

NaI 闪烁体的快中子辐照损伤

余 泉¹ 闫思齐^{1,2} 文万信^{1,2} 张保国^{1,2} 王仁生^{1,2} 刘汉洲^{1,2}

1 (苏州大学放射医学与防护学院 苏州 215123)

2 (江苏省高校放射医学协同创新中心 苏州 215123)

摘要 中子瞬发 γ 活化分析(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA)是工业物料成分检测的最主要方法之一,该方法通过大体积 NaI 闪烁体探测器测量物料被中子活化后的瞬发 γ 能谱来分析物料成分。测量过程中,NaI 晶体处于较强的快中子场中,该快中子场对晶体的辐照损伤是影响 NaI 探测器性能的最主要因素,而 NaI 探测器的稳定性直接决定了 PGNAA 整体设备的性能。本文基于中国工程物理研究院 CFBR-II (China Fast Burst Reactor II)型反应堆,精确地测量了 NaI 闪烁体在裂变中子场的 10^8 cm^{-2} 、 10^9 cm^{-2} 、 10^{10} cm^{-2} 、 10^{11} cm^{-2} 、 10^{12} cm^{-2} 、 10^{13} cm^{-2} 、 10^{14} cm^{-2} 共 7 个中子注量照射后,NaI 闪烁体组装的闪烁体探测器的性能变化。测量结果表明,NaI 探测器除有较强的中子活化效应外,能量分辨率未发生显著变化,这为 PGNAA 设备中探测器的中子屏蔽设计和寿命估计提供了重要参数。

关键词 中子瞬发 γ 活化分析, NaI, 裂变中子, 辐照损伤, 能量分辨率

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.120201

Fast neutron radiation damage to NaI scintillator detector

YU Xiao¹ YAN Siqi^{1,2} WEN Wanxin^{1,2} ZHANG Baoguo^{1,2} WANG Rensheng^{1,2} LIU Hanzhou^{1,2}

1(School of Radiation Medicine and Protection, Medical College of Soochow University, Suzhou 215123, China)

2(Collaborative Innovation Center of Radiological Medicine of Jiangsu Higher Education Institutions, Suzhou 215123, China)

Abstract Background: Prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) is an most important method to monitor the chemical compositions for bulk industrial materials. NaI detectors with large volume are often used for energy spectrum measurements of the prompt gamma rays in these cases. In the measurement, the NaI detectors are under a fast neutron field with large flux which is the primary factor of radiation damage to NaI crystal. **Purpose:** This study aims to estimate the lifetime of the NaI crystal in the PGNAA quantificationally, and investigate the energy resolution evolution for the NaI crystal caused by the fast neutrons damage. **Methods:** Based on the pulsed reactor CFBR-II (China Fast Burst Reactor II) in Chinese Academy of Engineering Physics (CAEP), two pieces of NaI crystal were irradiated with the fast neutron flux of 10^8 cm^{-2} , 10^9 cm^{-2} , 10^{10} cm^{-2} , 10^{11} cm^{-2} , 10^{12} cm^{-2} , 10^{13} cm^{-2} , 10^{14} cm^{-2} , respectively. Meanwhile, the energy resolution was measured under each condition. **Results:** The energy resolution of NaI does not show obvious changes with the fast neutron irradiation flux upto 10^{14} cm^{-2} . **Conclusion:** The energy resolution performance of NaI crystal does not deteriorate in fast neutron irradiation, except the strong neutron activation gamma rays. Therefore, to evaluate the lifetime of NaI crystal in a fast neutron field, a reliable

国家重大科学仪器专项子项(No.2013YQ04086102)、国家自然科学基金(No.11605119)、江苏省自然科学基金(No.BK20160304)资助

第一作者: 余泉, 男, 1994 年出生, 2014 年毕业于南方医科大学, 现为硕士研究生, 研究方向为医学物理

通信作者: 王仁生, E-mail: wrs16@suda.edu.cn; 闫思齐, E-mail: yansiqi@suda.edu.cn

收稿日期: 2017-02-19, 修回日期: 2017-03-16

Supported by Major National Scientific Instruments Special Items (No.2013YQ04086102), National Natural Science Foundation of China (No.11605119), Natural Science Foundation of Jiangsu Province (No.BK20160304)

First author: YU Xiao, male, born in 1994, graduated from Southern Medical University in 2014, master student, focusing on medical physics

Corresponding author: WANG Rensheng, E-mail: wrs16@suda.edu.cn; YAN Siqi, E-mail: yansiqi@suda.edu.cn

Received date: 2017-02-19, accepted date: 2017-03-16

lower limit can be figured out.

