文章编号:1673-0062(2013)01-0016-06

延迟符合法²¹⁹ Rn 测量研究

黄德荣,颜拥军*,周剑良*,丘寿康

(南华大学 核科学技术学院,湖南 衡阳 421001)

摘 要:介绍了延迟符合测量氡同位素的基本原理,并重新推导了关于²¹⁹Rn的偶然 符合修正公式.同时提出了通过实际测量比较的方法求存活因子和衰变因子的计算 方案,避免了现有理论计算公式的误差.分别对²²²Rn、²¹⁹Rn 混合场和²²²Rn、²²⁰Rn、²¹⁹ Rn 混合场下的²¹⁹Rn 源进行测量.实验结果显示,本底为7.5 cpm 时,延迟符合实验 系统能够分辨测量7~25 cpm 的²¹⁹Rn 源,其测量结果与标准值偏差均在±8%以内. 延迟符合法能够在氡混合场中分辨并测量出低水平²¹⁹Rn. 关键词:延迟符合法;氡混合场;偶然符合;存活因子;衰变因子 中图分类号:TL822 文献标识码:B

Study of Measurement of ²¹⁹Rn via Delayed Coincidence Method

HUANG De-rong, YAN Yong-jun^{*}, ZHOU Jian-liang^{*}, QIU Shou-kang

(School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: The principle of delayed coincidence counting technology to discriminate radon isotopes are introduced in this paper, and the calculation formulas of chance coincidence about ²¹⁹Rn also are derived. Meanwhile, for the ²²⁰Rn flow regime is difficult to meet the condition of calculation formulas, a solution to solve the survival factor and decay factor is presented and the error coming from the use of theoretical calculation formula is avoided. Experiment system is established for measurement of ²¹⁹Rn in the ²²²Rn, ²¹⁹Rn mixed radon gas and ²²²Rn, ²²⁰Rn, ²¹⁹Rn mixed radon gas. The results show that ²¹⁹Rn of decay rate of 7 dpm ~ 25 dpm can be measured by the system with error of ±8%, when the background count rate is about 7.5 cpm. The study also demonstrates that low-level ²¹⁹Rn can be discriminated and measured in the mixed radon gas via delayed coincidence method.

key words: delayed coincidence method; mixed radon gas; chance coincidence; survival factor; decay factor

收稿日期:2013-01-08

基金项目:国家自然科学基金资助项目(11175082)

作者简介:黄德荣(1986-),男,壮族,广西崇左人,南华大学核科学技术学院硕士研究生.主要研究方向:辐射防护 与环境保护.* 通讯作者

0 引 言

测量²¹⁹ Rn 是间接测量²²³ Ra 的快速有效的方法,而²²³ Ra 的测量是同位素海洋学研究中的重要 手段和技术关键之一,比如²²³ Ra(半衰期 11.4 d) 是研究近岸和河口海区 10~50 天的海洋学过程 的非常重要的示踪剂,这类同位素海洋学研究是 海洋环境研究热点之一.这就要求要有一种稳定 和精确的方法来分析测量²¹⁹ Rn^[1-2].另一方面,由 于²²² Rn、²²⁰ Rn 及它们衰变子体的干扰,测量²¹⁹ Rn 变得非常困难,所以关于²¹⁹ Rn 测量的方法也很 少,其中延迟符合法尤其引人关注.延迟符合法最 先由 Giffin 等人于 1963 年开发设计,后经 Moore 等人改进并成功应用于短寿命镭同位素的活度测 量中^[3-5].

本文将谈论的²¹⁹ Rn 延迟符合法,是在 Giffin 方法的基础上改进而来.该方法在原来的基础上 针对²²⁰ Rn 衰变子体²¹⁶ Po 的衰变时间对²¹⁹ Rn 符合 通道符合时间的影响提出了相应的修正,使得公 式更好避免²¹⁶ Po 对²¹⁹ Rn 符合通道的干扰.同时, 针对流气式测量过程中²¹⁹ Rn 气体流态复杂难于 满足理论计算公式适用条件的真实情况,提出通 过实际测量比较的方法求存活因子和衰变因子.

