



核科学与工程

基于波移光纤及硅光电倍增管的 钚气溶胶测量系统*

夏文友, 郝樊华, 吴 健

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 钚气溶胶测量是进行钚材料相关实验研究的基础。为了确保辐射安全, 常需将钚材料密封于密闭容器内以实现钚气溶胶的包容, 商用钚气溶胶监测设备由于难以放入含钚密闭容器而不适用于该应用场景下钚气溶胶浓度的监测。使用 ZnS(Ag) 闪烁体作为辐射灵敏材料放置于含钚密闭容器内, 通过波移光纤将闪烁体信号引出密闭容器, 并通过硅光电倍增管实现对闪烁体信号的采集, 使用该技术路线建立的钚气溶胶测量系统能够用于密闭容器内钚气溶胶的测量。该测量系统可根据具体需求实现对探测器尺寸、形状的定制, 具有功耗低, 结构相对简单等优点, 实现了密闭容器内钚气溶胶的远程就地测量, 具备 n/γ 混合辐射场下 α 粒子甄别测量能力。

关键词: 钚气溶胶; 闪烁体; 波移光纤; 硅光电倍增管; 密闭容器

中图分类号: TL812^{+.1}

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202234.220101

Plutonium aerosol measurement system based on wavelength shift fiber and silicon photomultiplier

Xia Wenyu, Hao Fanhua, Wu Jian

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: It is necessary to monitor plutonium aerosol when doing experimental research with plutonium material. Plutonium material experiments are usually carried out in sealed containers, which guarantees that the plutonium aerosol will not leak out to the environment. The widely-used monitoring equipment are not suitable for plutonium aerosol monitoring in sealed containers because of its large volume. A new plutonium aerosol measurement system based on wavelength shift fiber and silicon photomultiplier (SiPM) is developed. In the new plutonium aerosol measurement system, ZnS(Ag) scintillator is used as detection material and wavelength shift fiber is used as photon transmission media. The new plutonium aerosol measurement system has the advantages of customizable detector size and shape, low power consumption, and relatively simple structure, which realizes remote measurement of plutonium aerosol in sealed containers. The measurement system can also discriminate α particles in n/γ -mixed radiation field.

Key words: plutonium aerosol, scintillator, wavelength shift fiber, silicon photomultiplier, sealed container

钚是一种人工放射性核素, 最常见的同位素是²³⁹Pu, ²³⁹Pu 材料是核能源工业以及国防领域的一种重要原料, 可作为核燃料使用, 同时也是核武器重要的裂变材料^[1]。金属钚与空气接触, 极易氧化形成钚气溶胶, ²³⁹Pu 属于极毒组核素, 其在空气中的导出空气浓度仅为 0.2 Bq/m³^[2]。

出于辐射安全的考虑, 使用金属钚材料开展相关实验研究时常将钚材料密封于密闭容器中, 以确保产生的钚气溶胶不释放到工作环境中对工作人员和环境造成辐射危害。在开启密闭容器前, 需测量密闭容器内的钚气溶胶浓度, 辐射防护人员根据钚气溶胶浓度水平确定需采取的处理措施, 给出操作人员相应的辐射防护建议。上述钚气溶胶测量场景具有如下特点: (1) 密闭容器内空间狭小, 不适合将体积较大的仪器设备整体放入; (2) 在进行钚气溶胶浓度测量时不宜破坏密闭容器的密封性能; (3) 测量设备放入密闭容器内的部组件应耐辐照并受测量环境影响小。

