

PALS测量技术在放射性活化 不锈钢中的应用

刘福雁

中国科学院高能物理研究所

第十七届全国核物理大会

2019-10-10

湖北·武汉



一．研究背景

二． γ -射线干扰下PALS测量问题介绍

三．三重符合PALS原理分析和实验测量

四．三重符合PALS系统关键技术

反应堆安全的两个重大问题

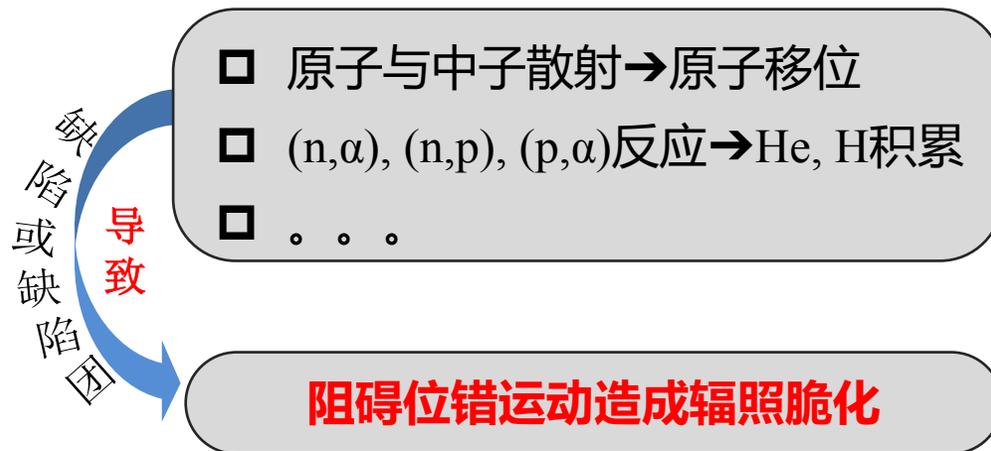
- ◆ 核电站结构材料的辐照脆化
- ◆ 核燃料元件包壳材料锆合金的腐蚀

反应堆结构材料

国家	型号	基体	主要合金元素	微量合金元素
欧洲	EUROFER97	Fe	9Cr, 1W	V, Ta
美国	9Cr2WVTa		9Cr, 2W	V, Ta
日本	F82H		7.5Cr, 2W	V, Ta
日美联合	JLF-1		9Cr, 2W	V, Ta
	JLF-2		9Cr, 2W	V, Ta
	JLF-3		7Cr, 2W	V, Ta
中国	CLAM		9Cr, 1.5W	V, Ta
	CLF-1		8Cr, 1.5W	Mn, V, Ta
	SCRAM		9Cr, 2W	V, N, Ti

共同点：以不锈钢材料为主，含有多种微量元素

核电站结构材料脆化原因：中子辐照产生缺陷



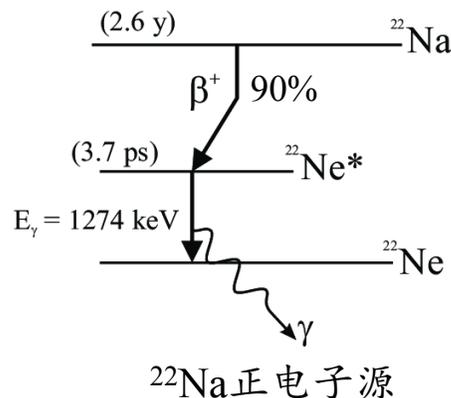
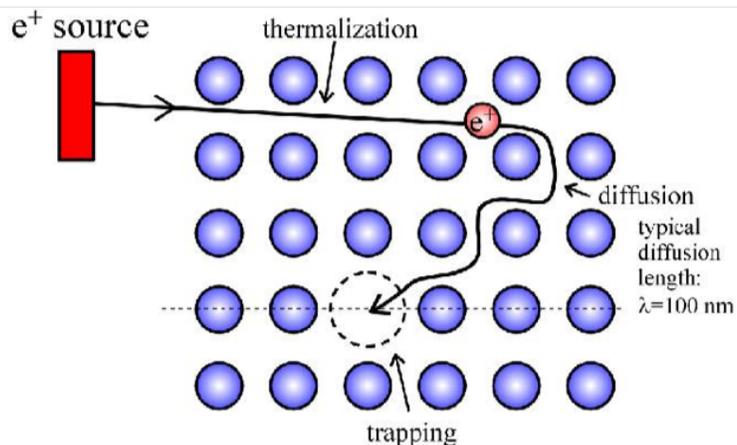
微观结构 $\xrightarrow{\text{决定}}$ 宏观性能

