

液闪测量气体氚光源的氚泄漏率

李祥波, 康 艺, 刁义荣, 崔晓靖

中国原子能科学研究院, 北京

收稿日期: 2023年5月18日; 录用日期: 2023年6月22日; 发布日期: 2023年6月29日

摘 要

在氚光源的应用中, 氚泄漏率是衡量其安全性能的一个重要指标。由于氚对玻璃的渗透率很低, 因此在氚光源没有破损的条件下, 其氚泄漏量很低, 难以通过传统的电离室探测技术直接测得。本文分别用电离室和液闪测量了常温下气体氚光源的氚泄漏率, 结果表明在氚光源无破损的条件下, 用电离室难以直接测得其氚泄漏率; 而依靠液闪建立的测量方法, 则可以准确地测得氚光源的氚泄漏率。

关键词

氚光源, 氚泄漏率, 液闪

Method for Measuring Tritium Leakage Rate of Gas Tritium Light Sources by Liquid Scintillation Counter

Xiangbo Li, Yi Kang, Yirong Diao, Xiaojing Cui

China Institute of Atomic Energy, Beijing

Received: May 18th, 2023; accepted: Jun. 22nd, 2023; published: Jun. 29th, 2023

Abstract

In the application of tritium light source, the leakage rate of tritium is an important index to measure its safety performance. Because the permeability of tritium to glass is very low, the leakage amount of tritium is very low under the condition that the tritium light source is not damaged, which is difficult to be directly measured by the traditional ionization chamber detection technology. In this paper, the leakage rate of gas tritium light source at normal temperature was measured by ionization chamber and liquid scintillation counter respectively. The results show that the tritium

leakage rate is difficult to be measured directly by ionization chamber under the condition that the tritium light source is not damaged. The tritium leakage rate of the tritium light source can be accurately measured by the method of liquid scintillation counter.

Keywords

Tritium Light Source, Tritium Leakage Rate, Liquid Scintillation Counter

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 前言

气体氚光源(以下简称氚光源)是一种利用放射性核素氚制成的自发光光源,通常结构是在透明硼硅酸盐玻璃管内部涂覆或装入发光基体(如 ZnS),再往玻璃管内充入氚气密封。发光基体料受到氚气衰变释放出的 β 射线的照射激发,从而发出荧光。因此氚光源具有使用寿命长、无外照射危害、不需要电源和辅助配件、不需要维护检修、不受外界气候和环境变化的影响等优点,因此在军事和民用领域有着良好的应用前景,被广泛用于武器瞄准镜、仪表刻度盘和数字手表液晶显示的照明等[1] [2] [3]。

由于氚光源的外部材质为玻璃管,在制作、使用、运输和保存过程中有可能出现破损或裂痕,导致内部放射性氚气泄漏,对人员和环境造成损害。即使是玻璃管密封完好的条件下,由于氚对几乎所有材料具有一定的渗透作用[4],仍会有极少量的氚从管壁渗透至环境中。因此,在氚光源的使用前,需要对其密封性进行检验,测量其氚泄漏率。

依照中国核工业集团公司发布的《气体氚光源 EJ/T 856-94》的核行业标准[5],要检验氚光源的密封性,传统方法是待测光源放置于一密闭装置内,采用辐射测量技术测定其氚泄漏量,其中最常采用的是电离室测量。电离室测量氚,具有无需制样、测量时间短、测量范围大、成本低等优点,因而广泛用于氚的在线监测中[6]。若制备的氚光源存在破损或裂痕,则泄漏出的氚气可以直接利用电离室检测出氚泄漏量。但如果氚光源密封性完好,仅有微量氚通过对玻璃管壁的渗透作用释放到环境中,由于氚对硼硅酸盐玻璃的渗透率很低[7],且氚光源的体积通常较小,所以渗透出的氚量也很小,通常已经超出电离室的检测下限。因此在氚光源没有破损的情况下,我们需要借助其他检测手段测量其氚泄漏率。

氚的衰变只有 β 衰变一种形式,而液闪(液体闪烁计数器)对 β 射线的测量有着极高的灵敏度。液闪是利用液体闪烁液接受射线并转换成荧光光子的放射性计量仪,主要用于测量液体中发生 β 衰变的核素含量,尤其对低能 β 射线有着很高的灵敏度,因此特别适用于对氚的检测和测量。在氚的辐射防护中,液闪广泛用于对接触氚的工作人员进行尿氚监测,以保证氚工作人员的人身安全[8]。目前液闪测量仪的检测下限已经低于 1 Bq/L,足以满足氚光源对氚泄漏率的测量要求。因此,针对密封完好的氚光源的氚泄漏率极低难以测量的问题,本研究采用了电离室 + 液闪测量两种方法,分别测量室温下的氚光源的极低的氚泄漏率。

