

放射性钠气溶胶监测仪校准方法研究

李 明 徐利军 戎永华 林 敏 叶宏生 张卫东 罗 瑞 陈克胜

(中国原子能科学研究院 计量与校准技术重点实验室 北京 102413)

摘要 中国实验快堆(China Experimental Fast Reactor, CEFR)采用液态金属钠为冷却剂,一回路冷阱工艺间的放射性钠气溶胶对工作人员的健康和安全有危害,需要对其进行监测以便及时采取相应的防护措施。为保证监测结果的准确性,需要对放射性钠气溶胶监测仪进行定期校准。通过采用特制的放射性气溶胶滤膜源,对放射性钠气溶胶监测仪进行校准方法研究,分别对监测仪计数率对标准源活度响应、相对误差、重复性等主要校准不确定度来源进行分析及不确定度评定。研究结果表明:放射性钠气溶胶监测仪计数率对活度响应因子的不确定度为5%($k=2$),该校准方法适用于放射性钠气溶胶监测仪的校准,满足该监测仪量值溯源的要求。

关键词 钠气溶胶, 标准 γ 体源, 监测仪校准技术

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.050401

Study on calibration method of radioactive sodium aerosol monitors

LI Ming XU Lijun RONG Yonghua LIN Min YE Hongsheng
ZHANG Weidong LUO Rui CHEN Kesheng

(National Key Laboratory for Metrology and Calibration Techniques, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract [Background] Liquid metal sodium is used as coolant in China Experimental Fast Reactor (CEFR), the radioactive sodium aerosol in primary loop cold trap process needs to be monitored, so that the corresponding protective measures can be taken in time to ensure the health and safety of the staff. To ensure the accuracy of the monitoring results, it is necessary to calibrate the radioactive sodium aerosol monitor regularly. [Purpose] This study aims to propose an effective method for the calibration of radioactive sodium aerosol monitor. [Methods] A special radioactive aerosol membrane source was designed and applied to calibrating the radioactive sodium aerosol monitors. The response, relative error, and repeatability of the monitor were studied separately, and the uncertainty of the calibration factor was evaluated. [Results] The results show that the uncertainty of response factor is 5% ($k=2$). [Conclusions] This calibration method is suitable for the calibration of radioactive sodium aerosol monitors, and meets the requirements for traceability of the monitors.

Key words Sodium aerosol, Standard γ source, Calibration technology of monitor

中国实验快堆(China Experimental Fast Reactor, CEFR)是我国第一座钠冷快中子实验堆,设计热功率为65 MW,电功率20 MW。CEFR使用

液态金属钠^[1]作为一回路冷却剂和二回路载热剂,堆芯和一回路设备均布置在主容器内。快堆一回路冷阱工艺间中的钠净化系统是维护反应堆安全运行

中国原子能科学研究院核能开发项目资助

第一作者:李明,女,1988年出生,2013年于中国原子能科学研究院硕士学位,分析化学专业

通信作者:戎永华, E-mail: nhryh@126.com

收稿日期:2020-11-09,修回日期:2021-02-22

Supported by Nuclear Energy Development Project of China Academy of Atomic Energy

First author: LI Ming, female, born in 1988, graduated from China Academy of Atomic Energy with a master's degree in 2013, focusing on analytical chemistry

Corresponding author: RONG Yonghua, E-mail: nhryh@126.com

Received date: 2020-11-09, revised date: 2021-02-22

的重要组成部分。为使工作人员及时了解区域 γ 辐射的实时数据,并能在辐射水平异常时,发出报警信号,确保工作人员免受超过允许剂量的 γ 射线照射,在快堆一回路冷阱工艺间中安装了多个放射性钠气溶胶监测仪。为保证其测量结果的准确性,需要对放射性钠气溶胶监测仪进行检定校准。

