

CNIC-01250

IAE-0185

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY REPORT

小立体角 α 核素活度测量装置的研制

RADIOACTIVITY MEASUREMENT OF α -NUCLIDES
BY SMALL SOLID ANGLE METHOD

(In Chinese)



中国核情报中心
原子能出版社

China Nuclear Information Centre
Atomic Energy Press

图书在版编目 (CIP) 数据

中国核科技报告 CNIC-01250 IAE-0185: 小立体角 α 核素活度测量装置的研制/汪建清等著. —北京: 原子能出版社, 1998. 6

ISBN 7-5022-1835-1

I. 中… II. 汪… III. 核技术-研究报告-中国 IV. TL-

2

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (98) 第 11186 号

小立体角 α 核素活度测量装置的研制

汪建清等著

©原子能出版社, 1998

原子能出版社出版发行

责任编辑: 武洁

社址: 北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码: 100037

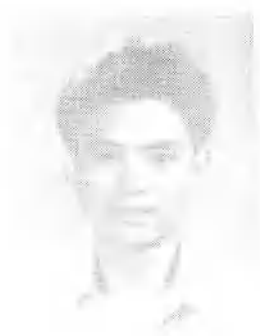
中国核科技报告编辑部排版

核科学技术情报研究所印刷

开本 787×1092 1/16·印张 1 1/2·字数 13 千字

1998 年 6 月北京第一版·1998 年 6 月北京第一次印刷

定价: 5.00 元



江建清：助理研究员，1989年毕业于四川大学物理系原子核物理专业，获理学学士学位，毕业后一直在中国原子能科学研究院放射性计量测试部从事放射性计量标准的研究工作。

WANG Jianqing: Engineer. Graduated from Physics Department, Sichuan University, obtained Bachelor of Science in 1989. Have being engaged in research in the field of radiometrology standard at Radiometrology Division, China Institute of Atomic Energy.

CNIC-01250

IAE-0185

小立体角 α 核素活度测量装置的研制

汪建清 李小弟 陈细林 王国军

(中国原子能科学研究院, 北京, 102413)

摘 要

在反应堆退役、核废物处理、去污以及环境监测中, 都需要对 α 放射性核素进行准确地测量, 因此 α 放射性活度计量是电离辐射计量很重要的一个方面。小立体角法测量 α 核素活度的方法是很早发展起来的比较简单的方法, 具有很高的测量准确度, 要求的测量设备简单。介绍了所研制的装置的技术性能以及与屏栅电离室双边比对的结果。在 1996 年全国比对中, 装置对 ^{241}Am 的测量结果与比对结果平均值偏差在 0.2% 以内。

Radioactivity Measurement of α -nuclides by Small Solid Angle Method

WANG Jianqing LI Xiaodi CHEN Xilin WANG Guojun
(China Institute of Atomic Energy, Beijing, 102413)

ABSTRACT

Counting under a precise small solid angle is one of the oldest methods developed for the radioactivities measurement of α -nuclides. The principle of solid angle counting is very simple and the accuracy is much better. The advantages of an equipment developed by the authors, in which a large area Au-Si surface barrier detector (450 mm^2) is used, are introduced. Some comparisons on measurement results have been obtained with the gridded ionization chamber, and a national comparison result of ^{241}Am which deviated from the average result is less than 0.2% are presented in detail.

1 基本原理

小立体角法是很早就发展起来的一种核素活度测量方法。原理上很简单,假设源各向同性地发射出 α 粒子,测量仪器的探测效率已知,通过记录一定立体角内的 α 粒子便能计算出源的活度。设源的活度为 A ,每次衰变放出一个 α 粒子,测得的计数率为 n ,本底计数率为 n_b ,则净计数率为:

$$n_0 = (n - n_b) = \frac{\Omega}{4\pi} \cdot A \quad (1)$$

n_0 为源的净计数率,设 $f_s = \Omega/4\pi$, 为准直光阑对源所张的相对立体角; 则

$$A = \frac{n - n_b}{f_s} \quad (2)$$

较早采用的探测器有 ZnS 荧光屏、CsI 薄闪烁体和正比计数器等^[1,2], 这些探测器的能量分辨率不高,而随着半导体探测器技术的发展,目前广泛采用的金硅面垒半导体探测器具有较高的能量分辨率,可以很好地区分样品中各种 α 放射性核素的能谱,另外,它对于 α 粒子有接近 100% 的探测效率。