TEM、SEM 等传统方法只能观察到十几纳米尺度以上缺陷。

如何表征原子尺度微观缺陷！

研究背景

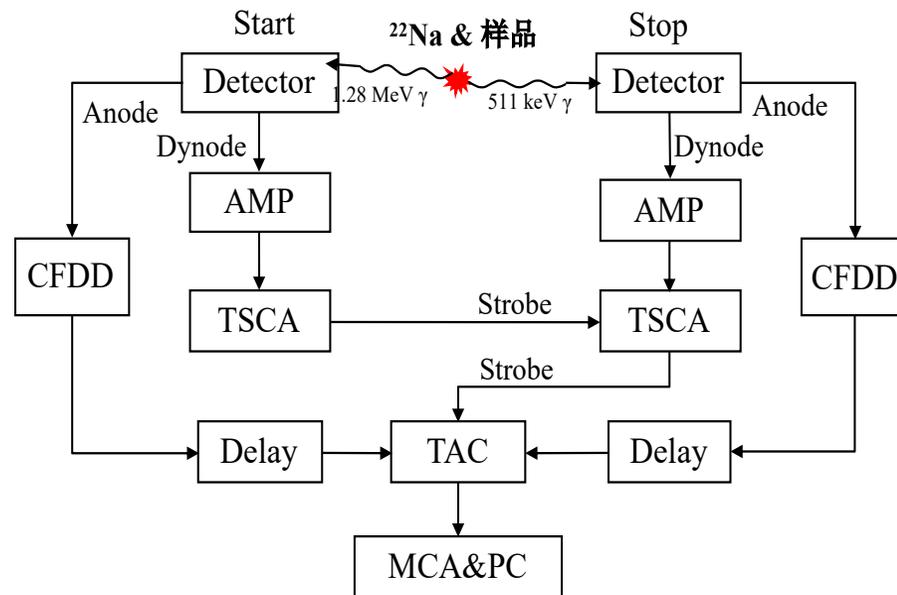
正电子湮没过程



- 热化过程：带电粒子能损过程，几个Ps；
- 自由扩散过程：~ 100ps，遍历1E9个原子
- 湮没过程：0ps，自由湮没或捕获态湮没，释放两个方向相反的0.511MeV γ

正电子湮没寿命测量方法：反映缺陷类型和强度

$$Y(p, t) = \sum_{i=1}^n I_i P_i(p) \frac{1}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$



正电子湮没技术是原子尺度缺陷探测的微探针

正电子寿命测量原理：1.28 MeV γ 和0.511MeV 湮没光子之间的时间差。



报告提纲

一．研究背景

二． γ -射线干扰下PALS测量问题介绍

三．三重符合PALS原理分析和实验测量

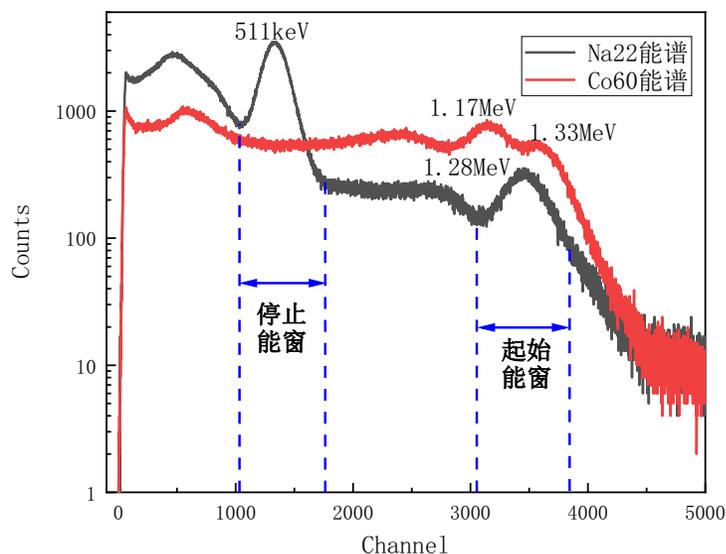
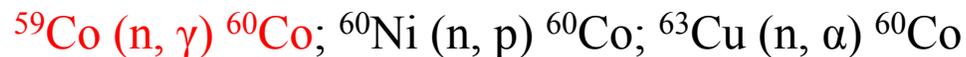
四．三重符合PALS系统关键技术



Co-60背底对寿命测量的影响

反应堆结构材料中的⁶⁰Co

反应堆结构材料中微量元素与中子发生核反应:



⁶⁰Co释放伽马落在起始和停止能窗内

❑ 错误符合事例增多



谱形畸变

❑ 偶然符合概率增大



信噪比变差

实验测量⁶⁰Co对常规PALS影响

- ❑ 探测器：BaF₂晶体+滨松R3377PMT
- ❑ 正常测量：~ 8.5 μCi (0.35MBq) ²²Na源；
- ❑ 模拟放射性材料：10 μCi ⁶⁰Co (0.42MBq)源 + 金属Ni

⁶⁰Co对常规测量的影响

参数	Na源	Na+Co源	变化比例
谱计数率/s	108	137	27% ↑
起始能窗内信号计数率/s	2575	5698	121% ↑
停止能窗内计数率/s	10114	13439	33% ↑

