

内充气正比计数管系统绝对测量 ^{87}Kr 放射性活度浓度

李 奇, 常永福, 解 峰, 王世联, 李 琦, 师全林, 张子斌, 李雪松

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710613)

摘要:本工作研制建立 1 套气体放射性活度绝对测量装置——内充气正比计数管系统。对该系统的坪特性、本底、死时间、端效应和壁效应等性能进行了测试。在此基础上,采用该系统对放射性气体 ^{87}Kr 的放射性活度浓度进行了绝对测量,测得值为 $40.64(1\pm 0.9\%) \text{ Bq/mL}$ 。

关键词:内充气正比计数管;绝对测量;放射性活度浓度; ^{87}Kr

中图分类号:TL816.4 文献标识码:A 文章编号:1000-6931(2006)04-0443-04

Absolute Measurement of Activity Concentration of ^{87}Kr by Using Internal Gas Proportional Counting

LI Qi, CHANG Yong-fu, XIE Feng, WANG Shi-lian, LI Qi,
SHI Quan-lin, ZHANG Zi-bin, LI Xue-song

(Northwest Institute of Nuclear Technology, P. O. Box 69-14, Xi'an 710613, China)

Abstract: A internal gas proportional counting system for absolute measurement of gas radioactivity was established. The performances of the system, such as plateaus, background, deadtime, end effect and wall effect were well tested. Then the activity concentration of ^{87}Kr was measured absolutely to be $40.64(1\pm 0.9\%) \text{ Bq/mL}$ by this equipment.

Key words: internal gas proportional counter; absolute measurement; activity concentration; ^{87}Kr

气体放射性活度通常采用 HPGe γ 能谱法进行相对测量和 β - γ 符合法或内充气正比计数管系统进行绝对测量。采用长度补偿法的内充气正比计数管系统是目前国际公认准确度最高的一种气体放射性活度绝对测量装置。这种装置在放射性气体 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{35}S 和 ^{85}Kr 等寿命较长的核素活度绝对测量中得到

了广泛应用^[1-4]。

^{87}Kr 是短寿命(半衰期为 $76.3 \pm 0.6 \text{ min}$ ^[5])的气体放射性核素,是气体裂变产物法测试核燃料裂变燃耗的重要核素之一。为准确测量其活度,本工作研究建立内充气正比计数管系统,绝对测量气体裂变产物 ^{87}Kr 的放射性活度浓度。

1 原理

内充气正比计数管存在的最大问题是端效应。采用长度不同、结构完全相同的计数管,使得它们的体积之差等于灵敏体积之差,可消除端效应的影响。

将待测的放射性气体和工作气体(如甲烷)均匀混合后充入内充气正比计数管内,相当于每一衰变核周围充满着探测介质,探测立体角为 4π ,可避免源的自吸收,在灵敏体积内,放射性气体发射的 β 射线可 100% 被探测。在确定了灵敏体积后,计数管所探测到的信号由定标器记录。将得到的计数率经死时间、本底、甄别

阈、壁效应校正后即可得到 ^{87}Kr 的放射性活度浓度 A , 有:

$$A = \frac{N_1}{V} \delta_1 \delta_2 \delta_3 \quad (1)$$

式中: N_1 为扣除本底后灵敏体积内的计数率; V 为正比计数管的灵敏体积; δ_1 、 δ_2 、 δ_3 分别为死时间、甄别阈和壁效应校正系数。

2 实验装置

本工作研制建立的内充气正比计数管系统由 3 支正比计数管、数据获取和处理系统、充放气真空系统和废气收集系统 4 部分组成(图 1)。

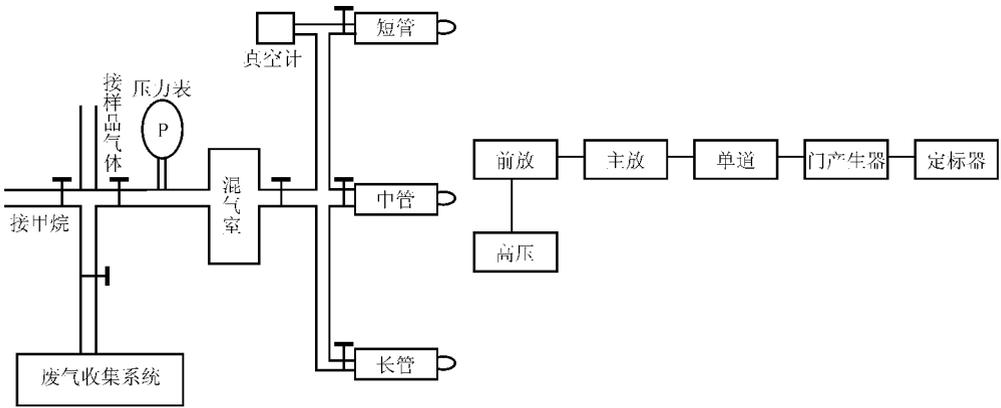


图 1 正比计数管系统示意图

Fig. 1 Scheme of internal gas proportional counting system

系统设有长、中、短内充气正比计数管各 1 根。除长度不同外,计数管直径和内部结构完全相同。圆筒型计数管的壁(阴极)为无氧高导电性铜,长度分别为 281.9、188.0 和 94.0 mm,外径为 38.10 mm,空间体积分别为 268.84、179.53 和 90.00 mL。充气阀门为 Swagelok 的 1/4 英寸标准阀门。

数据获取和处理系统由 NIM 插件和工控机组成,含有 6 路甄别器,分 6 路同时计数。

充放气真空系统由 Swagelok 管件及阀门连接而成。经测试,系统漏率小于 $10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

废气收集系统将管路中的废气由压缩机压缩入废气罐中,以免污染环境。

3 实验

3.1 坪曲线与本底

将 3 支内充气正比计数管分别接在充放气

真空系统上,充入工作气体(纯甲烷 99.99%)至所需压力,用外 γ 源(^{65}Zn)测试正比计数管的坪特性。单道下阈设置为 1.0 V,缓慢改变计数管的高压,测得的坪曲线示于图 2。用外 γ 源在 50 和 100 kPa 两种气压条件下测得的坪特性数据列于表 1。

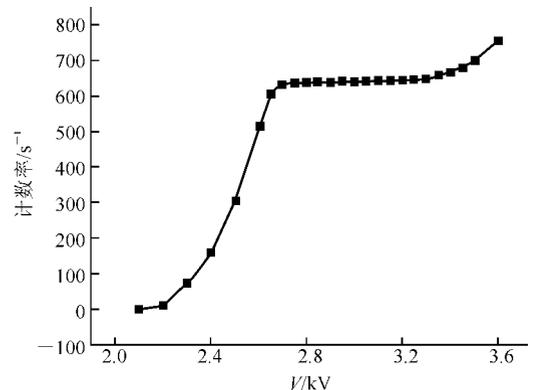


图 2 用外 γ 源测得的计数管坪曲线

Fig. 2 Plateau curve of counter by external γ -source

表1 外 γ 源法测得的计数管坪特性

Table 1 Plateau performance of counter by external γ -source

| 气压/kPa | 长正比管 | | 中正比管 | | 短正比管 | |
|--------|-------------|--------------|-------------|--------------|-------------|--------------|
| | 高压/V | 坪斜/(%/100 V) | 高压/V | 坪斜/(%/100 V) | 高压/V | 坪斜/(%/100 V) |
| 50 | 2 100~2 500 | 0.36 | 2 100~2 500 | 0.40 | 2 200~2 500 | 0.44 |
| 100 | 2 750~3 300 | 0.34 | 2 750~3 300 | 0.44 | 2 750~3 300 | 0.44 |

由表1可见,在气压为100 kPa情况下,3支计数管的坪特性良好,坪长为550 V,坪斜小于0.5%/100 V。在50 kPa下,坪电压向低电压移动,这是因为气压低,平均自由程变大,较低的电压就能使电子在平均自由程上获得足够的能量而与气体分子发生电离碰撞,产生新的离子对。