Key words PGNAA, NaI, Fission neutron, Irradiation damage, Energy resolution

中子活化瞬发 γ 分析(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA)是工业物料成分分析的最主要方法之一^[1-7]。该方法利用快中子轰击待测物料,通过高探测效率、高能量分辨率的探测器来测量中子活化后的物料发射出来的瞬发 γ 射线来分析物料成分。PGNAA 技术中,NaI 闪烁体探测器是最普遍使用的 γ 探测器^[8-9],其高度可靠的性能是 PGNAA 方法的关键^[10]。但因 NaI 探测器同时也处于较强的快中子场中,其在活化 NaI 晶体的同时对其造成严重的辐照损伤^[11-12],从而导致其性能的下降。但快中子对 NaI 晶体的辐照损伤方面的研究却一直没有公开发表的实验数据。为了定量地评估 PGNAA 设备中 NaI 闪烁探测器的使用寿命,以及 NaI 探测器的中子屏蔽设计,需要对快中子对 NaI 晶体的辐照损伤进行研究。

本研究利用中国工程物理研究院物理化学研究所的 CFBR-II (China Fast Burst Reactor II)型球形反应堆^[13-14],对 NaI 晶体进行估计值为 10^8 cm^{-2} 、 10^9 cm^{-2} 、 10^{10} cm^{-2} 、 10^{11} cm^{-2} 、 10^{12} cm^{-2} 、 10^{13} cm^{-2} 、 10^{14} cm^{-2} 的 7 个中子注量点的辐照,测量能量分辨率的变化情况,晶体尺寸为 $5.08 \text{ cm} \times 5.08 \text{ cm}$ 。为使测量结果具有一致性,同时节约实验成本,本次晶体辐照实验使用两块 NaI 晶体从 10^8 cm^{-2} 开始进行中子辐照,并在辐照后使用 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 测量其能量分辨率,再进行 10^9 cm^{-2} 注量实验,依次类推。因每次测量均需重新将晶体与光电倍增管(Photo Multiplier Tube, PMT)组装,故为了评估测量结果的系统误差,首先需对影响 NaI 探测器能量分辨率的多种环境因素进行研究。

1 研究影响探测器性能的外界因素

测量 NaI 探测器性能的实验装置如图 1 所示。图 1(a)为探测器外壳的示意图,图 1(b)为测试的实物图。基于该装置,在实验室条件下,研究影响 NaI 探测器性能的外界因素,如时间稳定性、地磁场、多次组装的重复性等,从而为 NaI 晶体的中子辐照损伤实验中的外界因素对实验结果的影响提供评估依据。

实验过程中共准备了三块 NaI 晶体,其中两块用于晶体辐照,相互作为对对照样;一块作为未辐照的对对照样。在实验室准备阶段,对这三块晶体均进行了相同的外界因素影响的研究,其测试结果类似,故仅以第一块晶体为例介绍其测量结果。

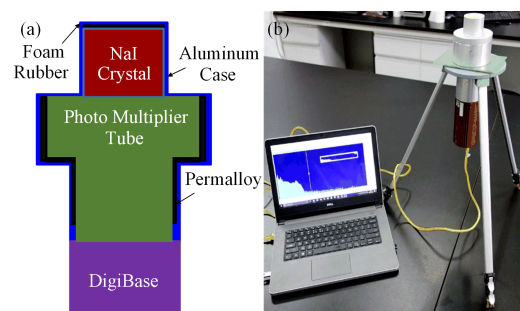


图 1 探测器测试装置
(a) 外壳示意图, (b) 实物图

Fig.1 Detector test device.