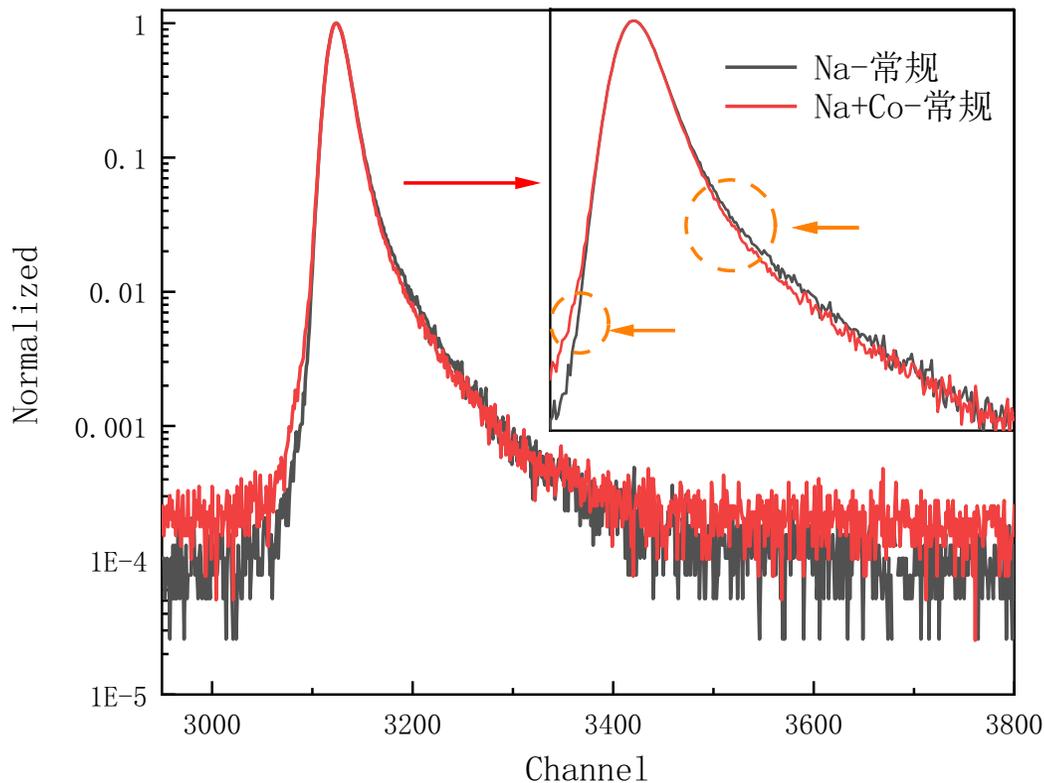
❑ ⁶⁰Co对1.28 γ 起始信号影响较大

❑ 错误符合、偶然符合事例明显增多



Co-60背底对寿命谱的影响

实验测量结果



参数	Na源	Na源+Co源
谱半高宽/ch	21.62	21.54
谱1/10高宽/ch	45.94	45.43
峰谷比	12843	5382
寿命 (强度)	105 ps (85.5%)	99 ps (86%)

⁶⁰Co背底会导致：

- ❑ 寿命谱发生形变，整个谱形变窄
- ❑ 谱形右侧明显较低，导致测得的样品寿命值偏小
- ❑ 错误事例符合导致寿命谱畸变，谱形左侧变宽
- ❑ 偶然符合比例增大导致谱信噪比变差，峰谷比减少了一多半

**如何排除⁶⁰Co干扰
进行准确测量？**

- 不同类型样品表征
- 不同强度⁶⁰Co背底
- . . .



