

# 正电子湮没寿命测量中干扰信号对谱仪和测量结果的影响

王垒<sup>1,2</sup> 彭雄刚<sup>2,3</sup> 张红强<sup>2,3</sup> 于润升<sup>2,3</sup> 张鹏<sup>2</sup> 伍海彪<sup>1</sup> 吴亚茹<sup>2</sup>

王宝义<sup>2,3</sup> 曹兴忠<sup>2,3</sup> 肖德涛<sup>1</sup> 刘福雁<sup>2</sup>

1(南华大学核科学技术学院 衡阳 421001)

2(中国科学院高能物理研究所 北京 100049)

3(中国科学院大学 北京 100049)

**摘要** 正电子湮没信号的精准采集与关联符合技术是寿命谱灵敏表征材料微观缺陷的基础。测量环境中放射性射线对正电子湮没信号采集的影响,制约着寿命谱方法在复杂辐射背景中应用,特别是在核结构材料中子辐照损伤研究中,中子活化诱发的放射性核素形成的 $\gamma$ 射线本底,将影响正电子寿命谱仪的测量结果。为探究 $\gamma$ 本底对正电子湮没寿命测量的影响规律,本文基于<sup>60</sup>Co、<sup>137</sup>Cs源设计了辐射背景仿真实验,结果显示:<sup>60</sup>Co源产生的双高能 $\gamma$ 射线是影响寿命谱形状及湮没寿命的主要因素;通过对比高、低两种典型活度比(<sup>60</sup>Co/<sup>22</sup>Na为3.3和1.9)下的测量结果,并经活化反应堆压力容器钢样品放射性本底真实情况检验,结果发现:在低活度比下,辐射本底导致的偶然符合概率增大,寿命谱峰谷比显著变差;在高活度比下,除偶然符合外,信号错误符合概率急剧增加,谱形明显畸变且寿命值迅速减小。基于本文辐射背景放射源模拟方法及干扰 $\gamma$ 的影响规律,可进一步探索正电子湮没寿命测量中 $\gamma$ 本底排除的新技术和新方法。

**关键词** 寿命谱, 峰谷比, 偶然符合, 错误符合, 活度比

中图分类号 TL817

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.060402

## Influence of interference signals on spectrometer and measurement results in positron annihilation lifetime measurements

WANG Lei<sup>1,2</sup> PENG Xiong-gang<sup>2,3</sup> ZHANG Hong-qiang<sup>2,3</sup> YU Run-sheng<sup>2,3</sup> ZHANG Peng<sup>2</sup>  
WU Hai-biao<sup>1</sup> WU Yaru<sup>2</sup> WANG Bao-yi<sup>2,3</sup> CAO Xing-zhong<sup>2,3</sup> XIAO De-tao<sup>1</sup> LIU Fu-yan<sup>2</sup>

1(School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China)

2(Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract** [Background] The accurate acquisition and correlation coincidence of positron annihilation signal form the basis of the lifetime spectrum sensitive characterization of microscopic defects in materials. The complex radiation background interferes with the acquisition of positron annihilation signals, particularly in the study of

国家重点研发计划(No.2019YFA0210002)、国家自然科学基金(No.11875055, No.11875165, No.12105305)资助

第一作者: 王垒, 女, 1994年出生, 2016年毕业于烟台大学, 现为硕士研究生, 研究领域为正电子湮没谱学技术。

通信作者: 肖德涛, E-mail: xiaodt@usc.edu.cn; 刘福雁, E-mail: liufy@ihep.ac.cn

收稿日期: 2023-03-06, 修回日期: 2023-04-13

Supported by National Key R&D Program of China (No.2019YFA0210002), National Natural Science Foundation of China (No.11875055, No.11875165, No.12105305)

First author: WANG Lei, female, born in 1994, graduated from Yantai University in 2016, master student, focusing on study of positron annihilation spectroscopy technology

Corresponding author: XIAO Detao, E-mail: xiaodt@usc.edu.cn; LIU Fuyan, E-mail: liufy@ihep.ac.cn