放射性钠气溶胶监测仪是对收集到滤膜上的放射性物质进行测量、定值,其测量对象为 ^{22}Na 、 ^{24}Na ,监测仪探测单元为盖革(G-M)计数管,是针对 γ 射线进行探测,采用的Time-to-Count测量方法是一种相对测量方法;另外快堆一回路钠气溶胶放射性监测系统安装多个放射性钠气溶胶监测仪,安装位置固定,电缆无法拆卸、现场环境复杂、而且拆卸固定式监测仪送实验室校准话费时间较长,不利于现场辐射水平连续监测。

为了使放射性钠气溶胶监测仪校准满足日益严格的质量保证要求,根据实际情况建立一套放射性钠气溶胶监测仪校准方法,以满足监测设备现场校准需求。因此本文采用与大流量气溶胶滤膜标准 γ 体源^[2-4]相似的制备方法,制备与待测样品相匹配的标准源对放射性钠气溶胶监测仪进行校准方法研究。利用标准滤膜源对放射性钠气溶胶监测仪进行现场校准,从而使校准操作简单易行。

1 快堆一回路钠泄漏钠燃烧产物放射性钠气溶胶监测仪

目前快堆一回路钠泄漏钠燃烧产物放射性钠气溶胶监测仪采用的是盖革(G-M)计数管探测器,G-M计数管是工作在盖革—弥勒气体放大区的一种计数管,G-M计数管的输出脉冲计数率实际上是反映了入射粒子的注量率^[5]。

该监测仪设有两种显示模式,分别为活度模式和剂量率模式,其中剂量率模式根据活度进行计算,因此本工作仅针对活度模式进行校准。

由G-M计数管输出的脉冲信号,经过滤波整形和阈值甄别,转化为计数率,最终计算出符合统计误差的浓度值。计算模式如下^[6]:

$$C = \left(\frac{n}{1 - n\tau} - n_b \right) \frac{1}{R} \quad (1)$$

式中: C 为测量值, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (由仪器类型决定); n 为计数率, s^{-1} ; τ 为分辨时间, s ; n_b 为本底平均计数率, s^{-1} ; R 为灵敏度, $\text{s}^{-1} \cdot (\text{Bq} \cdot \text{m}^3)^{-1}$, $R = \eta / V$, η 为监测仪计数率对标准源活度的响应, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$; V 为一定时间内通过采样滤膜的空气体积, m^3 。

从上述测量模式可以看出,放射性钠气溶胶监测仪测量值 C 的准确性主要取决于监测仪计数率对

标准源活度的响应 η 。

2 放射性钠气溶胶监测仪校准方案

本工作采用标准源替代法对放射性钠气溶胶监测仪进行校准^[7],将特制的不同活度的标准源分别放置在监测仪样品测量的相应位置处,分别对监测仪计数率对标准源活度响应(响应因子 η)、相对误差、重复性进行研究。

监测仪计数率对标准源活度响应因子,计算公式如下:

$$\eta = \frac{\bar{n} - n_b}{A_s} \quad (2)$$

式中: η 为监测仪计数率对标准源活度响应, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$; $\bar{n}$ 为监测仪对标准源的计数率, s^{-1} ; n_b 为本底计数率, s^{-1} ; A_s 为标准源活度, Bq 。

3 放射性气溶胶滤膜标准源的制备与定值

3.1 核素与基质材料选择

根据待测核素 ^{22}Na (半衰期,2.601 a; γ 能量,1.274 MeV)、 ^{24}Na (半衰期,15.03 h; γ 能量,1.369 MeV,2.754 MeV)选择 γ 能量相近的核素, ^{60}Co (半衰期,5.271 a; γ 能量,1.173 MeV,1.332 MeV)的 γ 能量与 ^{22}Na 、 ^{24}Na 的 γ 能量相近,因此选择 ^{60}Co 核素的放射性溶液进行实验制备滤膜标准源^[8]。

其次为保证测量对象的一致性,本工作中选用与快堆一回路钠气溶胶放射性监测系统过滤器内安装的滤膜材质(GF玻璃纤维)、型号规格(过滤效率95%, $\varnothing 55 \text{ mm}$)相同的材料作为基质材料,开展滤膜标准源的制备。

