

利用 MCNP 模拟气体裂变产物 混合源的 γ 剂量率

刘杰,倪建忠,师全林,商建波,钟振原,李雪松,
代义华,白涛,何小兵

西北核技术研究所,陕西西安 710024

摘要:西安脉冲反应堆辐照铀靶后,抽取 Kr、Xe 裂变气体,通过活性炭吸附于气体源盒内。HPGe γ 谱仪测量源盒内混合气体活度,塑料闪烁探测器测量 γ 剂量率。将源盒、塑料闪烁探测器的几何结构、材料作为蒙特卡罗程序(MCNP)输入信息,模拟塑料闪烁探测器对源盒中核素活度与其 γ 剂量率对应关系,结合 HPGe γ 谱仪所测活度得到剂量率模拟值,结果与实测值偏差小于 6%。该工作说明在已知放射源空间结构、放射性核素种类和活度的情况下,采用 MCNP 模拟计算复杂气体放射源 γ 剂量率的方法是可行的。

关键词:裂变气体; γ 剂量率;MCNP;塑料闪烁探测器

中图分类号: TL81 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2014)S0-0072-06

doi: 10.7538/hhx.2014.36.S0.0072

Simulation of Gamma Dose Rate of Complicated Fission Gas by MCNP Method

LIU Jie, NI Jian-zhong, SHI Quan-lin, SHANG Jian-bo, ZHONG Zhen-yuan,
LI Xue-song, DAI Yi-hua, BAI Tao, HE Xiao-bing

Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China

Abstract: Gamma dose rate of fission gas is calculated by MCNP method and compared with the data measured by plastic scintillation. The fission gas absorbed by active carbon in source vessel was produced by neutron irradiation of uranium in Xi'an Pulsed Reactor. The simulation model is composed of geometry and material of source and plastic scintillation detector as well as the gamma-ray energies and probabilities of $^{85}\text{Kr}^m$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , $^{135}\text{Xe}^m$, ^{135}Xe , ^{138}Xe and ^{138}Cs whose activities were measured by an HPGe γ detector. The presented calculation shows agreement with experiments less than 6% which consequently confirms the reliability of the simulation for gamma dose rate of complicated radioactive gas.

Key words: fission gas; gamma dose rate; MCNP; plastic scintillation

近年来,国内采用蒙特卡罗方法模拟计算电
离辐射剂量的研究工作逐渐增多^[1-5]。塑料闪烁

探测器常被用于 γ 辐射剂量监测中,特别是天然
环境 γ 辐射和核设施 γ 辐射。本实验室曾开展过

利用塑料闪烁探测器测量空气中铀靶缓发 γ 射线吸收剂量率来确定 ^{235}U 裂变数的研究工作^[6],肯定了塑料闪烁探测器在特定放射性核素定量方面的应用价值。为了进一步研究通过测量封闭源中气体裂变产物的剂量率来确定 ^{235}U 的裂变数,需要进行两方面的工作:一是能准确测量气体源的剂量率,这依赖于所用塑料闪烁探测器的检定校准;二是能针对密封源的几何条件比较准确地计算单位裂变产生混合裂变气体在某时刻的 γ 剂量率。

为此,本工作主要围绕如何利用蒙特卡罗程序(Monte Carlo neutron and photo transport code, MCNP)模拟复杂气体源的剂量率开展研究。首先研究 MCNP 模拟在已知混合源与探测器几何结构、材料、核素特征 γ 射线能量与发射几率条件下,核素活度与其 γ 剂量率的对应关系。其次将 Kr、Xe 裂变气体通过活性炭吸附于源盒中,实验上先用 HPGe γ 探测器测量源盒中核素活度用于模拟计算 γ 剂量率,然后用塑料闪烁探测器测量源盒 γ 剂量率,通过比较验证 MCNP 模拟计算复杂气体源 γ 剂量率的可靠性。

1 实验仪器与材料

Kr、Xe 裂变气体生产于西安脉冲反应堆:通过跑兔系统辐照石英铀靶, ^{235}U 裂变后产生 Kr、Xe 裂变气体。气体源盒为不锈钢自行设计、加工。

HPGe γ 谱仪(GEM60P4-S 型 HPGe 探测器、DSPEC-Plus 型 γ 谱仪),美国 ORTEC 公司,用于测量气体源盒中核素活度。WF-PTM-K 型塑料闪烁探测器,陕西卫峰核电子有限公司,用于测量源盒 γ 剂量率。