(a) Schematic diagram of detector crust, (b) Photograph of real device objects

1.1 测量 NaI 探测器性能的实验装置

探测器的外壳根据 NaI 晶体与 PMT 的尺寸而设计,并在 NaI 晶体的顶端贴了 1 mm 厚的发泡橡胶,从而使每次组装后 NaI 晶体与 PMT 之间的压力恒定。其中,NaI 晶体为密封晶体,其玻璃窗与 PMT 之间通过硅油耦合。

实验使用的光电倍增管为 7.62 cm (3 英寸) 的 CR119,测量过程中高压为 850 V。使用 ORTEC 高度集成的 2048 道的 DigiBase,如图 1(b)所示。该 DigiBase 通过网线与计算机进行交互,参数设置方便。在整体测量过程中,DigiBase 的信号成形时间设置为 $2 \mu\text{s}$ 。

1.2 外界因素对性能的影响

研究外界因素对组装的 NaI 探测器性能的影响,测量过程在 22°C 的恒定室温下,通过测量 NaI 探测器对 ^{137}Cs 的全能峰峰位和能量分辨率来研究其影响。下面依次对考虑的三种外界因素进行介绍。其中,组装后时间稳定性测试是指在 NaI 晶体与 PMT 组装好后,每隔 1 h 测一次 ^{137}Cs 的能谱,研究其峰值和能量分辨率随时间的变化情况,从而研究组装后探测器性能随时间的变化关系;地磁场稳定性测试是指将组装好的 NaI 闪烁体探测器,沿垂直于地表面的轴方向每 45° 旋转一次进行能谱测量,经一圈测量 8 次,研究已经过坡莫合金屏蔽过的探测器外壳对地磁场的屏蔽情况;重复性操作稳定性是指将 NaI 晶体与 PMT 重复组装 6 次,每次组装后测一次能谱。

图 2 是外界因素对探测器影响的测试结果。从图 2 可以看出, 图 2 (a)与(b)两种因素对峰值的变化小于 1%, 然而图 2(c)对峰值的变化最大可以达到

2%, 而且可以看到比较明显的周期性。但这三种因素对能量分辨率的影响均约为 1%。

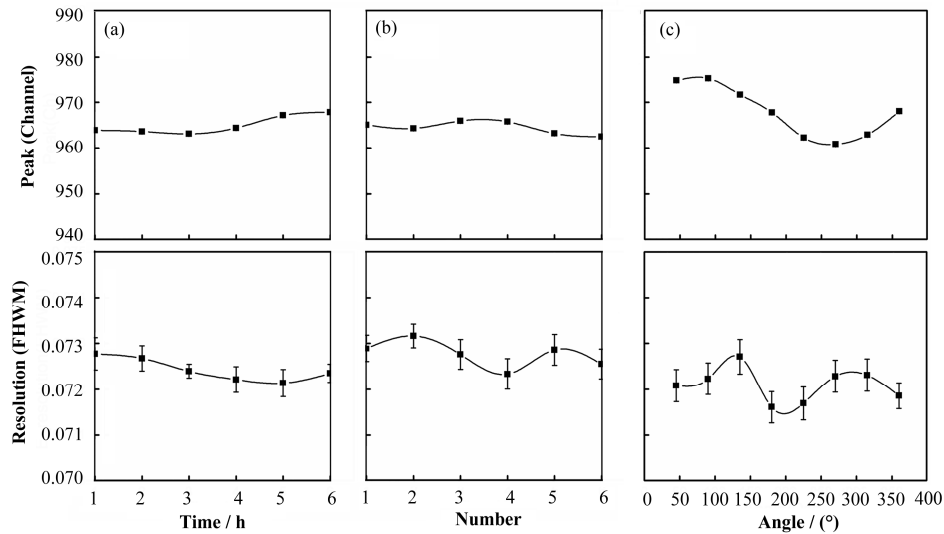


图 2 外界因素对探测器的影响 (a) 组装后时间稳定性, (b) 地磁场稳定性, (c) 重复性操作稳定性
Fig.2 External factors to the detector. (a) Time stability, (b) Geomagnetic field stability, (c) Repetitive operation stability

2 NaI 晶体中子辐照损伤的测量

基于上述准备实验可知, 在维持测量室温不变的条件下, 所探究的三种外界因素时间、地磁场、重复性多次组装, 都未对 NaI 晶体探测器的性能造成显著影响。因此, 对中子辐照后的晶体的测量, 若有任何性能上的变化, 将直接反应中子对晶体的辐射损伤效应。

2.1 NaI 晶体辐照装置

中国工程物理研究院物理化学研究所的 CFBR-II 型反应堆为球形反应堆, 该反应堆在 300 W 功率下稳态运行时, 堆表面的中子平均能量为 1.38 MeV, 中子注量为 $2.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, 中子注量率为 $5.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$; 该反应堆的 γ 射线的平均能量为 0.9 MeV^[13-14]。