3.2 放射性滤膜标准源制备

放射性滤膜源制备流程^[2]为:制备不同活度浓度放射性标准溶液、固定滤膜、滤膜上均匀定量滴入放射性溶液、晾干、塑封。滤膜源稳定性主要取决于制备过程中放射性溶液在滤膜上的挥发程度,为保证放射性标准溶液稳定挥发,整个制备过程是在温度为20~25 $^{\circ}\text{C}$,相对湿度为30%~45%条件下进行的。

3.2.1 ^{60}Co 标准溶液定值

^{60}Co 标准溶液采用HPGe γ 谱仪活度测量装置定值,活度为 $7.05 \times 10^4 \text{ Bq}$,扩展不确定度 $U(k=2)$ 为2.6%,参考日期为2017年6月12日。

3.2.2 ^{60}Co 标准溶液定量稀释

取 ^{60}Co 标准溶液272.44 mg(所用电子天平型号

为 XPE105, 量程范围 120 g / 41 g, 分度值 0.1 mg / 0.01 mg, 稀释后采用差重法称量溶液质量), 计算得到放射性标准溶液稀释 849.10 倍, 得到活度浓度为 $83.97 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 的稀释溶液, 稀释的 ^{60}Co 放射性溶液的介质条件为: 载体浓度: $1.14 \text{ mgCo} \cdot \text{g}^{-1}$; 酸度: $0.15 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{ HCl}$, 无水乙醇比例 75%(V/V)。

3.2.3 滴源

取适量稀释后放射性溶液放置于青霉素瓶中, 放置在点样机器人试剂瓶架对应位置处, 点样机器人采用间歇式点样方式进行滴源。采用差重法计算滴源所用放射性稀释液质量。

3.2.4 晾干、塑封

滴源时将滤膜放置在塑封膜上进行操作, 滤膜被托在塑封膜内, 可以防止放射性溶液透过滤纸后沾污在其它接触物上, 引起放射性损失; 塑封膜与滤纸一同被塑封, 因此, 不会引起放射性损失。滴源后干燥, 塑封以固定滤膜。滤膜源整体厚度为 1.5 mm, 直径为 55 mm, 其放射性有效面直径为 47 mm。图 1 为间歇式点样方式及滤膜源。

3.2.5 放射性滤膜源定值

放射性气溶胶滤膜源中放射性核素活度由滴源所用 ^{60}Co 稀释液的质量与稀释液活度计算得来。制备的放射性气溶胶滤膜源示意图如图 1, 对应各放射源活度分别为 50.3 Bq、537 Bq、1 212 Bq、2 329 Bq、4 162 Bq、8 996 Bq、25 382 Bq, 相对扩展不确定度 ($k=2$) 为 3.6% (源活度参考日期为 2017 年 6 月 20 日)。

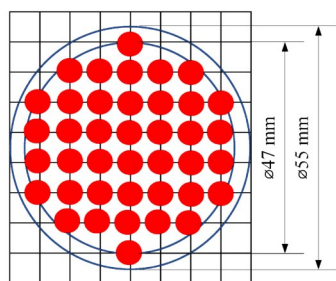


图1 放射性气溶胶滤膜源的间歇式点样方式
Fig.1 Intermittent spotting of radioactive aerosol membrane source

4 放射性钠气溶胶监测仪校准不确定度来源及结果与讨论

放射性钠气溶胶监测仪的主探测器为端窗型 G-M 计数器, 众所周知, G-M 管的分辨时间、死时间等与工作电压、工作气体的成分和压力、管子的几何形状等因素有关。在各个条件都固定的条件尤其是工作电压设置为固定的条件下, 小量程的 τ 值与拟

合曲线所求得 τ 值偏差较大造成其相对误差较大^[9-11]。

4.1 监测仪计数率对标准源活度响应

按照放射性钠气溶胶监测仪仪器使用说明, 进行本底测量, 放射性钠气溶胶监测仪本底测量值为 $\bar{n}_b = 1.81 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ 。