Received date: 2023-03-06, revised date: 2023-04-13

neutron radiation damage of nuclear structural materials. The  $\gamma$  ray background generated by radionuclides induced by neutron activation affects the measurement results of positron lifetime spectrometer. **[Purpose]** This study aims to investigate the effect of  $\gamma$  background on positron annihilation lifetime measurement. **[Methods]** First of all, the positron lifetime measurement system is built in a "fast-fast coincidence" manner, and radiation background simulation experiments are designed by selecting two typical nuclides,  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$  sources, with nearby feature  $\gamma$  photon energy for measuring positron annihilation lifetime. Then, the spectra under two typical activity ratios are compared with the activated neutron-irradiated samples. **[Results]** The simulation results indicate that the double high energy  $\gamma$  rays generated by  $^{60}\text{Co}$  sources are the primary factors affecting the spectrum shape and lifetime components. When the  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  activity ratio is relatively low, 1.9, the peak-to-valley ratio of the spectrum significantly degrades, with the increase of random coincidence probability caused by radiation background. Further, at high activity ratio of 3.3, besides random coincidence, the false coincidence probability increases sharply, and the spectral shape is evidently distorted. For neutron-irradiated RPV steel, the lifetime value is reduced by 17% and 46% at low and high activity, respectively, compared with the non-irradiated samples. **[Conclusions]** Using the simulation method of radiation background sources and the influence rules of interference  $\gamma$  in this study, new techniques for eliminating  $\gamma$  background could be further explored in positron annihilation lifetime measurement.

**Key words** Lifetime spectrum, Peak-to-valley ratio, Random coincidence, Error coincidence, Activity ratio

正电子湮没谱学方法是在原子尺度上有效研究金属、合金等材料中空位/空位团、位错、偏析物等微观缺陷的特色手段<sup>[1]</sup>。正电子湮没寿命谱(Positron Annihilation Lifetime Spectrum, PALS)测量技术能够反映材料中微观缺陷的类型和浓度,是正电子谱学方法中最具代表性和重要的方法<sup>[2]</sup>。正电子湮没寿命测量的基本原理是通过统计大量的随正电子产生、 $^{22}\text{Na}$ 放射源放出的 1.28 MeV 级联  $\gamma$  光子(起始)与样品中正电子湮没释放的 0.511 MeV  $\gamma$  光子(停止)间的时间差从而获得正电子在材料中的存活时间分布,即正电子湮没寿命谱。

谱仪系统中,起始、停止特征  $\gamma$  射线的精准采集,与时间关联符合技术,是正电子寿命准确测量的关键,核心在于对不同  $\gamma$  信号能窗阈值的精确设置,以排除环境中本底噪声影响,有效识别湮没事例。而在特殊场景中,测量环境或测量样品材料中可能包含有复杂的  $\gamma$  放射性本底<sup>[3]</sup>,将引起起始、停止能窗内特征伽马光子的采集发生紊乱,导致正电子寿命测量受到不同程度干扰。 $\gamma$  辐射背景环境在反应堆材料中子辐照损伤研究中极为常见,例如,反应堆材料加工热室以及中子活化材料本身均携带有  $^{56}\text{Mn}$ 、 $^{60}\text{Co}$  等多种  $\gamma$  放射性核素,使得正电子湮没寿命谱在这些特殊环境中的应用往往存在较大挑战。

正电子寿命谱仪能窗固定,辐射背景对其测量的影响决定于放射性核素产生  $\gamma$  光子的能量和射线数量。对于单条  $\gamma$  本底射线,在被起始或停止能窗捕获后,与另一通道的特征信号符合后,主要贡献在于偶然符合概率增大,使得寿命谱本底变差;而同一

核素释放的两条及以上  $\gamma$  射线本底一旦在所设定能窗内被捕获,除偶然符合外,这些时间关联  $\gamma$  射线的同时探测也将促使错误符合的比例逐渐增大,对测量结果产生严重影响,甚至得到错误的结果。例如,对于活化核结构材料中广泛存在的  $^{60}\text{Co}$  核素,其释放的 1.17 MeV 和 1.33 MeV 双高能  $\gamma$  光子不仅极容易被起始能窗捕获,影响谱形峰谷比,同时可能发生康普顿散射,被误判作停止信号,发生错误符合,导致谱形畸变。

