

文章编号:1673-0062(2014)03-0013-04

闪烁液中加载示踪核素 ^{212}Pb 实验方法研究

李春阳^{1,2}, 唐 泉^{1*}, 丘寿康¹, 方 建², 安小刚¹, 李连山¹, 李文涛¹

(1. 南华大学 核科学技术学院, 湖南 衡阳 421001; 2. 中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

摘 要:介绍了使用流气式固体 ^{220}Rn 源向闪烁液中加载示踪核素 ^{212}Pb 的实验方法. 研究了不同温度、气体流率下, 闪烁液对 ^{212}Pb 的加载效率的变化情况. 为开展江门中微子闪烁液纯化验证实验提供放射性核素加载的方法, 为放射性核素加载实验条件的选择提供了依据.

关键词:流气式 ^{220}Rn 源; 液闪计数法; 加载效率; ^{212}Pb ; 示踪剂

中图分类号: O572.21+2 **文献标识码:** B

A Study on Experimental Methods of ^{212}Pb Tracer Added to Liquid Scintillator

LI Chun-yang^{1,2}, TANG Quan^{1*}, QIU Shou-kang¹, FANG Jian², AN Xiao-gang¹,
LI Lian-shan¹, LI Wen-tao¹

(1. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China; 2. Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100049, China)

Abstract: This paper describes the experimental method of using the flow-through solid ^{220}Rn source to add tracer nuclide ^{212}Pb to liquid scintillator. It has been studied for the changes of the efficiency of liquid scintillator adding ^{212}Pb under different temperature and flow-rate. For carrying out liquid scintillator purified efficiency verification test, it provides a method to add radionuclide to liquid scintillator in the Jiangmen Underground Neutrino Experiment. And it provides the basis for choosing the experimental conditions of radionuclide addition.

key words: ^{220}Rn flow-through source; liquid scintillation counting; absorption efficiency; ^{212}Pb ; Tracer

收稿日期: 2014-02-18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11390384; 11275094)

作者简介: 李春阳(1987-), 男, 湖南邵阳人, 南华大学核科学技术学院硕士研究生. 主要研究方向: 辐射防护及环境保护. * 通讯作者.

0 引言

江门中微子实验要求设计、研制和运行一个国际领先的中微子实验站,以测定中微子质量顺序、精确测量中微子混合参数,并进行其它多项科学前沿研究。江门中微子实验的最大技术难点之一就是生产2万吨的极低本底闪烁液^[1]。

除去闪烁液中的放射性核素是实验成功的关键,需要采用的提纯技术包括过滤、蒸馏、水萃取、氮气剥离等^[2]。其中²¹⁰Pb、²¹⁰Po去除效率最低,是纯化实验中主要考虑的放射性核素。为了验证闪烁液的放射化学纯度是否达到预期目标,追踪放射性核素²¹⁰Pb在闪烁液纯化过程中的变化,在闪烁液中加入定量的²¹²Pb作为同位素示踪剂。相比于意大利的Borexino实验采用²²²Rn源来加载²¹⁰Pb的方案^[2],本方案使用²²⁰Rn源加载²¹²Pb具有以下几点优势:

1) 通气加载时间短,²¹²Pb的半衰期为10.6 h,而²¹⁰Pb的半衰期为21 a,如果要使氦与其子体达到平衡,加载²¹²Pb和²¹⁰Pb时间分别为74.2 h,210 a;

2) ²¹²Pb及其子体残留时间短,不会对仪器造成长期污染;

3) ²²⁰Rn的加载效率更高,²²⁰Rn的半衰期为55.6 s,²²²Rn的半衰期为3.82 d,相同浓度的氦气在闪烁液中停留相同时间,衰变的²²⁰Rn的量要远大于²²²Rn的量。

测量纯化前后闪烁液中²¹²Pb变化,以此获得纯化处理对放射性核素²¹⁰Pb的纯化效率。²¹²Pb为²²⁰Rn的子体之一,可以通²²⁰Rn到闪烁液中来加载²¹²Pb。如何选择通气加载的实验条件,才能将²¹²Pb更加有效的加载到闪烁液中。为此我们开展闪烁液中加载²¹²Pb实验方法研究。