本工作中研究的放射性钠气溶胶监测仪理论活度范围为 $50 \sim 5 \times 10^5 \text{ Bq}$, 但是根据实际测量经验值, 低量程段测量偏差较大, 因此选取 537 Bq、1 212 Bq、8 996 Bq、25 382 Bq 的滤膜标准源在监测仪测量范围内不同量程上选点进行计数率对活度的响应实验。将选取的滤膜标准源依次放入放射性钠气溶胶监测仪过滤样品测量的相应位置, 待计数稳定后, 每隔 1 min 记录一次 $n(\text{s}^{-1})$, 每一个标准源重复测量 10 次, 取平均值 $\bar{n}(\text{s}^{-1})$ 。实验结果见表 1。

表1 放射性钠监测仪活度响应记录
Table 1 Activity response record of radioactive sodium monitor

序号 Number	计数率 Count rate / s^{-1}	537 Bq	1 212 Bq	4 162 Bq	8 996 Bq	25 382 Bq
$\bar{n}$		0.556 5	1.078	3.819	8.011	19.53
$\bar{n} - \bar{n}_b$		0.376 5	0.898	3.639	7.831	19.35

通过对表 1 中的监测仪计数率与标准源活度进行线性拟合, 得出监测仪计数率对标准源活度响应值 η , 得到的拟合函数曲线示于图 2。

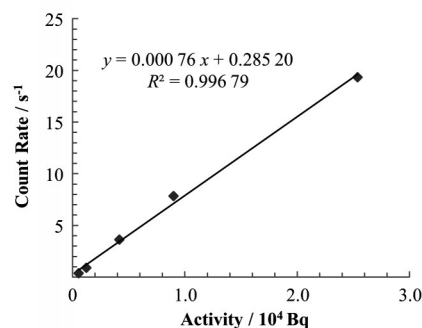


图2 监测仪计数率对标准源活度响应曲线
Fig.2 Response curve of monitor counting rate with activity

因此从曲线及线性拟合方程可以看出, 该仪器计数率对活度响应值为 $\eta = 7.6 \times 10^{-4}$, 线性相关系数 $R^2 = 0.996 79$ 。

4.2 相对误差

选取活度为 537 Bq、1 212 Bq、2 329 Bq、4 162 Bq、8 996 Bq、25 382 Bq 的滤膜标准源, 对监测仪行校准检验^[9], 结果见表 2。

相对误差可按式(3)计算:

$$E_k = \frac{\bar{A} - \dot{A}}{\dot{A}} \quad (3)$$

式中： $\bar{A}$ 为监测仪计数率值根据响应曲线换算的活度值； $\dot{A}$ 为滤膜标准源的活度值，Bq。

表2 相对误差检验记录表
Table 2 Relative error test record

序号 Number	仪器示值($R=0.000\ 76$) Instrument indication ($R=0.000\ 76$) / Bq					
$\bar{A}$	56.7	613	2 495	4 470	10 788	27 090
$\dot{A}$	537	1 212	2 329	4 162	8 996	25 382
E_k	-89.4%	-49.4%	7.1%	7.4%	13.4%	6.7%

从表2可以看出，在 $R=7.6\times 10^{-4}$ 时，滤膜源活度在2 329 Bq~25 382 Bq之间，监测仪活度示值相对误差均小于10%，但是当滤膜源活度小于等于1 212 Bq时（活度分别为537 Bq、1 212 Bq时），监测仪活度示值相对误差为分别为-89.4%、-49.4%。这也证实了端窗型G-M计数器作为放射性钠气溶胶监测仪时，小量程的 τ 值与拟合曲线所求得 τ 值偏差较大造成其相对误差较大。

4.3 测量重复性

1)进行重复性测量时，选取任一种适当活度的放射源，使仪器示值在最灵敏量程（线性刻度）或最灵敏量级（对数刻度）上满度值的3/4左右。

2)分别将滤膜标准源依次取代过滤布的相应位置，在相同条件下，连续测量20次，记入重复性记录表。

3)按式(4)计算单次测量值的相对标准偏差：

$$V = \frac{1}{\bar{x}} \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (4)$$