报告提纲

一．研究背景

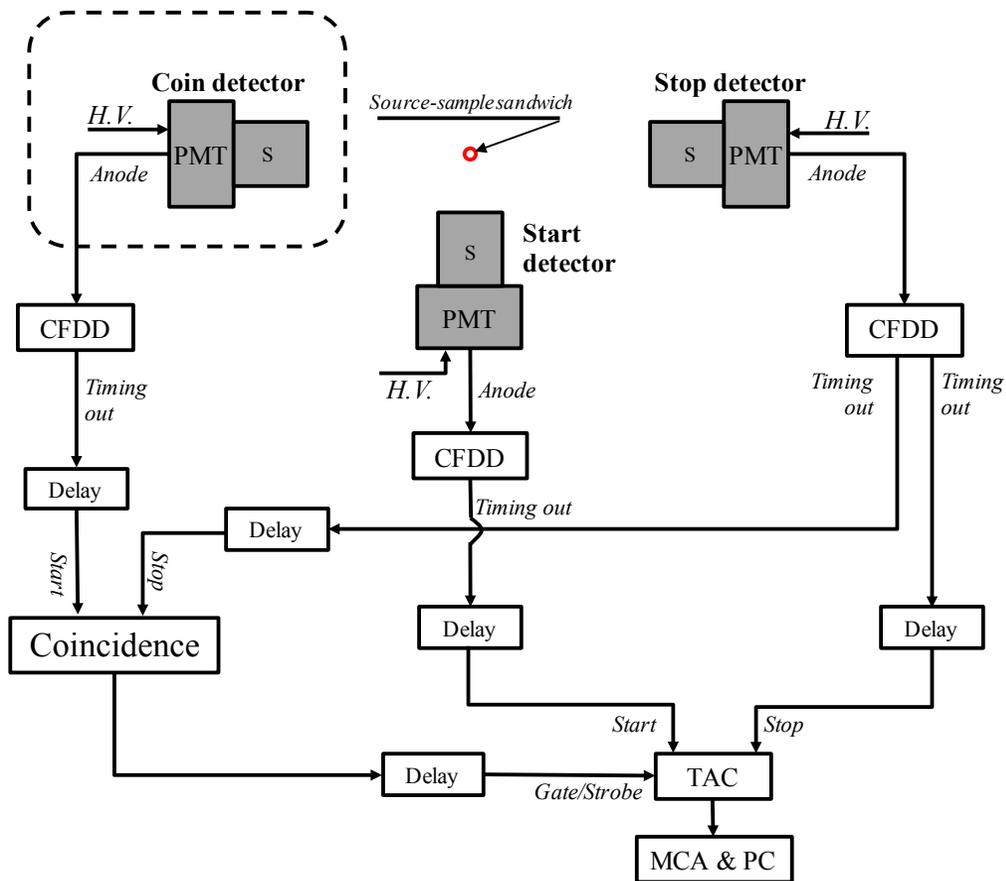
二． γ -射线干扰下PALS测量问题介绍

三．三重符合PALS原理分析和实验测量

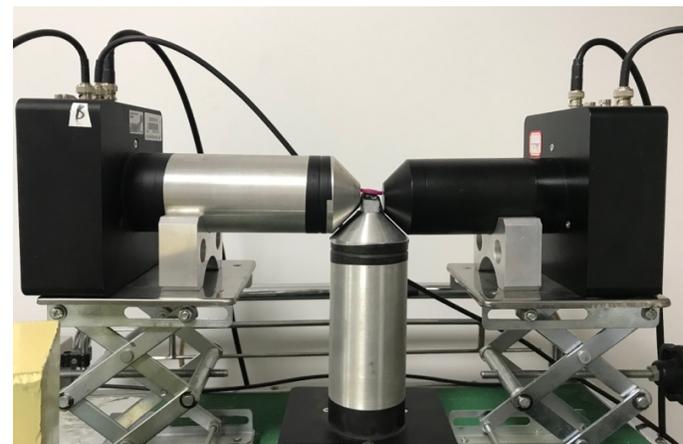
四．三重符合PALS系统关键技术



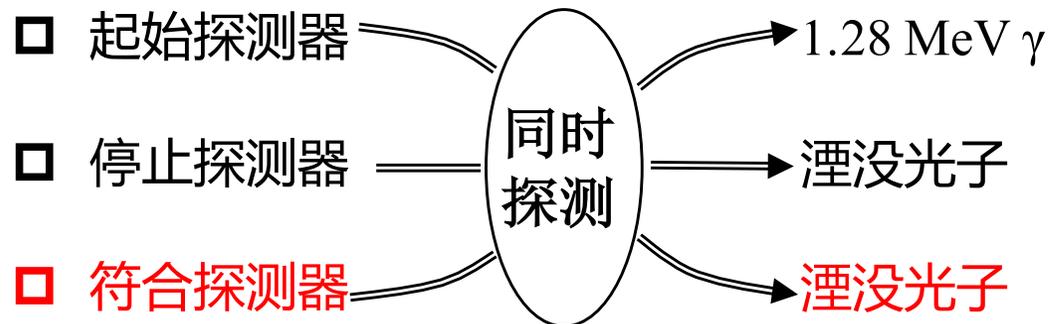
三重符合PALS测量方法原理



能窗选择：1.28MeV γ 和0.511MeV湮没光子光峰



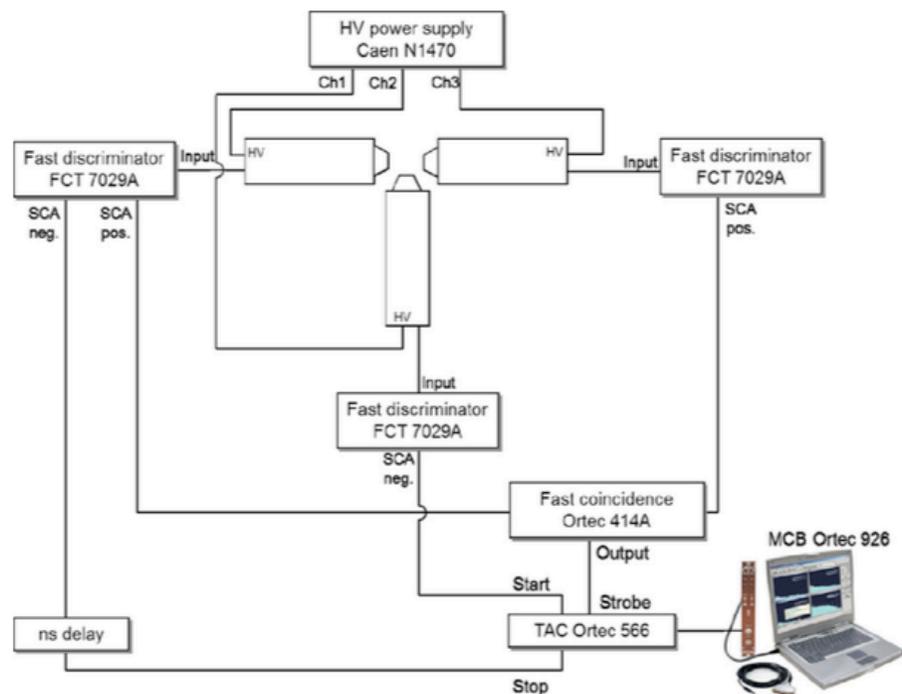
探测器放置实物图





三重符合PALS研究现状

1. 一般电子学结构：

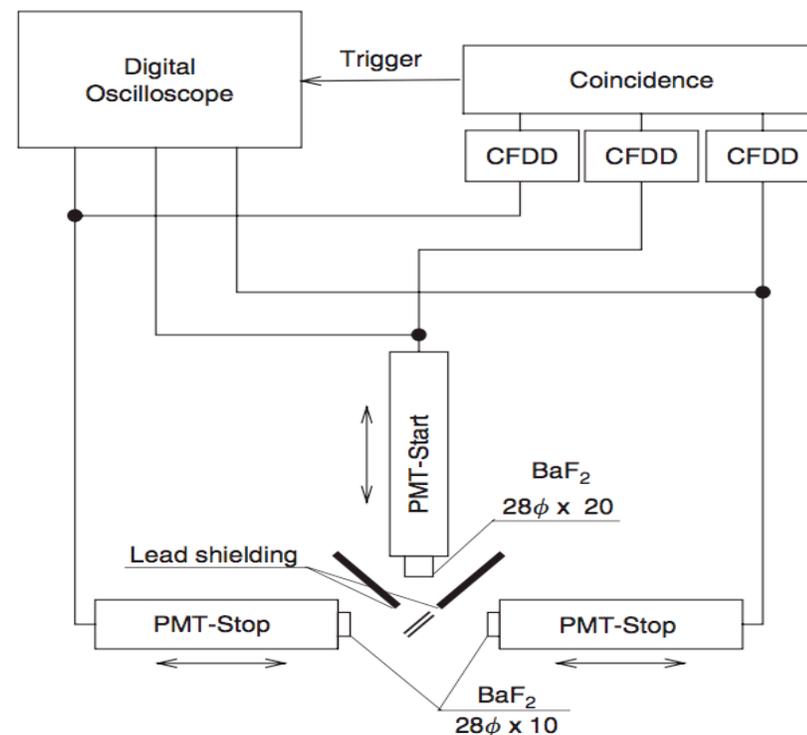


瑞士: Vladimir Krsjak, Yong Dai(戴勇)