图 1 为装置框图。该装置由真空系统 (2XZ-4 型真空泵)、小立体角探头 (自制)、电荷灵敏前置放大器 (2003T)、谱仪放大器 (2022)、4096 道 ADC (AD4096)、微机多道接口 (DD9000) 及微机 (80486/33) 组成。

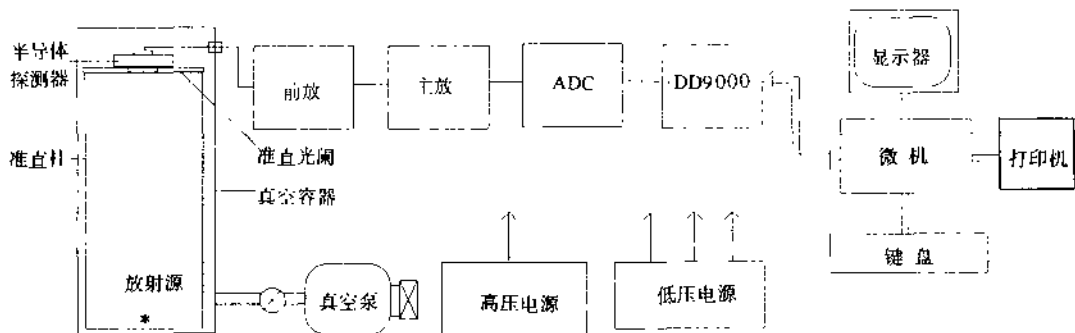


图 1 小立体角 α 核素活度测量装置框图

Fig. 1 The diagram of the small solid angle counting assembly

1.1 探头设计

如图 1 所示,小立体角探头主要由准直柱、准直光阑、半导体探测器和真空容器所组成。其中,准直柱的高度 h 为 150 mm、200 mm 可调,最大公差为 ± 0.01 mm,准直光阑的直径 Φ 为 10 mm、15 mm、20 mm 可调,最大公差为 ± 0.01 mm,准直光阑的厚度为 1.2 mm。所采用的探测器面积为 450 mm² 或 500 mm² 的半导体探测器。表 1 列出所使用的探测器的技术性能指标。

表 1 探测器的技术性能指标

Table 1 The advantages of the detectors

类 型	面 积 mm ²	耗尽层厚度 μm	偏压 V	能量分辨率 keV	备 注
GM1101	450	100	<300	<20	表中所示指标为出厂指标, 测试条件为: ²⁴¹ Am 5.486 MeV α 源, 工作偏压分别为 120V 和 200V, 温度 20±5℃, 相对湿度<65%。
GM1101	500	100	<300	<22	

如图 2 所示, h 为源距准直光阑的距离, R 为准直光阑的半径, r 为源活性区半径, 则活性区半径为 r 的源对半径为 R 的准直光阑所张的有效立体角的计算, 采用文献[3]给出的公式:

$$\Omega = 2\pi \left\{ 1 - \frac{1}{(1+\beta)^{1/2}} - \frac{3}{8} \frac{\beta\gamma}{(1+\beta)^{5/2}} - \gamma^2 \left[-\frac{5}{16} \frac{\beta}{(1+\beta)^{1/2}} + \frac{35}{64} \frac{\beta^2}{(1+\beta)^{3/2}} \right] - \gamma^3 \left[\frac{35}{128} \frac{\beta}{(1+\beta)^{3/2}} - \frac{315}{256} \frac{\beta^2}{(1+\beta)^{5/2}} + \frac{1155}{1024} \frac{\beta^3}{(1+\beta)^{7/2}} \right] \right\} \quad (3)$$