1 测量原理

延迟符合处理单元的框图如图1所示[6-7].符 合处理单元包括总计数率道和两个符合计数率道 三部分.在²²⁰Rn符合计数率道中,设定了延迟时 间 Td₂₂₀ = 10 ms 和开门时间 Tg₂₂₀ = 600 ms(大约 4 倍²¹⁶Po 半衰期),当一个²²⁰Rn 衰变成²¹⁶Po 时放 出的一个 α 粒子脉冲首先触发门电路并延迟 10 ms之后再开门, 子体²¹⁶ Po 衰变产生的 α 脉冲 将有很大的概率在 10 ms 到 610 ms 的开门时间 内到达符合单元,并被记录成为一个符合计数,延 迟10 ms(大约6倍²¹⁵Po半衰期)的作用是消除 ²¹⁵Po的干扰;同理,²¹⁹Rn 符合计数率道的延迟时 间 Td₂₁₀ = 0.01 ms,目的是使整个系统稳定,²¹⁹ Rn 符合计数率道符合时间 Tg219 = 5.6 ms(大约4 倍²¹⁵Po半衰期),以保证²¹⁵Po衰变产生的脉冲都 被记录.由于²¹⁶Po半衰期为150 ms,可认为在这 段时间内²¹⁶Po未衰变,不会影响²¹⁹Rn 通道计数. 总计数率道用于记录全部 α 脉冲信号. 最后通过 分析算法对符合计数率和总计数率等进行处理. 即可得到²¹⁹Rn的活度.





2 偶然符合的修正

测量过程中,²¹⁹ Rn 符合通道的计数会不仅受 到²²² Rn 衰变及其他本底计数的影响而产生偶然 符合计数,同时也会受到²²⁰ Rn 及其衰变子体²¹⁶ Po 的干扰,因此需要对符合计数结果进行偶然符合 修正.

2.1 Giffin 等人推导的偶然符合修正公式

偶然符合修正公式推导方法如式(1),偶然 符合计数率公式如式(2)^[3]:设*x*为随机脉冲计数 率,其等于总脉冲计数率减去真符合计数率,*y*为 偶然符合计数率,*Tg*为开门时间,即每个触发脉 冲使门电路打开的时间,则门电路打开时间占总 测量时间的分数为(*x* - *y*) × *Tg*,其等于被计数器 记录为偶然符合的随机脉冲占总随机脉冲的分数 y/x,因此可得:

$$(x - y) \times Tg = \frac{y}{x} \tag{1}$$

则偶然符合计数率公式如下:

$$y = \frac{x^2 \times Tg}{1 + x \times Tg}$$
(2)

对于²¹⁹Rn 符合通道,Giffin 认为:*x* = *cpmtotal* - (*cpm*219 - *chancel*219),将 *x* 值代入式(2)可推出²¹⁹Rn 通道偶然符合计算公式:

 $Chance 219 = \frac{(cpmtotal - cpm219)^2 \times 0.000093}{1 - (cpmtotal - cpm219) \times 0.000093}$ (3)

²¹⁹Rn 净计数率 *Net*219:*Net*219 = *cpm*219 - *chance*219.

其中 *Chance*219 为219 通道偶然符合计数率, *cpmtotal* 为总计数率,*cpm*219 为²¹⁹Rn 通道符合计 数率,0.000093 min = 5.6 ms.

2.2 在 Giffin 等人方法的基础上,重新推导偶然 符合修正公式

由于²²⁰ Rn 子体²¹⁶ Po 的半衰期较短只有 150 ms,并不像²²² Rn 子体²¹⁸ Po 那样长,²¹⁶ Po 的存 在将对²¹⁹ Rn 符合通道产生较明显的影响,需要加 以修正.²²⁰ Rn 子体²¹⁶ Po 在²¹⁹ Rn 符合通道 5.6 ms 符合开门时间内发生衰变的概率为:1 - e^{- $\lambda_{216 \times t}$} = 1 - e^{$\ln 2 \times 5.6$} = 2.55%,需要扣除,所以在 Giffin 的修 正过程中随机脉冲 *x* 的正确表示应该是:

 $x = cpmtotal - (cpm219 - chance219) - 0.0255 \times cpm220$ (4)

其中 cpm220 为²²⁰Rn 通道符合计数率,代入公式 (2)得:

Chance 219 =

 $\frac{(cpmtotal - cpm219 - 0.0255 \times cpm220)^2 \times 0.00093}{1 - (cpmtotal - cpm219 - 0.0255 \times cpm220) \times 0.00093}$ (5)

扣除偶然符合:

*Corr*219 = *cpm*219 - *Chance*219 (6) 其次,扣除进入²¹⁹Rn 符合通道的 2.55%²¹⁶Po 符 合计数率,

*Final*219 = *Corr*219 - 0.0255 × *Corr*220(7) 其中 *Final*219 为最终符合计数率(净计数率); *Corr*219 为²¹⁹ Rn 符合通道修正的符合计数率; *Corr*220 为²²⁰ Rn 符合通道修正的符合计数率,

Corr220 = cpm220 -

$$(cpmtotal - cpm220 - cpm219)^2 \times 0.01$$

 $\overline{1 - (cpmtotal - cpm220 - cpm219) \times 0.01}$

(0.01 min = 600 ms).