实验测得长、中、短3支正比计数管的本底计数率分别为3、2和1 s⁻¹。

3.2 系统死时间测量与控制

在6路甄别器和定标器之间插入6个门产生器。改变门产生器的门宽来控制6路系统的死时间。采用双振荡器测量各路的死时间。测得6路的死时间分别为2.01、2.02、2.00、2.02、2.01、1.98 μ s。

因是非扩展型死时间,故死时间校正系数为:

$$\delta_1 = \frac{1}{1 - N_2\tau} \quad (2)$$

式中: N_2 为定标器直接读出的计数率; τ 为系统死时间。

3.3 ⁸⁷Kr 测量

⁸⁷Kr由丰度为99.46%的⁸⁶Kr在反应堆中辐照获取。将辐照生成的⁸⁷Kr在充放气真空系统上与工作气体纯甲烷一起充入混气室充分混合,将混合气体同时充入3支正比计数管中,进行⁸⁷Kr放射性活度浓度绝对测量。

甄别阈须置于“噪声”之上,由此将使低于甄别阈的小脉冲被漏记。为此,采用了6路甄别器,甄别阈分别取为1.0、1.4、1.8、2.2、2.6和3.0 V,标绘出甄别阈与相应计数率的线性关系(图3,图中的计数率均已本底及死时间修正)。将甄别曲线外推到零阈值,零阈值下的计数率业已消除了甄别阈的影响。对计数管坪上的3条高压2 200、2 300、2 400 V曲线分别进行线性外推,得到3个零甄别阈的计数率平

均值的相对标准偏差为0.2%,这可看作是甄别阈外推所引起的不确定度。

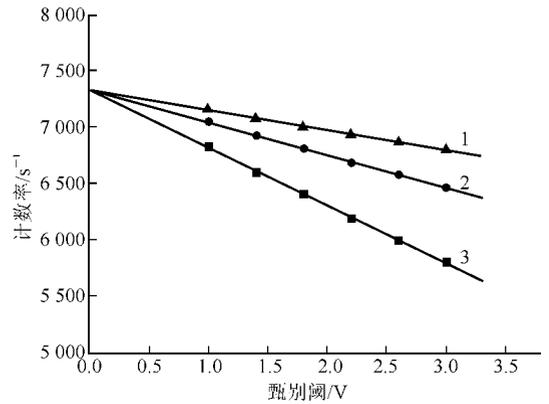


图3 ⁸⁷Kr的甄别阈外推曲线

Fig. 3 Extrapolated discrimination curves of ⁸⁷Kr
计数管高压, V: 1—2 400; 2—2 300; 3—2 200

堆辐照后的⁸⁷Kr中含有少量⁸⁵Kr^m(半衰期为4.48 h)和¹²⁵Xe(半衰期为16.8 h)、¹²⁵I(半衰期为59.4 d),必须对它们的干扰予以扣除。相对于其它3个核素,¹²⁵I半衰期长,且由母体¹²⁵Xe衰变而来,它的影响可忽略不计。实际上,测得的是⁸⁵Kr、⁸⁵Kr^m和¹²⁵Xe 3种核素的总计数。将连续多次跟踪测量结果根据半衰期用最小二乘法进行分解,最终得到起始测量时刻⁸⁷Kr的活度占总活度的93%以上。最小二乘法分解引入的不确定度小于0.4%。

壁效应是计数管内充气压强的函数,还与待测核素的 β 粒子能量有关。将3支计数管均充压至50 kPa,对短管和长管进行追踪测量,改变中管的压力,由50 kPa增至100 kPa,得到计数率随压强倒数的线性关系。由该线性关系曲线可求出任意工作气体压力下的壁效应损失。在100 kPa工作气体压力下,壁效应校正系数 δ_3 为1.024,其对测量结果引起的不确定度小于0.5%。

