

用液体闪烁计数法绝对测量³H 和¹⁴C 比活度

翟盛庭

(中国核动力研究设计院, 成都, 610005)

简述了液体闪烁计数的单管及双管符合外推方法绝对测量³H、¹⁴C 活度的基本原理。零几率校正采用相对探测阈外推法, 并提出了迭代零几率外推方法。不同方法的测量结果与参考值相比, 偏差在 0.4%—2.0% 以内。

关键词 液体闪烁计数 绝对测量 ³H ¹⁴C 比活度

液体闪烁探测技术的特点是被测样品与闪烁液均匀混合, 避免了样品的升华和自吸收, 对低能 β 电子和 α 粒子的探测具有高效率 and 制样简便等优点。该技术在许多科技领域广泛应用, 成为核素活度计量学的重要手段之一, 对³H、¹⁴C 活度标准化具有特殊意义。由于该技术探测阈较高, 对低能 β 粒子测量的零几率校正作了大量的理论和实验研究^[1-6]。本工作提出了双管符合的迭代零几率外推法, 其结果与单管及双管符合的相对探测阈外推结果相一致, 证明该方法是可行的, 它不必知道各滤光片相对探测阈的值。

1 基本原理

1.1 单管积分外推法

(1) 小信号损失校正

β 射线能谱是连续谱, 测量时总是用一定的甄别阈甄别掉小幅度的噪声信号, 相应会损失掉一部分有用信号 $N_{\beta}(V)$ 。选择适当的高压值和放大倍数, 使脉冲高度谱低能段展平, 在近似水平的范围内将经过死时间 (τ_d) 校正并扣除本底后的积分计数率 N_{β} 外推到甄别阈 V 为零, 便得到小信号损失校正后的积分计数率 N_{β} 。于是有

$$\begin{aligned} N_{\beta} &= \int_V^{V_{\max}} n_{\beta}(v) dv \\ &= \int_0^{V_{\max}} n_{\beta}(v) dv - \int_0^V n_{\beta}(v) dv \\ &= N_{\beta} - N_{\beta}(V) \end{aligned} \quad (1)$$

式中: $n_{\beta}(v)$ 为幅度为 v 的脉冲计数率。

当甄别阈 $V = 0$ 时, $N_{\beta} = N_{\beta_0}$

(2) 零几率校正

一个辐射粒子在闪烁液中损失能量后产生荧光,光子在光电倍增管的阴极上产生光电子,光电子在各个打拿极上倍增,阳极输出一个电脉冲。这些随机过程有不产生脉冲信号的几率,即零几率。设能量为 E 的 β 粒子在光阴极上产生的平均光电子数为

$$m = a \cdot E \cdot F(E) \quad (2)$$

式中: $F(E)$ 为与 β 粒子能量有关的电离淬灭及壁效应因子; a 包括闪烁体发光效率、光收集效率、化学淬灭及光电转换效率,它与 β 粒子的能量无关。

产生 n 个光电子的几率服从泊松分布

$$P(n, m) = m^n \exp(-m) / n! \quad (3)$$

没有光电子产生的几率为

$$P(0, m) = \exp(-m) \quad (4)$$

打拿极的次级电子发射几率也服从泊松分布,可证明^[2]单个光电子经 k 级倍增后,第 k 级没有电子输出的几率为

$$P_k(0, 1) = \exp\{-\delta_k [1 - P_{k-1}(0, 1)]\} \quad (5)$$

式中: δ_k 为第 k 级打拿极的倍增系数。于是 m 个光电子进入光电倍增管,经 k 级倍增在阳极上没有信号输出的几率为

$$P_k(0, m) = \exp\{-aEF(E)[1 - P_k(0, 1)]\} \quad (6)$$

用 $a = a [1 - P_k(0, 1)]$ 表示闪烁体和光电倍增管的总转换效率,则 $f = 1/a$ 表示产生一个电脉冲需要的平均能量,称为探测阈。于是

$$N_{\beta} = N_0 \left\{ 1 - \int_0^{E_{\max}} S(E) \exp[-EF(E)/f] dE \right\} \quad (7)$$

式中: N_0 为源的活度; $S(E)$ 为归一化的 β 谱函数; E_{\max} 为 β 粒子的最大能量。通过实验和理论计算很难准确得到 f 值,不能准确计算零几率校正。然而,由式(7)看到,当 $f \rightarrow 0$ 时, $N_{\beta} \rightarrow N_{\beta_0}$ 。

为改变 f ,在闪烁体与光电倍增管之间插入一系列透过率不同的滤光片或环,用透过率的相对变化值或用外 γ 源照射闪烁体测定康普顿边缘半高处位置的相对变化值,或用阳极积分电流的相对变化值^[4,5],作为相对探测阈。本工作用内部源¹⁰⁹Cd的内转换电子峰位的相对变化值作为相对探测阈,将 N_{β} 外推到相对探测阈为零,即 $f = 0$,于是 $N_{\beta} = N_{\beta_0}$ 。

