

电离室氚活度浓度标定及稳定性测量

李语奇, 占勤, 常鸣, 张培旭, 袁晓明, 杨洪广*

中国原子能科学研究院 反应堆工程技术研究所, 北京 102413

摘要: 电离室测氚在氚工厂、核聚变实验堆、环境监测以及各种涉氚实验装置中得到了广泛的应用。通过PVT法配制一定氚活度浓度的含氚气体, 利用自主研发的流气式丝壁电离室实验系统, 进行电离室氚标定实验, 通过正交实验验证影响因素, 从而完成对电离室的刻度。结果表明, 该类电离室测量稳定性优异, 相对偏差均小于1%, 压力影响线性相关性均约为1, 记忆效应影响较小。电离室IC1、IC2、IC3刻度系数分别为 1.35×10^{18} 、 1.34×10^{18} 、 1.33×10^{18} 。该电离室实验系统能够长期并在线实时准确测量氚, 能很好地满足涉氚场所氚在线测量的要求。

关键词: 电离室; PVT法; 氚活度浓度; 氚测量

中图分类号: TL81 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2021)03-0269-05

doi: 10.7538/hhx.2021.43.03.0269

Calibration and Stability Measurement of Tritium Activity Concentration With Ionization Chamber

LI Yu-qi, ZHAN Qin, CHANG Ming, ZHANG Pei-xu,
YUAN Xiao-ming, YANG Hong-guang*

Reactor Institute of Engineering and Technology, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China

Abstract: The tritium measurement in ionization chamber will be widely used in tritium plant, nuclear fusion reactor, environmental monitoring and various tritium related experimental devices. The gas with certain tritium activity concentration was prepared by PVT. The tritium calibration experiment was carried out by using the flow gas type filament wall ionization chamber experimental system, and the influencing factors were verified by orthogonal experiment, so that the calibration of ionization chamber was completed. The results show that the stability of the ionization chamber is excellent, the relative deviation is less than 1%, the linear correlation of pressure effect is about 1, and the memory effect is less. The calibration coefficient of ionization chamber IC1, IC2 and IC3 is 1.35×10^{18} , 1.34×10^{18} , and 1.33×10^{18} respectively. It can measure tritium accurately and on-line for a long time and can meet the requirements of tritium measurement in tritium related places.

Key words: ionization chamber; PVT method; tritium activity concentration; tritium calibration

国际热核聚变实验堆(ITER)涉氚系统中,氚的测量是一项重要内容,通过测量可掌握氚的生产、消耗和损失^[1]。氚的测量有多种方式,例如利用量热计、电离室与正比计数管,对气态氚比活度的测量;利用气相色谱或拉曼光谱,对气态氚化学成分与浓度的测量;以及利用液闪法测量液体氚活度等^[2]。吴斌等^[3]设计的 TAM-II 型实时连续氚监测仪用 30 根 $\phi 0.12$ mm 的镍丝代替电离室圆筒;陈志林等^[4]设计了网面壁电离室;Ichiki 等^[5]设计了一种高精度电离室,该电离室使用磁悬浮电极;Munakata 等^[6]设计了一套超小灵敏体积电离室,研究了等摩尔氚-氚混合气体的气压相关性。根据测氚相关国家标准,流气式电离室利用已知含氚气体,循环在固定体积的闭合气路中,进行标定实验。通过气压体积(PVT)法配制一定氚活度浓度的含氚气体,通过氚活度浓度对应的电离室电流值 I (扣除本底电流)进行线性拟合,可以得到刻度系数 K ,该值可以真实反映电离室对氚活度浓度的响应^[7]。

1 电离室工作原理

电离室是工作在电离区、通过收集射线在电离室内产生的电离离子而探测射线强度的电流型气体探测器,其结构示意图示于图 1。理想情况下,所有进入电离室灵敏体积的射线能量均用于电离电离室内工作气体,即所有产生的电离离子都被收集,这时电离室将输出一饱和电流信号 I ^[8]。此时电离室内的氚活度浓度 C 可以表示为:

$$C = \frac{K}{\left(\frac{p}{p_0}\right)(1 - Ae^{-Bp})} \cdot I \quad (1)$$

式中: I , 电流信号值, A; p , 气体压力, kPa; T , 电离室气腔内气体温度, K; C , 氚活度浓度, Bq/L;