国际上提出了多种方法以排除  $\gamma$  辐射背景对正电子湮没寿命谱仪带来的不良影响。为排除中子活化放射性核素  $^{60}\text{Co}$  对寿命谱的影响,研究核结构材料中的中子辐照缺陷,Hoorebeke 等<sup>[4]</sup>提出了一种“求差谱”的方法。将放射性样品的常规正电子湮没寿命谱与单测放射性样品得到的谱相减得到差异谱,通过解谱去掉寿命谱中  $^{60}\text{Co}$  的成分。这种方法的缺点在于谱计数相减时,每道计数的统计性变差,寿命测量不确定度增大。而 Krsjak 等<sup>[5]</sup>采用同样的测量方法,但在捕获模型的理论基础上进一步推导,由正电子捕获动力学计算了缺陷的浓度,以此确定  $^{60}\text{Co}$  占比,通过在解谱软件上固定正电子源、Co 峰、背底分量,扣除寿命谱中  $^{60}\text{Co}$  对本底和峰位计数的贡献。这些工作目的是保证解谱结果准确性,但未系统研究  $^{60}\text{Co}$  在测量过程中的影响。

本文选取了  $\gamma$  射线能量与正电子湮没寿命测量特征  $\gamma$  光子能量相近的  $^{60}\text{Co}$  和  $^{137}\text{Cs}$  两种典型核素来模拟测量环境中的辐射背景,并实测了中子辐照后活化的反应堆压力容器(Reactor Pressure Vessel, RPV)钢样品,通过分析影响正电子湮没寿命谱测量

的因素,结合谱形的变化程度,探究放射性本底对寿命谱的影响规律,为研发新技术排除 $^{60}\text{Co}$ 信号干扰,探索辐照后核结构材料缺陷演化的物理机制提供理论依据。

## 1 实验方法

正电子寿命测量系统按照“快-快符合”方式搭建,优点是直接对快信号进行处理,能有效减少脉冲堆积,提高计数率。由于 $\text{BaF}_2$ 晶体<sup>[6-7]</sup>的耐 $\gamma$ 辐照、高时间分辨和信噪比等优点,将 $\text{BaF}_2$ 晶体耦合光电倍增管(XP2020Q型)经过电路连接组成探测器。谱仪由起始、停止探测器及一系列的核电子学插件组成,测量原理如图1所示。

恒比定时微分甄别器(CFDD,ORTEC 583B)不仅可以在探测到 $\gamma$ 光子时产生定时信号,又能对探测的 $\gamma$ 光子进行能量选择。通过调节583B的上、下阈值,将起始、停止探测器的能窗分别设置在1.28 MeV、0.511 MeV  $\gamma$ 光子的1.13~1.55 MeV、0.39~0.69 MeV区域的全能峰位置。通过对输入信号幅度的选择,能有效识别湮没事例,排除环境中噪声等信号干扰。时幅转换器(TAC,ORTEC 566)进行时间符合测量,符合时间窗为100 ns,并将探测到的起始、停止信号的时间间隔转换成一个高度与之成正比的脉冲信号。

为验证搭建谱仪的性能,测量了经过退火处理的纯铁样品寿命谱。放射源为7  $\mu\text{m}$ 厚Kapton薄膜封装的 $^{22}\text{Na}$ 正电子源,源强为0.89 MBq,两片完全

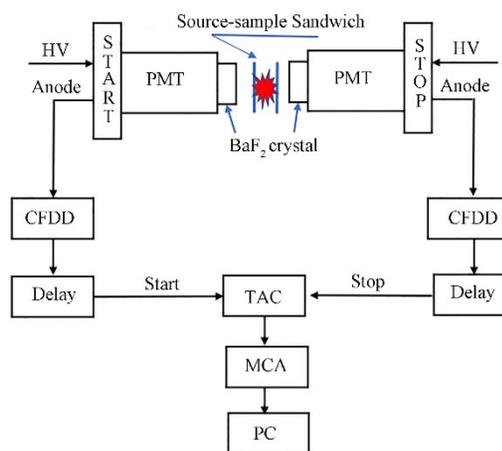


图1 正电子湮没寿命谱仪测量原理框图

Fig.1 Principal scheme of the positron annihilation lifetime spectrometer

相同的样品紧贴放射源呈“三明治”结构。用LT9软件<sup>[8]</sup>进行解谱,扣除源分量后<sup>[9]</sup>,解谱结果见表1。解谱时,寿命谱可以看作是多个指数寿命成分的叠加<sup>[1]</sup>,数学模型可写作:

$$N(t) = \sum_{i=1}^n \frac{I_i}{\tau_i} \times \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (1)$$