* 收稿日期: 2022-04-08; 修订日期: 2022-07-20
联系方式: 夏文友, 706969241@qq.com。

目前,国内外已研发生产了多款商用钷气溶胶连续监测仪,其采用的技术路线基本相似,均是通过将气体中的钷气溶胶粒子过滤收集到滤纸样品上,再使用半导体探测器(如离子注入型硅探测器)测量滤纸样品的 α 放射性来实现的^[3-13]。这些商用钷气溶胶连续监测仪体积较大,仪器无法直接放入密闭容器内,而通过取样的方式将气体取出密闭容器进行测量,存在破坏密闭容器密封性的可能。此外,半导体探测器的测量原理也导致了其本身性能易受到测量环境如温度、测量室气氛等的影响^[14-15]。因此必须建立一种新的钷气溶胶测量技术,该测量技术应具备占用空间体积小、不破坏密闭容器密封性能、不受测量环境影响等优点,满足密闭容器内钷气溶胶就地测量的需求。

本文采用 ZnS(Ag) 闪烁体作为辐射灵敏材料,搭建了基于波移光纤和硅光电倍增管(SiPM)的钷气溶胶测量系统。该测量系统所采用的 ZnS(Ag) 闪烁体具备制作工艺简单、探测灵敏区尺寸及形状可依据需求定制、耐辐照且不易受测量环境影响等优点;使用波移光纤作为光耦合器件实现了不破坏密闭容器密封性的情况下进行钷气溶胶的就地测量,同时避免了信号往密闭容器外传输过程中的电磁干扰;使用 SiPM 作为光电转换器件实现了探测器组件的小体积、低功耗特性。本文对该测量系统的物理设计及系统性能进行了测试。

1 钷气溶胶测量系统物理设计

1.1 系统测量原理

组建的钷气溶胶测量系统示意图如图 1 所示,测量系统的 α 粒子探测器单独置于密闭容器内。钷气溶胶在密闭容器内产生后,近似均匀地分布在密闭容器内部。探头附近的钷气溶胶粒子衰变产生的 α 粒子入射到 ZnS(Ag) 闪烁体内,在闪烁体内损失能量产生波长为 λ_0 的闪烁荧光,闪烁荧光进入波移光纤内,与波移光纤内物质发生作用转换为波长 λ_1 的光子。光子在光纤内传输并最终入射到 SiPM 上, SiPM 将光信号转换为电信号,后续核电子学系统将 SiPM 输出的电信号经过放大、滤波、成形、模数转换等过程被数据采集软件记录,即 α 粒子能谱图。通过上述过程即完成了一次钷气溶胶的测量。

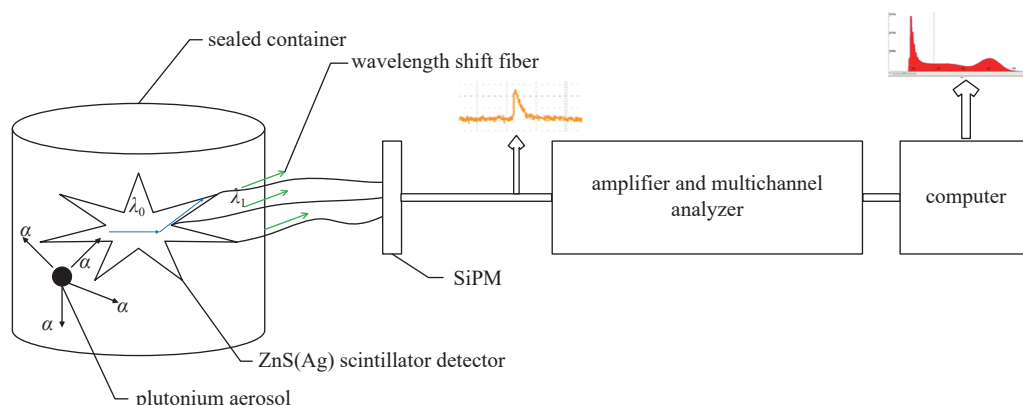


Fig. 1 Schematic diagram of the plutonium aerosol measurement system

图 1 钷气溶胶测量系统示意图

1.2 ZnS(Ag) 闪烁体探头制作

采用涂布法制作 ZnS(Ag) 闪烁体探头,涂布法是将混合了环氧树脂黏合剂的 ZnS(Ag) 均匀涂抹在基片材料上,待环氧树脂黏合剂凝固后即制成了所需要的 ZnS(Ag) 闪烁体。共制作了 7 块不同质量厚度的长条形 ZnS(Ag) 闪烁体和一块方形 ZnS(Ag) 闪烁体,长条形闪烁体尺寸为 0.5 cm×4 cm,质量厚度详见表 2,方形 ZnS(Ag) 闪烁体尺寸为 80 mm×80 mm,质量厚度为 63.2 mg/cm²。