1 实验原理

²¹²Pb半衰期为10.6 h,与闪烁液纯化处理时间相当,可作为闪烁液纯化过程中²¹⁰Pb核素的示踪核素。固体²²⁰Rn源是具有高射气系数(>95%)的固体含²³²Th物质,其中²³²Th系核素包括²²⁸Th、²²⁴Ra和²²⁰Rn已达到放射性平衡。用空气气流将²²⁰Rn从固体²²⁰Rn源中引出,通过闪烁液,便能在闪烁液中溶解吸收一定量的²²⁰Rn。其活度大小取决于²²⁰Rn源的活度、气流中的衰变和气流经过闪烁液时来不及溶解而带走的²²⁰Rn。由于Rn

和闪烁液(LAB + 3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)^[3]中的有机分子都属于非极性分子,所以²²⁰Rn能够较好的溶解到闪烁液中,文献[4-5]报道,室温下氦在甲苯中的K溶解系数约为13,且温度越低溶解系数越高。所以只要把钍源中的氦气通入液闪中,就可以在液闪中加载²¹²Pb。

以恒定的流率通入²²⁰Rn,闪烁液中溶解的²²⁰Rn很快达到一个稳定的平衡值。但²²⁰Rn的子体²¹²Pb会继续增长,经过较长时间才增长到平衡值,如公式(1)。

$$A_{\text{Pb-212}} = A_{\text{Rn-220}}(1 - 2^{-t/T_{\text{Pb-212}}}) \quad (1)$$

其中: $A_{\text{Pb-212}}$ 为²¹²Pb活度,Bq; $A_{\text{Rn-220}}$ 为闪烁液中溶解的²²⁰Rn的活度,Bq; t 为通气时间,h;其中 $T_{\text{Pb-212}}$ 为²¹²Pb的半衰期10.6 h。通气时间 $t = 7T_{\text{Pb-212}}$, $A_{\text{Pb-212}} = 0.992A_{\text{Rn-220}}$ 即达到放射性平衡所需要的时间为74.2 h,约为3个昼夜。

当²²⁰Rn与其子体²¹²Pb的活度达到平衡时,加载²¹²Pb浓度达到最大值,所得闪烁液可用于提纯试验。对比提纯前后闪烁液的放射性活度浓度变化,就可以计算出闪烁液的纯化效率。实验中的闪烁液加载²¹²Pb的效率,即²¹²Pb的加载效率:

$$E = \frac{A_{\text{Pb-212液}}}{A_{\text{Rn-220源}}} \times 100\% \quad (2)$$

其中: $A_{\text{Pb-212液}}$ 为经过加载试验后测量得到的²¹²Pb活度,Bq; $A_{\text{Rn-220源}}$ 为²²⁰Rn源的活度,Bq;由于²¹²Pb的子体的半衰期都小于²¹²Pb,所以加载后²¹²Pb与其子体已达到放射性平衡。若液闪对 α 、 β 的探测效率为100%, $A_{\text{Pb-212液}}$ 与测得的闪烁液总计数率 $C_{\text{总}}$ ($C_{\text{总}}$ 单位为 min^{-1} ,包含3级子体)关系如公式(3):

$$A_{\text{Pb-212液}} = \frac{C_{\text{总}}}{3 \times 60} \quad (3)$$

综上所述,闪烁液对²¹²Pb的加载效率 E 可以表示为:

$$E = \frac{C_{\text{总}} V_{\text{实验}}}{180V_{\text{测量}}(1 - 2^{-t/T_{\text{Pb-212}}})A_{\text{Rn-220源}}} \times 100\% \quad (4)$$