2. 待测气体氚光源

待测氚光源外观为一根密封硼硅酸盐玻璃管,外径 5.0 mm,长度 12.20 cm。内壁涂覆 ZnS 发光基底,玻璃管内密封有约 70 kPa 压力氚气。氚光源外观经检查,无肉眼可见的破损或裂纹。

3. 电离室测量氚光源的氚泄漏率

3.1. 电离室测量系统简介

电离室检测系统主要由电离室(IC)、循环泵、压力计、流量计(MFC)、缓冲罐以及贮氢合金罐组成,如图 1 所示。其中,电离室型号 TYNE-7002,最低检测下限 $1 \mu\text{Ci}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

测量时,将待测氚光源放置于图中左侧密封不锈钢管内,通过控制循环泵、流量计和缓冲罐可以使系统内形成稳定的循环气氛。贮氢合金罐则是用于氚光源意外破损情况下,泄漏氚气的回收。

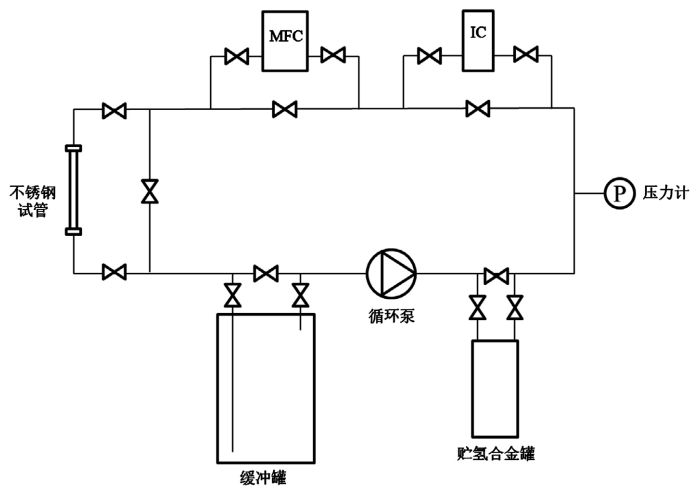


Figure 1. Measurement system of ionization chamber
图 1. 电离室测量系统

3.2. 测量过程

电离室测量前需要对工作环境和测量系统的本底值进行校正。用高纯氚气对电离室测量系统的气氛进行置换后,在未放置氚光源、放置氚光源的两种不同条件下,分别记录电离室的示数变化。结果如图 2 所示。

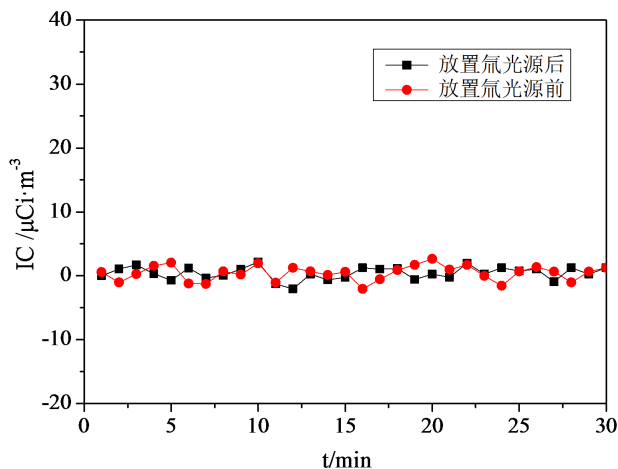


Figure 2. The number of indicators in the ionization chamber before and after placing the tritium light source
图 2. 放置氚光源前后电离室的示数变化

3.3. 测量结果

计算得在未放置氡光源的空白条件下, 电离室的测量值为 $0.41 \mu\text{Ci}\cdot\text{m}^{-3}$; 放入氡光源后, 电离室的测量值为 $0.41 \mu\text{Ci}\cdot\text{m}^{-3}$ 。结果表明放置氡光源前后, 电离室的测量值基本没有变化, 且均低于电离室检测下限, 由此可以说明:

- 1) 氡光源密封性完好, 无明显破损和氡泄漏;
- 2) 室温下该氡光源的氡泄漏率已经低于电离室的检测下限;

因此对于无破损的氡光源, 传统的电离室检测方法无法测得其氡泄漏率的准确数值, 需要采用其他检测下限更低的分析手段。

4. 液闪测量氡光源的氡泄漏率

4.1. 测量原理

氡在氡光源内部是以氡气 T_2 分子形式存在, 而氡在玻璃材料中的渗透主要也是以分子形式扩散[7], 由此推断氡光源泄漏到环境中的氡也主要以氡气 T_2 形式存在。而液闪的测量介质需为液体, 因此我们需要将泄漏出的氡收集转移至液相中。为了收集这些泄漏出的微量氡, 我们选择将待测氡光源用纯水浸没, 以纯水对氡气的溶解度来收集渗透出的氡。参考氢气在水中的溶解度为 19.9 ml/L (25°C , 1atm) [9], 氡气的理化性质与氢气接近, 理论上该溶解度足以保证氡光源渗透出的氡气全部溶解至水中。

