

# 现代液体闪烁谱仪

李黔高 编著  
杨守礼 审



科学出版社

## 内 容 简 介

本书较深入地介绍了微计算机液闪谱仪的最新进展,较系统地概述了这一仪器的基本组成和功能。

全书共七章,主要包括四方面的内容:(1)仪器的基本知识;(2)测量参数的正确选择;(3)影响仪器测量的干扰因素及其校正;(4)应用软件的开发及使用。

本书可供生物学、医学、农业、环境科学、化学、地质、水文、考古等方面应用液体闪烁谱仪的科技人员以及高等院校有关专业的师生参考。

## 现代液体闪烁谱仪

李黔高 编著

杨守礼 审

责任编辑 王爱琳

科学出版社出版

北京朝阳门内大街 137 号

中国科学院印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行 各地新华书店经售

\*

1989 年 1 月第 一 版 开本:787×1092 1/32

1989 年 1 月第一次印刷 印张:7 1/8

印数:001—4,260 字数:162,000

ISBN 7-03-000961-4/R·37

定 价: 5.30 元

## 前 言

现代液体闪烁谱仪即微计算机液闪谱仪,从某种角度来看,它是当代液体闪烁计数技术进展和应用的集中反映。

十几年来,国内先后出版了几本有关液闪测量技术的书籍。杨守礼等主编的《液体闪烁测量技术的进展与应用》(科学出版社,1987)一书尤为全面地反映了液体闪烁计数技术的全貌。限于其综合性,故涉及仪器功能方面的内容,尚难充分阐述,本书有幸对此作一补充。

本书力图求新、务实。根据目前实际使用情况,本书着重反映国外微计算机液闪谱仪近年来的发展。在此同时,用一定篇幅来简述这类仪器的基本组成和功能,以便初学者更系统地掌握这一技术。

为了叙述的方便,一般以 Packard 2000/2200 系列液闪谱仪为例,同时兼顾其它厂仪器的特点,力求较为全面、客观地反映各方面的进展。为便于纵观全貌,特附一总表(见附录1),以供参考。

第一、二两章概述了液闪谱仪的基本组成和功能;第三章讲述了测量参数的正确选择;第四、五、六三章阐明了影响液闪测量的各种干扰因素及其校正,着重阐述了淬灭这一最常见、最重要的干扰;第七章简述了各种应用软件的特点。

这本书在选材上受到《液体闪烁测量技术的进展与应用》一书各章作者的启发,以及林焯华、伍玉琪、汪洋先生和 Stan. J. De-Filippis 博士的支持,在此一并表示深切的谢意。

杨守礼同志对这本书的写作构思、题材取舍、章节安排等

均予以关心指导,并在百忙之中审阅了全稿,对不足之处给予补充,在此表示由衷的感谢。

鉴于作者阅历所限,谬误之处在所难免,恳请各位同志给予指正。

李 黔 高

1988 年 5 月 23 日

# 目 录

|                              |     |
|------------------------------|-----|
| <b>第一章 微计算机液闪谱仪的组成</b> ..... | 1   |
| 一、概述.....                    | 1   |
| 二、液闪计数器的基本组成.....            | 2   |
| 三、微计算机的基本组成.....             | 18  |
| 四、液闪计数器的样品系统.....            | 27  |
| 五、液闪计数器的性能指标.....            | 32  |
| <b>第二章 微计算机液闪谱仪的功能</b> ..... | 36  |
| 一、概述.....                    | 36  |
| 二、兼容能力.....                  | 37  |
| 三、判断能力.....                  | 51  |
| 四、诊断能力.....                  | 53  |
| <b>第三章 测量参数的选择</b> .....     | 57  |
| 一、概述.....                    | 57  |
| 二、参数选择的格式.....               | 58  |
| 三、参数的选择.....                 | 61  |
| 四、参数的预置.....                 | 78  |
| <b>第四章 淬灭及其校正</b> .....      | 81  |
| 一、概述.....                    | 81  |
| 二、淬灭的基本原理.....               | 82  |
| 三、淬灭指示参数.....                | 82  |
| 四、淬灭校正曲线的制作.....             | 107 |
| 五、效率示踪 DPM .....             | 114 |
| <b>第五章 多标记测量方法</b> .....     | 119 |
| 一、概述.....                    | 119 |