3 存活因子 f_s 和衰变因子 f_p 的测量

由于²¹⁹ Rn 半衰期短,在流气式测量过程中, 从²¹⁹ Rn 的析出到²¹⁹ Rn 在闪烁室衰变得到测量数 据之间²¹⁹ Rn 一般要经过一定的路径(管道或缓冲 体积),从而衰变损失掉一部分,只有剩下那部分 才有可能被测量.同样,流经闪烁室的²¹⁹ Rn 只有 衰变部分才有可能产生计数.要计算源的初始活 度,就需要确定这两个量所占的份额即存活因子 和衰变因子.

常规计算方法是通过理论公式计算得到存活 因子和衰变因子. 气体流态有层流和湍流两 种^[8-9],分别使用不同的公式计算存活因子和衰变 因子. 然而实际的²¹⁹Rn 气体流态总是介于层流和 湍流之间,不能直接使用上述公式. 在这里设计了 一种实验测量方案,来测量不同流率下²¹⁹Rn 气体 经过管道或缓冲体积后的存活因子,同时也测量 不同流率下²¹⁹Rn 气体流经闪烁室里的衰变因子. 用²¹⁹Rn 源进行实验,实验流程如图 2、图 3 所示.



图 2 求存活因子实验系统

Fig. 2 Experiment system of the survival factor



图 3 衰变变因子实验系统

Fig. 3 Experiment system of the delay factor

首先,用加了管道或缓冲容器(这里用0.51 L 的闪烁室替代)的实验系统2(如图2)测量不同 流率下的²¹⁹ Rn 源,光电倍增管的输出信号接 FH463 自动定标器计数. 系统 2 中,设 A_1 为²¹⁹ Rn 源活度; A_2 为流经缓冲容器(空闪烁室)后闪烁室 入口²¹⁹ Rn 活度; A_3 为闪烁室内²¹⁹ Rn 衰变率, f_s 为²¹⁹ Rn 经过缓冲容器(空闪烁室)的存活因子; f_D ,²¹⁹ Rn 流经闪烁室里的衰变因子.

对系统 2 有:进入闪烁室的²¹⁹ Rn 活度 $A_2:A_2$ = $A_1 \times f_s$. 闪烁室内闪烁室内²¹⁹ Rn 衰变率 $A_3 dpm:$ $A_3 = A_2 \times f_D = A_1 \times f_s \times f_D$.

系统 3(如图 3)中,不加缓冲容器不同流率 下直接测量²¹⁹ Rn 源时,闪烁室内²¹⁹ Rn 衰变率 $A_2':A_2' = A \times f_D$.则:

$$\frac{A_3}{A_{2'}} = \frac{A_1 \times f_s \times f_D}{A_1 \times f_D} = f_s$$
(8)

 f_s 即为²¹⁹Rn 流经该缓冲容器(空闪烁室)的存活 因子.

又因为流经每个容器的²¹⁹Rn 气体都包括存 活量和衰变量两部分,所以气体经过用做缓冲容 器的空闪烁室的衰变因子是:

$$f_D = 1 - f_s \tag{9}$$

数值上等于系统 2 中²¹⁹ Rn 流经测量用的闪烁室 的衰变因子.

处理得到不同流率下的存活因子和衰变因子 如表1所示.

表 1 存活因子和衰变因子测量结果 Table 1 Result of the survival factor and the delay factor

流率	A_3	A_2'	存活因子	衰变因子
$/(L \cdot min^{-1})$	∕cpm	∕cpm	f_s	$f_{\scriptscriptstyle D}$
0.42	7.73	909.24	0.008 5	0.991 5
0.50	13.80	1 002.53	0.013 8	0.986 2
0.59	24.23	1 032.24	0.023 5	0.976 5

注:测量值为5次测量结果平均值,计数已扣除本底.

