

CNIC-01816

CAEP-0163

## 放射性气体活度测量

卓仁鸿 雷家荣 文德智 成 晶 郑 慧

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳, 621900)

### 摘 要

研制了一套放射性气体活度测量装置及配套测量系统, 研究考查了放射性气体活度测量装置及标准测量系统的性能和技术指标; 实际测量了放射性气体活度并评定了其不确定度; 对放射性气体活度测量系统量值传递技术进行了研究。整套装置技术指标满足有关标准、规范和规程要求, 可作为工作标准对我院放射性进行常规测量、检定。

关键词: 气体活度 计量标准 测量

# Measurement Of Activity Of Radioactive Gas

(*In Chinese*)

ZHUO Renhong LEI Jiarong WEN Dezhi

CHENG Jing ZHENG Hui

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang, 621900)

## ABSTRACT

A set of standard instrument system with their accessories for the measurement of activity of radioactive gas have been developed. The specifications and performances of the system have been tested and examined. The conventional true values of activity of radioactive gas have been measured and its uncertainty has been assessed. The technique of the dissemination of the measurement of activity of radioactive gas has been researched. The specification and performance of the whole set of apparatus meet the requirements of the relational standard, criteria, regulation, it can be regard as a work standard for the measurement of activity of radioactive gas in CAEP.

**Key words:** Activity of radioactive gas, Metrology standard, Measurement

## 引言

国内外各计量技术研究机构在进行活度测量技术研究的同时,都非常重视气体活度的研究工作<sup>[1,2]</sup>。先进发达国家的计量技术研究机构都建立了气体测量活度测量标准。在我国,上海原子核研究所建立有“氡气氡水放射性活度国家基准”,但基准已在几年前报废,国内现在只有国防科工委放射性计量一级站建立有“放射性气体活度标准”,另外西南放射性计量站目前正在建立放射性气体活度测量标准。中国工程物理研究院在武器预研、氡靶研制和制备、20 MW 军用脉冲堆建立的氡分析、提纯实验室中都使用着大量的氡样品及其他相关的放射性气体,他们都需要知道放射性气体的准确活度。因此,专门研制了放射性气体活度装置,并配套了相应的标准测量系统。

## 1 装置和性能

### 1.1 原理

在放射性气体活度绝对测量中,几乎都采用了内源计数法。该方法的优点是消除了源的自吸收影响,是目前测量<sup>3</sup>H 和<sup>14</sup>C 等核素最精确的方法。国家“内充气计数基准”和国防科工委放射性计量一级站的气体活度标准都采用了这种方法<sup>[3,4]</sup>。

若已知计数管的灵敏体积  $V$ ,以及该体积中的放射性气体的压力  $p$  和温度  $T$ ,则由气体状态方程可直接确定其中放射气体的标准体积  $V_1$ 。

$$V_1 = pVT_1 / (p_1 T) \quad (1)$$

计数管的结构示意图如图 1。

另一方面由计数管装置直接测量计数率  $n$ ,经过死时间、本底修正后便可得到标准体积  $V_1$  的气体的放射性活度  $A$ 。

$$A = (n - n_b) \epsilon_r \epsilon_z \epsilon_a \epsilon_b \quad (2)$$

式中:  $A$ ——气体的放射性活度, Bq;

$n_b$ ——本底计数率,  $s^{-1}$ ;

$\epsilon_r$ ——死时间修正因子;

$\epsilon_z$ ——甄别阈修正因子;

$\epsilon_a$ ——端效应修正因子;

$\epsilon_b$ ——壁效应修正因子。

由式(2)便可计算相应的活度浓度  $a$ (Bq/L):

$$a = A / V_1 \quad (3)$$

### 1.2 放射性气体活度测量装置

辐射装置如图 2 所示。它由真空系统,内充气正比计数管组、多路定标电子学测量系统组成。

真空系统主要包括真空计、水银压力计、样品接口、机械泵、温度计、集气瓶、计数管接口等。

正比计数管组由三支内充气正比计数管组成。三支内充气正比计数管的长度不同,而端结构及内外径完全一样。它们的长度分别为 390 mm, 290 mm 和 190 mm, 内径为