式中, $\beta = R^2/h^2$, $\gamma = r^2/h^2$ 。根据公式 (3) 当源可视为点源, 即源的活性区的大小 $r \rightarrow 0$ 时, 则:

$$\Omega = 2\pi(1 - h/\sqrt{h^2 + R^2}) \quad (4)$$

根据误差传递的理论, 由公式 (4) 可得:

$$\frac{d\Omega}{\Omega} = \frac{hR^2}{(h^2 + R^2)^{3/2} - h(h^2 + R^2)} \left[\left(\frac{dh}{h} \right)^2 + \left(\frac{dR}{R} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (5)$$

式中, $d\Omega/\Omega$ 为立体角相对不确定度, dR/R 为准直光阑半径的相对不确定度, dh/h 为源距准直光阑的距离的相对不确定度。由式 (5) 可知, 尽量减小 dR/R 和 dh/h , 可提高立体角的准确度。由于 dh 和 dR 受加工工艺的限制 (分别为 0.01 mm 和 0.005 mm), 因此, 在允许的条件下, 尽量增大源距准直光阑的距离 h 和准直光阑的几何尺寸 R , 可减小其相对不确定度分量。为此, 可牺牲一定的能量分辨率而选用较大面积的 Au-Si 面垒半导体探测器。

表 2 给出了在不同 h 和直径 Φ 的条件下, 准直光阑对源所张的相对立体角 $\Omega/4\pi$ 及相对不确定度。

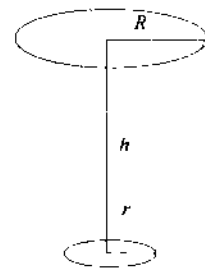


图 2 准直光阑
对源所张的立体角

Fig. 2 Solid angle
subtended by the aperture

表 2 探头在各种几何条件下的相对立体角 ($\times 10^{-4}$) 及不确定度

Table 2 The relative solid angle of the detector and its uncertainties

光阑直径 Φ /mm		20±0.01	15±0.01	10±0.01
h /mm	150±0.01	11.074 (±0.12%)	6.238 (±0.15%)	2.775 (±0.21%)
	200±0.01	6.238 (±0.11%)	3.512 (±0.14%)	1.562 (±0.19%)
	250±0.01	3.995 (±0.11%)	2.248 (±0.14%)	0.9998 (±0.17%)

1.2 壁散射的影响

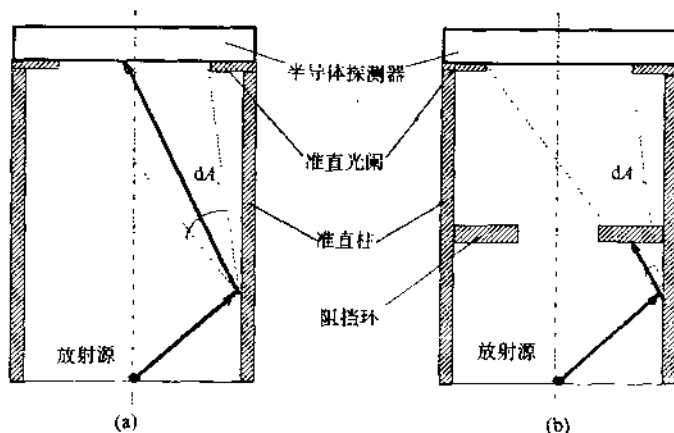


图 3 α 壁散射及减小壁散射影响的方法

Fig. 3 α Scattering from the wall of the cylindrical chamber and the method used to deduce the scattering

如图 3 (a) 所示, 当 α 粒子与准直柱材料的原子核发生弹性碰撞或卢瑟福散射而损失部分能量, 散射到 dA 立体角内的 α 粒子可能通过准直光阑而被探测器记录, 在能谱上表现为在低能方向存在一个较长的尾巴, 对 α 发射率的测量有一定的影响。为了减小壁散射的影响, 可以在放射性样品与准直光阑之间加阻挡环的办法, 使从准直柱上散射出来的 α 粒子被阻挡环吸收, 从而减小壁散射的影响。如图 3 (b) 所示, 为简化起见, 示意图中只画出一级阻挡环。