2 原理简介

2.1 MCNP 程序

MCNP 程序是蒙特卡罗方法应用软件之一,它是由美国 Los Alamos 实验室的蒙特卡罗小组在一系列程序工作基础上,集中编制的大型通用中子、光子和电子输运程序。该程序通用性较强,其特点主要有:能灵活地描述源、空间物质的几何分布;能方便地指定体源、面源、线源、点源的空间位置及飞行方向;能计算空间中某界面(某点)的粒子流量或通量,进入某栅元的通量、沉积能量等。MCNP 主要由 INP 文件来实现计算功能,该文件包含了模型结构、材料、源、计数等所必需的

全部输入信息。

2.2 塑料闪烁探测器的工作原理

塑料闪烁探测器由探测器、光电倍增管和相应的电子学仪器三个主要部分组成,其探测 γ 射线的工作原理^[7]为:

(1) 当 γ 射线进入闪烁体时,在某点产生次级电子,使闪烁体晶体分子电离和激发;

(2) 被电离、激发的分子退激时,大量闪烁光子向四面八方发射出去;

(3) 将闪烁光子尽可能多地收集到光电倍增管的光阴极上,由于光电效应,光子在光阴极上击出光电子;

(4) 光电子在光电倍增管中倍增,倍增的电子束在阳极负载上产生电信号;

(5) 信号由电子学仪器记录和分析。

3 模拟计算

本工作基于 MCNP 实现气体混合源剂量率的模拟计算,其提供的 F6 计数卡能用于计算进入某栅元(塑料闪烁体晶体)的能量沉积。为了和后续验证实验的测量条件尽量接近,在 INP 文件中需准确描述源盒与塑料闪烁探测器的几何结构、材料等信息。

气体源盒结构和尺寸示意图示于图 1^[8]。源盒内底部黑色阴影部分是质量为 1 g 的活性炭, Kr、Xe 裂变气体吸附于其中。

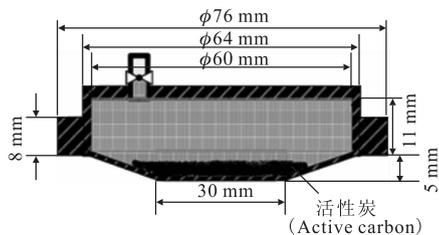


图 1 源盒结构与尺寸

Fig. 1 Structure of the source vessel

塑料闪烁探测器装配图示于图 2,该探测器已在西北核技术研究所计量站进行过检定。

图 2 中塑料闪烁探测器由三部分组成:第一部分为塑料闪烁体晶体,尺寸为 $\phi 50\text{ mm} \times 50\text{ mm}$;第二部分为光电倍增管;第三部分为电子学线路。与 γ 射线发生相互作用的是塑料闪烁体晶体,因此在进行 MCNP 模拟时,只需考虑源盒中的气体混合源在塑料闪烁体晶体中的能量沉积。

