

NaI(Tl)对 6.13MeV- γ 射线的长管体源的 探测效率的测量

石宗仁^{1;1)} 徐鵬¹ 丁声耀¹ 王顺庆² 郭智荣² 左亮周²

1(中国原子能科学研究院 北京 102413)

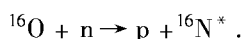
2(中国船舶重工集团公司第七一九研究所 武汉 430064)

摘要 导出了核动力反应堆一回路¹⁶N 的泄漏率与 γ 射线探测器的计数率、高压蒸气流速、¹⁶N 的衰变常量及其发射 γ 射线的概率和效率的关系式,并得出效率与高压蒸气流速和¹⁶N 的衰变常量等无关的结论.用发射 6.13MeV- γ 射线的 PuC 点源测量了 NaI(Tl)探测器对长管体源的相对效率的空间分布和参考点的绝对效率,据此计算出长管体源的效率,效率的测量值与 MC 法的计算值在 7%之内符合.分析了 6.13 和 7.12MeV- γ 射线的效率差异对¹⁶N 泄漏率和 Compton 小角散射的次级 γ 射线对收敛长度的影响.

关键词 核动力反应堆 ¹⁶N 的泄漏率 6.13MeV- γ 射线 长管体源 效率 PuC 点源

1 引言

核动力反应堆一回路¹⁶N 的泄漏率 L 可借助放置在二回路高压蒸气管道旁的 γ 射线探测器测量 6.13 和 7.12MeV γ 射线的计数率 N 得到.在一回路水中,氧受快中子照射能产生如下的反应



反应产物¹⁶N 是半衰期 $T_{1/2} = 7.13\text{s}$,衰变常量 $\lambda = 0.0972$ 的 β 衰变核.¹⁶N 分别衰变到¹⁶O 的基态、6.13 和 7.12MeV 等激发态,两个激发态退激将放射出概率为 68% 的 6.13MeV 和 5% 的 7.12MeV 的 γ 射线^[1,2]. N 与 L 满足如下关系,

$$L = N \cdot (k\eta)^{-1}, \quad (1)$$

其中 k 是与泄漏点到探测器的距离、高压蒸气流速、 γ 射线的发射概率、 λ 等有关的因子,见(7)式;探测效率 η 是决定 L 的关键物理量,它依赖于探测器的大小及其离源的距离和探测器周围的屏蔽物质,也依赖源的大小及其几何形状等. η 可用 MC 法计算和实验上采用已知强度的体源和点源测量.点

源具有易制造,测量结果可用于计算各种形状及强度非均匀分布的体源的效率等优点.获得 6.13MeV- γ 射线的长管体源是不可能的.至今,没有见到有关实验上测量 6.13MeV- γ 射线的长管体源效率的报道.

本工作在实验上采用 6.13MeV- γ 射线的 PuC 点源测量了在长的钢管内的相对效率的空间分布和参考点的绝对效率,并据此计算出 η . η 的测量值与 MC 法计算值在 7%之内符合.在理论上导出了 L 与 N 、高压蒸气流速、 γ 射线的发射概率、 λ 及 η 等的关系,得到了 η 与高压蒸气流速、 λ 及 γ 射线的发射概率等无关的结论,结论也被 MC 法计算的结果所证明.分析了 6.13 和 7.12MeV- γ 射线的效率差异对 L 及 Compton 小角散射的次级 γ 射线对收敛长度的影响.

2 基本公式

为了导出公式及实验上确定 PuC 点源的位置,

首先定义坐标系. z 轴是钢管的轴线, y 轴垂直水平面, x 轴在探测器的轴线上. 在柱坐标系 r 是离钢管轴线的距离, ϕ 是 r 的方位角.