通过实验方法测量了壁散射对 α 发射率测量的相对影响。方法是, 首先在源与准直光阑之间不加阻挡环, 然后逐级加上阻挡环, 分别用 ^{241}Am 源测得相应的能谱, 计算小于 ^{241}Am α 粒子最小能量 ($E=5.387\text{ MeV}$) 围内的积分面积, 除以全峰面积来估算壁散射的影响, 实验结果列于表 3。

表 3 壁散射的相对影响

Table 3 The influence of the scattering from the wall of the stainless steel chamber

阻挡环	活时间/s	峰总面积/计数	低能区面积/计数	相对影响/%
不加	10000	26258	146	0.56
一级	10000	26013	57	0.22
二级	10642	27583	23	0.08
三级	14834	38432	24	0.06

由实验结果可见, 不加阻挡环时, 壁散射的影响较大, 当加两级阻挡环时, 壁散射的影响降至 0.08%, 加三级阻挡环壁散射的影响为 0.06%, 再加三级以上的阻挡环已无实际意义。因此, 该装置采用三级阻挡环的结构。

1.4 边缘散射的影响

如图 4 (a) 所示, 由于准直光阑具有一定的厚度, α 粒子与准直光阑边缘发生弹性散射或卢瑟福散射, 称之为边缘散射。可能由于散射角度的影响, 使探测器漏记部分 α 粒子, 而

影响发射率的测量。为此,在设计准直光阑时,采用如图 4 (b) 所示的结构,可减小边缘散射的影响。

2 装置的主要技术性能

2.1 能量分辨率

影响能量分辨率的主要因素有三个方

- (1) 产生载流子的数目和能量损失的统计涨落;
- (2) 探测器和电子学系统的噪声;
- (3) 探测器窗的厚度和放射源的厚度的影响。

对半导体探测器而言,产生载流子数目和能量损失统计涨落引起的谱线展宽为:

$$\Delta E_m = 2.36 \sqrt{wEF} \quad (6)$$

式中, w 为平均电离能, E 为带电粒子损失在探测器中的能量, F 为法诺因子。对于 5 MeV 的 α 粒子, ΔE_m 约为 3 keV。

探测器的噪声主要由反向漏电流的涨落造成,反向漏电流随偏压增加而增加,因而与反向漏电流有关的噪声电压也随偏压增加而增大,电子学系统的噪声主要是电荷灵敏前置放大器的噪声,与外接电容有关,而半导体探测器的结电容也就是电荷灵敏前置放大器的外接电容,它随偏压增加而减小,因此,电子学系统的噪声随偏压增加而减小。以上两种因素形成的噪声电压随偏压的变化存在一个极小值。所以在实际工作中,应当选取一个最佳偏压值作为工作电压。

用 ^{241}Am (活性区直径小于 3 mm) 电镀源对面积为 450 mm^2 的探测器作如下实验,测量时间为 3000 s,相对立体角为: 1.1074×10^{-3} 。表 4 给出了装置在各种工作电压下的实验结果。从表 4 可见,对面积为 450 mm^2 的半导体探测器,工作电压选取在 120 V 左右可获得最佳能量分辨率 (17.8 keV)。

表 4 工作电压的选取 (GM1101-450-100-20)

Table 4 Selection of the voltage for the GM1101-450-100-20 detector

工作电压 V	实时间 s	活时间 s	峰位 道	峰面积 计数	半高宽 道	能量分辨率 keV
60	5000	4999	2387	12689	13.57	29.18
90	5000	4999	2427	12992	9.16	19.69
100	5000	4999	2433	12997	8.84	19.01
120	5000	4999	2452	13005	8.26	17.76
130	5000	4999	2459	13037	9.17	19.72
150	5000	4999	2464	12896	9.48	20.38