式中： x_i 为第*i*次测量仪器示值； $\bar{x}$ 为*n*次($n=20$)测量的算术平均值。

重复性测量使用活度为25 382 Bq的标准滤膜源进行，测量结果显示放射性钠气溶胶监测仪重复性为5.6%，满足现场测量要求。

4.4 滤膜标准源与仪表计数率示值关系

放射性钠气溶胶监测仪计数率对活度的响应值为 η ：

在采样流速*v*一定的情况下（通常为 $3\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ ），气溶胶滤膜样品的比活度 C_{sp} （Bq·m⁻³）按照式(5)计算：

$$C_{\text{sp}} = \frac{n_{\text{sp}} - n_{\text{b}}}{v \cdot h \cdot \eta} \quad (5)$$

式中： n_{sp} 为放射性钠气溶胶监测仪对待测样品的计数率，s⁻¹； n_{b} 为放射性钠气溶胶监测仪本底计数率，

s⁻¹；*v*为采样流速，m³·h⁻¹；*h*为采样时间，h； η 为放射性钠气溶胶监测仪计数率对标准源活度的响应因子。

4.5 测量不确定度的评价方法

放射性钠气溶胶监测仪计数率对标准源活度的响应公式^[10]：

$$A = (\bar{n}_k - \bar{n}_b) \frac{1}{\eta} \quad (6)$$

式中： A 为滤膜标准源活度值，Bq； $\bar{n}_k$ 为平均计数率s⁻¹； $\bar{n}_b$ 为本底平均计数率，s⁻¹； η 为计数率对活度响应值，s⁻¹·Bq⁻¹。

根据数学模型， η 的不确定度由监测仪示值及滤膜标准源活度值两方面带来的不确定度决定。

首先监测仪示值 $\bar{N}$ 的不确定度 u_1 来源有：计数率统计不确定度 $u_{1,1}$ ，源-探测器间距离位置重复性不确定度 $u_{1,2}$ 。

其次 A_s 的不确定度 u_2 来源有：标准源的均匀性 $u_{2,1}$ ，标准源定值时给出的不确定度 $u_{2,2}$ 。

最后合成标准不确定度 u_c ：

$$u_c = \sqrt{u_{1,1}^2 + u_{1,2}^2 + u_{2,1}^2 + u_{2,2}^2} = 2.5\%$$

因此不确定度分量及结果见表3。结果显示合成标准不确定度为2.5%，完全满足EJ/T822-1994中相对固有误差 $\leq \pm 15\%$ 的规定，满足该类型气溶胶监测仪的校准。

表3 计数率对活度响应值不确定度分量及结果
Table 3 Uncertainty component of count rate response to activity and result

不确定度分量 Uncertainty component	数量 Proportion / %
计数率统计误差 Counting rate statistical error	1.0
源与探测器距离的几何位置重复 The repeatability of the geometric position between the source and the detector	1.2
源均匀性 The uniformity of the source	0.9
标准源定值 The setting process of the standard source	1.8
合成不确定度 Synthetic uncertainty	2.5
扩展不确定度($k=2$) Extended uncertainty	5.0

5 结语

本项目通过制备放射性滤膜标准源对放射性钠气溶胶放射性监测仪进行校准，并对活度响应、相对

误差、重复性等各不确定分量进行评价,建立校准方法。结果分析表明:该校准方法适用于快堆一回路钠泄漏钠燃烧产物气溶胶放射性钠气溶胶监测仪的校准要求。从而使校准操作简单易行,不必使用专用装置,仅利用标准滤膜源就可以进行现场校准,本工作建立的方法对采用其他材质滤膜的收集气溶胶的监测仪和类似的放射性气溶胶监测仪的现场校准同样适用,具有一定的推广意义。