1.3 波移光纤特性

波长为 λ_0 的光子从侧面入射波移光纤后,与波移光纤内的物质发生作用,以新的方向发射出波长为 λ_1 的光子,且向各个方向发射的可能性相同,当新的发射方向满足全反射条件时,即可在波移光纤内传输,并最终由光电转换器件收集。选用波移光纤的目的主要是为了更好地耦合探测器和光电转换器件,将 ZnS(Ag) 闪烁体探测器产生的光进行收集并传输至光电转换器件,同时可以将闪烁体和后续的 SiPM 及核电子学部件分离,避免电子学部件受到辐照及电磁干扰的影响。波移光纤选用 Kuraray 公司的产品,型号为 Y-11(200)SJ,为单模光纤,光纤直径 1 mm,截面形状为方形,单包层结构,衰减长度大于 3.5 m,具备较高的发光产额,本文中钷气溶胶测量系统使用的光纤长度为 50 cm。

1.4 SiPM 特性

硅光电倍增管 (SiPM) 是一种常用的光电转换器件, 由多个工作在盖革模式下的 APD 阵列组成, 每个 APD 即 SiPM 的一个像素, 选用的 SiPM 为 SensL 公司的产品, 型号为 60035, 该 SiPM 具有较低的暗计数率和较高的光子探测效率, 有效区域 $6.07\text{ mm}\times 6.07\text{ mm}$ 。在使用 SiPM 时, 将 SiPM 置于电磁屏蔽盒内, 同时控制实验室环境温度尽可能的保持在 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右。

2 测量系统物理过程理论模拟

2.1 物理建模

为评估设计的钷气溶胶测量系统的测量能力, 使用 Geant4 蒙特卡洛模拟程序对测量过程进行了理论模拟。测量对象为一狭层腔体, 腔体长度 30 cm , 宽度 30 cm , 腔体内为常压, 介质为空气, 为考察狭层腔体厚度对探测效率的影响, 狭层腔体厚度设置为可变参数, 厚度范围 $0\sim 4\text{ cm}$ 。钷气溶胶粒子随机均匀分布在狭层腔体内, 衰变放出的 α 粒子出射方向为 4π 方向随机。ZnS(Ag) 探测器为正方形平板探测器, 尺寸为可变参数, 置于狭层腔体一侧, 探测器测量几何模型如图 2 所示, 绿色腔体表示模拟的狭层腔体空间, 黄色线条表示 α 粒子运动轨迹, 闪烁体置于狭层腔体一侧, 由于无法获取后续可见光传输过程相关准确参数, 因此模拟计算过程未打开可见光输运。

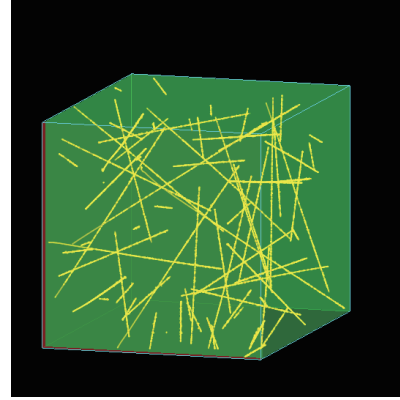


Fig. 2 Measurement geometry of ZnS(Ag) detector

图 2 ZnS(Ag) 探测器测量几何模型

2.2 探测器混合辐射场 α 粒子甄别测量能力

分别模拟了 α 粒子 (能量 5.2 MeV) 和 γ 射线 (能量 661 keV) 在 $30\text{ mm}\times 30\text{ mm}$ 方形 ZnS(Ag) 闪烁体探测器 (质量厚度设置为 100 mg/cm^2 , 使得 5.2 MeV 的 α 粒子能量能完全沉积) 中的能量沉积过程, 获得的不同射线的能量沉积谱如图 3 所示。从能量沉积谱可以看出, 探测器能很好的通过能量信息区分 α 粒子和 γ 射线, 即能实现混合辐射场下的 α 粒子甄别测量。当将探头阈值设置为 400 keV 时, γ 信号接受率可达到 1.6×10^{-6} , 已经可以将大部分的 γ 射线信号进行消除。

