密封组件与探头真空室下端通过 CF40 刀口法兰盘密封连接。BIXS 测量室与探头真空室均接入真空计测量其中的真空度。



1×10^5 Pa 氢气气氛,测量室高度为 10 mm、内径为 15 mm,测量室侧壁及顶部镀金层厚度为 500 nm,铍窗厚度为 $125 \mu\text{m}$,铍窗镀金层厚度为 100 nm

图 6 BIXS 测量室到探测器距离对相对探测效率的影响
Fig. 6 Influence of distance between BIXS measurement chamber and detector on relative detection efficiency

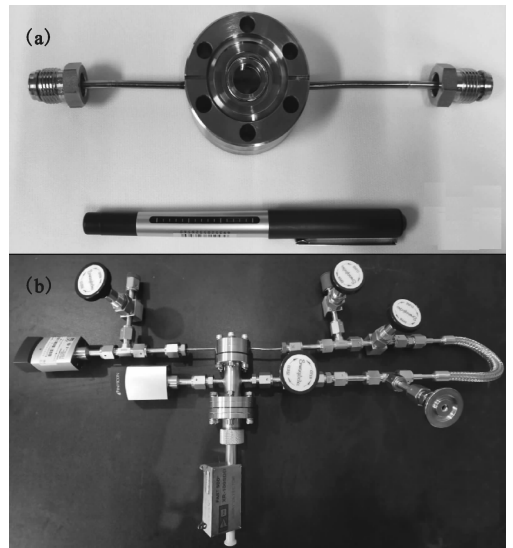


图 7 BIXS 测量室照片(a)及 BIXS 实验测量系统照片(b)

Fig. 7 Photo of BIXS measurement chamber(a) and photo of BIXS experimental system(b)

3 含氡的氢氡混合气体的测量

3.1 测量方法

进行氡测量实验前,首先采用氦质谱检漏仪对测量系统漏率进行检测;非测量时间内,BIXS 测量室内部保存 1×10^5 Pa 氢气,进行本底采集。

实验开始前,采用分子泵机组将 BIXS 测量室抽真空至 1×10^{-2} Pa 以下,然后向测量室内充入含氡气体。本次实验采用体积比为 1:1 的氢、氡混合气体,其中氡的活度浓度为 3.61×10^{11} Bq/m³。先控制测量室压强为 55 kPa,多次测量 BIXS 能谱获得实验系统稳定性与测量精度;再控制测量室压强为 20~70 kPa,每个压力点测量 24 h,获得不同压强下 BIXS 实验能谱。实验结束后采用催化氧化+分子筛吸附的方式除去测量室中气体。

3.2 结果与讨论

BIXS 实验系统漏率 $\leq 1 \times 10^{-10}$ Pa · L/s。在压强为 55 kPa 时对 BIXS 实验能谱进行测量,结果示于图 8。如图 8 所示,能谱中可以清晰地分辨 Ar 的 K_{α} 、 K_{β} 特征峰,Au 的 M_{α} 特征峰,以及不锈钢中 Fe 与 Ni 的 K_{α} 特征峰。四次测量中全谱计数率偏差 $< 0.8\%$,Ar 的 K_{α} 特征峰计数率偏差 $< 1.3\%$,Au 的 M_{α} 特征峰计数率偏差 $< 3.8\%$,可以看出该方法的测量结果稳定性较好。由于氡的记忆效应,实验结束后,BIXS 能谱范围内(0~18.6 keV)本底总计数率由 0.011/s 抬升至 0.075/s,使用机械泵除气 12 h 后,本底计数率下降至 0.036/s。

不同压强下的 BIXS 能谱及计数率示于图 9。由图 9 可以看出,随着压强的增加,即测量室内氡

总量的增加,能谱的总计数率呈增加趋势,其中韧致辐射谱及 Ar 的特征峰计数率均呈线性增加趋势,且 Ar 峰计数率的线性明显好于能谱总计数率。但由于混合气体中 Ar 气的存在,氡 β 射线将更多的能量损失在了气体中而非镀金层中,使得 Au 的特征 X 射线峰强度几乎不随气体压强变化,如图 9(b)中的红色线条所示,由此还可以通过 Ar 峰与 Au 峰的比值判断测量室内总气压与氡的分压。此外,对比 BIXS 能谱总计数率的模拟值(图 9(b)中青绿色线条)与实验值(图 9(b)中蓝色线条),可以看出在该条件下模拟结果与实验结果较为吻合。