□ 外部²²Na源：RAFM Steel (PALS & CDB)

□ 内部正电子源⁴⁴Ti/⁴⁴Sc：Fe9Cr, Pure Fe, Ti源产生随机性

2. 典型依托数字器件电子学结构：



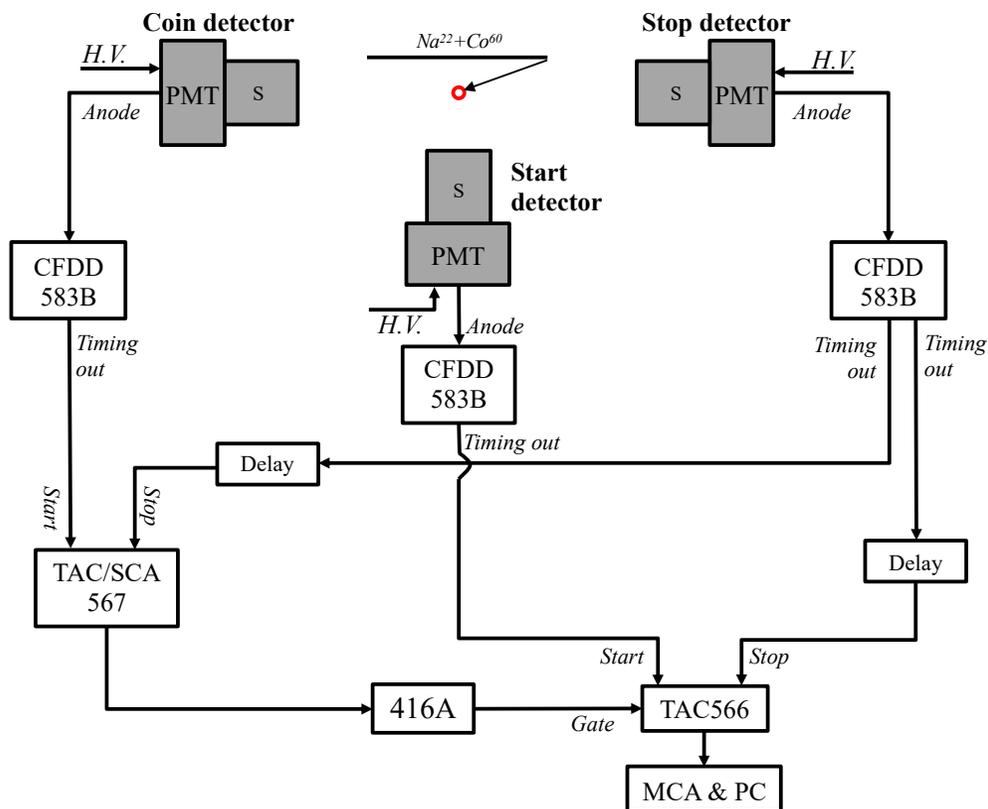
比利时：M. Jardin

□ 电子学简单

□ 数据量大；高计数率会导致信号基线发生漂移

新型三重符合PALS系统实验测量

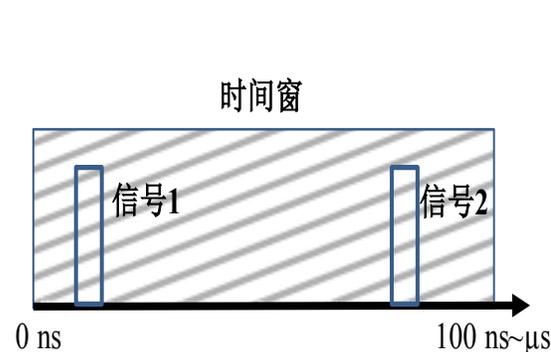
三重符合PALS系统实验测量



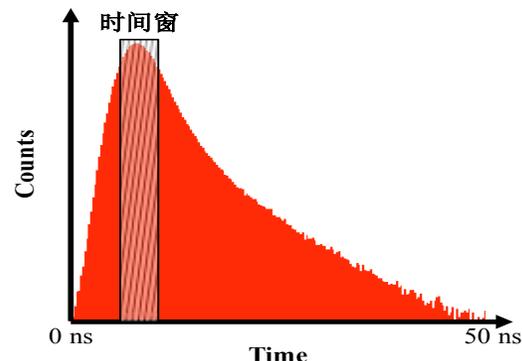
- 起始,停止,符合探测器: $\Phi 30 \times 20 \text{ mm}$ BaF₂ + 滨松R3377
- 8.5 uCi ²²Na源 + 10 uCi ⁶⁰Co源