2.2 能量线性

系统的能量刻度可采用两种方法进行。

- (1) 采用 ^{241}Am 和精密脉冲产生器 (线性好于 1%) 对系统进行能量刻度。探测器偏压

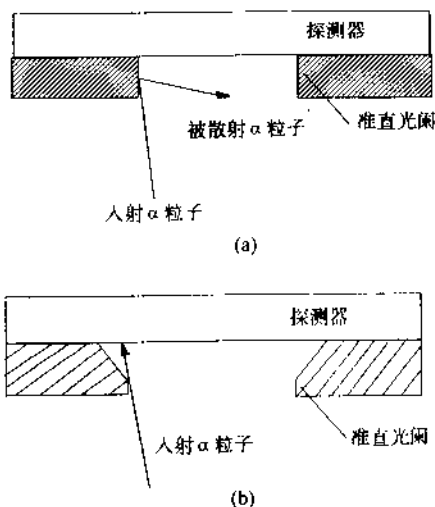


图 4 准直光阑边缘散射的影响和减小边缘散射影响的方法

Fig. 4 The scattering at the edge of the diaphragm

选取为 120 V，调节主放粗增益为 100，细调增益为 0.70，成形时间 1 μ s，调节好极零，使得 ^{241}Am 的峰位落在合适的道址。测得 ^{241}Am 的 α 能谱，5.496 MeV 的 α 粒子的峰位位于 2820 道。调节脉冲产生器的“幅度”旋钮为 5.486，然后调节“标准”旋钮使得产生器的脉冲的峰位位于 2820 道，这样，产生器幅度旋钮的 5.486 等效于 5.486 MeV 的 α 粒子，2.00 等效于 2.00 MeV 的 α 粒子，依此类推。

(2) 用 ^{241}Cm ， ^{241}Am ， ^{239}Pu 混合源作能量刻度。实验条件同上，测量混合源的能谱。

表 5 装置的能量刻度

Table 5 Energy calibration of the standard

刻度方法		^{239}Pu		^{241}Am		^{244}Cm	
混合源	能量/MeV	5.155	5.443	5.486	5.763	5.805	
	峰位/ch	2644	2796	2820	2965	2986	
精密脉冲产生器	幅度	2.00	3.00	4.00	5.00	6.00	7.50
	峰位/ch	985	1510	2037	2564	3090	3879

对实验结果采用最小二乘法拟合直线：

$$E = 129.35 \text{ keV} + 1.9000 \text{ keV/ch} \cdot \text{CH}$$

$$\gamma = 0.99999$$

式中， E 为 α 粒子的能量，CH 为相应的道址， γ 为线性相关系数。根据实验结果和拟合直线计算可得，装置的积分非线性 INL 小于 0.1%，微分非线性 DNL 小于 1%。图 5 为装置在 120 V 工作电压下测得的 ^{244}Cm ， ^{241}Am ， ^{239}Pu 混合源的能谱。

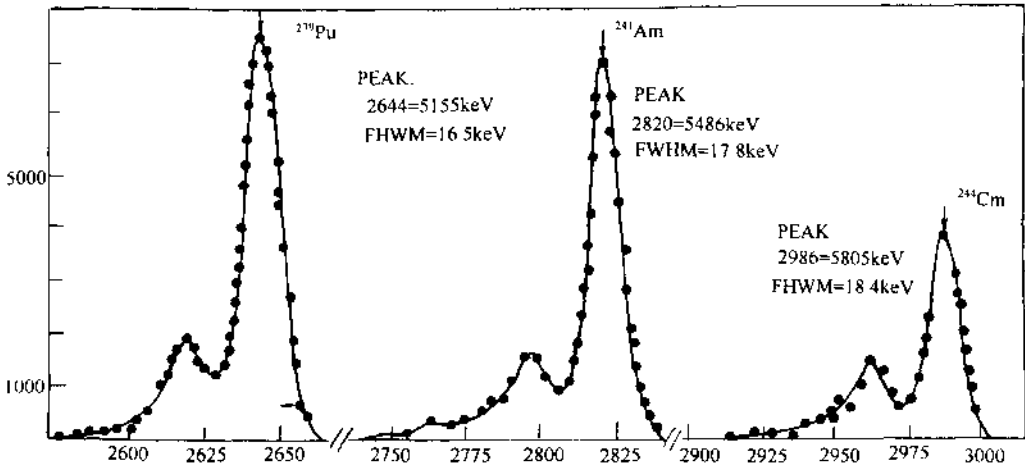


图 5 ^{244}Cm ， ^{241}Am 和 ^{239}Pu 混合源的能谱

Fig. 5 Spectrum of mixed source (^{244}Cm ， ^{241}Am and ^{239}Pu)