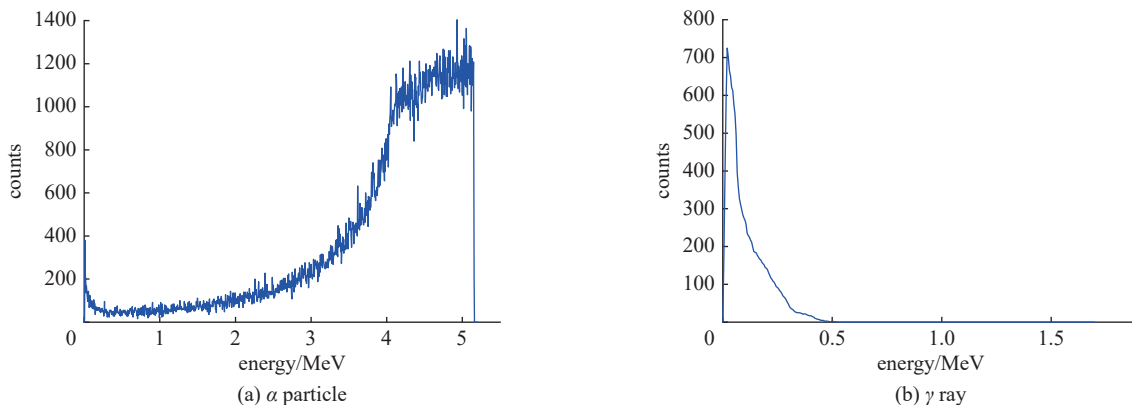


Fig. 3 Energy spectra of ZnS(Ag) detector

图 3 模拟获得的 α 和 γ 射线在 ZnS(Ag) 探测器中的能量沉积谱

2.3 理论探测效率计算

我们将在特定体积腔体内任一位置产生的 α 粒子被探测到的概率定义为探头探测效率。为了将 γ 射线信号、本底噪声等去掉, 在进行 α 粒子探测时, 需设置一定的阈值, 设置的阈值越高, 探测效率越低, 图 4 给出了探测器探测效率随阈值的变化曲线, 从图中可以看出, 探测器阈值设置从 10 keV 到 1 MeV 时, 探测效率仅从 4.89% 变化至 4.75% , 探测效率对阈值的设置 (在 1 MeV 以内) 是不敏感的。

探测器的探测效率还受到灵敏面积及狭层腔体厚度的影响。图 5 给出了探测效率随探测器灵敏面积的变化关系, 探测器探测效率随灵敏面积增加而变大。图 6 给出了探测效率与狭层腔体厚度的关系, 对探测效率而言, 狭

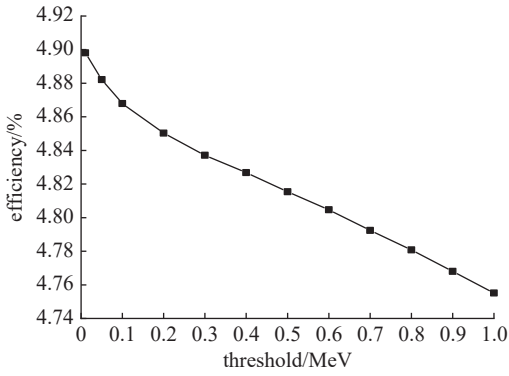


Fig. 4 Relationship between detection efficiency and threshold

图 4 探测器探测效率随阈值的变化关系

层腔体厚度越薄, 由于射程的影响其效率反而越高。此外, 通过计算不同灵敏面积下的 α 粒子能量沉积谱, 发现理论能量沉积谱谱形基本相似, 因此在不考虑后续光信号收集的影响情况下, 灵敏面积的增大不会影响甄别测量的能力。