高精度符合模块

- TAC(时幅转换)+SCA(单道)符合方式
- 高精度符合时间窗选择
- 适应于不同活度、不同种类放射性背景下准确测量



传统Overlap型符合时间窗



TAC+SCA符合时间窗

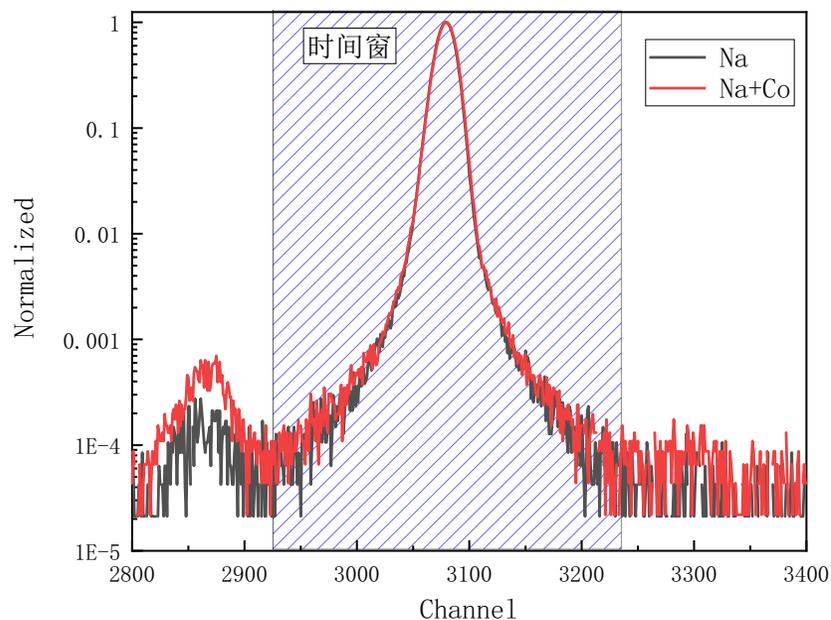
- 传统符合: 100 ns ~ us 时间窗, 实际符合时间窗是设置值的两倍
- 新型符合: 百ps ~ ns时间窗, TAC测量时间分布, SCA精确选择时间窗

1. TAC/SCA符合模块时间分布测量结果

测量：① 仅Na源； ② Na源+Co源

时间窗内发生的符合：

- ① 真符合：两个湮没光子间的符合
- ② 错误符合： ^{60}Co 两个伽马同时被符合和停止探测器探测到
- ③ 偶然符合：其他所有满足能窗设置的符合事例



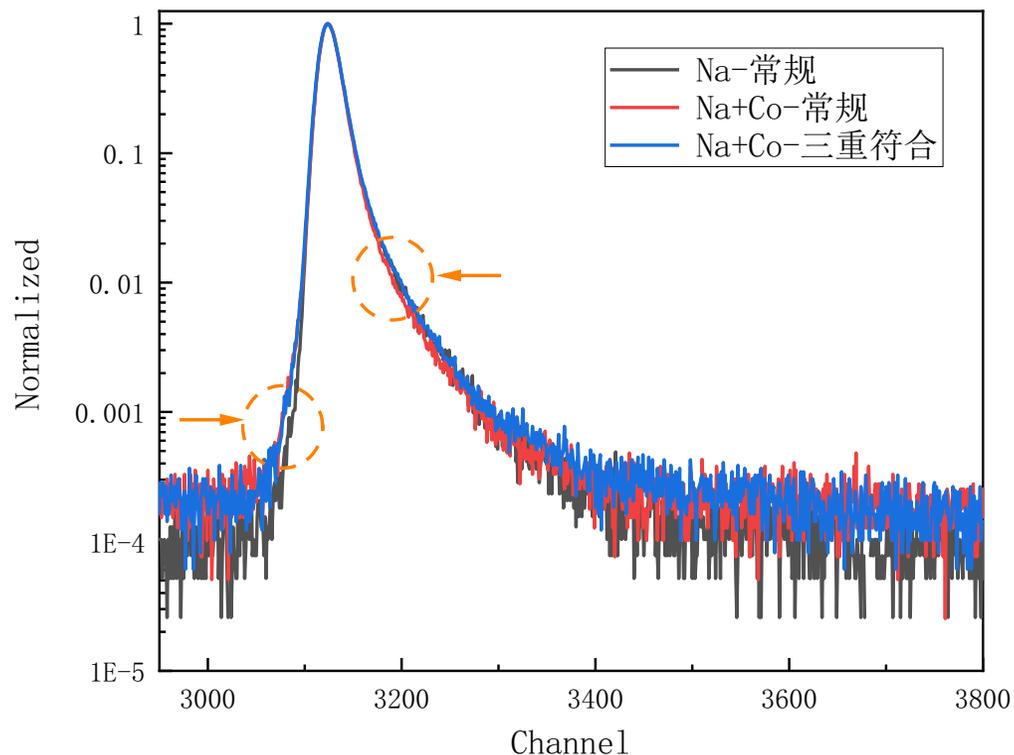
符合时间窗 $<3.75\text{ns}$ ：
可减小错误符合和偶然符合的概率

^{60}Co 对符合分布影响

参数	Na源	Na+Co源	变化比例
谱半高宽/ch	19.33	19.55	不明显
谱1/10高宽/ch	36.36	36.78	不明显
峰区计数率/cps	1615	1629	0.87% ↑

- ❑ ^{60}Co 对符合分布谱形上影响不明显，但时间分布的计数率会增加。
- ❑ 时间窗内增加的计数很少，主要集中在峰区，说明这部分计数来自错误符合事例。
- ❑ 精准的时间窗可以去除高能伽马散射带来的谱形畸变。
- ❑ 调节时间窗，可减少探测器间散射伽马带入的错误符合事例；并可减少偶然符合概率，提高峰谷比。

2. 三重符合PALS测量结果



参数	常规 $\gamma-\gamma$ 符合测量		三重符合测量	
	Na源	Na+Co源	Na源	Na+Co源
谱计数率/cps	108	138	19.75	19.62
谱半高宽/ch	21.62	21.54	21.23	22.04
谱1/10高宽/ch	45.96	45.43	45.81	47.36
峰谷比	12843	5382	14165	6290
^{60}Co 计数占比	—	22%	—	基本没有
寿命 (强度)	105.4 ps (85.5%)	99.14 ps (86%)	105.4 ps (85.5%)	107.84 ps (85.2%)
^{60}Co 测量分辨率	202.9 ps			