4 计算公式

4.1 符合通道效率计算

符合通道效率 E包括两个方面^[7]:一是闪烁 室探测效率 η ;二是氡子体钋在开门时间内衰变 概率 f_E . 闪烁室探测单个粒子效率为 η ,则探测 Rn – Po 粒子对效率为 η^2 ,因此 $E = \eta^2 \times f_E$.

²¹⁹ Rn 通道开门时间 5.6 ms, 则 $f_{E_{219}} = 1 - e^{-\frac{h2}{1.78} \times 5.6} = 0.887$. 闪烁室探测效率约为 0.807(闪 烁室刻度系数 K 为 13.5 Bq · m³/cpm). 根据公式 计算²¹⁹ Rn 通道效率理论值为:

 $E_{219} = \eta^2 \times f_{E_{219}} = 0.807 \times 0.807 \times 0.887 = 0.578$ (10)

4.2 样品活度 A 计算公式

样品活度计算公式为:

$$A = \frac{Final 219}{E_{219} \times f_p \times f_s} \tag{11}$$

其中 *Final*219 为最终符合计数率(净计数率); f_s 为²¹⁹ Rn 经过缓冲容器的存活因子; f_p 为²¹⁹ Rn 流 经闪烁室里的衰变因子.

5 ²¹⁹Rn 源测量结果验证及分析

5.1 测量实验系统

以 ARM - 830 符合处理单元、FD - 125 室内 氡钍分析器、放大整形电路构建延迟符合测量实 验系统,如图 4 所示^[6-7].

利用延迟符合实验系统测量²¹⁹ Rn 源(活度 A 约为8.0 Bq),进行流气法测量.由于所用²¹⁹ Rn 源 的活度较实际样品大得多,为使²¹⁹ Rn 浓度跟实验 样品相似,在源与闪烁室之间接一级缓冲容器, 使²¹⁹ Rn 浓度降低,从而减少单位时间闪烁室内²¹⁹ Rn 的衰变数.



图 4 延迟符合测量实验系统

Fig. 4 Experiment system of delayed coincidence measurement

5.2 ²²² Rn 存在条件下²¹⁹ Rn 源测量结果

使用延迟符合实验系统测量²¹⁹ Rn 标准源,记录两种种泵流率时²¹⁹ Rn 通道符合计数,测量时间

为3h.流气式闪烁室长时间(10h)测量的平均大 气本底计数率是7.47 cpm(可认为大部分计数是 由于空气中²²²Rn 衰变产生的),实验结果见表2.

表 2	不同流率时219	⁹ Rn 源测量结果
-----	----------	-----------------------

Table 2	Result of	²¹⁹ Rn so	ource using	delayed	coincedence	system
---------	-----------	----------------------	-------------	---------	-------------	--------

流率	总计数率	²¹⁹ Rn 符合计数率	偶然符合计数率	修正的符合计数率	²¹⁹ Rn 净计数率
$/(L \cdot min^{-1})$	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm
0.42	15.197	2.414	0.016	2.189	2.155
0.59	31.704	6.560	0.058	6.502	6.427

注:²¹⁹Rn测量值为3次测量结果平均值.

5.3 ²²² Rn、²²⁰ Rn 存在条件下²¹⁹ Rn 源测量结果 在样品出添加能产生衰变率为9 cpm 左右

的²²⁰Rn 源,使用同一延迟符合实验系统测量²¹⁹Rn 源,流率为0.42 L/min,结果列于表 3.

表 3 氡混合场时²¹⁹ Rn 源测量结果

Table 3 Result of ²¹⁹Rn source in mixed radon gas

流率	总计数率	²¹⁹ Rn 符合计数率	偶然符合计数率	修正的符合计数率	²¹⁹ Rn 净计数率
$/(L \cdot min^{-1})$	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm	∕ cpm
0.42	23.559	2.323	0.041	2.282	2.176

注:²¹⁹Rn 测量值为 3 次测量结果平均值.

5.4 比对分析

为了验证延迟符合法对²¹⁹Rn 源测量结果的 有效性和准确性,将处理的测量结果与²¹⁹Rn 标准 源的活度进行对比,比较列于表 4;同时为了验证 延迟符合法在氡混合场中不同干扰元素存在的条件下对²¹⁹Rn 源测量结果的有效性和准确性,将²²²Rn和²¹⁹Rn 混合场与²²²Rn、²²⁰Rn 和²¹⁹Rn 两种条件下²¹⁹Rn 的测量结果也进行对比,结果列于表5.