2.4 典型情况下测量系统理论探测限

钷气溶胶的浓度 C 计算式为

$$C = \frac{1}{V\epsilon t} N \quad (1)$$

式中: V 为狭层腔体体积; ϵ 为该腔体模型下的探测效率; t 为测量时间; N 为探测器测量计数。

根据 IAEA 发布的 AQ48 报告^[16], 探测限 Y_d 简化计算式为

$$Y_d = K_{1-\alpha} \frac{1}{V\epsilon t} [K_{1-\alpha} + \sqrt{8(N_0 + 1)}] \quad (2)$$

式中: $K_{1-\alpha}$ 取值 1.645; ϵ 为该腔体模型下的探测效率; t 为测量时间; N_0 为探测器本底计数。

考虑在氡浓度为 10 Bq/m^3 (环境氡浓度值) 的普通大气环境下进行测量, 探测器本底计数主要来自于氡及其子体衰变产生的 α 粒子入射产生的计数, 计算得到该情形下的本底计数率 $N_0=0.001 \text{ s}^{-1}$, 狭层腔体体积 $V=0.0009 \text{ m}^3$, 探测效率 $\epsilon=4.75\%$, 将各项参数代入式(2), 计算测量系统在不同测量时长情况下的探测限, 如表 1 所示。

3 系统性能测试实验结果及讨论

3.1 ZnS(Ag) 闪烁体质量厚度参数实验

使用 ^{241}Am 源测试了 ZnS(Ag) 不同质量厚度情况下制成的长条形闪烁体(尺寸 $0.5 \text{ cm} \times 4 \text{ cm}$) 对放射源的响应情况, 测试时将放射源活性区正对闪烁体, 距离闪烁体表面 1 cm , 闪烁体与多根波移光纤耦合, 波移光纤长度 50 cm 。图 7 是 7 个不同质量厚度 ZnS(Ag) 闪烁体源响应测量能谱, 其对 ^{241}Am 源响应测试结果汇总情况如表 2 所示。

编号为 1# 和 2# 的 ZnS(Ag) 闪烁体测量源响应能峰与本底噪声重合, 主要原因是 ZnS(Ag) 涂层厚度不够, α 粒子入射

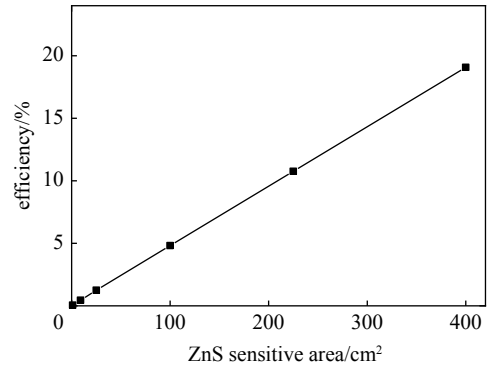


Fig. 5 Relationship between detection efficiency and sensitive area of ZnS(Ag)

图 5 探测器探测效率随 ZnS(Ag) 灵敏面积的变化关系

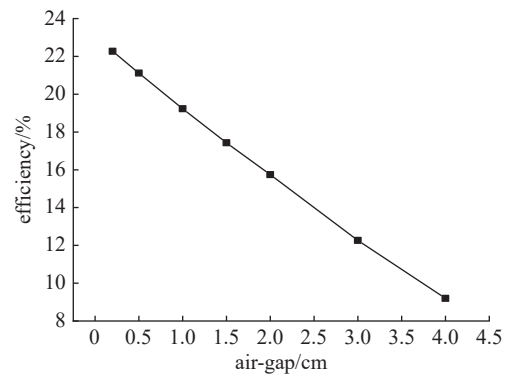


Fig. 6 Relationship between detection efficiency and thickness of narrow chamber

图 6 探测器探测效率随狭层腔体厚度的变化关系

表 1 典型情况下测量系统理论探测限

Table 1 Theoretical detection limits of the measurement system

measurement time/min	detection limit/(Bq·m ⁻³)
1	2900
10	330
30	134
60	81
480	23
1440	13