3支计数管中的任意两支长度补偿(计数率之差除以体积之差)即为待测的 ^{87}Kr 的放射性浓度。如此可得到3个放射性浓度测量值。因计数管的端效应不可能完全一致,3个测量值将有细微差别,它们的平均值可认为是待测的放射性浓度值,平均值的相对标准偏差可认为是长度补偿引入的不确定度。经多次测量,由长度补偿引入的不确定度小于0.5%。

表2列出了对1个样品进行测量的数据。

表2 ^{87}Kr 的放射性活度浓度测量结果

Table 2 Measured results of activity concentration for ^{87}Kr

| 测量次数 | N_S/s^{-1} | N_M/s^{-1} | N_L/s^{-1} | $\frac{N_M - N_S}{V_M - V_S} /$ ($s^{-1} \cdot \text{mL}^{-1}$) | $\frac{N_L - N_M}{V_L - V_M} /$ ($s^{-1} \cdot \text{mL}^{-1}$) | $\frac{N_L - N_S}{V_L - V_S} /$ ($s^{-1} \cdot \text{mL}^{-1}$) | 放射性活度浓度/ ($\text{Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$) |
|------|--------------|--------------|--------------|--|--|--|--|
| 1 | 3 116.0 | 6 712.6 | 10 359 | 40.17 | 40.83 | 40.50 | 40.50(1±0.5%) |
| 2 | 3 100.1 | 6 727.7 | 10 377 | 40.52 | 40.86 | 40.69 | 40.69(1±0.2%) |
| 3 | 3 082.2 | 6 729.0 | 10 367 | 40.73 | 40.73 | 40.73 | 40.73(1±0.0%) |

表3 ^{87}Kr 放射性浓度测量不确定度

Table 3 Uncertainty of activity concentration of ^{87}Kr

| 不确定度分量 | 相对标准不确定度 $u_i/\%$ |
|----------|-------------------|
| 统计不确定度 | 0.2 |
| 本底 | 0.02 |
| 死时间 | 0.01 |
| 甄别阈 | 0.2 |
| 端效应 | 0.5 |
| 壁效应 | 0.5 |
| 计数管空间体积 | 0.1 |
| 干扰核素扣除 | 0.4 |
| 合成标准不确定度 | 0.94 |

4 结论

研究建立了1套气体活度绝对测量装置——内充气正比计数管系统。用该系统绝对测量了气体裂变产物 ^{87}Kr 的放射性活度浓度,测得的 ^{87}Kr 的放射性活度浓度为40.64(1±0.9%) Bq/mL。

这套测量装置的研制与建立,为进行气体放射性核素测量的实验研究奠定了基础。

表中的 N_L 、 N_M 、 N_S 分别为长、中、短计数管的计数率(已经死时间、本底、甄别阈、壁效应修正、干扰核素的扣除且校正到同一参考时刻)。测量时间为20 s, V_L 、 V_M 、 V_S 分别表示长、中、短管的体积。

由3次测量结果的算术平均得到 ^{87}Kr 的放射性活度浓度为40.64 Bq/mL,相对标准偏差为0.2%。 ^{87}Kr 放射性活度浓度测量结果的不确定度分量列于表3。

参考文献:

- [1] 翁守清. 4π 内气体源的绝对测量[J]. 核电子学与探测技术, 1998, 18(1): 33-36.
WENG Shouqing. 4π internal gas source absolute measurement[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 1998, 18(1): 33-36(in Chinese).
- [2] MANN W B, MEDLOCK R W, YURA O. A recalibration of the national bureau of standards tritiated water standards by gas counting[J]. International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1964, 15: 351-361.
- [3] MERRITT W F, HAWKINGS R C. The absolute assay of sulfur-35 by internal gas counting[J]. Analytical Chemistry, 1960, 32(3): 308-310.
- [4] MAKEPEACE J L, CLARK F E, PICOLO J L. Intercomparison of internal proportional gas counting of ^{85}Kr and ^3H [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1994, A339: 343-348.
- [5] JAGDISH K T. Nuclear wallet cards[M]. 6th ed. New York: Brookhaven National Laboratory, 2000: 17.