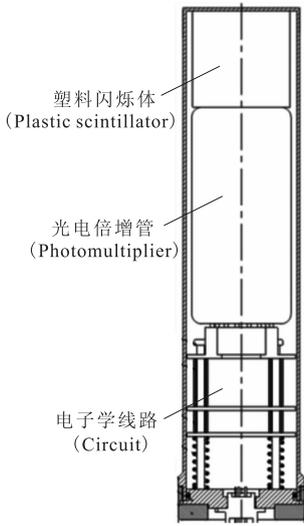


图 2 塑料闪烁探测器装配示意图

Fig. 2 Sketch map of plastic scintillation detector

实验源盒与塑料闪烁探测器的材料组成列于表 1。

在 INP 文件中还需输入源的信息,主要是气

体核素的种类及相应的特征 γ 射线能量以及发射几率。气体裂变产物混合源组分复杂,主要包含的核素有 $^{85}\text{Kr}^m$ 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 $^{135}\text{Xe}^m$ 、 ^{135}Xe 、 ^{138}Xe 及子体 ^{138}Cs ,且每个核素的特征 γ 射线都比较多,在进行模拟计算时都需考虑在内。表 2 列出了 MCNP 分别模拟 1 Bq 的 $^{85}\text{Kr}^m$ 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 $^{135}\text{Xe}^m$ 、 ^{135}Xe 、 ^{138}Xe 及子体 ^{138}Cs 的特征 γ 射线在塑料闪烁探测器中的能量沉积。由表 2 数据可知,活度为 1 Bq 的核素所对应的剂量率在数值上相差很大,从 $^{85}\text{Kr}^m$ 的 $1.93 \times 10^{-5} \mu\text{Gy/h}$ 至 ^{138}Cs 的 $3.20 \times 10^{-4} \mu\text{Gy/h}$,相差十多倍, ^{138}Cs 活度 1 Bq 对应的 γ 剂量率明显大于其它核素,即 ^{138}Cs 的权重最大,这是由核素的特征 γ 射线能量和发射几率的不同导致的。 ^{138}Cs 是 ^{138}Xe 的子体,Kr、Xe 气体刚吸附完成时,可以认为 ^{138}Cs 的量很少,随着时间的变化, ^{138}Xe 衰变至 ^{138}Cs 的量逐渐增加,而裂变气体核素的量由于衰变在逐渐减小,且 ^{138}Cs 的权重最大,故 ^{138}Cs 对总 γ 剂量率的影响会逐渐增大。

表 1 源盒和探测器的材料组成

Table 1 Materials of source vessel and detector

类别(Sorts)	物质(Material)	密度(Density)/(g · cm ⁻³)
源盒(Source vessel)	Fe	7.874
探测器(Detector)	塑料闪烁体(Plastic scintillator)	1.032
	Al(反射层)(Reflect layer)	2.699
	Fe(包裹层)(Cover)	7.874
	光学玻璃(Photic glass)	2.23
活性炭(Active carbon)	C	0.472

表 2 MCNP 模拟 1 Bq 气体核素的 γ 剂量率

Table 2 Gamma dose rate of 1 Bq fission gas calculated with MCNP

核素(Nuclides)	γ 剂量率(Gamma dose rate)/($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)
$^{85}\text{Kr}^m$	1.93×10^{-5}
^{87}Kr	9.94×10^{-5}
^{88}Kr	2.37×10^{-4}
$^{135}\text{Xe}^m$	6.77×10^{-5}
^{135}Xe	3.53×10^{-5}
^{138}Xe	1.38×10^{-4}
^{138}Cs	3.20×10^{-4}

定源盒的活度 A ,通过表 2 列出的 1 Bq 对应的剂量率关系,由式(1)就可以计算出源盒总的剂量率 Γ 。

$$\Gamma = \sum_{i=1}^n A_i \cdot \Gamma_i \quad (1)$$

式中, A_i 为第 i 个核素的活度, Γ_i 为第 i 个核素 1 Bq 对应的剂量率。

4 实验验证

4.1 源的制备

称取约 180 μg U_3O_8 (^{235}U 丰度为 90%) 封装在长约 3 cm、外径 3 mm 的石英玻璃管内,制成 2 个石英铀靶,在西安脉冲反应堆跑兔装置中先

在之后的验证实验中,只要 HPGe γ 谱仪测

后两次进行辐照。中子注量率为 $10^{13}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$, 反应堆功率为 2 MW, 稳态运行辐照时间为 10 s。冷却 10 min 后从跑兔装置中提取铀靶。

在气体吸附实验装置(图 3)上, 铀靶夹碎后 Kr、Xe 气体通过活性炭吸附于不锈钢气体源盒底部。

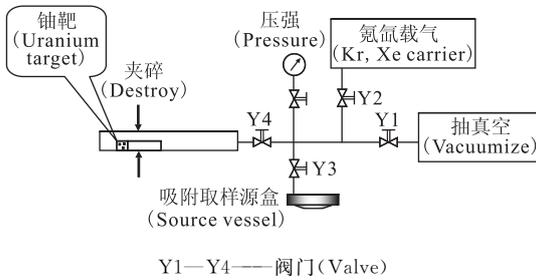


图 3 气体吸附实验装置示意图

Fig. 3 Schematic diagram of the experimental setup for gas adsorption

气体吸附实验过程为:

- (1) 放置辐照靶。将辐照后的靶件放置于透明 PU 塑料管中, 然后将 PU 管连接到阀门上。
- (2) 抽真空。打开阀门 Y1、Y4, 对 PU 管抽真空, 之后关闭阀门 Y1。
- (3) 填充氪氙载气。打开阀门 Y2, 向 PU 管内充入氪氙载气, 关闭 Y2。
- (4) 碎靶。在外力作用下将铀靶夹碎, 混合约 3 min。
- (5) 吸附气体。打开 Y3, 将装有约 1 g 活性炭的源盒置于液氮中, 吸附约 3 min, 压强指针不再下降时关闭 Y3、Y4, 打开 Y1 抽真空, 观察压强指针是否变化来判断是否完全吸附。

需要特别说明的是, 本工作中, 只进行了一次吸附, 用时 3 min。但在研究气体的释放行为时, 可以重复以上过程, 根据实验需要反复吸附若干次。

4.2 气体源活度测量

将已完全吸附了 Kr、Xe 裂变气体的源盒置于距 HPGe γ 探测器 25 cm 处进行测量^[9] 以获取 γ 能谱。将其中一次实验 HPGe γ 谱仪获取的 γ 能谱示于图 4。

由于 Kr、Xe 裂变气体同位素较多, 且每个核素都有几条甚至十几条特征 γ 射线, HPGe γ 谱仪获取的能谱很复杂, 为了便于表述, 截取图 4 中 130~850 keV 能量区间示于图 5。

图 5 中能明显地看到 $^{85}\text{Kr}^m$ 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 $^{135}\text{Xe}^m$ 、 ^{135}Xe 、 ^{138}Xe 及子体 ^{138}Cs 的特征 γ 能峰。

测量的 γ 能谱经过分析计算, 得到各个核素的放射性活度。将气体吸附完成时刻作为参考时刻, 两次实验分别校准至不同参考时刻, 实验一的参考时刻为 2013-04-10 12:35:00, 实验二的参考时刻为 2014-04-25 10:36:00, 将实验一和实验二得到的核素活度分别校正至之后的 γ 剂量率实验测量同时刻, 结果列于表 3 和表 4。

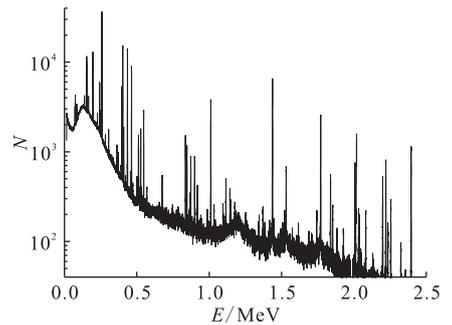


图 4 HPGe γ 探测器测量气体源盒的 γ 能谱
Fig. 4 Gamma spectrum of radioactive gas by HPGe γ detector

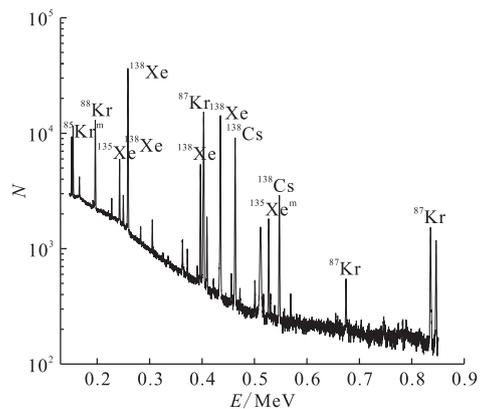


图 5 130~850 keV 能量区间的 γ 谱
Fig. 5 Gamma spectrum from 130 keV to 850 keV

实验一的开测时刻距离参考时刻有 20 多分钟, 而实验二的开测时刻距离参考时刻只有几分钟。由于参考时刻 ^{138}Cs 很少, 距离参考时刻的时间越长, 由 ^{138}Xe 衰变生成的 ^{138}Cs 越多。表 3 中 ^{138}Xe 和 ^{138}Cs 的活度均为 10^5 Bq 量级, 而表 4 中 ^{138}Xe 和 ^{138}Cs 的活度量级分别为 10^6 Bq 和 10^4 Bq, 相差很大, 也说明了距离参考时刻越长, 由 ^{138}Xe 衰变生成的 ^{138}Cs 越多。且由于 ^{138}Xe 的半衰期只有 14.08 min, ^{138}Cs 的生成量会随着时间快速增加。