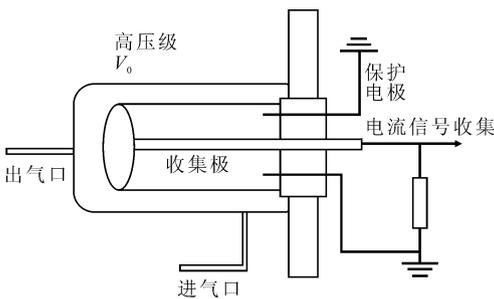


图 1 电离室基本结构图

Fig. 1 Basic structure of ionization chamber

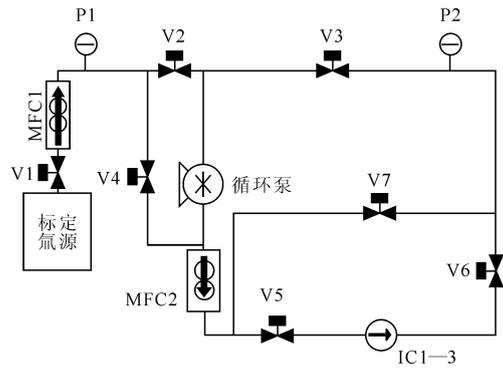
K , 刻度系数, Bq/(L · A); T_0 、 p_0 为标准状态下的温度与气压, $T_0 = 273$ K, $p_0 = 101.3$ kPa; A , 压力影响因子; B , 压力影响因子, kPa⁻¹。

$1 - Ae^{-Bp}$ 的表征曲线分析表明,当电离室内部气压高于一定压力后,温度影响变得不明显,根据电离室实验的条件,可以将电离室测得电流值与氚活度关系进行简化。因 $1 - Ae^{-Bp}$ 约等于 1, 所以式(1)可变换为下式^[9]:

$$C = \frac{K}{\left(\frac{p}{p_0}\right) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)} \cdot I \quad (2)$$

2 实验系统与实验流程

自主研制的实验系统主要由氚气配制单元、气体循环单元、真空与除氚单元、电离室待测单元四个单元组成,可分别实现含氚气体的配制、测量气路中气压与流速的控制、装置的除气除氚以及氚活度的测试等功能,通过整套装置可以实现电离室的氚活度浓度测量。系统装置示意图示于图 2。该系统中的电离室灵敏体积为 50 mL,氚活度浓度测量范围为 $1 \times 10^7 \sim 1 \times 10^{10}$ Bq/L。



标定氚源处为配制单元,循环泵加气路为循环单元,

P1、P2 为压力表, MFC1-2 为流量计,

V1-V7 为阀门, IC1-3 为电离室待测单元

图 2 电离室氚测量实验系统

Fig. 2 Experimental system for tritium measurement in ionization chamber

2.1 含氚气体配制

氚气配制单元由储氚床、高压 $\text{He} + 2 \times 10^{-3}$ (体积分数,下同) H_2 气源、标准气源储气罐、高低量程普及高精度传感器(100 Pa 与 10 kPa)、常压传感器(100 kPa)以及高密封性全金属波纹管阀门等部件组成。通过加热储氚床释放一定体积的氚气,与一定体积的 $\text{He} + 2 \times 10^{-3} \text{H}_2$ 气混合后,

可实现所需浓度待测氡气的配制。按照实验所需浓度气体配制的流程,将标准含氡气体充入气路,配制 200 kPa 的含氡混合气体。再根据标定所用浓度,配制了 $4 \times 10^7 \sim 1 \times 10^{10}$ Bq/L 浓度范围内 5 个不同浓度的含氡气体,并按照 80~120 kPa 等 5 个阶梯待测气压,补充至循环气路中。

2.2 实验内容与流程

氡测量实验装置必须进行气密性检漏。漏率必须优于 1×10^{-10} Pa·m³/s。按氡浓度由低至高进行测量,并控制流量、压力,至实验完成,回收氡气并开展记忆效应实验。完成测试后对坪特性(饱和电流)、压力特性、以及数据不确定度等进行分析。