其中 $V_{\text{实验}}$ 为被加载的闪烁液体积,mL; $V_{\text{测量}}$ 为测量时使用的闪烁液体积,mL。

2 实验装置

实验装置(见图1),使用气泵将空气鼓入²²⁰Rn源中,将氦源中的²²⁰Rn带出来,然后进入扩散器中被闪烁液吸收。通气一段时间后取10 mL

闪烁液样品放入液体闪烁谱仪(简称:液闪谱仪)中,测量α、β 总计数. 其中气泵为成都气海公司生产的 FML100. 8 型抽打气泵,其流量控制范围

170 ~ 650 mL/min;²²⁰Rn 源要求相对湿度大于 40%. 液闪谱仪为 Perkin Elmer 公司生产的 1220 Quantulus 型低本底液闪谱仪.

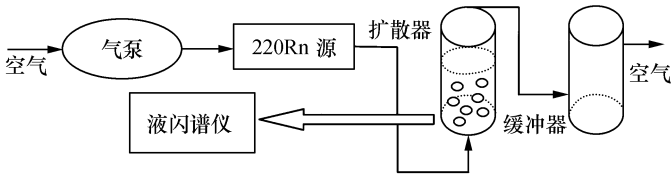


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 The experiment set-up schematic diagram

3 实验结果与分析

3.1 闪烁液本底

使用大亚湾中微子实验所用的闪烁液(大亚湾闪烁液)与 Perkin Elmer 公司配制的闪烁液(Optiphase HiSafe 3)做了本底对比测试,分别取 20 mL 闪烁液装入塑料和玻璃样品瓶中每个样品测量 150 min,测试结果如表 1,两种闪烁液的总计数率无显著差异,其中塑料瓶的计数率为 3.20 ± 0.25 cpm,玻璃瓶的计数率为 5.75 ± 0.22 min⁻¹. 因此实验中使用的大亚湾闪烁液与 Optiphase HiSafe 3 闪烁液一样,可以达到低本底闪烁液的测量要求.

表 1 本底测试数据

Table 1 The test data of background

闪烁液种类	样品容器	计数率/min ⁻¹
大亚湾闪烁液	玻璃	5.82 ± 0.23
	玻璃	5.36 ± 0.22
	塑料	3.32 ± 0.18
	塑料	2.87 ± 0.16
Optiphase HiSafe 3	玻璃	5.24 ± 0.17
	塑料	3.05 ± 0.25

3.2 加载效率与加载时间的关系

使用 75.1 Bq 的²²⁰Rn 源,进行加载实验,取 200 mL 大亚湾闪烁液样品放入 500 mL 玻璃烧杯中,气体流率为 390 mL/min. 为使气体中²²⁰Rn 尽可能被闪烁液吸收,产生的气泡尽量小,所以在橡胶管尾端戳密集小孔,堵塞橡胶管,使气泡从管壁冒出,这样得到的气泡最密集细小. 每隔 5 ~ 10 h 取 10 mL 样品测量 30 min,测量结束后再将测量样品倒回. 测量结果如图 2 所示.

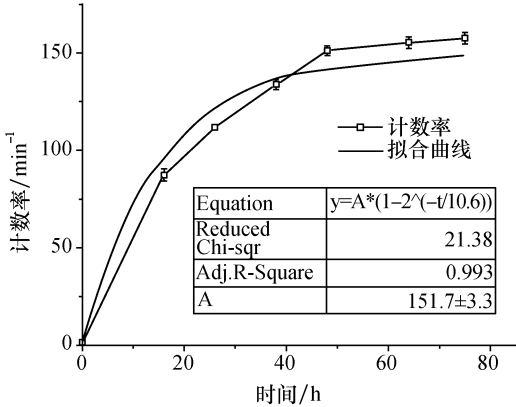


图 2 闪烁液总计数率随时间变化曲线

Fig. 2 The total count rate of liquid scintillator as the function of time

由拟合得到的平衡值为 151.7 ± 3.3 min⁻¹, 代入公式(4)可得闪烁液对²²⁰Rn 的加载效率为 $(22.20 \pm 0.33)\%$.