式中: $\tau_i$ 、 $I_i$ 为第*i*种寿命成分的寿命值和强度; $n$ 为寿命成分数量。在本文中,正电子在样品中共有两种寿命成分: $\tau_1$ 、 $I_1$ 为正电子在样品中湮没的寿命和强度; $\tau_2$ 、 $I_2$ 为电子偶素在样品表面等湮没的寿命和强度; $\chi^2$ 为拟合系数,其值要求在1附近。正电子湮没寿命谱仪的寿命谱解谱结果与文献<sup>[10]</sup>中铁的体寿命110 ps相同,说明谱仪能满足测量要求。

表1 寿命谱解谱结果

Table 1 Resolved results of positron-lifetime spectrum

名称 Type	$\tau_1$ / ns	$I_1$ / %	$\tau_2$ / ns	$I_2$ / %	$\chi^2$	时间分辨 Time resolution / ps
标准谱仪 Standard spectrometer	0.110	98.8	1.588	1.2	1.08	213
搭建谱仪 Experimental spectrometer	0.110	97.8	1.805	2.2	0.97	198

## 2 结果与讨论

### 2.1 辐射本底模拟测量

本实验用 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 两种典型的 $\gamma$ 射线源模拟放射性本底,研究 $\gamma$ 射线本底对寿命谱测量的影响。其中, $^{60}\text{Co}$ 产生的1.17 MeV、1.33 MeV双高能 $\gamma$ 射线与起始信号能量相近, $^{137}\text{Cs}$ 产生的0.662 MeV  $\gamma$ 光子与停止信号能量相近,分别作为高能和低能 $\gamma$ 射线的模拟源。在低能 $\gamma$ 射线作为辐射本底研究中,将 $^{137}\text{Cs}/^{22}\text{Na}$ 活度比2.2( $^{137}\text{Cs}$ 源活度0.4 MBq)下测得的寿命谱,与在双高能 $\gamma$ 射线影响下的高、低两种典型活度比下测得的寿命谱对比。根据不同活度比下

寿命谱形、寿命参数的变化选择了高、低两种典型活度比,低活度比是 $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$ 活度比1.9( $^{60}\text{Co}$ 源活度1.7 MBq)、高活度比是 $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$ 活度比3.3( $^{60}\text{Co}$ 源活度3.0 MBq)。低活度比测得的寿命谱形变化不大,但峰谷比明显变差;而在高活度比下,寿命谱形发生严重畸变,且峰谷比也变差。高活度比下纯铁样品的寿命谱图如图2所示,寿命谱的解谱结果见表2。

在 $\gamma$ 辐射本底影响下,寿命谱的峰谷比明显变差,且源活度越高,峰谷比越差。Janne认为常规谱仪测得寿命谱的峰谷比与源活度有关,并通过 $R_c/R_r = 1/(A\tau)$ 来估算放射源的活度水平<sup>[11]</sup>。 $R_c$ 为

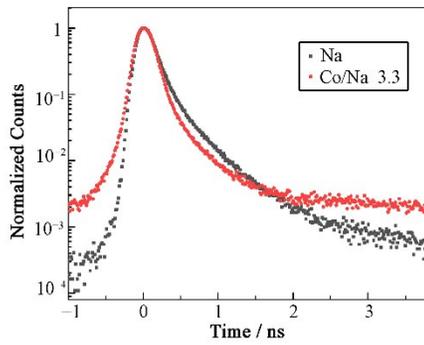


图2  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  活度比 3.3 下纯铁的使用寿命谱图  
(彩图见网络版)

Fig.2 Positron-lifetime spectrum of pure iron(Fe) in  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  with activity ratio of 3.3 (color online)

峰计数;  $R_i$  为本底计数;  $A$  为源活度;  $\tau$  为时间窗宽度。为了研究不同活度比下峰谷比的变化,同时考虑干扰  $\gamma$  射线的能量、数量对谱仪测量的不同影响,理论计算了不同活度比下峰谷比的变化并与实验结果对比分析。

$^{137}\text{Cs}$  源作为辐射本底测得的使用寿命谱峰谷比变差是由于  $^{137}\text{Cs}$  的低能  $\gamma$  信号与  $^{22}\text{Na}$  起始信号偶然符合,增加了寿命谱的本底。 $^{60}\text{Co}$  的  $\gamma$  射线不仅与  $^{22}\text{Na}$