在稳定的 ^{16}N 的泄漏率的状态下, γ 射线的计数率

$$N = \varepsilon(r_0\phi_0z_0)\lambda e_\gamma \int I(r\phi z)R(r\phi z)rdrd\phi dz, \quad (2)$$

$$R(r\phi z) = \varepsilon(r\phi z)/\varepsilon(r_0\phi_0z_0), \quad (3)$$

其中 $\varepsilon(r_0\phi_0z_0)$ 是参考点的绝对效率, e_γ 是6.13MeV- γ 射线的发射概率, $I(r\phi z)$ 和 $R(r\phi z)$ 分别是 ^{16}N 的密度和相对效率的空间分布, $rdrd\phi dz$ 是体积元.

如果 $I(r\phi z)$ 与 r 和 ϕ 无关,

$$I(z) = I_0 \exp[-\lambda(L_0 + z)/\nu]. \quad (4)$$

其中 I_0 是泄漏点处的 ^{16}N 的密度, L_0 是泄漏点到探测器的距离, ν 是高压蒸气的流速. 代入(4)式,(2)又可写成(1)式

$$L = N \cdot (k\eta)^{-1},$$

$$L = I_0 \nu S, \quad (5)$$

$$\eta = \varepsilon(r_0\phi_0z_0) \sum(\xi), \quad (6)$$

$$k = \nu^{-1} \cdot e_\gamma \cdot Z_0 \lambda \cdot \exp(-\lambda L_0/\nu), \quad (7)$$

其中 S 是钢管内径的横截面积, $Z_0 = 1\text{cm}$, $\sum(\xi)$ 是下面定义的在收敛点处的累进积分.

$R(z)$ 是 $R(r\phi z)$ 对 r 和 ϕ 的积分, 它相对 $z = 0$ 是对称的, 累进积分

$$\sum(z) = \int_0^z (e^{-\lambda z/\nu} + e^{\lambda z/\nu}) R(z) dz / Z_0. \quad (8)$$

Z_0 是为了消除(8)式积分的量纲而引入的. 如果 $\nu \geq 10\text{m/s}$, $z = \pm 2.5\text{m}$, $\lambda z/\nu \leq 0.0243 \ll 1$, e^{-x} 和 e^x 可台劳展开, 并取 x 的一次项, (8)式简化成

$$\sum(z) = \int_0^z 2R(z) dz / Z_0. \quad (9)$$

从(9)式得出 $\sum(z)$ 与 ν 和 λ 无关, 即 η 与 ν 和 λ 无关的结论, 见(6)式. 在 ν 相差6倍的情况下, MC法计算的 η 在0.8%内一致, 因此该结论已被MC法计算的 η 所证明^[1]. 原则上, (6)式中的 η 正比于 $z = \alpha$ 的 \sum , 事实上在 $z = \xi$, \sum 已达到饱和, 即在 $z \geq \xi$ 的 $R(z)$ 很小, 它们对 η 的贡献可忽略, 称 ξ 为收敛长度. 实验测量的 $\sum(z)$ 的外推和MC计算^[3]表明 $\xi \approx 2.5\text{m}$. 另外, 上述公式成立的条件是高压蒸气每秒流过的距离 $\geq 2\xi$.

一回路水的泄漏率:

$$L_w = L\rho^{-1}, \quad (10)$$

其中 ρ 是在一回路中1kg水含 ^{16}N 的核数.

3 测量方法

探测系统由探测器、电子学线路、数据获取3部分组成. NaI(Tl)闪烁体为 $\phi 2'' \times 2''$ 的圆柱体, 在其侧面分别有0.2, 1.0, 0.2cm厚的铜、铅、不锈钢等用于屏蔽低能 γ 射线, 以及由6.0cm厚的玻璃纤维棉构成的防热层, 在其入射端有3.0cm厚的玻璃纤维棉. $^{241}\text{Am}-\alpha$ 薄膜源放置在NaI(Tl)顶部中心, 用于稳定光电倍增管和放大器等的增益. NaI(Tl)闪烁体和GDB-CA105光电倍增管及其磁屏蔽层等放置在0.3cm厚的不锈钢容器内. 高压电源是ORTEC-456H, +700V; 从光电倍增管阳极引出负电压脉冲信号经电压灵敏型前置放大器ORTEC-113进入ORTEC-572放大器, 时间常数 $\tau = 1.0\mu\text{s}$. 数据获取为计算机系统, 谱分析处理程序为ORTEC的软件A30. 实验上用1024道ADC测量脉冲谱, 道宽9keV.