2.2.1 本底测试 将氡气循环系统抽至本底真空后,按照 80~120 kPa 等 5 个阶梯待测气压配制循环气路中的气体压力。并按照 50~1 000 mL/min(标准状态,下同)流速进行本底流速实验。记录电离室在不同气压、流速下测到的本底电流值,用于观察记忆效应影响。

2.2.2 电离室性能以及影响因素正交实验 氡测量实验影响因素参数列于表 1。

(1) 饱和电流影响

按照气体配制流程配制一定浓度气体充入气

路后,工作电压从 0 升至 -300 V,记录电流变化情况,以及饱和电流稳定情况。

(2) 压力特性影响

配制含氡混合气后,通过放气阀门控制压力在 80~120 kPa 下,以 10 kPa 变化步阶,每一阶段保持 10~20 min,待压力稳定记录电离室流量及变化情况。

(3) 流速影响

通过设定不同流速(0~1 000 mL/min),调节电离室压力数值处于稳定压力下,记录特定流量下电离室测量信号输出结果,评价气体流速对电离室的影响。

(4) 记忆效应影响

每一浓度实验完毕后,打开除氡床以及循环泵,使含氡样品气连续经过进行过滤回收,在此过程中记录电离室电流变化情况。

(5) 活度测量线性特性影响

氡活度浓度 C 与电离室电流信号值 I 成线性关系。通过配制的已知浓度的氡气与测量得到的电流信号值 I ,按(2)式拟合得到刻度系数 K 及电离室电流信号值-氡活度浓度及压力影响的刻度关系。

表 1 氡测量实验影响因素参数

Table 1 Influencing factors parameters of tritium measurement experiment

影响因素	变化范围	主要控制设备	测量设备	其他实验条件
工作电压	0~-300 V	高压	电子学系统	恒定温度压力流速
压力	80~120 kPa	V6/V8/MFC1	P2/IC1-3	流速 0/500/1 000 mL/min
流速	0/50/100/1 000 mL/min	MFC2/循环泵	MFC2/IC1-3/P2	压力稳定
记忆效应	载气吹扫 1~5 次、时间 1~6 h	真空系统	IC1-3/P2	压力流速稳定不变

3 结果与讨论

3.1 含氡气体

根据 PVT 法配制了氡活度浓度 C 为 2.718×10^{10} Bq/L 的含氡气体。通过一定的取样容积,释放不同压力的含氡气体,利用标准气体 $\text{He} + 2 \times 10^{-3} \text{H}_2$ 气源填充至待测所需压力。计算得到气路中氡活度浓度,用于活度浓度测量线性分析。

3.2 饱和电流

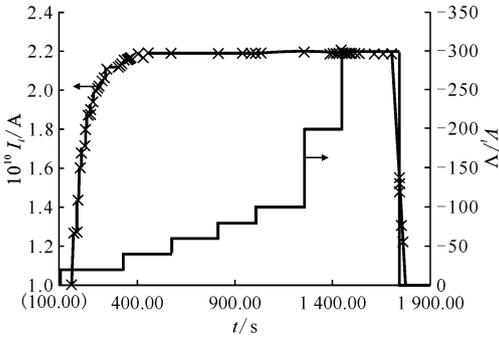
根据电离室的工作原理,其不同的气体介质必有不同的饱和电流。通过逐步改变加在电离

室上的工作高压 V_i 开展坪特性测量,随着工作电压 V_i 不断增加,记录每个工作电压 V_i 所对应的电流值 I_i 。从而得到工作电压与饱和电流的关系(图 3)。

从 0 V 开始不断增加负高压,当负高压达到 -40 V 后,饱和电流达到稳定。实验最终选用稳定的 -300 V 工作电压。

3.3 压力特性

开始压力特性试验后,保持压力稳定,记录电离室的电流值,根据式(2)绘制电离室 80~120 kPa 下对应的电流值与氡活度浓度的关系曲线^[10],结果示于图 4。