信号偶然符合,也会发生康普顿散射<sup>[12]</sup>被停止探测器收集而发生错误符合。忽略信号的偶然符合,将不同活度  $^{60}\text{Co}$  源与  $^{22}\text{Na}$  源活度相加计算的峰谷比与  $^{22}\text{Na}$  源峰谷比进行对比,可以直观地比较不同能量干扰  $\gamma$  射线影响下峰谷比的变化程度,数值越小,峰谷比越差。在  $^{22}\text{Na}$  源、 $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  低活度比、 $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  高活度比情况下纯 Fe 样品寿命谱的峰谷比 (Peak-to-Valley Ratio, PVR) 计算结果如下:

$$\text{理论: PVR}_{\text{Na}}:\text{PVR}_{\text{L}}:\text{PVR}_{\text{H}}=1:0.34:0.23,$$

$$\text{实验: PVR}_{\text{Na}}:\text{PVR}_{\text{L}}:\text{PVR}_{\text{H}}=1:0.19:0.13.$$

实验测得的峰谷比为寿命谱的最高峰值计数与峰后平坦连续本底区域内平均本底计数的比值,计算的  $\text{PVR}_{\text{L}}/\text{PVR}_{\text{Na}}$  值远小于理论计算得到的值,约是理论值的一半,实验测得的峰谷比更差;通过理论和实验计算的  $\text{PVR}_{\text{L}}/\text{PVR}_{\text{H}}$  值均为 1.5。说明低活度比下,不仅源活度使峰谷比变差,信号的符合也会影响峰谷比;而  $^{60}\text{Co}$  活度的增加,信号发生错误符合的概率增加,但实验值与源活度计算值基本一致;说明低活度比下峰谷比变差确实是信号偶然符合导致的。可以认为,低活度比下,本底计数中约一半是偶然符合信号贡献的。

表2 纯 Fe 样品寿命谱解谱结果  
Table 2 Resolved results of pure iron(Fe) positron-lifetime spectrum

名称 Type	$\tau_1 / \text{ns}$	$I_1 / \%$	$\tau_2 / \text{ns}$	$I_2 / \%$	$\tau_3 / \text{ns}$	$I_3 / \%$	$\chi^2$	PVR/PVR <sub>Na</sub>
Fe	0.110	72.8	0.382	25.6	1.805	1.6	0.97	1
Cs/Na 2.2	0.109	74.1	0.382	24.9	1.746	1.0	0.92	0.60
Co/Na 1.9	0.103	78.3	0.369	20.0	1.563	1.7	1.08	0.19
Co/Na 3.3	0.089	82.5	0.343	16.0	1.570	1.5	1.03	0.13

在高活度  $^{60}\text{Co}$  影响下,图2中寿命谱形严重畸变,对寿命谱形高斯拟合后得到谱形参数半高宽 (Full Width at Half Maximum, FWHM) 和十分之一高宽 (Full Width Tenth Maximum, FWTM) 等谱形参数,经计算,FWTM 参数减少了 8.9%。这是由于两个探测器同时探测到  $^{60}\text{Co}$  源发出的  $\gamma$  信号,发生了错误符合。随着  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  活度比的增加,寿命谱的计数率明显增加,单位活度的计数率分别为  $120 \text{ s}^{-1} \cdot \text{MBq}^{-1}$ 、 $170 \text{ s}^{-1} \cdot \text{MBq}^{-1}$ 、 $191 \text{ s}^{-1} \cdot \text{MBq}^{-1}$ 。

表2中短寿命分量  $\tau_1$  为正电子在纯铁样品中湮没的寿命。在  $^{137}\text{Cs}/^{22}\text{Na}$  活度比 2.2 时测得的使用寿命谱解谱结果  $\tau_1$  与纯铁样品相比差别不大,而  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  活度比 1.9 的结果小了 6%;随着  $^{60}\text{Co}$  源活度的增加,图2显示出  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  活度比 3.3 时的寿命谱已明显畸变,此时,  $\tau_1$  相比纯铁寿命进一步减小了 19%。因此,在  $^{60}\text{Co}$  源影响下,信号发生错误符合,导致寿命谱解谱结果偏离实际值,且源活度越强,解谱结果越偏离实际值。