含 ^{16}N 的高压蒸气钢管的内外径分别是20.5和21.9cm, 钢管轴线离探测装置表面的垂直距离是16.45cm, 离NaI(Tl)表面21.95cm.

PuC源的原理是 ^{238}Pu 发射的 α 粒子轰击 ^{13}C 原子核, 通过共振形成复合核 ^{17}O 的激发态, 随后放射出中子衰变到 ^{16}O 的基态、6.13MeV等激发态, 激发态将放射出6.13MeV的 γ 射线. PuC点源是 $\phi 12\text{mm} \times 25\text{mm}$ 的圆柱体, $T_{1/2} = 87.74\text{a}$, 源强 $(5.31 \pm 0.15) \cdot 10^3/\text{s}$. 实验上将PuC点源放在钢管内的泡沫塑料圆盘的径向位置 r 上, r 分别取0, 3, 6, 9cm. 圆盘可沿 z 轴移动, 也可绕 z 轴转动改变 ϕ 角. 在-30—30cm区间 z 的步长为5cm, 以外是10cm. ϕ 角的步长为30°. 在坐标原点, 即参考点处测量 $\varepsilon(r_0\phi_0z_0)$.

为获得准确的道数同能量关系, 除 α 监测源($E_\alpha = 3207.7\text{keV}$)外, 在探测器侧面放置 $^{137}\text{Cs}-\gamma$ 射线源($E_\gamma = 661.7\text{keV}$), α 峰和 ^{137}Cs 的全能峰用于校准ADC的增益和零点, 及监测系统的稳定性. 从图1参考点的对数脉冲谱可见 ^{137}Cs 的全能峰、 α 峰和6.13MeV γ 射线的双逃逸、单逃逸和全能峰. 图2为无PuC源的本底对数脉冲谱, 在 α 峰以上可见脉冲堆积谱, 堆积的数量与 τ 和计数率有关.

1) 王朝辉, 凌卡德, 裴鹿成. NaI(Tl)对6.13MeV- γ 射线的长管体源探测效率的MC法计算, 内部报告(2003)

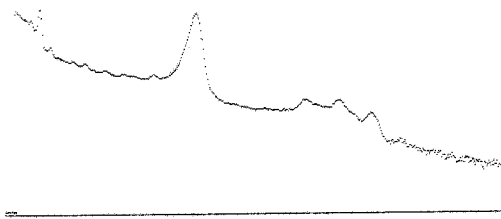


图 1 在参考点的对数脉冲谱

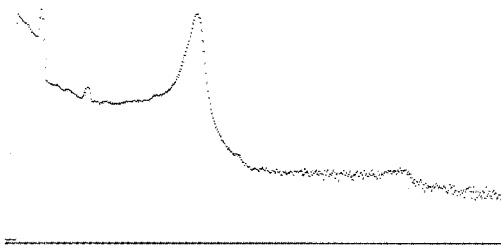


图 2 无 PuC 源的本底对数脉冲谱

同时测量 ^{137}Cs , ^{60}Co 和 PuC 3 种源的 γ 射线脉冲谱, 用 661.7, 1173.2, 1332.5, 5107.0, 5618.0, 6129.0 keV 6 条 γ 射线的峰位校准 ADC 的增益和零点, 从而测定 α 粒子等效的 γ 射线能量 $E_\alpha = 3207.7 \pm 20.0$ keV 和 $FWHM = 122\text{keV}$. 为了避开与 PuC 源离 NaI (Tl) 距离有关的 2.56MeV 本底, α 峰的区间取在 2680.0—3664.0keV, 扣除峰下连续本底的 α 的净峰计数率 $I_\alpha = 166/\text{s}$.