|                                     |            |
|-------------------------------------|------------|
| 二、双标记测量道的设置.....                    | 120        |
| 三、双标记测量道的选择.....                    | 128        |
| 四、三标记样品的测量.....                     | 131        |
| 五、衰变率的误差.....                       | 134        |
| 六、全谱 DPM .....                      | 142        |
| <b>第六章 影响测量的因素及其校正.....</b>         | <b>148</b> |
| 一、概述.....                           | 148        |
| 二、本底.....                           | 149        |
| 三、化学发光和光致发光.....                    | 155        |
| 四、静电.....                           | 162        |
| 五、壁效应.....                          | 165        |
| 六、闪烁液体积.....                        | 166        |
| 七、非均匀性.....                         | 167        |
| 八、颜色淬灭.....                         | 174        |
| 九、半衰期.....                          | 177        |
| 十、仪器性能的漂移.....                      | 177        |
| <b>第七章 应用软件.....</b>                | <b>182</b> |
| 一、概述.....                           | 182        |
| 二、直方图和积分程序.....                     | 183        |
| 三、放射免疫分析程序.....                     | 187        |
| 四、受体分析程序.....                       | 194        |
| <b>附录 1. 国外有代表性的微计算机液闪谱仪的性能 ...</b> | <b>202</b> |
| <b>附录 2. 有关术语汉英对照 .....</b>         | <b>208</b> |

# 第一章 微计算机液闪谱仪的组成

## 一、概 述

微计算机液闪谱仪系微型计算机和液体闪烁计数器联用的仪器。这是液闪计数器的最大变革。微计算机的使用使这一核素探测仪器的稳定性、可靠性、自动化程度和数据处理能力等各方面都有了重大的发展。

液闪计数器的基本组成有三方面作用：样品在闪烁液中引起闪烁，把核辐射能转换成光子；探测光子的光电倍增管和前置放大器把光信号转换成电信号并初步放大；对电信号进行甄别、再放大、分析，记录。

光电倍增管是一种实现光电转换的器件，它将来自闪烁液的光子转换成电子，最后形成电脉冲信号。这一信号经过符合电路和符合门（如设置在脉冲幅度分析器前称为线性门，设置在其后称为逻辑门）对噪声进行甄别，以大大提高信号/噪声比。信号经过相加，使其脉冲幅度叠加，既提高了信号/噪声比，增加了脉冲的分辨能力，又降低了产生光子的几何位置的影响。相加-符合之信号经过线性/对数放大后进入脉冲幅度分析器和定标器（或通过 ADC 模数转换器和谱分析器），对所需脉冲信号进行计数。

微计算机主要由中央处理单元（CPU）、存贮器（MEM）、输入/输出（I/O）接口电路以及外部设备和系统软件、应用软件组成。

中央处理单元系微计算机之核心部件，承担了整个测量

过程中的全部逻辑功能，从而发挥了中央控制作用。中央处理单元只能在程序控制下进行，所以它必须配有存放程序与数据的随机存贮器 (RAM) 和只读存贮器 (ROM)，另外还要给中央处理单元匹配输入/输出接口电路，以便和“外界”联系，这就组成了微计算机 (MC)。

微计算机要进行科学运算、数据处理和自动控制，必须能接受数据、指令和程序的输入、输出计算结果和控制命令等。这些均由键盘、打印机、显示器、外存等输入/输出设备来完成的。再加上电源、机架这些必不可少的硬件设备和系统软件、应用软件，就组成了完整的微计算机系统 (MCS)。

样品瓶、样品架、程序插卡和换样器等构成了液闪计数器的样品系统。它将保证样品全自动测量的实施和换样速度的提高。此外，样品瓶的质量将直接影响样品测量结果的准确度和重演性，也会影响液闪计数器性能的提高。

评价液闪计数器性能的指标主要有效率、本底、品质因子、分离度和稳定性等。这些指标之间都有一定的联系，但各有侧重。

品质因子中，优值 (SM) 是应用最广泛的。低水平测量中常见的相对优值因子 (F) 和灵敏度优值 (SM) 均考虑了样品体积这一因素。相对氚比 (S) 和相对优值因子则专用于  $^3\text{H}$  和  $^{14}\text{C}$  的测量。最小可测量 Y 考虑到测量时间和误差。分离度针对双标记测量，而稳定性着眼于仪器。