3 实验结果

3.1 装置本底

对装置本底进行长期监测, 得到装置的积分本底为 0.01 计数/秒的水平。

3.2 装置的长期稳定性

1993 年底完成探头加工及调试工作, 并对装置作了如上所述的性能测试, 之后用 ^{241}Am 电镀源和 ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm 混合源对装置的长期稳定性进行了监测, 结果列于表 6。

表 6 装置的稳定性监测结果

Table 6 The long stability of the standard

测量日期	^{241}Am 电镀源/Bq	混合源/Bq		
	^{241}Am	^{239}Pu	^{241}Am	^{244}Cm
1993.11.16	2338.2±38.2	1842.8±27.5	1354.2±23.7	957.9±19.8
1993.12.09		1843.7±26.3	1353.8±21.2	955.7±17.4
1993.12.24	2340.1±24.6			
1994.01.18	2337.3±28.6	1846.8±25.7	1352.9±20.6	853.8±16.4
1994.02.23	2337.7±30.7	1845.3±28.5	1353.1±24.6	953.4±20.1
1994.05.26	2336.1±29.1	1839.5±28.7	1351.3±22.3	940.5±18.5
1994.08.17	2335.7±27.4	1835.4±32.1	1350.7±29.5	930.8±21.7
1994.09.14	2336.6±26.4			
1995.03.22	2334.7±27.9	1832.6±34.6	1348.9±32.1	905.4±25.3
1995.05.16	2334.8±23.8	1834.8±28.5	1349.3±24.6	907.8±25.3
1995.09.27	2332.4±24.5	1841.7±27.6	1348.6±23.4	896.3±18.4
1995.12.18	2330.6±34.6	1834.4±50.0	1348.1±42.8	887.9±34.6
1996.01.19	2332.0±33.6	1845.0±28.1	1347.9±24.3	887.3±19.2

分别对 ^{241}Am , ^{239}Pu , ^{244}Cm 的结果作半衰期校正后, 计算得到装置的稳定性小于 0.1%。

3.3 双边比对结果

装置建成后, 于 1996 年 1 月 19 日用 ^{241}Am 电镀源和 ^{244}Cm , ^{241}Am , ^{239}Pu 混合源与中国原子能科学研究所的屏栅电离室进行了双边比对测量, 装置的工作条件是相对立体角为 1.1074×10^{-4} , 探测器工作电压为 120 V, 结果列于表 7。

表 7 与屏栅电离室双边比对结果

Table 7 Comparison results of the developed assembly and grid ionization chamber

比 对 源	^{241}Am 源	混 合 源		
核 素	^{241}Am	^{239}Pu	^{241}Am	^{244}Cm
本 装 置 /Bq	2332.0±33.6	1845.0±28.1	1347.9±24.3	887.3±19.2
屏栅电离室 /Bq	2328.7±69.8	1854.2±55.6	1345.7±40.3	881.6±26.5
偏 差	0.14%	-0.47%	0.31%	0.64%

3.4 全国比对

1996 年初, 中国计量科学研究所和中国原子能科学研究所同位素研究所共同主办了“全国放射性核素 ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{60}Co 活度测量比对”活动。由化学制源的研究人员用比对用