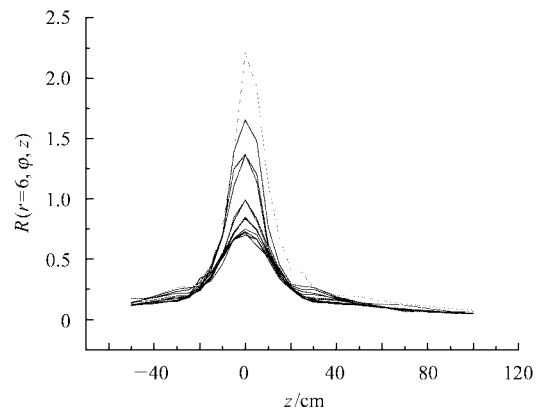
在 4.5—7.1MeV 区间的本底来源于脉冲堆积 (pile-up) 及宇宙线. 当无 PuC 源时, 在 4.5—7.1MeV 的单个 α 对应的本底 $N_B = (1.12 \pm 0.04) \cdot 10^{-3}/\alpha$. 在 α 峰以下, PuC 源发射的非 6.13MeV γ 射线和中子在 NaI (Tl) 及其周围物质产生的 γ 射线等本底与 PuC 源离 NaI (Tl) 的距离有关, 虽然它们的能量低于 3.0MeV, 但它们之间和与 α 脉冲的堆积可进入 4.5—7.1MeV, 这种堆积本底需要修正.

4 数据处理和结果

数据处理包括: 计算相对效率的空间分布 $R(r, \phi, z)$, 求 $R(r, \phi, z)$ 对 ϕ 角的平均 $R(rz)$, 求 $R(rz)$ 对 r 的平均 $R(z)$, 对 $R(z)$ 做管道隔热层的吸收和脉冲堆积的修正, 计算修正后的 $R(z)$ 的累进积分 $\Sigma(z)$. 为了计算它们, 按 $\Delta z = 5\text{cm}$ 的步长将管道分成段, 在每段按 $r = 1.5, 4.5, 7.5, 10.25\text{cm}$ 分割成一

个圆柱和 3 个圆环, 每个圆环按 $\Delta\phi = 30^\circ$ 分割成 12 个扇形体积元, 共 37 个体积元.

为计算 $R(r, \phi, z)$, 对每个脉冲谱首先用 3207.7 和 661.7keV 的两个峰校准道数和能量关系. 利用 A30 程序分别定出 6.13MeV γ 射线在 4500keV 和 7100keV 及 α 在 2680keV 和 3664keV 的积分计数和净峰计数. 用净峰计数除积分计数得单个 α 计数对应的 6.13MeV γ 射线的计数 N/α , N/α 可消除 ADC 的死时间和实现测量时间间隔的归一. 扣除 N/α 的本底 N_B 后, 用参考点的 N/α 除各点得到 $R(r, \phi, z)$.

图 3 在 $r = 6\text{cm}$ 的相对效率的空间分布曲线

在图 3 给出了 $R(r = 6\text{cm}, \phi, z)$ 的空间分布曲线, 它可按 z 分成 3 部分: 6.13MeV γ 射线不经过探测器侧面屏蔽层进入 NaI (Tl) 的直接观测区为 0—10cm, 效率高变化小; 经探测器屏蔽层的非直接观测区为 25—100cm, 效率低变化平缓; 直接和非直接间的过渡区 10—25cm, 效率变化较陡峭. 为了清楚, 在图 3 没有标出各点的不确定度.

$R(r, \phi, z)$ 对 ϕ 角的平均

$$R(r, z_k) = \sum_j R(r, \phi_j, z_k) / 12,$$

$$i = 0, 1, 2, 3; j = 1, 2, \dots, 12; k = 1, 2, \dots, 25.$$

(11)

对于相同的 z_k , 不同的 r_i , $R(r, z_k)$ 的差异在 15% 之内. $R(rz)$ 对 r 的平均

$$R(z_k) = \sum_i R(r, z_k) W_i, W_i = S_i / S. \quad (12)$$

W_0, W_1, W_2, W_3 分别是半径为 1.5cm 的中心圆和半径为 1.5—4.5, 4.5—7.5, 7.5—10.25cm 的圆环的面积与半径为 10.25cm 的圆面积之比, 等于 0.0214, 0.1713, 0.3427, 0.4646.