4.2. 测量设备和试剂

所用测量设备和试剂如表 1 所示:

Table 1. Equipment and reagents used for measurement

表 1. 测量所用设备和试剂

序号	名称	规格型号
1	液闪	Tri-Card 3110 TR
2	待测氡光源	自制
3	标准 β 源样品	活度 6.554 Bq/mg
4	闪烁液	铂金埃尔默企业管理(上海)有限公司生产
5	超纯水	自制, 纯水机型号 Milli-Q

4.3. 测量过程

将待测氡光源放入一密闭容器内, 用超纯水完全浸没后密封, 避光处静置 24 h 后, 取样, 用液闪测量超纯水的氡含量, 并以空白试验和标准 β 源样品校准。多次重复测量后, 结果如图 3 所示。

4.4. 测量结果

由图 3 可见, 采用该方法测得的氡光源的泄漏率, 前两次测得的数值较高, 从第三次开始, 测得的氡泄漏率开始趋于稳定。可能的原因是在氡光源制备过程中, 硼硅酸盐玻璃表面, 尤其是封口处的熔融密封部位, 有一些微小的不平整或缝隙。这些缝隙里吸附有微量的氡。在水的长时间浸泡过程中, 这些微量氡会逐渐释放, 从而使一开始测得的氡泄漏率偏高。当这些微量氡释放完全后, 测得的氡泄漏率则趋于稳定。

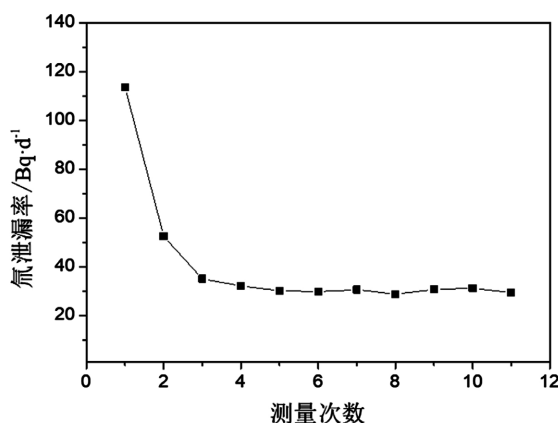


Figure 3. Results of repeated measurement of tritium leakage rate of tritium light source

图 3. 多次重复测量氚光源的氚泄漏率结果

因此, 为了保证测量结果的真实性和准确性, 我们取第 4~8 次的测量值的平均值, 可以得到该氚光源的泄漏率为 30.3 Bq/d。

5. 结论

本文依靠液闪建立了新的测量方法, 用来测量氚光源的氚泄漏率。首先通过传统的电离室测量, 结果表明室温下由于氚光源的氚泄漏率过低, 低于电离室的检测下限, 无法获得氚泄漏率的准确数值。采用新的液闪测量方法, 测得了待测氚光源的泄漏率为 30.3 Bq/d, 验证了采用液闪测量氚光源氚泄漏率方法的可行性。

参考文献

- [1] 吴健, 雷家荣, 刘文科. 氚光源及其研究进展[J]. 同位素, 2012, 25(1): 1-7.
- [2] 缪增星, 吕廷海, 张淑卿. 氚光源的研制[J]. 同位素, 1990(1): 66-67.
- [3] 杨怀元. 氚气自发光管及其应用[J]. 辐射防护通讯, 2009, 29(6): 1-5.
- [4] 蒋国强, 罗德礼, 陆光达, 孙灵霞. 氚和氚的工程技术[M]. 北京: 国防工业出版社, 2007: 57-63.
- [5] 栗万仁, 陆才, 袁敏忠, 等. EJ/T 856-94 气体氚光源[S]. 北京: 中国核工业集团公司, 1994.
- [6] 卢艳, 王和义, 黄宁, 陈志林. 电离室测氚技术研究进展[J]. 核电子学与探测技术, 2012, 32(9): 1032-1037.
- [7] 山常起. 氢同位素在一些材料中的溶解度系数、扩散系数和渗透率[J]. 中国核科技报告, 1992: 281-300.
- [8] 段再煜, 李荐民. 尿氚法监测核动力装置工作人员氚内照射剂量[J]. 核电子学与探测技术, 2018, 38(4): 464-467.
- [9] 冯光熙, 黄祥玉, 申泮文, 张靓华, 等. 无机化学丛书第一卷[M]. 北京: 科学出版社, 2018: 143.