- ① 三重符合与常规系统测得的谱形几乎重合，寿命值接近，说明了三重符合方法的有效性
- ② 三重符合后，测谱的计数率较低；偶然符合概率增大导致峰谷比较差
- ③ 三重符合后，高能伽马散射增加导致谱左侧较宽，整个谱形的FWHM和FW.1M较大



报告提纲

- 一．研究背景
- 二． γ -射线干扰下PALS测量问题介绍
- 三．三重符合PALS原理分析和实验测量
- 四．三重符合PALS系统关键技术**



还需要解决。。

问题一、三重符合效率较低

□ 国际上已有系统每 $\mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$ 符合计数率：0.03 - 0.14 /s

解决方法：

- 高效率探测器：选择高密度材料、增大晶体尺寸、拉近探测距离
- 高活度 ^{22}Na 正电子放射源：依据 ^{60}Co 活度而定

常用闪烁体材料发光衰减时间

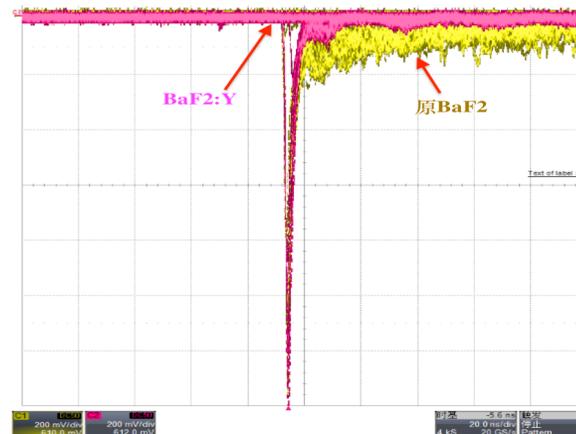
闪烁体	密度 (g/cm ³)	光产额 (ph/MeV)	发光衰减时间(ns)	发光波长 (nm)
NE-104	1.03	10,000	1.8	406
Pilot-U	1.03	10,000	1.4	391
NaI(Tl)	3.67	41,000	230	410
CsI(Tl)	4.51	66,000	900	550
LYSO(Ce)	7.15	27,000	38	420
LaBr3	5.07	60,000	26	380
BGO	7.13	8,200	300	480
BaF ₂	4.9	10,000	0.6,620	220,310
BaF ₂ :Y	4.9	2,000	0.6	220
LSO	7.35	27,000	11,36	410-420

问题二、三重符合时间性能较差

□ 探测电路：高活度 ^{22}Na 和 ^{60}Co 放射性易导致信号堆积

解决方法：

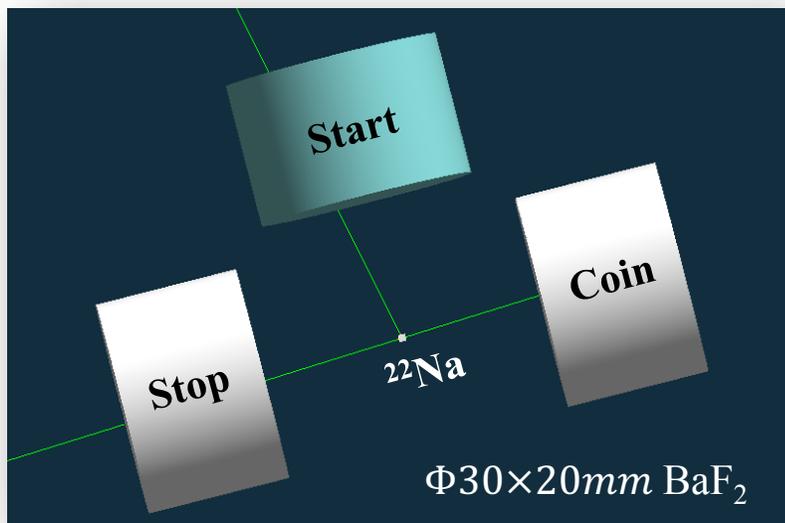
- 更快的晶体：塑料，BaF₂，BaF₂:Y等
- 更快的光电倍增管PMT
- 优化定时方法和能窗选择