修正后的 $R(z)$ 的累进积分

$$\begin{aligned} \sum_0^1(z_k) &= \sum_1^k R(z_m), \\ \sum_0^1(z_k) &= \sum_0^1(z_k) \cdot \Delta z / Z_0, \end{aligned} \quad (13)$$

图 4 的纵坐标表示出 $\sum_0^1(z)$ 随位置 z 的变化, $\sum_0^1(1.25\text{m}) = 9.14$. 由于 $\sum_0^1(z_k)$ 的不确定度很小, 在图 4 也没有标出它们. 目测外推 \sum_0^1 , 在 $\xi = 2.5\text{m}$ 达到饱和, $\sum_0^1(2.5\text{m}) = 10.0 \pm 0.5$, 外推的不确定度取为 0.5, $\sum_0^1(2.5\text{m}) = 50.0 \pm 2.5$.

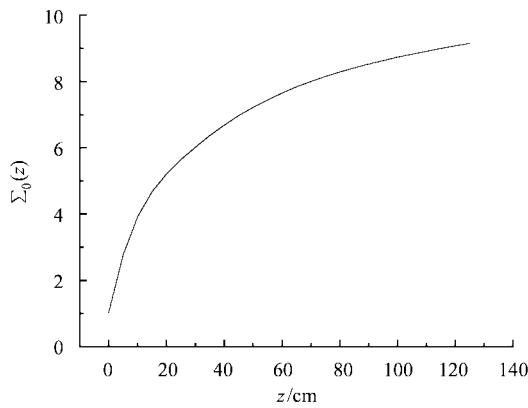


图 4 累积积分 $\sum_0^1(z)$

在参考点, 经防热层吸收、脉冲堆积和死时间修正后的计数率为 3.07/s, 除以源强得到

$$\epsilon(r_0 \phi_0 z_0) = (0.577 \pm 0.024) \cdot 10^{-3},$$

$$\eta = \epsilon(r_0 \phi_0 z_0) \sum_0^1(2.5\text{m}) = (2.89 \pm 0.20) \cdot 10^{-2},$$

实验上测量的 η 比 MC 法计算的 $\eta = 2.71 \cdot 10^{-2}$ 高 6.4%, 它们在不确定度内符合.

5 修正

对 $R(z)$ 和 $\epsilon(r_0 \phi_0 z_0)$ 做防热层的吸收和脉冲堆积的修正, 没有对 $R(r\phi z)$ 逐点进行修正. 实验上 PuC 源放在钢管轴线不同的 z 上, 测量有和无防热层的计数 N 和 N_0 , 它们满足指数关系

$$(N_0 - N) / N_0 = 1 - e^{-\tau\mu / \sin\theta}, \tan\theta = 24.5/z, \quad (14)$$

θ 是 γ 射线与 z 轴的夹角, $\tau\mu$ 是实验上测定的防热层的厚度与吸收系数的积, $\tau\mu = 0.011 \pm 0.003$. z 从 0—100cm $R(z)$ 的防热层吸收的修正量为 1%—4%.

如果在 α 峰下堆入的脉冲谱是光滑的, 堆入计数将归入连续本底, 对 α 的净峰计数没有影响. 对于 $z = 0, r = 0, 3, 6, 9\text{cm}, \phi = 180^\circ$ 的脉冲谱, 堆入部分与

净峰面积比分别为 2.3%, 2.4%, 4.2%, 10.3%. 通过比较不同 z 的净峰面积, 得出 α 峰堆出部分 $< 0.1\%$, 用 α 净峰计数归一的堆积修正可忽略.