表 3 实验一 HPGe γ 谱仪测量 Kr、Xe 的活度Table 3 Activities of Kr and Xe by HPGe γ detector of experiment 1

Bq

核素(Nuclides)	2013-04-10 12 : 56 : 00	2013-04-10 12 : 57 : 00	2013-04-10 12 : 58 : 00	2013-04-10 12 : 59 : 00
$^{85}\text{Kr}^{\text{m}}$	1.531×10^4	1.527×10^4	1.523×10^4	1.519×10^4
^{87}Kr	1.062×10^5	1.052×10^5	1.043×10^5	1.033×10^5
^{88}Kr	8.316×10^4	8.282×10^4	8.248×10^4	8.215×10^4
$^{135}\text{Xe}^{\text{m}}$	7.265×10^3	6.943×10^3	6.635×10^3	6.341×10^3
^{135}Xe	3.851×10^3	3.846×10^3	3.841×10^3	3.836×10^3
^{138}Xe	2.004×10^5	1.907×10^5	1.816×10^5	1.728×10^5
^{138}Cs	1.540×10^5	1.560×10^5	1.577×10^5	1.592×10^5

表 4 实验二 HPGe γ 谱仪测量 Kr、Xe 的活度Table 4 Activities of Kr and Xe by HPGe γ detector of experiment 2

Bq

核素(Nuclides)	2014-04-25 10 : 37 : 50	2014-04-25 10 : 38 : 50	2014-04-25 10 : 39 : 50	2014-04-25 10 : 40 : 50
$^{85}\text{Kr}^{\text{m}}$	3.502×10^4	3.493×10^4	3.484×10^4	3.475×10^4
^{87}Kr	2.800×10^5	2.775×10^5	2.750×10^5	2.725×10^5
^{88}Kr	1.844×10^5	1.837×10^5	1.829×10^5	1.822×10^5
$^{135}\text{Xe}^{\text{m}}$	3.149×10^4	3.009×10^4	2.876×10^4	2.748×10^4
^{135}Xe	7.819×10^3	7.809×10^3	7.799×10^3	7.789×10^3
^{138}Xe	1.388×10^6	1.321×10^6	1.258×10^6	1.197×10^6
^{138}Cs	4.788×10^4	7.146×10^4	9.338×10^4	1.137×10^5

4.3 气体源剂量率测量

待 HPGe γ 谱仪完成对源盒的 γ 能谱测量后,将塑料闪烁探测器竖直放置,探测器上表面紧贴源盒底部进行 γ 剂量率的测量,两次实验测得源盒内 Kr、Xe 混合气体总 γ 剂量率分别列于表 5。表 5 中分别列出了两次实验 4 min 之内的实测值,时间间隔为 1 min。由表 5 可看出,源盒 γ 剂量率的实验值随着时间的变化而变小,符合核素的衰变规律。

两次实验中塑料闪烁探测器 γ 剂量率的模拟计算值分别列于表 6 和表 7,为便于比较,表中同时列出了 γ 剂量率的实测值。

由表 6 与表 7 可以看出偏差最大为 5.51%,最小为 3.91%,说明通过 MCNP 模拟计算复杂气体放射源 γ 剂量率的方法是可行的。但也应该说明,偏差的来源由以下几个方面组成:

(1) 由于吸附时间为 3 min,可能会导致 ^{138}Xe 一边被吸附一边衰变为 ^{138}Cs ,在吸附完成时刻(参考时刻)源盒内会有少量的 ^{138}Cs ,理论计算 3 min 内会引入约 0.6% 的偏差;

(2) 由于 HPGe γ 谱仪对气体源盒的探测效率 ϵ_{γ} 在实验室由气体长度补偿法进行过标定,因此该项引入的偏差会较小;