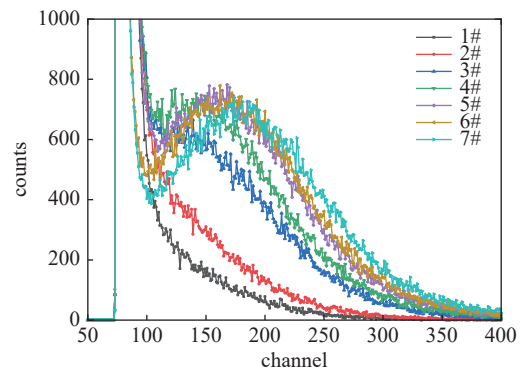


Fig. 7 Reference response spectra of ZnS(Ag) scintillator with different mass thickness

图 7 不同质量厚度 ZnS(Ag) 闪烁体源响应能谱

表 2 ZnS(Ag) 闪烁体源响应测试结果

Table 2 Test results of ZnS(Ag) detector's reference response

No.	mass thickness of ZnS(Ag)/(mg·cm ⁻²)	characteristic of spectrum	counting rate of α spectrum/s ⁻¹	peak position of α spectrum channel
1	3.75	α peak overlapped with background noise	69.36	124.88
2	6.53	α peak overlapped with background noise	132.50	124.53
3	7.62	visible distinction	316.02	138.12
4	14.69	visible distinction	396.75	150.66
5	26.85	visible distinction	463.48	164.50
6	62.85	visible distinction	478.95	172.34
7	123.95	visible distinction	499.39	183.86

到闪烁体上,只有少部分能量沉积在闪烁体内。通过对1#~7#源响应能谱进行分析,得到ZnS(Ag)涂层质量厚度与能峰计数率和峰位之间的关系,由图8可知:(1) α 能峰计数率随涂层质量厚度增加而增加,在涂层质量厚度小于30 mg/cm²时,这一变化幅度很大,当涂层质量厚度大于30 mg/cm²,这一变化逐渐趋于平缓,这是因为随着涂层厚度的增加, α 粒子在涂层中损失的能量越多,进而测量计数率增多,但当涂层厚度增加到30 mg/cm²时, α 粒子能量已经完全沉积在涂层内,后续随着涂层厚度的增加,计数率增加的幅度已经变得平缓。因此,在制作ZnS(Ag)闪烁体时,ZnS(Ag)涂层厚度应大于30 mg/cm²;(2) α 粒子能峰峰位随涂层质量厚度增加而变大,这同样是因为随着涂层厚度的增加, α 粒子在涂层中损失的能量越多。

3.2 复合辐射场 α 粒子甄别能力测试

将活度5 μ Ci的⁶⁰Co源、 9×10^6 s⁻¹的²⁵²Cf中子源及²⁴¹Am源放置在距ZnS(Ag)闪烁体1 cm位置进行测量,测试测量系统对不同类放射源的响应情况,获得了不同放射源的测量能谱,本底测试能谱全谱计数率1.8 s⁻¹, γ 源测试能谱全谱计数率2.2 s⁻¹,中子源测试能谱全谱计数率5.9 s⁻¹,²⁴¹Am源测试能谱全谱计数率27.7 s⁻¹。可以看出,测量系统对各类放射源均有响应。将不同源的测量能谱进行处理,图9是 α 源响应能谱与其它不同响应能谱叠加的能谱图, α 粒子信号与本底信号、 γ 射线信号、中子/ γ 混合场信号区分明显,其中由于²⁵²Cf中子源混合场中 γ 射线高能成分更多,因此其混合场能谱相对⁶⁰Co源能谱高能部分计数更多,后续通过阈值设置可以从混合辐射场测量能谱中区分出 α 粒子信号。因此,该测量系统具备在复合辐射场进行甄别测量 α 粒子的能力。