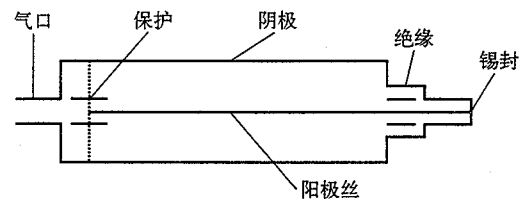


图 1 放射性测量装置外形

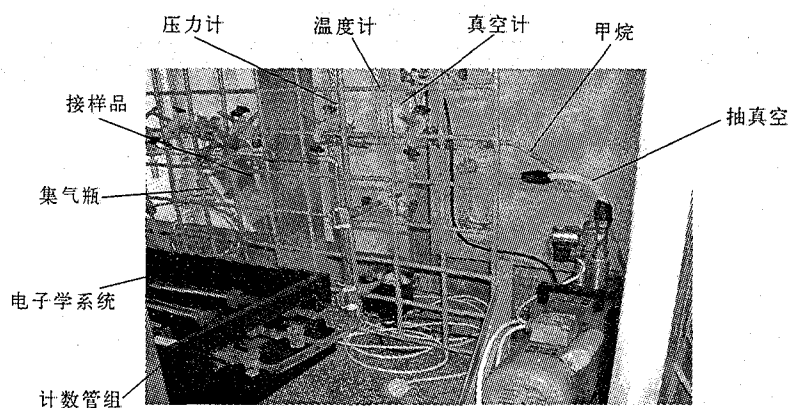


图2 放射性测量装置外形

34.4 mm,有效体积分别为 362 440 mm<sup>3</sup>,269 530 mm<sup>3</sup>和 234 700 mm<sup>3</sup>。

电子学测量系统由三路前放、三路主放、三路单道、三路计数器、信号传输线、计算机构成。

### 1.3 性能和技术指标

#### 1.3.1 真空度

放射性气体活度测量对真空的要求为 0.5 Pa 左右,表 1 是真空系统在开机械泵后真空度随时间变化的测量结果。

当真空达到 0.5 Pa 后,关掉机械泵,测量真空度随时间的变化,测量结果见表 2。

表 1 开泵后气压随时间的变化

时 间	测量结果/Pa
开机械泵前	常压
开机械泵 2,3 min	20 左右
5 min 后	10 左右
1 h 后	0.5

表 2 关泵后气压随时间的变化

时 间	测量结果/Pa
关机械泵前	0.5
关机械泵 2,3 min	0.6 左右
5 min 后	0.6 左右
1 h 后	0.6
5 h 后	1
24 h	2

#### 1.3.2 重复性

测量了标准仪器的重复性,重复测量 12 次,对信号求相对标准偏差,结果表明重复性优于 0.2%。测量结果列于表 3。

#### 1.3.3 长期稳定性

由于系统的长期稳定性主要由正比计数的长期稳定性决定,又由于气体样品同固体样品相比,不好保存,因此,我们采用替代的方法进行。即每次正比计数管充以同样量(标准状况)的甲烷气体,放在  $\gamma$  源上进行测量(确保几何位置应相同),表 3 的稳定性实际包括了由于几何位置不同而引入的不确定度。尽管如此,结果仍好于测量结果标准不确定度 0.3%,说明本系统长期稳定性满足要求。

表3 系统重复性

测量次数/n	测量值 N/60 s	测量次数 n	测量值 N/60 s	标准偏差/%	平均值标准偏差/%
1	844 260	7	844 289	0.57	0.16
2	844 330	8	843 627		
3	844 022	9	844 066		
4	844 619	10	844 627		
5	845 622	11	844 501		
6	844 577	12	844 181		

系统稳定性曲线图如图3。

### 1.3.4 测量范围

放射性气体活度装置的测量范围为： $(3.7 \times 10^6 \sim 1.17 \times 10^8)$  Bq/L；不确定度： $\leq 1.2\%$  ( $k=1$ )。

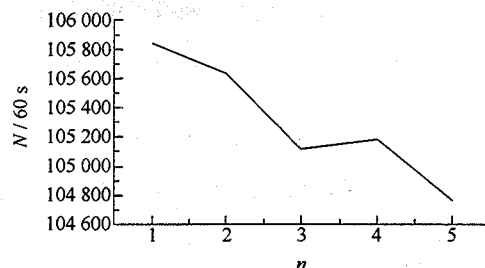


图3 系统稳定性曲线图

## 2 气体活度测量技术研究

### 2.1 修正因子

一般说来,用内充气正比计数管测量放射性气体活度时,只要知道计数管的灵敏体积以及它含有放射性气体的衰变率(活度),根据有关管道、容器等的容积,就可以算出样品的活度。但通常直接有定标器读出的计数率,要得到绝对衰变率,必须对死时间、本底、甄别阈、端效应、壁效应等进行修正。

#### 2.1.1 死时间修正

在甄别器和定标器之间加入一个门产生器,可固定测量系统的死时间,系统的死时间可以通过双源法或双振荡法测出。

采用双振荡仪测量系统死时间,计算公式为:

$$\tau = (N_a + N_b - N_c) / (2 \times N_a \times N_b) \quad (4)$$

式中： $\tau$ ——死时间, s;