## 二、液闪计数器的基本组成

液闪计数器主要由光电倍增管、收光系统、符合电路、相加电路、放大器、符合门、脉冲幅度分析器、定标器(或模数转换器、谱分析器)组成。

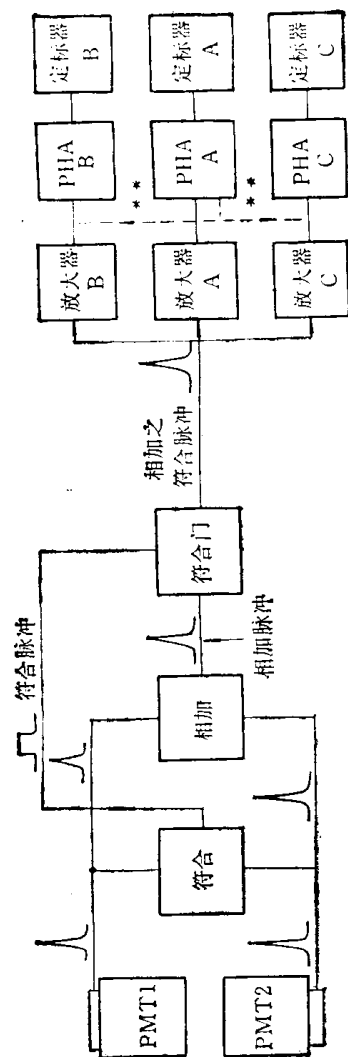


图 1.1 具有脉冲幅度分析器的液闪计数器的方框图

PMT: 光电倍增管; PHA: 脉冲幅度分析器;

\*\*\*: 对数放大的信号道(不需要放大器B和C)。

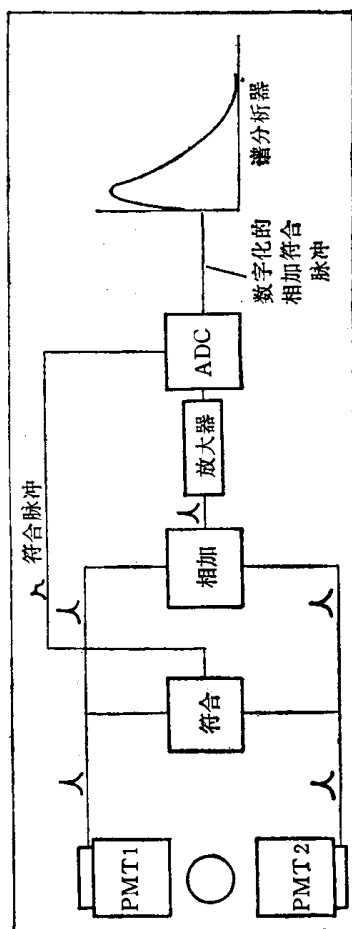


图 1.2 具有谱分析器的液闪计数器的方框图

PMT: 光电倍增管; ADC: 模数转换器。

具有脉冲幅度分析器的液闪计数器的方框图如图 1.1。

此外,谱分析器和 ADC 模数转换器亦可替代脉冲幅度分析器和定标器来实现谱分析。具有谱分析器的液闪计数器的方框图如图 1.2。

### (一) 光电倍增管

样品瓶中放射性样品的  $\beta$  粒子具有动能,可通过产热、离子化和介质激发等三种形式观察到。对液闪计数感兴趣的仅是溶液中分子的激发。

大约 15% 激发的溶剂分子衰变时伴随着极短波长的紫外光发射,因其波长太短以致无法被液闪计数器检测到<sup>[4]</sup>。大多数激发的溶剂分子通过能量转化释放出它们的激发能给邻近的分子,直到此能量传递到邻近的闪烁剂分子为止。这是一共振能量的传递过程。

当激发溶剂分子传递能量给闪烁剂分子时,干扰了闪烁剂分子的轨道电子云,使其处于受激状态。受激闪烁剂分子回复到基态时,发射出光子。

#### 1. 光电倍增管的工作原理

1936 年 Gworykin 等首先研制出光电倍增管这一液闪计数器的关键元件。

符合型液闪计数器均有两个光电倍增管,来收集在样品瓶内产生后传到两个光阴极上的光子。

光电倍增管的透明端面内表面上有一薄层表面势垒(功函数)低材料作为光阴极。样品瓶内的光子传到光阴极后,其能量被吸收,释放出光电子。光阴极后是一系列串联的联极(倍增极)和阳极,由于各电极间的正电压以及聚焦电极产生的电场加速,使光电子聚焦到第一联极上,结果产生更多的