表2中,在  $^{60}\text{Co}/^{22}\text{Na}$  活度比 1.9 下测得的  $\text{PVR}/\text{PVR}_{\text{Na}}$  值比  $^{137}\text{Cs}/^{22}\text{Na}$  活度比 2.2 的值小,  $^{60}\text{Co}$  影响下的峰谷比更差,说明  $^{60}\text{Co}$  的两条干扰  $\gamma$  射线对峰谷比的影响比  $^{137}\text{Cs}$  的单条  $\gamma$  射线影响大,且  $^{60}\text{Co}$  源活度越强,峰谷比越差。

目前,谱仪停止能窗较宽,进入能窗的  $^{137}\text{Cs}$  干扰射线较多,这可能是  $^{137}\text{Cs}$  本底放射性环境中谱形峰谷比变差的原因,通过缩小停止能窗,预期可有效改善  $^{137}\text{Cs}$  放射性本底对测量的影响。而对于  $^{60}\text{Co}$  干扰源,其产生的射线能量 (1.17 MeV 和 1.33 MeV) 与起始  $\gamma$  光子 1.28 MeV 能量非常接近,无法通过减小能窗的方式减弱其影响,但由于  $^{60}\text{Co}$  源与  $^{22}\text{Na}$  源衰变过程全无时间关联,可通过缩短符合时间窗以减少不同放射源射线间的偶然符合,实现谱线峰谷比的改善。

## 2.2 放射性样品测量

本实验用的放射性样品为中子辐照后的 RPV

钢样品,型号为国产 A508-III 型钢锻件,中子反应堆辐照后的样品处理及活化样品寿命谱实验测量均在合作单位——中国原子能科学研究院完成,尺寸为  $10\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 0.5\text{ mm}$  和  $10\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 1.0\text{ mm}$  的各两片样品可提供不同活度的干扰  $\gamma$  射线,经标定,活化样品的  $\gamma$  射线本底绝大部分来自  $^{60}\text{Co}$  放射性核素,其活度分别测定为  $1.5\text{ MBq}$  和  $2.8\text{ MBq}$ 。根据辐照后样品中放射性活度计算了  $0.5\text{ mm}$ 、 $1.0\text{ mm}$  厚 RPV 钢样品和未辐照样品的峰谷比,其中  $^{22}\text{Na}$  源活度为  $0.76\text{ MBq}$ ,在理论和实验上计算峰谷比的比值如下:

理论:  $\text{PVR}_{\text{Na}}:\text{PVR}_{0.5}:\text{PVR}_1=1:0.33:0.21$ ,

实验:  $\text{PVR}_{\text{Na}}:\text{PVR}_{0.5}:\text{PVR}_1=1:0.31:0.18$ 。

在不同放射性活度条件下测得寿命谱的峰谷比与理论计算结果基本一致,峰谷比变差主要与 RPV 钢样品中放射性活度有关。图 3 是活度比 2.0、3.7 时测得的寿命谱图,图 4 是谱形参数,表 3 是 RPV 钢样品的解谱结果。

由于中子辐照后的 RPV 钢样品中带有放射性,

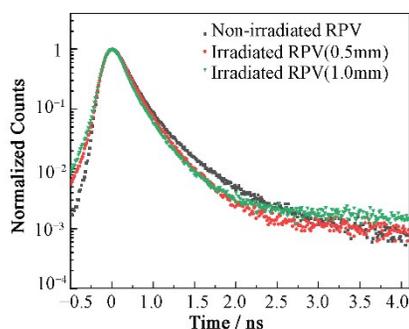


图 3 辐照 RPV 钢样品的寿命谱图(彩色见网络版)  
Fig.3 Positron-lifetime spectrum of irradiated RPV steel samples (color online)

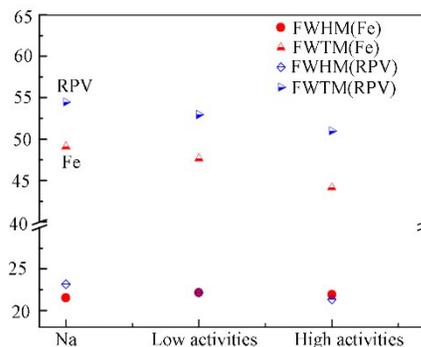


图 4 寿命谱的 FWHM、FWTM 参数  
Fig.4 FWHM and FWTM parameter of positron-lifetime spectrum