室温, 100 kPa, 1 000 mL/min

图3 IC3 电离室饱和电流与工作电压的关系

Fig. 3 Saturation current and operating voltage of ionization chamber 3

由图4可知, 80~120 kPa 气压下电离室测量电流值与对应氚活度浓度值线性良好, 线性相关系数均约为1。

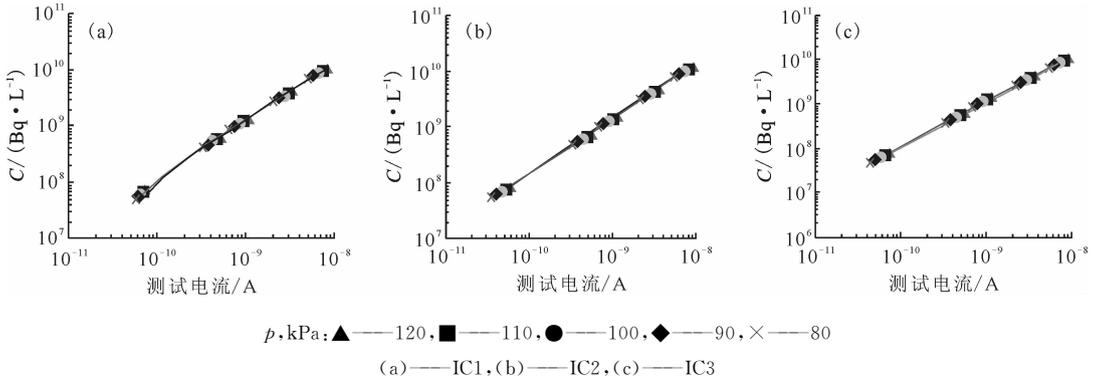


图4 气压修正后电离室 IC1—3 对应的电流与氚活度浓度关系

Fig. 4 Relationship between current of IC1-3 and tritium activity concentration after air pressure corrected

3.6 测量重复性偏差

重复性是评估数据采集系统在短时间内性能稳定性以及放射性活度不确定度评定中的因素之一, 通过重复测量某一个工作电压下的电流值的稳定性来评估计数系统的重复性。重复性计算至少取6次测量的标准偏差来评估, 通过20 min内每1 min收集一个电流值, 取每4 min电流值的平均值进行重复性的评估, 重复性由贝赛尔公式来评价。以氚活度浓度为 10^9 量级测量结果为例, 重复性结果列于表2。

由表2可知, 保持1 000 mL/min、100 kPa, 测试每分钟的平均电流, 得到其相对标准偏差均小于1% ($n=5$), 稳定性良好。

3.7 活度测量线性特性

采用前述通过PVT法配制的氦中氢载气的

3.4 流速影响

在氦实验装置内, 保持气压为100 kPa左右, 调整流速分别为1 000、500、100 mL/min。记录-300 V电压下, 电离室电流变化情况。以氚活度浓度为 10^9 量级测量结果为例, 在保持气压为100 kPa, 流速分别为1 000、500、100 mL/min, -300 V电压下, 50 min内电离室IC1、IC2、IC3的平均电流分别为 3.27×10^{-9} 、 3.28×10^{-9} 、 3.29×10^{-9} A, 相对偏差分别为0.21%、0.27%、0.54%, 相对偏差均小于1%。

3.5 记忆效应结果

实验前, 电离室IC2、IC3测量的本底电流分别为 7.61×10^{-13} 、 7.32×10^{-13} A, 实验后分别为 9.81×10^{-13} 、 9.10×10^{-13} A。记忆效应较少, 整体管路冲洗30 min后, 本底值基本回归电离室初始测量值。

表2 100 kPa、1 000 mL/min、20 min内
平均电流及相对标准偏差

Table 2 Average current and relative standard deviation within 20 min at 1 000 mL/min flow rate at 100 kPa pressure

测量结果	IC1	IC2	IC3
每4 min	3.27×10^{-9}	3.28×10^{-9}	3.32×10^{-9}
平均电流/A	3.27×10^{-9}	3.29×10^{-9}	3.32×10^{-9}
	3.27×10^{-9}	3.29×10^{-9}	3.32×10^{-9}
	3.27×10^{-9}	3.29×10^{-9}	3.32×10^{-9}
平均值	3.27×10^{-9}	3.29×10^{-9}	3.32×10^{-9}
标准偏差	$1.849\ 63 \times 10^{-25}$	1.22×10^{-12}	6.38×10^{-13}
s_r	0.00	0.04%	0.02%