3.3 加载效率与流率的关系

为了测试气体流率对加载效率的影响,使用活度为 2 665 Bq 的²²⁰Rn 源,玻璃砂芯扩散器,加入 20 mL 闪烁液来做加载实验,使用 FML100. 8 型抽打气泵,调节气体流率,测量 10 mL 闪烁液得到不同流率下的²²⁰Rn 的加载效率如图 3 所示,很明显气体流率越大加载效率就越小,由于气体流率与气体在闪烁液中的时间相关,流率越大停留时间越短,吸收的 Rn 越少. 在流率为 170 mL/min 情况下相对于流率为 654 mL/min 情况,加载效率提高 60%.

3.4 加载效率与温度的关系

分别在 0 ℃、10 ℃、17 ℃、30 ℃三个温度下,调节气体流率为 680 ± 10 mL/min,实验装置与流率测试实验一样. 向闪烁液中通入²²⁰Rn,得到不

同温度下的²²⁰Rn 的加载效率如表 1 所示,当实验在温度 0 ~ 17 ℃,相对湿度大于 40% 范围内,加载效率的改变不大;当温度为 30 ℃时,由于相对湿度低于 40% 加载效率降低了一个量级,这主要是因为固体²²⁰Rn 源的射气系数明显降低了^[6].

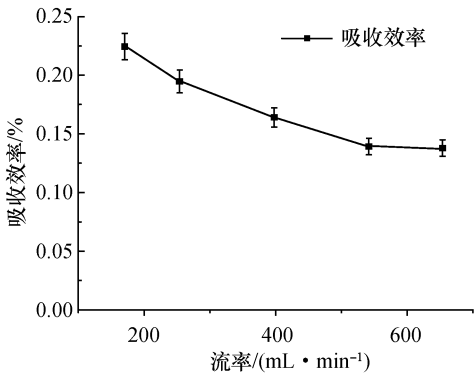


图 3 加载效率随流率变化曲线

Fig.3 The loading efficiency as a function of flow rate

表 2 温湿度对加载效率的影响

Table 2 The influence of temperature and humidity on loading efficiency		
温度/℃	相对湿度/%	加载效率/%
0 ± 1	>40	11.23 ± 0.23
10 ± 2	>40	11.21 ± 0.22
17 ± 1	>40	10.83 ± 0.16
30 ± 5	<40	1.75 ± 0.14

4 结 论

本工作验证了采用流气式²²⁰Rn 源向闪烁液

中加载放射性示踪核素²¹²Pb 的可行性. 对影响闪烁液加载²²⁰Rn 的因素进行研究,测量对比了不同温度和流率情况下闪烁液对²²⁰Rn 的加载效率. 结果表明,在 0 ~ 17 ℃温度范围内,加载效率变化不大,但是必须保证空气相对湿度 > 40%;流率对加载效率的影响较大,流率越小,加载效率越高. 加载效率除了与流率和温度有关外,还与闪烁液的液柱高度以及气泡的大小有关. 除此之外,采取增长液柱高度,减小气泡体积等措施,来增加含²²⁰Rn 气体与闪烁液的接触时间、接触面积,也可提高²¹²Pb 的加载效率.

参考文献:

[1] Li Yu-feng, Cao Jun, Wang Yifang, et al. Unambiguous determination of the neutrino mass hierarchy using reactor neutrinos[J]. Physical Review D, 2013, 88(1): 013008.

[2] Leung M. The Borexino Solar Neutrino Experiment: scintillator purification and surface contamination[M]. Princeton, New Jersey: Princeton University Press, 2006.

[3] 李小波. 低本底和液体闪烁体探测器技术研究[D]. 北京: 中国科学院高能物理研究所, 2011.

[4] 魏素遐. 液闪法测氡研究[J]. 辐射防护通讯, 1990(4): 12-14.

[5] 张智慧. 空气中氡及其子体的测量方法[M]. 北京: 原子能出版社, 1994.

[6] Qiu S. Calibration of a ²²⁰Rn flow-through source[J]. Radiation and environmental biophysics, 2006, 45(3): 215-220.