会自发地释放出  $\gamma$  光子,信号的偶然符合导致峰谷比变差;信号的错误符合使寿命谱形发生畸变,谱形参数的 FWHM、FWTM 值变小,且样品中放射性活度越高,谱形畸变程度越大,与模拟实验结论一致。放射性 RPV 钢样品的单位活度计数率分别为  $345\text{ s}^{-1}\cdot\text{MBq}^{-1}$ 、 $170\text{ s}^{-1}\cdot\text{MBq}^{-1}$ 、 $120\text{ s}^{-1}\cdot\text{MBq}^{-1}$ 。

谱形参数的明显变化必然导致寿命谱解谱结果的差异性,对比图 2 寿命谱形状和表 3 解谱结果可以看出,辐照后活化样品中放射性活度越高,谱线畸变越严重,同时  $\tau_1$  寿命值也越小:相比于未辐照样品正电子湮没体寿命,  $0.5\text{ mm}$  厚 RPV 钢的  $\tau_1$  减少了 17%,而  $1\text{ mm}$  厚 RPV 钢的  $\tau_1$  减小程度高达 46%,充分体现了样品中干扰  $\gamma$  射线对寿命谱测量的影响。此外,反应堆中大剂量中子辐照势必导致样品中缺陷的萌生和聚集<sup>[13-15]</sup>,其浓度随之增加,甚至会产生大尺寸的缺陷结构,表 3 中放射性活度越高,影响较大的是  $\tau_1$  短寿命成分,而  $I_2$ 、 $I_3$  浓度增大趋势也能一定程度上反映辐照后样品中缺陷数量的增加。

表 3 RPV 钢寿命谱解谱结果

Table 3 Resolved results of RPV steel positron-lifetime spectrum

样品名称 Sample	$\tau_1 / \text{ns}$	$I_1 / \%$	$\tau_2 / \text{ns}$	$I_2 / \%$	$\tau_3 / \text{ns}$	$I_3 / \%$	$\chi^2$	$\text{PVR}/\text{PVR}_{\text{Na}}$	$A_{\text{Co-60}} / \text{MBq}$
未辐照 RPV 钢 Non-irradiated RPV	0.145	97.4	—	—	1.955	2.6	1.04	1	0
辐照后 RPV(0.5 mm)钢 Irradiated RPV (0.5 mm)	0.120	59.6	0.263	39.0	0.880	1.4	1.01	0.31	1.5
辐照后 RPV(1 mm)钢 Irradiated RPV (1 mm)	0.078	47.1	0.216	49.7	0.704	3.2	1.08	0.18	2.8

### 3 结语

本文采用与正电子湮没寿命谱采集信号能量相近的  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  源设计了辐射本底干扰实验,在  $^{137}\text{Cs}$  源的影响下,信号的偶然符合导致寿命谱峰谷比变差,在  $^{60}\text{Co}$  源的影响下,信号不仅发生偶然符合,还

发生错误符合,使寿命谱形发生畸变。此外,理论计算了不同活度  $^{60}\text{Co}$  对峰谷比的影响,结果表明:低活度比下寿命谱本底中约一半的计数由  $^{60}\text{Co}$  产生的  $\gamma$  信号与  $^{22}\text{Na}$  产生的  $\gamma$  信号偶然符合贡献。最后,实验测量了在相同水平活度比下中子辐照后 RPV 钢样品,解谱结果表明,样品中放射性活度越高,峰谷

比越差,解谱结果偏离实际值越大。为排除复杂辐射背景中的 $\gamma$ 射线干扰,本文建立的 $\gamma$ 本底模拟方法和影响规律可提供新的思路:对于单 $\gamma$ 射线本底,可通过缩小探测器能窗,选用高能量分辨探测器提高 $\gamma$ 识别能力等方法实现寿命谱的准确测量;而针对两 $\gamma$ 甚至是多 $\gamma$ 射线本底,其对谱仪影响较大,需要尽可能缩短系统符合时间窗,或采用多探测器符合的方法精准甄别每条 $\gamma$ 射线能量以降低本底放射源的干扰。

**致谢** 感谢中国原子能科学研究院鱼滨涛、张乔丽两位老师提供活化样品和实验场地。

**作者贡献声明** 王垒负责实验及分析,完成初稿、修改稿及最终稿;彭雄刚、张红强负责数据处理;于润升负责项目支持;张鹏负责实验指导;伍海彪、吴亚茹负责实验测试,结果验证;王宝义负责方法设计,项目支持;曹兴忠负责文章框架指导,项目支持;肖德涛负责项目支持;刘福雁负责实验指导,文章审阅修改。