电子,然后再逐级加速倍增,最后在阳极形成一个代表光子响应的电脉冲(图 1.3)。

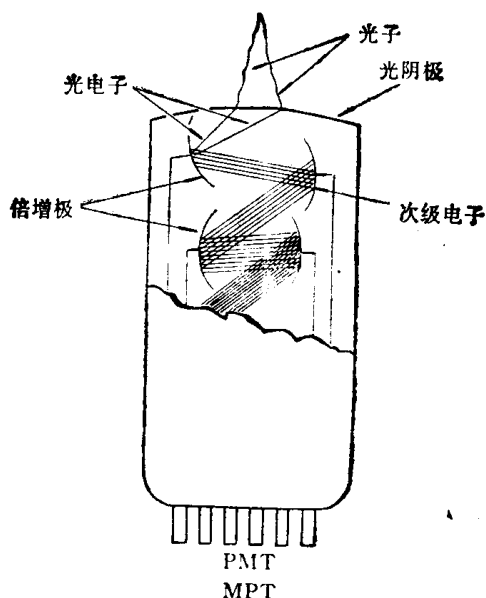


图 1.3 光电倍增管的工作原理

PMT: 光电倍增管; MPT: 倍增光电管。

光电倍增管的设计是线性放大的。所以,这一脉冲的幅度将直接正比于光阴极所检测到的光子数,故可实现正比计数。

## 2. 光电倍增管的组成

(1) 光阴极 光阴极的端面可用硼硅酸盐玻璃或石英制成。当被测光子的能量在紫外区时,宜用对紫外线有高透射性的石英,以免被硼硅酸盐玻璃所吸收。

光阴极上的薄层材料通常为钾-铯-锑 ( $K_2CsSb$ ),故又称为双碱光阴极光电倍增管。

(2) 倍增极 倍增极的结构基本上分为两种类型: 百叶

窗型(图 1.4)和直线聚焦型(图 1.5)。百叶窗型之响应时间较长,不利于脉冲形状的甄别。

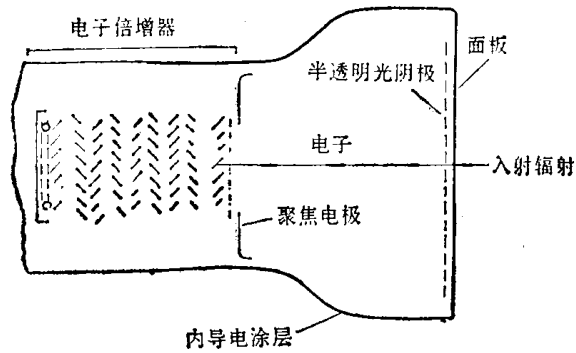


图 1.4 百叶窗型光电倍增管

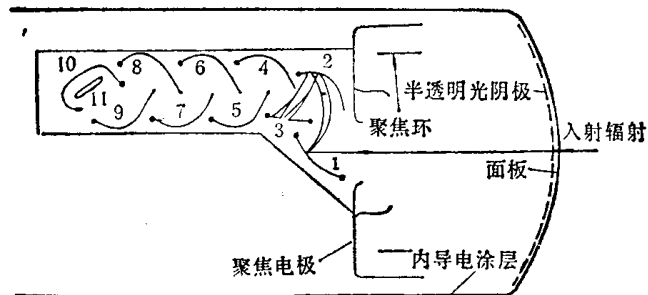


图 1.5 直线聚焦型光电倍增管

1-10 为倍增极(电子倍增器); 11 为阳极。

入射电子产生的次级电子数还与入射电子的动能有关。为此,增加光电倍增管的高压(即增加倍增极之间的电势差)将增加打在下<sup>2</sup>倍增极的电子的动能。光电倍增管的增压通常随高压的增加而增加。

(3) 阳极 阳极是收集极,所收集的电子将产生一个电压,这一电压通过一电容器又转变成为一个电压脉冲。它的幅度和收集在阳极上的电子数目成正比。

### 3. 光电倍增管的性能指标

(1) 阴极灵敏度 其定义为标准钨灯照射光阴极时, 每流明 (lm) 的光所产生的光电流, 单位是微安/流明 ( $\mu\text{A}/\text{lm}$ )。

(2) 量子效率 其定义为某一波长的光照射光阴极后打出的光电子数与入射光子数的比值。这一效率不仅是光子波长(能量)的函数, 而且也与光阴极端面的部位有关, 最灵敏区域在端面中央。

鉴于量子效率约为 30%, 致使许多低能放射性事件不能使每一光电倍增管上至少得到一个光子与其相互作用, 因而无法检测, 即小于低阈的事件不能被检测。与此同理,  $^3\text{H}$  的检测效率不能达到 100%。