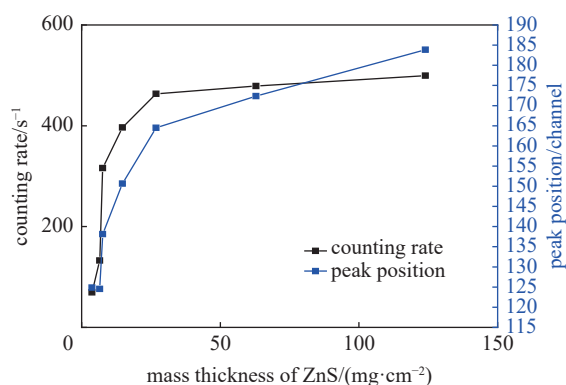
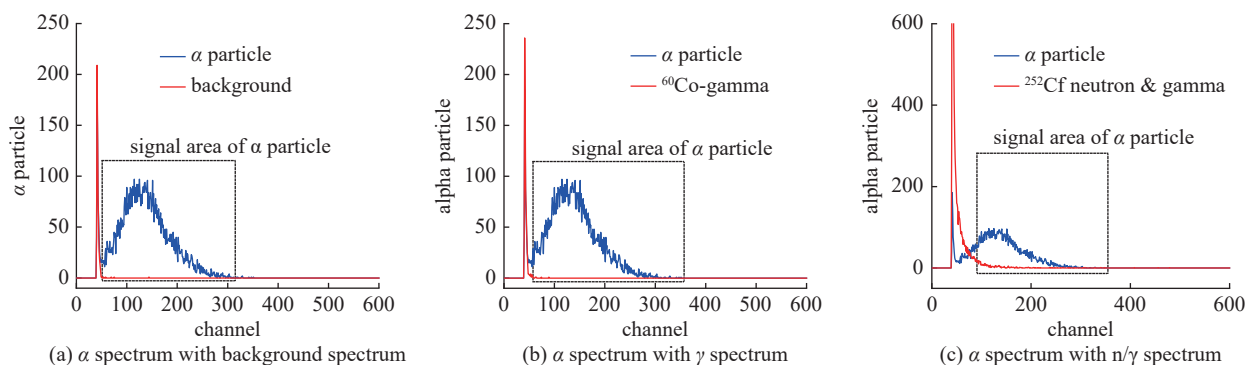


Fig. 8 Relationship between counting rate/peak position of full-energy peak with ZnS(Ag)'s mass thickness

图 8 能峰计数率及能峰峰位与 ZnS(Ag) 涂层质量厚度关系

Fig. 9 Composition of α particle reference response spectra with other different response spectra图 9 α 粒子响应谱与其他不同响应谱的叠加能谱

4 结论

搭建了 ZnS(Ag) 闪烁体作为辐射灵敏材料,基于波移光纤和 SiPM 的钷气溶胶测量系统,对系统的理论性能进

行了分析并开展了系统性能测试实验, 钷气溶胶测量系统实现了 α 粒子能谱测量, 通过设置阈值的方式区分不同射线能谱, 测量系统具备在复合辐射场甄别测量 α 粒子的能力, 实现了密闭容器内钷气溶胶浓度测量。

参考文献:

- [1] 罗文宗, 张文青. 钷的分析化学[M]. 北京: 原子能出版社, 1991. (Luo Wenzong, Zhang Wenqing. Analytical chemistry of plutonium[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1991)
- [2] 李惠彬. 高氡环境下钷气溶胶连续监测技术研究及设备研制[D]. 北京: 清华大学, 2013: 1-3. (Li Huibin. Research on continuous plutonium aerosol monitor in high radon environment and equipment development[D]. Beijing: Tsinghua University, 2013: 1-3)
- [3] ThermoFisher Scientific. Alpha-7A alpha particulate continuous air monitor[EB/OL]. [2022-04-05]. <https://www.thermofisher.cn/document-connect/document-connect.html?url=https%3A%2F%2Fassets.thermofisher.cn%2FTFS-Assets%2FLSG%2FSpecification-Sheets%2FD10058~.pdf>.
- [4] Mirion Technologies. ABPM 203M™ mobile alpha beta particulate monitor[EB/OL]. [2022-04-05]. https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/spec-sheets/144101en-i_abpm-203m-mobile-alpha-beta-particulate-monitor.pdf?1580935176.
- [5] Mirion Technologies. Alpha Sentry Detection Head™[EB/OL]. [2022-04-05]. https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/spec-sheets/doc013209en-b_alpha_sentry_detection_head.pdf?1581955739.
- [6] Hoover M D, Newton G J. Performance testing of continuous air monitors for alpha-emitting radionuclides[J]. Radiat Prot Dosim, 1998, 79(1/4): 499-504.
- [7] García-Toraño E. A comparative study of minimization methods in the fitting of alpha-particle spectra[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A, 1996, 369(2/3): 608-612.
- [8] Bortels G, Hurtgen C, Santry D. Nuclide analysis on low-statistics alpha-particle spectra: an experimental verification for Pu isotopes[J]. Appl Radiat Isot, 1995, 46(11): 1135-1144.
- [9] Sánchez A M, Montero P R. Simplifying data fitting using branching ratios as constraints in alpha spectrometry[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A, 1999, 420(3): 481-488.
- [10] Montero M P R, Orellana C J G, Velasco H G, et al. Fast adaptive alpha-particle spectrum fitting algorithm based on genetically estimated initial parameters[J]. Appl Radiat Isot, 2004, 60(2/4): 145-149.
- [11] Montero M P R, Sánchez A M, Lourttau A M C. Isotopic uranium and plutonium analysis by alpha-particle spectrometry[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B, 2004, 213: 429-433.
- [12] 黄宪果, 夏文友, 涂俊, 等. α 放射性气溶胶连续测量的本底扣除技术及探测灵敏度研究[J]. 辐射防护, 2015, 35(2): 93-96. (Huang Xianguo, Xia Wenyu, Tu Jun, et al. Research on nuclide natural background correction and detection sensitivity of continuous monitoring of alpha aerosols[J]. Radiat Prot, 2015, 35(2): 93-96)
- [13] 孟丹, 杨柳, 马英豪, 等. 高氡环境下放射性气溶胶在线监测仪的研制[J]. 辐射防护, 2020, 40(6): 571-576. (Meng Dan, Yang Liu, Ma Yinghao, et al. Development of an on-line continuous aerosol monitor suitable for high radon environment[J]. Radiat Prot, 2020, 40(6): 571-576)
- [14] 谷铁男. 人工 α 放射性气溶胶监测中能量甄别方法研究[D]. 北京: 清华大学, 2012. (Gu Tienan. Study on energy discrimination method in artificial α radioactive aerosol monitoring[D]. Beijing: Tsinghua University, 2012)
- [15] 涂俊, 黄宪果, 穆龙, 等. 金硅面垒型半导体探测器在氢气环境下失效现象的实验研究[J]. 辐射防护通讯, 2012, 32(1): 18-20. (Tu Jun, Huang Xianguo, Mu Long, et al. Research of failure of Au-Si surface barrier semiconductor detector in hydrogen condition[J]. Radiat Prot Bull, 2012, 32(1): 18-20)
- [16] 汪传高, 骆志平, 庞洪超, 等. 低水平放射性测量的判断限和探测限[J]. 中国辐射卫生, 2018, 27(6): 590-594. (Wang Chuangao, Luo Zhiping, Pang Hongchao, et al. Decision threshold and detection limit in low-levels of radioactivity measurements[J]. Chin J Radial Health, 2018, 27(6): 590-594)