的²⁴¹Am 弱溶液制成聚酯薄膜源。制源的方法是首先将聚酯膜作成需要的大小，洗净后凉干，喷涂约直径 5 mm 的硅胶后在需要滴源的范围内滴少许润湿剂，使源溶液具有较好的亲水性，所形成的源斑能均匀铺开，阴干后套于预先制好的源支架上。实验中制成 3 个不同活度的聚酯膜源，采用该装置进行了仔细测量，工作条件是探测器工作电压 120V，相对立体角为 1.1074×10^{-3} ，测量结果列于表 8。实验结果表明，这种制源方法简单，没有明显的自吸收，有关制源方法参考《实用电离辐射计量学》^[4]。表 9 给出了参加比对各实验室的结果。

表 8 国内比对用²⁴¹Am 溶液比活度的实验结果

Table 8 Results of the ²⁴¹Am solution from the national comparison

编号	源重量 mg	测量结果 Bq	比活度 Bq · mg ⁻¹	不确定度 σ	平均比活度 Bq · mg ⁻¹
8 #	29.07	24311	836.3	0.33%	835.6 ± 2.76
13 #	22.06	18428	835.4	0.31%	
14 #	42.19	35233	835.1	0.25%	

表 9 ²⁴¹Am 弱溶液全国比对结果

Table 9 The results of the ²⁴¹Am solution from the deferent laboratories

序 号	实验室	测量装置	比活度 Bq · mg ⁻¹	合成不确定度/%	残 差 Bq · mg ⁻¹
1	中国计量科学研究院	4πα (PC) · γ	835.6	0.24	1.5
2	原子能院同位素所	4πα (LS) · γ	837.3	0.17	0.2
3	中国工程物理研究院	4πα · γ	833.9	0.29	2.2
4	清华大学核能院	液闪谱仪	838	0.9	0.9
		多道 γ 谱仪	834	0.7	3.1
		α 谱仪	844	0.7	6.9
5	核工业放射性计量中心	小立体角	835.6	0.33	1.5
算术平均值/Bq · mg ⁻¹			837.1 ± 3.75 (0.45%)		

4 不确定度分析

小立体角法测量 α 平面源的活度，最主要的修正是立体角校正，其次是散射以及源自吸收的影响。表 10 列出了装置的主要不确定度及来源。

表 10 装置的主要不确定度

Table 10 The main uncertainties of the standard

来 源	大 小
立体角的不确定度	<0.12%
自吸收的影响	<0.01%
壁散射的影响	<0.06%
边缘散射的影响	<0.01%
本底	<0.01%
统计涨落	<0.30%
合成不确定度	0.33%

5 结论

经实验验证, 所建立的小立体角 α 核素活度测量装置, 具有较高的能量分辨率 (17.8 keV), 可以同时测量样品中不同能量 α 核素的活度, 对参加比对所制的不同活度的 ^{241}Am 样品的测量的结果表明, 化学制源采用的方法简单, 且源的自吸收小, 所测得的结果与比对结果平均值的偏差小于 0.2%, 验证了对装置不确定度分析的结果。

该装置研制过程中, 得到了喻以光同志的指导, 在此致射。

参考文献

- 1 Bambynek W B. *Precise Solid Angle Counting*. Nucl. Instrum. Meth. 1966, 39: 373
- 2 Kathleen M. Glover. *Preparation and Calibration of ALPHA Active Sources of the Actinide Elements*. Nucl. Instrum. Meth. 1966, 39: 461
- 3 复旦大学, 清华大学, 北京大学合编. *原子核物理实验方法*. 北京: 原子能出版社, 1985
- 4 韩奎初, 丁声耀主编. *实用电离辐射计量学*, 原子能出版社. 北京: 1995

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

This report is subject to copyright. All rights are reserved. Submission of a report for publication implies the transfer of the exclusive publication right from the author(s) to the publisher. No part of this publication, except abstract, may be reproduced, stored in data banks or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher, China Nuclear Information Centre, and/or Atomic Energy Press. Violations fall under the prosecution act of the Copyright Law of China. The China Nuclear Information Centre and Atomic Energy Press do not accept any responsibility for loss or damage arising from the use of information contained in any of its reports or in any communication about its test or investigations.

ISBN 7-5022-1835-1



9 787502 218355 >