参考文献

- 1 Xiao Z J, Zhang G Q, Shan J Q, *et al.* Experimental research on heat transfer to liquid sodium and its incipient boiling wall superheat in an annulus[J]. Nuclear Science and Techniques, 2006, **17**(3): 177 – 184. DOI: 10.1016/S1001-8042(06)60034-1.
- 2 李明, 徐利军, 宋鑫鹏, 等. 大流量气溶胶滤膜标准 γ 体源制备技术[J]. 同位素, 2018, **31**(6): 370 – 374. DOI: 10.7538/tws.2018.youxian.006.
LI Ming, XU Lijun, SONG Xinpeng, *et al.* Development technology for the preparation of high-volume aerosol filter standard gamma source[J]. Journal of Isotopes, 2018, **31**(6): 370 – 374. DOI: 10.7538/tws. 2018.youxian.006.
- 3 王国荣, 李岩, 马永和, 等. G-M计数管用作辐射剂量测量应解决的问题[J]. 核电子学与探测技术, 2011, **31**(9): 1014 – 1017. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.09.017.
WANG Guorong, LI Yan, MA Yonghe, *et al.* Problems for measuring radiation dose using G-M counter[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2011, **31**(9): 1014 – 1017. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.09.017.
- 4 戎永华. 中国实验快堆固定式 γ 探测器现场校准技术研究[J]. 原子能科学技术, 2016, **50**(5): 891 – 894. DOI: 10.7538/yzk.2016.50.05.0891.
RONG Yonghua. Research on on-site calibration technology of fixed γ detector at China experimental fast reactor[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2016, **50**(5): 891 – 894. DOI: 10.7538/yzk.2016.50.05.0891.
- 5 赵孝文, 姜崇杰. 基于GM计数管辐射剂量仪表标定方法及注意事项[J]. 黑龙江科学, 2015, **6**(4): 56 – 58. DOI: 10.3969/j.issn.1674-8646.2015.04.024.
- 6 ZHAO Xiaowen, JIANG Congjie. Method and precautions of calibration of radiation dose meter based on GM counting tube[J]. Heilongjiang Science, 2015, **6**(4): 56 – 58. DOI: 10.3969/j.issn.1674-8646.2015.04.024.
- 6 卢玉楷. 简明放射性同位素应用手册[M]. 上海: 上海科学普及出版社, 2004.
LU Yukai. Concise radioisotope application manual[M]. Shanghai: Shanghai Popular Science Press, 2004.
- 7 刘伯学, 毛用泽, 马文帮, 等. G-M计数管剂量率仪用于环境辐射水平测量时的一些问题[J]. 核电子学与探测技术, 1995, **15**(2): 109 – 113.
LIU Boxue, MAO Yongze, MA Wenbang, *et al.* Problems for measurements of environmental gamma radiation using G-M counter dose rate monitors[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 1995, **15**(2): 109 – 113.
- 8 岳清宇, 王文海, 金花. G-M计数管用于环境 γ 辐射监测[J]. 辐射防护, 1999, **19**(2): 3 – 5.
YUE Qingyu, WANG Wenhai, JIN Hua. monitoring for environmental γ radiation using G-M counter[J]. Radialization Protection, 1999, **19**(2): 3 – 5.
- 9 于群. 原子核物理实验方法[M]. 北京: 人民教育出版社, 1961.
YU Qun. Nuclear physics experiment method[M]. Beijing: People's Education Press, 1961.
- 10 JJG377-1998: 中华人民共和国国家计量检定规程—放射性活度计[S]. 中国计量科学研究院, 1998.
JJG377-1998: National Measurement Verification Regulations of the People's Republic of China, radioactivity meter[S]. Chinese Academy of Metrology, 1998.
- 11 JJF1059-1999: 中华人民共和国国家计量技术规范—测量不确定度评定与表示[S]. 中国计量科学研究院, 1999.
JJF1059-1999: National Measurement Technical Specification of the People's Republic of China, evaluation and expression of measurement uncertainty[S]. Chinese Academy of Metrology, 1999.