为了使圆柱形 NaI 晶体相对于球形反应堆的位置是固定的, 本实验特地加工了一个圆环形托盘, 两个晶体每次均对称地放置在托盘与反应堆外表面的相切处。图 3 为本次晶体辐照实验的示意图。利用该装置, 对两块 NaI 晶体进行了 10^8 cm^{-2} 、 10^9 cm^{-2} 、 10^{10} cm^{-2} 、 10^{11} cm^{-2} 、 10^{12} cm^{-2} 、 10^{13} cm^{-2} 、 10^{14} cm^{-2} 共 7 个中子注量的照射。每次照射后, 均使用 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 源测量两块晶体的能量分辨率。

因中子辐照后的晶体具有较强的活化放射性, 故对高通量的情况, 需要在辐照后放置冷却一段时间后再测量, 其放置时间见表 1。

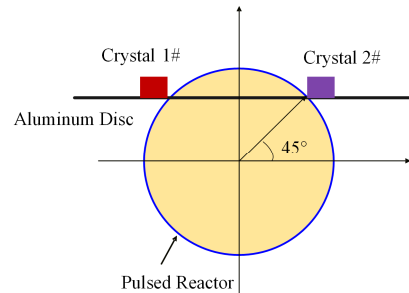


图 3 晶体中子辐照装置示意图
Fig.3 Schematic diagram of neutron radiation device for crystals.

表 1 晶体辐照与测量的时间间隔
Table 1 Time interval between crystals' irradiation and measurement.

注量 Fluence / cm^{-2}	时间 Time / h
10^8	0.5
10^9	0.5
10^{10}	16
10^{11}	20
10^{12}	67
10^{13}	180
10^{14}	600

2.2 NaI 晶体辐照结果

在测量辐照后的晶体时, 因其有较强的活化本底, 故在进行 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 的能量分辨率的测量时, 对 NaI 闪烁体探测器所测得的能谱均需要进行本底扣除的处理, 其中本底谱的测量时间 1–2 min (鉴于本底较强, 因此 1–2 min 的本底测量已经具有很好的统计性)。

两块 NaI 晶体在不同中子注量辐照后组装的探测器的能量分辨率见图 4。图 4(a)和(b)分别是受到中子辐照过的 1# NaI 晶体和 2# NaI 晶体, 图 4(c)是未受到中子辐照的 3# NaI 参照晶体。从图 4 可看

出, 未受到中子辐照的 3# NaI 晶体作为参照样, 其能量分辨率几乎没有任何变化, 对于受到中子辐照的 1# NaI 和 2# NaI 晶体, 除 1# NaI 晶体在 10^{13} cm^{-2} 注量下测 ^{137}Cs 源时的能量分辨率有较明显的抬高外, 两块晶体在这 7 个逐次增加的中子注量点下能量分辨率没有发生显著变化。对于 10^{13} cm^{-2} 点抬升的情况, 这里认为可能是进行该点测试时, DigiBase 没有提前预热而直接测量导致的。但是从 2# NaI 晶体对三种能量的射线以及 1# NaI 除 10^{13} cm^{-2} 点外其它情况来看, 可认为 NaI 晶体在 10^{14} cm^{-2} 注量下能量分辨率未发生显著变化。

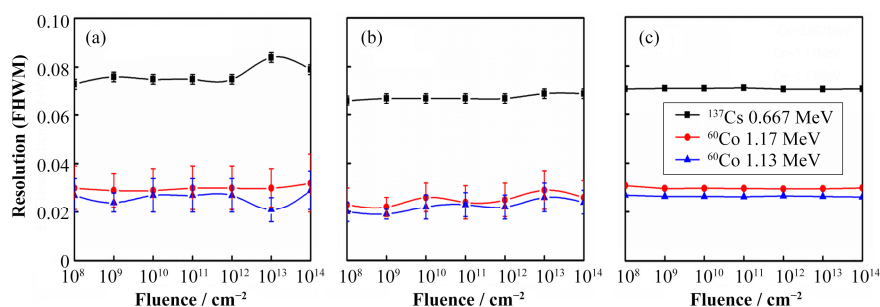


图 4 NaI 晶体中子辐照后性能变化情况 (a) 1# NaI 晶体, (b) 2# NaI 晶体, (c) 3# NaI 晶体

Fig.4 Performance changing of NaI crystals after neutron irradiation. (a) 1# NaI crystal, (b) 2# NaI crystal, (c) 3# NaI crystal