表 5 塑料闪烁探测器测量的剂量率

Table 5 Dose rates by plastic scintillation detector

实验一(Experiment 1)		实验二(Experiment 2)	
时间(Time)	源盒 γ 剂量率实测值 (Dose rates)/($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)	时间(Time)	源盒 γ 剂量率实测值 (Dose rates)/($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)
2013-04-10 12 : 56 : 00	102.9	2014-04-25 10 : 37 : 50	270.9
2013-04-10 12 : 57 : 00	101.9	2014-04-25 10 : 38 : 50	266.6
2013-04-10 12 : 58 : 00	101.7	2014-04-25 10 : 39 : 50	263.3
2013-04-10 12 : 59 : 00	99.9	2014-04-25 10 : 40 : 50	263.1

表 6 实验一 MCNP 模拟值和实测值比较结果

Table 6 Comparison between MCNP simulations and measurements of experiment 1

实验(Experiments)	模拟值(Calculated values)/ ($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)	实测值(Measured values)/ ($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)	偏差(Deviation)/%
2013-04-10 12:56:00	108.2	102.9	5.15
2013-04-10 12:57:00	107.3	101.9	5.30
2013-04-10 12:58:00	106.4	101.7	4.62
2013-04-10 12:59:00	105.4	99.9	5.51

表 7 实验二 MCNP 模拟值和实测值比较结果

Table 7 Comparison between MCNP simulations and measurements of experiment 2

实验(Experiments)	模拟值(Calculated values)/ ($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)	实测值(Measured values)/ ($\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$)	偏差(Deviation)/%
2014-04-25 10:37:50	281.5	270.9	3.91
2014-04-25 10:38:50	279.3	266.6	4.76
2014-04-25 10:39:50	277.0	263.3	5.20
2014-04-25 10:40:50	274.7	263.1	4.41

(3) MCNP 对气体 γ 剂量率进行模拟时,所选用的是核素特征 γ 射线能量和发射几率,在 MCNP 的 INP 文件中,需要将 γ 射线的能量和发射几率作为输入信息,采用于 ENDF BVII 核数据库,因此该项引入的偏差会很小;

(4) 由于测量 γ 剂量率的塑料闪烁探测器自身的能量响应和角响应等特性,偏差主要来源于此。

5 结 论

利用 MCNP 模拟计算塑料闪烁探测器对气体源盒的 γ 剂量率,与两次实验测量值的偏差小于 6%。说明在已知探测器与放射源空间结构、材料组成、放射性核素种类和活度的条件下,采用 MCNP 模拟计算复杂气体放射源 γ 剂量率的方法是可行的。

参考文献:

[1] 王红艳. 用蒙特卡罗方法模拟计算高压电离子

对⁶⁰Co 和¹³⁷Cs 源的空气吸收剂量率因子[J]. 原子能科学技术, 2006, 40(5): 632-634.

- [2] 许淑艳. 核技术应用研究中的蒙特卡罗计算问题[J]. 核技术, 2007, 30(7): 597-600.
- [3] 刘立坡. 积累因子影响因素的蒙特卡罗模拟[J]. 辐射防护, 2008, 28(2): 108-111.
- [4] 赵峰. 基于 MCNP 对 γ 辐射积累因子不同影响因素的研究[J]. 核电子学与探测技术, 2012, 32(5): 590-594.
- [5] 过惠平, 吕汶辉, 吕宁, 等. 不同能量 X 和 γ 射线剂量等效性影响因素的蒙特卡罗方法研究[J]. 核技术, 2014, 37(1): 010203-1-010203-5.
- [6] 商建波, 师全林, 刘杰. 利用缓发 γ 射线吸收剂量率测定²³⁵U 裂变数的方法研究[J]. 核技术, 2014, 37(3): 030201-1-030201-6.
- [7] 复旦大学等. 原子核物理实验方法(上册)[M]. 北京: 原子能出版社, 1984: 136-137.
- [8] 解峰. 裂变气体核素 γ 射线效率刻度中的自吸收校正[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(10): 1153-1156.
- [9] 古当长. 放射性核素活度测量的方法和技术[M]. 北京: 科学出版社, 1994: 324-325.