表 4 延迟符合实验系统与标准源活度的比较

Table 4 Comparison of results between using delayed coincedence system and standard source

²¹⁹ Rn 测量结果		²¹⁹ D., 浙江庄/D.,	西老相对误差/%	
²¹⁹ Rn 净计数率/cpm	²¹⁹ Rn 源活度/Bq	nn 你佰良/ bq	网有相对侯差/%	
2.155	7.37		7.9	
6.427	8.08	8.0	1.0	
2.176	7.44		7.0	

注:源活度 $A = Final 219/(E_{219} \times f_D \times f_S)$

表 5 同一流率下两种混合场的比较

Table 5	Comparison	of results	between	two	different	conditions
---------	------------	------------	---------	-----	-----------	------------

在 ²²² Rn 存在条件下, ²¹⁹ Rn 净计数率/cpm	在 ²²² Rn、 ²²⁰ Rn存在的条件下, ²¹⁹ Rn净计数率/cpm	相对偏差/%
2.155	2.167	0.6

由表 5 可见,在氡混合场中,延迟符合实验系 统测量结果与²¹⁹Rn标准源的活度基本一致,两者 的相对误差在±8%以内.同时,在²²²Rn和²¹⁹Rn混 合场条件下与在²²² Rn、²²⁰ Rn 和²¹⁹ Rn 混合场条件下,延迟符合实验系统对²¹⁹ Rn 源的测量结果也基本一致,两者的相对偏差小于 1%.

6 结 论

如表4 和表5 所示,在本底(主要是²²²Rn)大 约为7.5 cpm 时,延迟符合实验系统能够测量衰 变率为7 dpm~25 dpm 的²¹⁹ Rn 源,相对误差在 ±8% 以内. 同时,在存在约7.5 cpm 的222 Rn 的条 件下以及在存在约 7.5cpm 的222 Rn 和衰变率约 9 cpm的²²⁰ Rn 的条件下,延迟符合实验系统对 ²¹⁹Rn源(计数率大约为7 cpm)的测量结果基本一 致,两者的相对偏差小于1%.同时针对流气式测 量过程中²¹⁹Rn 气体流态复杂难于确定的特点,提 出了通过实际测量比较的方法求存活因子和衰变 因子的计算方案,避免了现有理论计算公式的误 差,实验结果表明,该技术可应用于氡同位素混合 条件下较低水平²¹⁹Rn 的分辨测量. 这些方法丰富 和完善了延迟符合测量技术的内容,对²¹⁹Rn 延迟 符合测量技术的发展具有促进作用,有利于推 动²¹⁹Rn 在同位素海洋学、地下水迁移等领域中 ²²³Ra、²²⁷Ac示踪剂测量中的应用.

参考文献:

[1] 杜金洲,张经. 同位素海洋学的新动态和展望[C]// 第八届全国核化学与放射化学学术研讨会论文集. 乌鲁木齐:[出版者不详],2007:142-143.

- [2] 门武,刘广山,陈志刚,等. 镭同位素在海洋学研究中的应用及进展[J]. 地球科学进展, 2010, 25(1): 33-42.
- [3] Giffin C, Kaufman A, Broecker W. Delayed coincidence counter for the assay of Actinon and Thoron[J]. Journal of Geophysical Research, 1963, 68(6):1749-1757.
- [4] Moore W S, Arnold R. Measurement of ²²³Ra and ²²⁴Ra in coastal waters using a delayed coincidence counter
 [J]. Journal of Geophysical Research, 1996, 101 (C1): 1321-1329.
- [5] Moore W S. Fifteen years experience in measuring ²²⁴Ra and ²²³Ra by delayed-coincidence Counting [J]. Marine Chemistry, 2008, 109(3/4):188-197.
- [6] 颜拥军,周剑良,杨彬,等.基于 ARM 的软件延迟符 合法氡同位素分辨测量实验系统研制[J].原子能科 学技术,2011,45(12):1527-1531.
- [7] 颜拥军,邓阳源,赖伟,等. 软件延迟符合法测量低活 度²²⁰Rn 的实验研究[J]. 辐射防护, 2012, 32(4): 254-258.
- [8] 丘寿康.²²⁰ Rn 测量仪器的刻度问题[J]. 核技术, 2003,26(7):561-563.
- [9] Qiu S, Xiao D, Liu L. First intercomparison of Th-Rn discrimination measurement in China[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2008, 128(1):124-127.