3 结语

NaI 晶体组装为闪烁体探测器的过程中, 外界因素 (组装后时间、地磁场和重复性操作) 对其能量分辨率的影响的变化小于 1%; NaI 晶体在经过中子注量 10^8 – 10^{14} cm^{-2} 后的裂变快中子轰击后, 能量分辨率没有发生显著的变化, 仍可以继续使用。本结论为在强快中子辐射场下工作的 NaI 探测器的中子屏蔽设计以及寿命下限参考值的预估提供了重要的参考数据。

参考文献

- Molnar G, Belgia T, Dabolczi L. The new prompt gamma-activation analysis facility at Budapest[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1997, **215**(1): 111–115. DOI: 10.1007/BF02109886.
- Yonezawa C, Matsue H. Usefulness of prompt gamma-ray analysis with guided neutron beams compared to NAA[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2000, **244**(2): 373–378. DOI: 10.1023/A:1006739710086.
- Paul R L, Lindstrom R M. Prompt gamma-ray activation analysis: fundamentals and applications[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2000, **243**(1): 181–189. DOI: 10.1023/A:1006796003933.
- Nair A G C, Sudarshan K, Raje N, *et al.* Analysis of alloys by prompt gamma-ray neutron activation[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 2004, **516**(1): 143–148. DOI: 10.1016/j.nima.2003.07.044.
- Landsberger S. Handbook of prompt gamma activation analysis with neutron beams[J]. Journal of American Chemical Society, 2005, **127**(39): 13740–13741. DOI: 10.1021/ja059792t.
- Marshall J H, Zumberge J F. On-line measurements of bulk coal using prompt gamma neutron activation analysis[J]. Nuclear Geophysics, 1989, **3**(4): 445–459. DOI: 10.1016/0029-5493(89)90009-5.
- 科道文, 谷德山, 伊杰, 等. 脉冲中子煤质快速分析仪的数据处理[J]. 核技术, 2005, **28**(12): 951–953. KE Daowen, GU Deshan, YI Jie, *et al.* The pulse neutron coal fast analyzer data processing[J]. Nuclear Techniques, 2005, **28**(12): 951–953.
- Byun S H, Sun G M, Choi H D. Development of a prompt gamma activation analysis facility using diffracted polychromatic neutron beam[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 2002, **487**(3): 521–529. DOI: 10.1016/S0168-9002(02)00394-7.
- Naqvi A A, Fazal-ur-Rehman B, Al-Jarallah M I.

- Performance tests of external moderators of a PGNAA setup[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2003, **58**(1): 27–38. DOI: 10.1016/S0969-8043(02)00269-5.
- 10 Bayat E, Afarideh H, Davani F A, *et al.* A quality survey on different shielding configurations of gamma ray detector used with a portable PGNAA system[J]. *Radiation Physics and Chemistry*, 2016, **120**: 7–11. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2015.11.012.
- 11 Gardner R P, Sayyed E I, Zheng Y S, *et al.* NaI detector neutron activation spectra for PGNAA applications[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2000, **53**(4–5): 483–497. DOI: 10.1016/S0969-8043(00)00198-6.
- 12 Kubota S, Shiraishi F, Takami Y. Radiation damage of NaI(Tl) by fast neutron irradiation: blocking of the energy transfer processes from V_k centers and electrons to the activator of Tl[J]. *Journal of the Physical Society of Japan*, 1999, **68**: 298–302. DOI: 10.1143/JPSJ.68.298.
- 13 杨成德, 龚书良, 邓门才. CFBR-II 快中子脉冲堆及其应用[J]. *原子核物理评论*, 1995, **12**(4): 58–60.
YANG Chengde, GONG Shuliang, DENG Mencai. CFBR-II fast neutron pulse reactor and its application[J]. *Nuclear Physics Review*, 1995, **12**(4): 58–60.
- 14 杜金峰. CFBR-II 堆裂变率计算[J]. *核动力工程*, 2008, **29**(6): 6–9.
DU Jinfeng. Calculation of CFBR-II reactor fission rate[J]. *Nuclear Power Engineering*, 2008, **29**(6): 6–9.