$N_a$ ——A道计数率,  $s^{-1}$ ;

$N_b$ ——B道计数率,  $s^{-1}$ ;

$N_c$ ——C道计数率,  $s^{-1}$ 。

死时间修正公式为:

$$\epsilon_r = 1 / (1 - N \times \tau) \quad (5)$$

式中： $N$ ——净计数率,  $s^{-1}$ 。

通过双振荡法测量得出死时间  $\tau$  是  $2.50 \mu s$ 。

#### 2.1.2 本底修正

将不含放射性气体的纯计数气体充入探测器,将计数管充  $600 \text{ mmHg}$  ( $1 \text{ mmHg} = 133.322 4 \text{ Pa}$ )的甲烷气体进行测量,测得的计数率就是本底。

表4为长、中、短三根计数管的本底计数。

表 4 长、中、短三根计数管的本底计数

序号	计数/300 s										平均值/s
长	2 732	2 801	2 796	2 764	2 810	2 768	2 751	2 764	2 765	2 748	9.2
中	2 803	2 865	2 898	2 868	2 865	2 907	2 876	2 819	2 900	2 876	9.6
短	2 765	2 734	2 801	2 678	2 876	2 698	2 823	2 765	2 698	2 765	9.2

### 2.1.3 甄别阈修正

为了避免噪声的影响,第一甄别阈(最低甄别阈)必须置于噪声之上,这样会使小于阈值的小脉冲丢失,为此,必须用几道甄别曲线外推到零阈值的计数率。

调节单道的阈值,作出甄别阈坪曲线,并算出外推到零阈值的计数率。甄别阈修正公式为:

$$\epsilon_z = N_0/N \quad (6)$$

式中:  $N$ ——工作点上的计数率,  $s^{-1}$ ;

$N_0$ ——外推到零阈值的计数率,  $s^{-1}$ 。

甄别阈坪曲线图如图 4。

由图 4 可以看出,选甄别阈坪的起始点电压为 1.0~6.0 V,由线性回归可得甄别阈修正系数为 1.02。

### 2.1.4 端效应修正

在计数管两端区域,由于电场是畸变的,使得场强减弱,探测效率减弱,这就是所谓的端效应。消除端效应的最好方法是长度补偿法。

设长、中、短三根计数管的有效长度分别为

$l_c, l_z$  和  $l_d$ ,有效体积分别为  $V_c, V_z$  和  $V_d, N_c, N_z$  和  $N_d$  为长、中、短三根计数管(经死时间、本底、甄别阈修正)的计数率,  $N_{c-z}, N_{z-d}$  和  $N_{c-d}$  分别为长、中、短三根计数管组成的体积差的单位体积的计数率,求出他们的平均值,再用平均值除长、中、短三根计数管单位体积的计数率,公式如下:

$$N_{c-z} = (N_c - N_z)/(V_c - V_z) \quad (7)$$

$$N_{z-d} = (N_z - N_d)/(V_z - V_d) \quad (8)$$

$$N_{c-d} = (N_c - N_d)/(V_c - V_d) \quad (9)$$

用式(7),(8),(9)的平均值各除长、中、短三根计数管单位体积的计数率便可得长、中、短三根计数管的端效应校准因子。

2003 年,测量了正比计数管的端效应修正因子,测量结果列于表 5。

表 5 端效应因子

管子	计数/s	修正后/s	体积/cm <sup>3</sup>	端效应
长	3 204	3 230	362.47	1.08
中	2 374	2 402	269.53	1.18
短	2 153	2 180	176.59	1.20

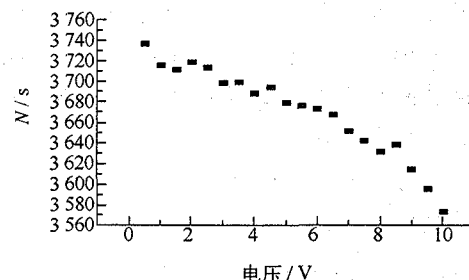


图 4 甄别阈坪曲线图

### 2.1.5 壁效应修正

当计数管附近的放射性气体向壁内发射  $\beta$  粒子时, 电离概率很小, 以至于不能形成足以引起计数的脉冲, 这种情况称为壁效应。壁效应随计数气体压强的增加而减小, 因此可以用同一种体积比活度(单位体积内含有放射性的活度)的几个样品, 分别在不同计数气体压强下测量他们的体积比活度, 然后画出各个样品的体积比活度  $n$  随气体压强  $p$  倒数变化的关系图, 并外推到压强倒数为零处的体积比活度, 由此消除壁效应。