较BaF₂ 83%慢成分，
BaF₂:Y慢成分仅20%



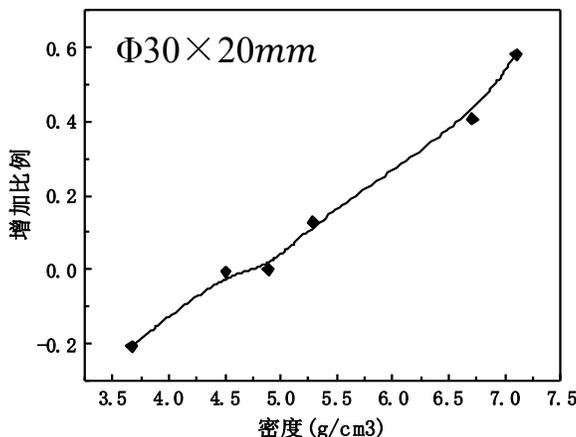
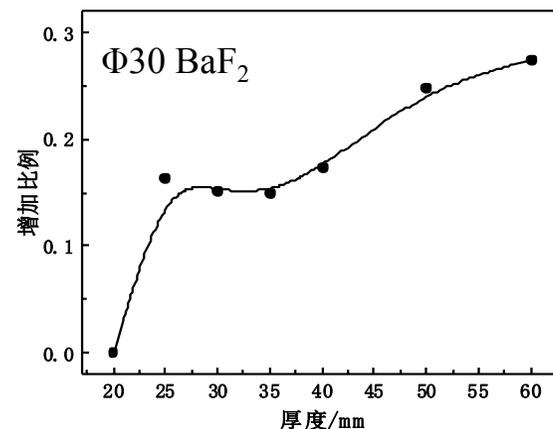
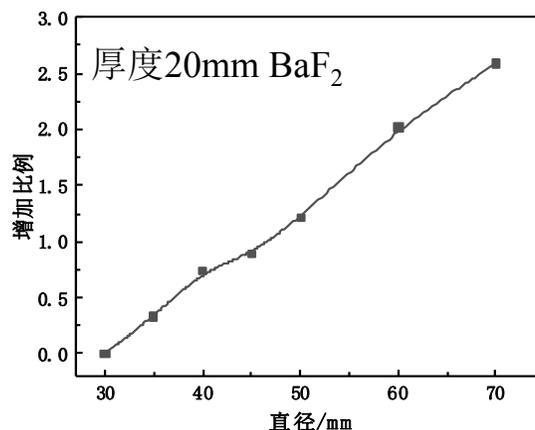
探测器晶体对提高计数率的影响



Geant4模拟计算结构

晶体直径、厚度和材料的影响程度比较

改变起始探测器晶体为例：



影响因素：

- ❑ 晶体尺寸：直径和厚度
- ❑ 晶体材料：不同密度

计算原则：

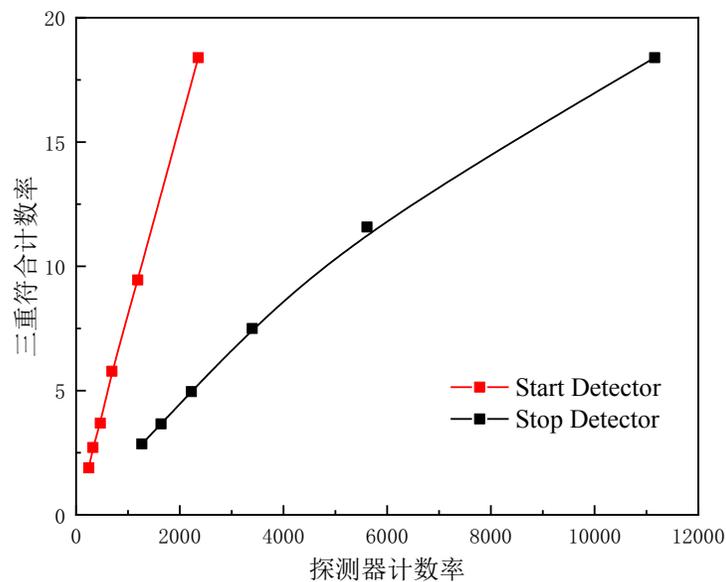
- ❑ 只统计1.28MeV γ 和两个湮没 γ 同时探测到事例
- ❑ 不考虑射线在晶体间散射现象

- ① 增大晶体直径、厚度和选用高密度材料，都会提高三重符合计数率
- ② 影响程度：直径 > 材料密度 > 厚度
- ③ 较合理的方法是增大晶体的直径，增大探测器立体角探测效率

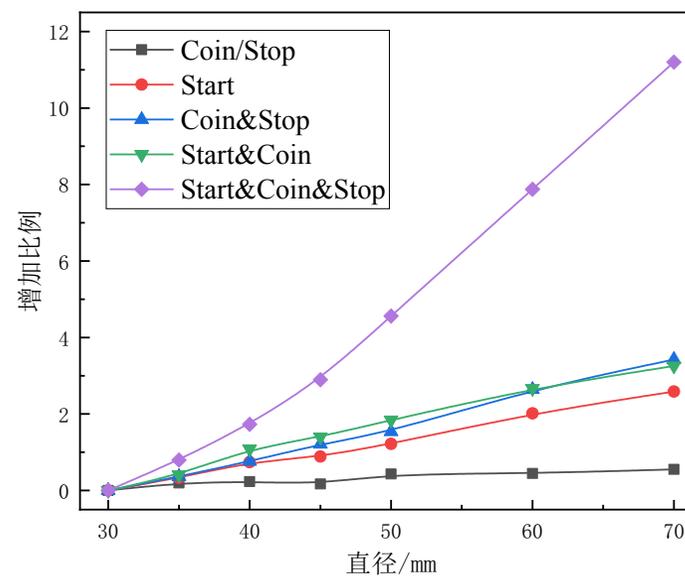


不同探测器对提高三重复合效率的影响

实验测量



Geant4 模拟



增大探测器晶体
直径，厚度20mm
不变

提高起始探测器效率更有利于提高三重复合效率

三个探测器 > 两个探测器 ≈ 起始探测器 > 符合或停止探测器

实际提高三重符合计数率方法：

1. 提高正电子放射源 ^{22}Na 强度；
2. 改变探测器结构；
3. . . .



小结

- ① 反应堆中不锈钢经中子辐照产生的 ^{60}Co 放射性，影响常规正电子湮没寿命的测量，会使寿命谱变形，并且测量不准确。
- ② 新型三重符合PALS系统基于高精度的符合模块可降低错误符合和偶然符合的比例，排除 ^{60}Co 放射性的干扰；但寿命谱计数率较低，峰谷比变差。
- ③ 晶体尺寸、晶体类型和源强影响三重符合效率，起始探测器效率对三重符合效率影响较大。

谢谢