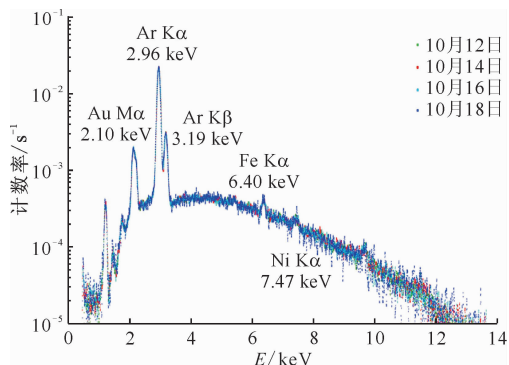


图 8 BIXS 实验系统测得能谱

Fig. 8 Spectra obtained by BIXS experimental system

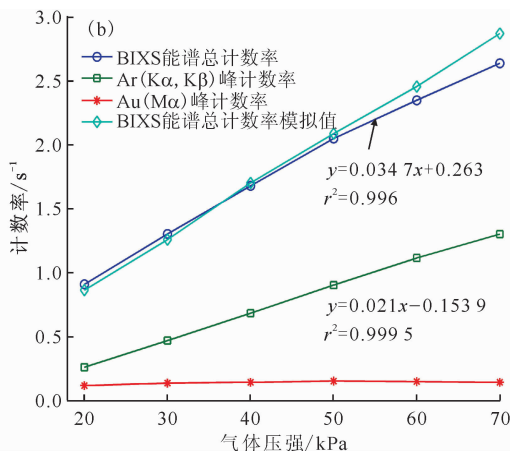
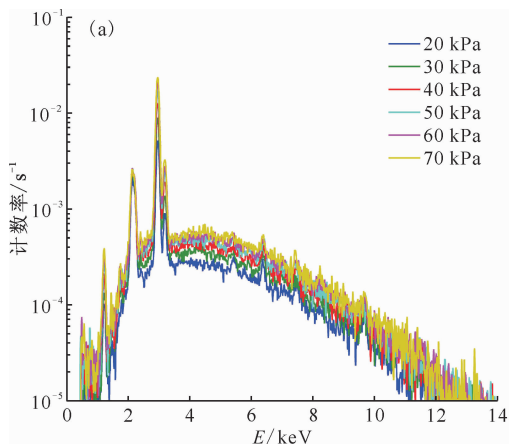


图 9 不同压强下 BIXS 实验系统测得能谱(a)及 BIXS 能谱各部分计数率随压强变化关系(b)

Fig. 9 Spectra obtained by BIXS experimental system under different pressure(a),

and total counting rate of BIXS spectra and characteristic peaks under different pressure(b)

4 结论

基于 BIXS 方法建立了高浓度氡在线测量实验系统,采用 MC 方法设计并优化了系统关键参

数,搭建了 1.77 mL 小体积 BIXS 实验系统,通过实验测量获得 20~70 kPa 含氡氢氡混合气体的 BIXS 能谱,并对能谱各部分进行了初步分析。实验结果表明;BIXS 系统重复测量结果显示全谱计

数率偏差 $<0.8\%$, Ar 的 $K\alpha$ 峰计数率偏差 $<1.3\%$, Au 的 $M\alpha$ 峰计数率偏差 $<3.8\%$, 整体稳定性较好; 不同压强下 BIXS 实验系统测量结果显示, BIXS 能谱总计数率、Ar 的 $K\alpha$ 峰计数率以及韧致辐射谱计数率随压强增加呈线性上升趋势, 但 Au 的 $M\alpha$ 峰计数率在该气氛下几乎不随氙的分压改变; 此外, 该条件下 BIXS 能谱的模拟结果与实验结果较为吻合。

参考文献:

- [1] O'hira S, Hayashi T, Nakamura H, et al. Improvement of tritium accountancy technology for ITER fuel cycle safety enhancement[J]. Nucl Fusion, 2000, 40: 519-525.
- [2] Chen Zhilin, Peng Shuming, He Yuehong, et al. Theoretical study of Jesse effect in tritium measurements using ionization chambers[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res A, 2016, 806: 267-270.
- [3] Shu W, Matsuyama M, Suzuki T, et al. Monitoring of tritium in diluted gases by detecting bremsstrahlung X-rays[J]. Fusion Eng Des, 2006, 81: 803-808.
- [4] Matsuyama M, Watanabe K, Yamazaki T. Improvement of bremsstrahlung counting method for measurements of gaseous tritium[J]. Fusion Technol, 1995, 28: 1045-1049.
- [5] Röllig M, Aso T, Hara M, et al. Galet-Benchmark of a Geant4 based application for the simulation and design of beta induced X-ray spectrometry systems[J]. Fusion Eng Des, 2019, 143: 91-98.
- [6] Aker M, Röllig M. Material studies to reduce the tritium memory effect in BIXS analytic systems[J]. Fusion Sci Technol, 2020, 76: 373-378.
- [7] Röllig M. Tritium analytics by beta induced X-ray spectrometry[D]. Germany: Karlsruhe Institute for Technology, 2015.
- [8] 郭一帆, 刘志珍, 吉晓梅, 等. 含氙气体中氙分压 BIX 在线测量方法研究[J]. 原子能科学技术, 2016, 50(2): 363-368.
- [9] Salvat F. The PENELOPE code system: specific features and recent improvements[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, 82: 98-109.