采用不同压强下对正比计数管进行计数, 得到在大气压强为一个压强时, 损失约为 1%。

2003 年, 测量了正比计数管(中)的壁效应修正因子, 测量结果如图 5 所示。

利用计数与压强倒数的关系, 可得计数管的壁效应修正因子为 1.003。

### 2.2 放射性标准气体研制

放射性标准气体研制可以通过取样、分样、测量三步骤达到。取样可以用取样器获得, 再将放射性气体注入标准烧瓶里面。分样就是将取来的样品通过四通管将样品分成相同状况的四份样品。四通管如图 6 所示。

将分好的几个样品任取其中的一瓶来测量, 测量的结果即为其他几瓶气体的活度。

### 2.3 量值溯源及传递技术研究

按照《GJB 15481—2000 校准实验室的通用要求》中有关装置量值溯源的规定, 放射性气体活度测量装置属于绝对测量装置, 溯源应采用比对的方式进行。比对公式如下:

$$E_n = |A - A_0| / \sqrt{U_{lab}^2 + U_{ref}^2} \quad (10)$$

式中:  $E_n$ ——一个反映测量值变动性的标准化差值, 表示的是参加装置的测量值同另一个装置测量值之差与两者给定的扩展不确定度之比;

$A$ ——参加装置的测量值;

$A_0$ ——另一装置的测量值;

$U_{lab}$ ——参加装置所报告的测得值的扩展不确定度;

$U_{ref}$ ——另一装置的测量值的扩展不

确定度。

量值传递就是测量用户送来的放射性样品, 表 6 是中国工程物理研究院核物理与化学研究所的氙样品测量结果。

### 2.4 不确定度估计

表 7 是测量氙样品结果不确定度估计。

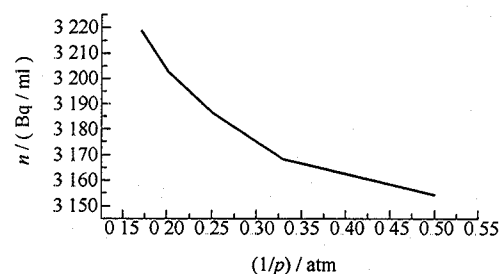


图 5 长计数管(中)计数与压强倒数的曲线图  
1 atm=101 325 Pa

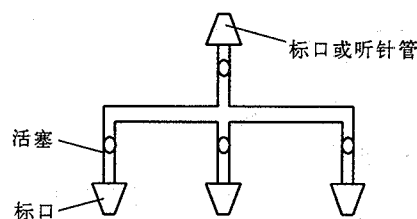


图 6 四通管形状

表 6 氙样品测量

样 品	测量值/(Bq/ml)	不确定度/%
1	3 534	0.3
2	5 400	0.2

表 7 气体活度测量结果不确定度估计

影响因素	A类/%	B类/%
端效应	—	0.05
壁效应	—	0.15
仪器表观读数重复性	0.15	—
辐射本底	—	0.02
死时间	—	0.14
八小时稳定性	—	0.2
各种管道容积	—	0.1
合成不确定度 $u_c$	0.35	
扩展不确定度 $U(k=2)$	0.7	

根据《GJB 3756—99 测量不确定度的表示及评定》及《GJB 2749—96 建立测量标准技术报告编写要求》估计和评定了上述测量结果的不确定度,结果见表 5。

### 3 结 论

本项目研制的测量标准的合成标准不确定度为 0.7%,经校准检定法验证合理;测量标准重复性为 0.2%,小于标准不确定度的 2/3;稳定性为 0.3%,小于标准不确定度;有关技术指标均满足有关标准、规范和规程要求<sup>[5]</sup>。总之,本标准装置可作为测量标准,开展有关放射性气体活度的测量工作。

### 参 考 文 献

- 1 Mann W B, Seliger H H, Marlow W F, Medlock R W, et al. Recalibration of the NBS carbon-14 Standard by Geiger-Muller and Proportional gas counting. The Review of Scientific Instruments, 1960, 31: 690
- 2 Hadžišehović M, Močilnik I, D J Bek Uzarov, et al. International gas counting method for absolute measurements of the specific radioactivity of tritium water. Nucl. Instrum. Methods., 1973, 112: 69
- 3 韩奎初,丁声耀主编.实用电离辐射计量学.北京:原子能出版社,1996
- 4 《计量测试技术手册》编辑委员会.计量测试手册,第 12 卷:电离辐射.北京:中国计量出版社,1997.6
- 5 国家计量院. JJG(核工)017—91. 国内充气正比技术标准装置测定放射性气体活度