#### 参考文献

- 1 王少阶,陈志权,王波. 应用正电子谱学[M]. 武汉: 湖北科学技术出版社, 2008.  
WANG Shaojie, CHEN Zhiquan, WANG Bo. Applied positron spectroscopy[M]. Wuhan: Hubei Science & Technology Press, 2008.
- 2 郁伟中. 正电子物理及其应用[M]. 北京: 科学出版社, 2002.  
YU Weizhong. Positron physics and its application[M]. Beijing: Science Press, 2002.
- 3 Bes R, Vancraeynest A. PALSRAm: a three-detector positron annihilation lifetime spectrometer for  $\gamma$ -emitting radioactive materials[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2023, **1052**: 168265. DOI: [10.1016/j.nima.2023.168265](https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168265).
- 4 Hoorebeke L V, Fabry A, Walle E V, *et al.* A three-detector positron lifetime setup suited for measurements on irradiated steels[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 1996, **371**: 566 - 571.
- 5 Krsjak V, Grafutin V, Ilyukhina O, *et al.* Study of PRIMAVERA steel samples by positron annihilation spectroscopy technique II - Lifetime measurements[J]. Journal of Nuclear Materials, 2012, **421**(1 - 3): 97 - 103. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2011.11.067](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.11.067).
- 6 王红锋,刘福雁,王英杰,等. 掺钇 BaF<sub>2</sub> 闪烁探测器性能研究[J]. 核技术, 2020, **43**(3): 030401. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.030401](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.030401).  
WANG Hongfeng, LIU Fuyan, WANG Yingjie, *et al.* Study on performance of Yttrium doped BaF<sub>2</sub> scintillation detector[J]. Nuclear Techniques, 2020, **43**(3): 030401. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.030401](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.030401).
- 7 韩振杰,刘福雁,张鹏,等. 基于起始信号触发判选的正电子湮没寿命测量方法[J]. 核技术, 2018, **41**(6): 060402. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.060402](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.060402).  
HAN Zhenjie, LIU Fuyan, ZHANG Peng, *et al.* Method of positron annihilation lifetime measurement triggered by start-signal[J]. Nuclear Techniques, 2018, **41**(6): 060402. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.060402](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.060402).
- 8 Kansy J. Microcomputer program for analysis of positron annihilation lifetime spectra[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1996, **374**(2): 235 - 244. DOI: [10.1016/0168-9002\(96\)00075-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(96)00075-7).
- 9 Djourellov N, Misheva M. Source correction in positron annihilation lifetime spectroscopy[J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 1996, **8**(12): 2081 - 2087. DOI: [10.1088/0953-8984/8/12/020](https://doi.org/10.1088/0953-8984/8/12/020).
- 10 Zeman A, Debarberis L, Kupča L, *et al.* Study of radiation-induced degradation of RPV steels and model alloys by positron annihilation and Mössbauer spectroscopy[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, **360**(3): 272 - 281. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2006.10.011](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.10.011).
- 11 Heikinheimo J, Bes R, Tuomisto F. Development of a triple-coincidence positron lifetime spectrometer for nuclear materials research[C]. Helsinki, Finland, Nuclear Science and Technology Symposium, 2016.
- 12 Dubov L Y, Grafutin V I, Funtikov Y V, *et al.* Optimization of BaF<sub>2</sub> positron-lifetime spectrometer geometry based on the Geant4 simulations[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2014, **334**: 81 - 87. DOI: [10.1016/j.nimb.2014.05.006](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2014.05.006).
- 13 Slugeň V. Defects investigation in neutron irradiated reactor steels by positron annihilation[J]. Nuclear Engineering and Design, 2005, **235**(17 - 19): 1961 - 1967. DOI: [10.1016/j.nucengdes.2005.04.008](https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2005.04.008).

- 14 Shi J J, Yang W, Zhu Z J, *et al.* Slow positron beam study of highly irradiated RPV steel under proton and ion impact [J]. Radiation Physics and Chemistry, 2019, **156**: 199 - 204. DOI: [10.1016/j.radphyschem.2018.11.011](https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.11.011).
- 15 Toyama T, Yamamoto T, Ebisawa K, *et al.* Effects of neutron flux on irradiation-induced hardening and defects in RPV steels studied by positron annihilation spectroscopy[J]. Journal of Nuclear Materials, 2020, **532**: 152041. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2020.152041](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2020.152041).