在 4.5—7.1MeV 区间, 堆入和堆出的计数率采用以下的方法计算. 脉冲堆积的输入和输出计数率 r_i 和 r_0 满足

$$r_0 = r_i \exp(-r_i T), \quad (15)$$

T 是放大器成形后的脉冲宽度. 在 3664.0keV 以下, 有和无 PuC 源的脉冲谱形状相似, 见图 1 和图 2, 忽略宇宙线本底, 及 $r_i T \ll 1$ 成立, 对 (15) 式台劳展开并取一次项, 有 PuC 源的堆入计数率可按式计算:

$$r_{is} - r_{0s} = r_{is}^2 (r_{ins} - r_{0ns}) / r_{ins}^2. \quad (16)$$

其中 s 和 ns 表示有和无 PuC 源, $r_{is}, r_{ins} - r_{0ns}, r_{ins}$ 3 个量可从图 1 和图 2 的脉冲谱计算. 在有 PuC 源的脉冲谱中, 计算从 4.5MeV 到不同上阈的积分计数, 外推上阈到积分计数饱和, 它与 4.5—7.1MeV 的积分计数的差是堆出计数率. 在参考点, 堆入量为 $0.89 \cdot 10^{-3} / \alpha$, 堆出量为 $-0.12 \cdot 10^{-3} / \alpha$, 脉冲堆积的净修正量为 4%, 其相对不确定度取 2%. 由于用参考点归一, 所以在 z 从 0—10cm, 15—25cm, 30—50cm, 55—100cm $R(z)$ 的修正量分别为 0%, 1.0%, 3.0%, 4.0%.

6 不确定度分析

$R(r\phi z)$ 的不确定度来源于: 计数统计、防热层吸收和脉冲堆积的修正、源位置不确定 ($\pm 0.5\text{cm}$)、本底扣除等 5 项不确定度. 总的不确定度是各项平方和的平方根. z 的 4 个区间的不确定度的类型 T 和相对不确定度 R 列于表 1. $R(z)$ 和 $\sum_0^1(z)$ 等的不确定度是借传递公式从 $R(r\phi z)$ 导出的. 在每个区间, $R(rz)$ 的相对不确定度将是 $R(r\phi z)$ 的 $1/\sqrt{12} = 0.29$. $R(z)$ 的将是 $R(rz)$ 的 0.60. $\sum_0^1(2.5\text{m})$ 的不确定度主要来源于外推.

表 1 $R(r\phi z)$ 不确定度的来源

z/cm	0—10	15—25	30—50	55—100
T	R			
统计	1.5	2.0	3.0	4.0
吸收	0.3	0.5	0.7	1.2
堆积	0.0	0.5	1.5	2.0
源位	2.0	3.0	1.0	1.0
本底	0.2	0.3	1.0	3.5
总的	2.6	3.7	3.7	5.8

表 2 $\varepsilon(r_0\phi_0z_0)$ 不确定度的来源

T	R
源强	2.9
统计	0.2
阈	0.1
吸收	0.3
堆积	2.0
源位	2.0
本底	0.2
总的	4.1

$\varepsilon(r_0\phi_0z_0)$ 的不确定度来源于:源强、计数统计、上下阈($\pm 9\text{keV}$)、防热层吸收和脉冲堆积的修正、源位置不确定($\pm 0.5\text{cm}$)、本底扣除等 7 项不确定度,见表 2. η 的不确定度是从 $\varepsilon(r_0\phi_0z_0)$ 和 $\Sigma(2.5\text{m})$ 导出的.

7 讨论

在 ^{16}N 的监测中 6.13 和 7.12MeV γ 射线通常是同时测量的,根据(1)和(2)式,代入 6.13 和 7.12MeV γ 射线的发射概率 68% 和 5%. 如果用 6.13MeV 的效率 η_6 代替 7.12MeV 的 η_7 ,得到泄漏率 L_6

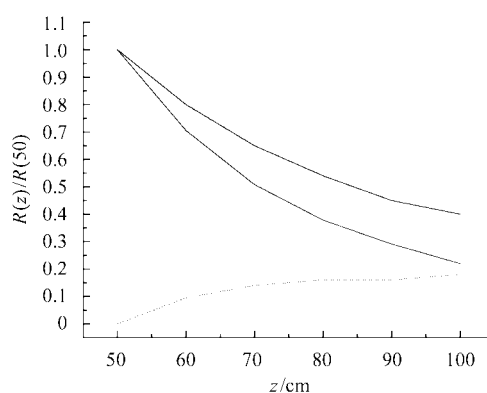
$$L_6/L = 1 - 0.068(1 - \eta_7/\eta_6). \quad (17)$$