(3) 光谱响应 其定义为光阴极微分灵敏度或量子效率与波长的关系。它取决于光阴极的组分, 要求对闪烁体发射之蓝光区必须有足够的灵敏度。

(4) 倍增系数  $M$  其定义为阴极发射的一个光电子在阳极所收集到的电子总数, 即光电倍增管的增益。

$$M = \delta^n \quad (1.1)$$

$\delta$ ——联极倍增系数;

$n$ ——联极数。

(5) 阴极暗电流 其定义为光阴极在不曝光(无辐射)的情况下自发发射热电子所产生的平均电流 (nA), 它反映仪器的噪声本底。

(6) 噪声能当量 其定义为噪声脉冲幅度所对应的射线能量 (keV)。

(7) 阳极脉冲上升时间 在闪光照射下从阳极脉冲前沿峰值 10% 上升至峰值 90% 所需时间 (ns)。

表 1.1 光电倍

| 管<br>型<br>号 | 管<br>直<br>径<br><br>(mm) | 管<br>长<br>度<br><br>(mm) | 联极特性  |      |    | 阴 极   |             |                      |
|-------------|-------------------------|-------------------------|-------|------|----|-------|-------------|----------------------|
|             |                         |                         | 材料    | 结构   | 级数 | 材料    | 窗<br>形<br>状 | 有效<br>直<br>径<br>(mm) |
| GDB52*LDQ*  | 51±1                    | 126±2                   | SbKCs | 百叶窗  | 13 | SbKCs | 平面          | 44                   |
| EMI9750QB** | 51                      | 112±3                   | CsSb  | 百叶窗  | 10 | SbKCs | 平面          | 45                   |
| EMI9635QB   | 51                      | 140±3                   | CsSb  | 百叶窗  | 13 | SbKCs | 平面          | 45                   |
| R331-05     | 2"                      |                         |       | 直线聚焦 | 12 | SbKCs | 球面          |                      |
| RCA4501/V3  | 2"                      | 127±2                   | BeO   | 直线聚焦 | 12 | SbKCs | 球面          |                      |
| RCA4501/V4  | 2"                      | 127±2                   | BeO   | 直线聚焦 | 12 | SbKCs | 球面          |                      |

\*) GDB52 光电倍增管是用色温为 2854K 的标准光源, QB-2 型蓝色滤光灵敏度的。  
\*\*) EMI 9750 的阳极灵敏度为 500 A/lm。

(8) 阳极脉冲半宽度 为对应阳极脉冲半宽度的时间 (ns)。

(9) 渡越时间 从闪光到光阴极至可测到输出脉冲所需之时间 (ns)。

4. 影响光电倍增管性能的因素

(1) 温度 在 300—500nm 范围内, 温度每增加 1℃, 光谱响应降低 1%<sup>[1]</sup>。其原因是由于温度的升高, 光阴极材料的电阻增大。

此外, 随着温度的升高, 阴极发射的热电子增加, 引起暗电流的猛增, 导致仪器本底计数增加。

增管的性能

| 特 性     |                     |                                       |                     | 阳极灵敏度(5 000 A/lm) |                      |                | 阳极脉冲上升时间<br>(ns) | 阳极脉冲半宽度<br>(ns) | 渡越时间<br>(ns) |
|---------|---------------------|---------------------------------------|---------------------|-------------------|----------------------|----------------|------------------|-----------------|--------------|
| 光谱响应    | 量子效率(%)<br>(400 nm) | 灵敏度                                   |                     | 电 压<br>(V)        | 暗电流<br>(nA)          | 噪声能当量<br>(keV) |                  |                 |              |
|         |                     | 白光<br>( $\mu$ A/lm)                   | 蓝光<br>( $\mu$ A/lm) |                   |                      |                |                  |                 |              |
| 300—600 |                     | 50                                    | 15                  | 1 500             | $6 \times 10^{-9}$   | 0.1            | 30               |                 | 40           |
| 285—600 | 27                  | 75                                    | 10                  | 1 200             | $2 \times 10^{-9}$   | 100 cps        | 8                | 15              | 50           |
| 285—600 | 27                  | 75                                    | 10                  | 1 300             | $7.5 \times 10^{-9}$ |                | 10               | 25              | 75           |
| 300—650 | 25                  | 80                                    | 10.5                | 1 500             |                      |                |                  |                 | 48           |
| 200—650 | 31                  | $^3\text{H}$ 的最小效率为 $58\%E^2/B = 155$ |                     |                   |                      |                |                  |                 |              |
| 200—650 | 31                  | $^3\text{H}$ 的最小效率为 $59\%E^2/B = 205$ |                     |                   |                      |                |                  |                 |              |