含氚气体,按实验要求在 80~120 kPa 压力条件下,完成氚活度浓度 C 与电离室电流信号值 I 线性关系的标定正交实验。通过配制的已知浓度的氚气与测量得到的电流信号值 I ,按式(2)拟合可得到电离室电流信号值-氚活度浓度及压力影响的线性刻度关系及刻度系数 K 。

反之,若不在压力范围内,氚活度浓度与电流值成非线性关系,由式(1)变换得到式(3)、式(4),由式(4)左侧对 p 经线性拟合,即可得到压力指数 A 和 $B^{[11]}$:

$$1 - \frac{KI}{C \cdot \left(\frac{p}{p_0}\right) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)} = A \cdot e^{-Bp} \quad (3)$$

$$\ln \left[1 - \frac{KI}{C \cdot \left(\frac{p}{p_0}\right) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)} \right] = \ln A - Bp \quad (4)$$

通过实验测试后自主研制的镀金电离室 IC1、IC2、IC3 刻度系数分别为 1.35×10^{18} 、 1.34×10^{18} 、 1.33×10^{18} 。其线性相关系数均约为 1。

4 结 论

(1) 电离室 IC1、IC2、IC3 经过气压修正后的刻度系数分别为 1.35×10^{18} 、 1.34×10^{18} 、 1.33×10^{18} 。其线性相关系数均约为 1。对不同浓度氚气响应正常,浓度与配气浓度基本符合。

(2) 在 1 000 mL/min、100 kPa 条件下,测试每分钟的平均电流,稳定性良好,相对标准偏差小于 1% ($n=5$)。

(3) 保持气压为 100 kPa 左右,调整流速为 1 000、500、100 mL/min,在气压不发生改变的情况下,电离室 IC1、IC2、IC3 测量值相对偏差均小于 1%。

(4) 记忆效应较少,整体管路冲洗 30 min 后,本底值基本回归电离室初始测量值。

参考文献:

[1] Nishi M, Yamanishi T, Hayashi T. Study on tritium

accountancy in fusion DEMO plant at JAERI[J]. Fusion Eng Des, 2006, 81: 745-751.

- [2] 何长水,陈细林,杨洪广.微量热计测量低活度氚[J].核化学与放射化学,2016,38(1):47-51.
- [3] 吴斌,杨海兰,温雪莲,等.TAM-II型空气中氚监测仪的研制[J].核电子学与探测技术,2001,21(2):100-102.
- [4] Chen Zhilin, Wei Xiye, Mu Long, et al. Monte Carlo calculation of the compensation ability of ionization chambers in tritium measurement[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res A, 2010, 613: 304-307.
- [5] Ichiki H, Kawaguchi T, Ishibashi K, et al. Radiation monitoring in a synchrotron light source facility using magnetically levitated electrode ionization chambers[J]. Nucl Sci Technol, 2009, 46(12): 1113-1119.
- [6] Munakata K, Berndt U, Kirste E, et al. Experimental and computational determination of deuterium-tritium mixtures with a small volume ionization chamber[J]. Fusion Eng Des, 1998, 39-40: 937-948.
- [7] Yamasaki F, Hamada T, Okano M, et al. Measurement of tritium using ionization chambers[J]. Proc Japan Conf Radioisotop, 1961, 4.
- [8] 吴治华.原子核物理实验方法[M].北京:原子能出版社,1997:69-80.
- [9] Rodrigo L. Effect of impurities on the measurement of tritium in inert gases with ionization chambers JESSE effect revisited[J]. Taylor & Francis, 1995, 28(3P2): 1067-1072.
- [10] Kubota S. Non-metastable penning effect in the alpha-particle ionization of inert gas mixtures[J]. Phys Soc Jpn, 1970, 29(4): 1017.
- [11] Parks J E, Hurst G S, Stewart T E, et al. Jesse effects as a function of pressure[J]. Ionization of Noble Gases by Protons, 1972, 57(12): 5467-5474.