其中 L 是真实的泄漏率. 由于 7.12MeV γ 射线在 NaI(Tl) 内的对产生截面、光电和 Compton 截面同 6.13MeV 的分别是相等、小 12% 和小 11%^[4], 及考虑电子在 NaI(Tl) 内的射程,可以估计 $(1 - \eta_7/\eta_6) \sim 20\%$, 所以用 η_6 代替 η_7 得到的 L_6 比 L 大约小 1.5%.

在 $z \geq 50\text{cm}$, $R(z)$ 随 z 的变化可写成

$$R(z) = R_0(H^2 + z^2)^{-1} \cdot \exp[-(\tau_1/\sin\theta + \tau_2/\cos\theta)] + R_c(z), \quad (18)$$

其中 H 是钢管轴线至 NaI(Tl) 中心的垂直距离, τ_1 是 NaI(Tl) 侧壁厚度与吸收系数的积 $\tau_1 = 59.8 \cdot 10^{-2}$, 钢管壁的 $\tau_2 = 16.8 \cdot 10^{-2}$, θ 是指向 NaI(Tl) 中心的 γ 射线与钢管轴线的夹角. 第一项是源强与源到 NaI(Tl) 中心的距离平方反比关系及 6.13MeV γ 射线经钢管壁和经 NaI(Tl) 侧壁的衰减,该项收敛得快. 第二项 $R_c(z)$ 是 6.13MeV γ 射线经过这些物质时通过 Compton 小角散射产生大于 4.5MeV 的次级 γ 射线的贡献.

图 5 $R(z)/R(50)$ 曲线和 Compton 小角散射的贡献

在图 5, 上曲线是 $R(z)/R(50)$ 的测量值, 中间的曲线是(17)式的第一项, 下曲线是前两者的差 $R_c(z)$. 从图可见 $R_c(z)$ 比较平滑, $R(z)$ 收敛的快慢程度取决于 $R_c(z)$.

今后, 用 MC 法计算 7.12MeV 的效率及研究 Compton 小角散射对收敛长度的影响是有益的.

感谢邢雨同志给予的帮助.

参考文献 (References)

- 1 ISO-4037-2 1997, First Edition 12—15 Part 2
- 2 Tilley D R, Weller H R, Cheves C M. Nucl. Phys., 1993, **A564**: 13—27

- 3 HUANG Hai, XU Ming, XU Ji-Jun et al. Atomic Energy Science and Technology, 1996, **30**(5): 444—447 (in Chinese)
(黄海, 徐明, 徐济 ■ 等. 原子能科学技术, 1996, **30**(5): 444—447)
- 4 http://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom/xcom3_2

Efficiency Measurement of NaI(Tl) Detector for a Long Tube Volume Source of 6.13MeV Gamma-Ray

SHI Zong-Ren^{1,1)} XU Kun¹ DING Sheng-Yao¹ WANG Shun-Qing² GUO Zhi-Rong² ZUO Liang-Zhou²

¹(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

²(China Shipbuilding Industry Corporation No.719 Research Institute, Wuhan 430064, China)

Abstract The relation of the ^{16}N leak rate of the nuclear reactor to the efficiency and counting rate of γ -ray detector, velocity of high pressure vapor, is deduced. A conclusion of the efficiency independent on the velocity of high pressure vapor and decay constant of ^{16}N is drawn. Experimentally the space distribution of the relative efficiencies and the absolute efficiency at a reference point are measured with PuC source emitting 6.13MeV gamma ray detected by NaI(Tl) counter. The measured efficiency is consistent with Monte Carlo calculation in 7%. The Compton small angle scattering contribution to the convergence length and the effect of the energy difference between 7.12MeV and 6.13MeV gamma ray on measured ^{16}N leak rate are discussed.

Key words nuclear reactor, ^{16}N leak rate, 6.13MeV gamma-ray, long tube volume source, efficiency, PuC source