光片测蓝光灵敏度的。EMI 光电倍增管是用 Corning CS-5-58 滤光片测蓝

- (2) 磁场和电场 外部磁场和电场会引起光电倍增管内电子增殖和收集的过程,从而改变其增益。为保证光电倍增管性能的稳定性和重复性,光电倍增管磁屏蔽(用来减少外部磁场影响)的高导磁率合金应当接地,以保持与光阴极相同的电势。
- (3) 其它因素 强烈的振动或冲击易造成光电倍增管中元件的短路;影响电子的聚焦和倍增;降低管内真空度。

5. 常用光电倍增管

常用光电倍增管的型号、性能如表 1.1 所示。

## (二) 高压

为保持光电倍增管阴极至阳极间的电压，高压装置将向两光电倍增管提供几百伏至两千伏的高压。这一正电位差可防止负高压时光阴极与地(光电倍增管外套)之间的高电位差所引起的噪声。此外，可调节左右光电倍增管的高压来改变各自的增益，使两光电倍增管性能更加匹配。

## (三) 光收集系统

光收集系统包括样品瓶和样品室。

样品室设计的原则之一是两光电倍增管相互之间能直接观察到的面积最小，以减少串光。样品室一般采用高反射系数的材料以减少其对光子的吸收。此外，还必须采用含放射性少的材料和尽量减少所用透明介质的体积，以减少放射性和切伦科夫效应产生的本底。常用的材料有黄铜、紫铜、聚四氟乙烯。亦可喷涂二氧化钛 ( $\text{TiO}_2$ )、氧化铝 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、铝和聚四氟乙烯。

不同的光收集系统会导致不同的  $\beta$  谱<sup>[3]</sup>，良好的光收集系统可减少  $^3\text{H}$  的低能粒子的发光损失，从而增加  $^3\text{H}$  的计数效率。此外，它还可减少由于样品体积的变化和计数瓶引起的误差。

综上所述：光收集系统的作用在于减少光子传输过程中的损失，达到既提高探测效率又减少本底的效果。

## (四) 符合电路

1953 年 Hiebert 和 Watts 首先提出符合计数法。液闪计数器的符合电路框图如图 1.6 所示。

当两个光电倍增管的信号在符合分辨时间内到达时，符

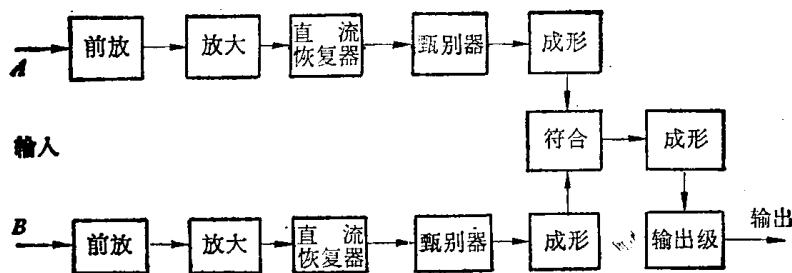


图 1.6 符合电路框图

合电路才有信号输出。样品中一次  $\beta$  衰变产生的若干光子系同一事件的产物,可同时到达两光电倍增管,必定同时产生光电子而被记录下来。光电倍增管的噪声是随机的、互不相关的,能在符合分辨时间内同时达到的偶然符合计数率为  $A$ 。

$$A = 2\tau N_1 N_2 \quad (1.2)$$

$A$ ——噪声偶然符合计数率 (cpm);

$\tau$ ——符合电路的分辨时间 (ns);

$N_1, N_2$ ——左、右光电倍增管的噪声计数率 (cpm)。

通过符合电路,光电倍增管之噪声水平可下降  $10^4$ — $10^5$  数量级,从而大大提高信号/噪声比。符合电路亦可使光电倍增管在较高的电压下工作,使其具有较高的增益。

符合电路的分辨时间一般为 20—50ns。符合分辨时间的缩短能降低光电倍增管的噪声。由于光电倍增管产生的脉冲信号有 10—30ns 的上升时间,为此符合分辨时间的缩短必然会降低探测效率,尤其对  $^3\text{H}$  的影响更大。总之,符合分辨时间太短则要影响探测效率,太长则不足以抑制噪声。所以,符合分辨时间的大小取决于设计者的判断和光电倍增管的性能。