1.2 双管符合外推法

将式(7)推广到双管符合测量中,经小信号校正并扣除本底后,第1、2道和符合道的积分计数率分别为

$$N_1 = N_0 \left\{ 1 - \int_0^{E_{\max}} S(E) \exp[-EF(E)/f_1] dE \right\} \quad (8)$$

$$N_2 = N_0 \left\{ 1 - \int_0^{E_{\max}} S(E) \exp[-EF(E)/f_2] dE \right\} \quad (9)$$

$$N_c = N_0 \int_0^{E_{\max}} S(E) \{1 - \exp[-EF(E)/f_1]\} \{1 - \exp[-EF(E)/f_2]\} dE \quad (10)$$

$$\frac{N_1 N_2}{N_c} = N_0 \frac{\left\{ 1 - \int_0^{E_{\max}} S(E) \exp[-EF(E)/f_1] dE \right\} \left\{ 1 - \int_0^{E_{\max}} S(E) \exp[-EF(E)/f_2] dE \right\}}{\int_0^{E_{\max}} S(E) \{1 - \exp[-EF(E)/f_1]\} \{1 - \exp[-EF(E)/f_2]\} dE} \quad (11)$$

利用一系列不同的滤光片改变其中一道(例如第 2 道)的探测阈, 将 N_{1N_2}/N_c 外推到相对探测阈为零, 即 $f_2 = 0$ 时, 便得到 $N_{1N_2}/N_c \cdot N_0^{[5]}$ 。

1.3 双管符合迭代零几率外推法

由式(9)看到, 当 $f_2 = 0$ 时, 第 2 道的零几率趋于零, 计数效率趋于 1。由式(8)看到, 因第 1 道有零几率, 使 $(1 - N_c/N_1)$ 值小于第 2 道的真正零几率, 于是本工作用各滤光片的 $(1 - N_c/N_1)$ 值作为第 2 道相应的零几率初级近似值, 将 N_{1N_2}/N_c 外推到初级零几率为零, 得到 N_0 的初级近似值 N_{01} 。再用 $(1 - N_2/N_{01})$ 值作为第 2 道零几率的二级近似值, 将 N_{1N_2}/N_c 外推到该二级零几率为零, 得到 N_{02} , 如此迭代下去, 直到 $|(N_{0i} - N_{0(i-1)})/N_{0i}| < 0.2\%$ 为止, 从而得到 N_0 值。

对 N_{1N_2}/N_c 的死时间和符合分辨时间(τ_c)的校正采用 Cox-Isham 公式, 外推用多项式拟合算法^[7]。用孔径不同的紫铜环作为滤光片, 相应的相对探测阈值用¹⁰⁹Cd 内转换电子峰位的相对变化确定。

2 测量装置和条件

测量装置主要由 YS-01 多功能液体闪烁测量装置^[8]和通用自动计数与数据处理装置^[9]组成。光电倍增管用 EM 19635QB 替换了 GDB 52-LD, 用半导体致冷装置使其温度稳定在 2℃ 下工作。单管测量时使用半球形光导的测量室, 双管符合测量时使用双半球形光导的测量室。主放大器由对数变换器^[10]和线性放大器构成。为了减少余后脉冲的影响, 采用较长的死时间。用双振荡仪测量两道的死时间分别为 $(20.06 \pm 0.02) \mu\text{s}$ 和 $(20.08 \pm 0.02) \mu\text{s}$, 符合分辨时间为 $(1.171 \pm 0.005) \mu\text{s}$ 。闪烁液配方为 $(10 \text{ g Bu-PBD} + 0.1 \text{ g POPOP})/1 \text{ L 甲苯}$ 。该闪烁液的³H 符合计数效率在 2℃ 时比室温下可提高 60%, 而光电倍增管的热噪声计数率可降低到室温下的 $1/4 \sim 1/3$ ^[11]。

样品瓶为 $\Phi 40 \text{ mm} \times 75 \text{ mm}$ 、壁厚 0.5 mm 的低钾玻璃瓶, 盛闪烁液 1 mL, 被测样品是中国计量科学研究院提供的³H-正十六烷和¹⁴C-正十六烷比对溶液。为提高计数效率, 制样过程中采用了充氮除氧技术^[12]。

3 结果和讨论

用不同方法测量³H 和¹⁴C 的比活度, 结果分别列于表 1 和 2。不确定度分析列于表 3。

表 1 ³H 的比活度测量结果和比较

Table 1 Measurement results of ³H and comparison

| 方法 | 测量结果/ $\text{Bq} \cdot \text{mg}^{-1}$ | 参考值/ $\text{Bq} \cdot \text{mg}^{-1}$ | 相对偏差/% |
|-------------|--|---------------------------------------|--------|
| 单管相对探测阈外推 | 132.0 | 129.8 | + 1.7 |
| 双管符合相对探测阈外推 | 128.0 | 129.8 | - 1.4 |
| 双管符合迭代零几率外推 | 129.4 | 129.8 | - 0.3 |

表 1 表明, 3 种方法对³H 的比活度测量结果均在 2% 以内符合, 双管符合迭代零几率外推结果更接近参考值。表 2 表明, 2 种方法的¹⁴C 比活度测量结果均在 0.4% 以内符合。这些结果

证明双管符合迭代零几率外推是可行的,其优点是无需测定一系列相对探测阈值,反复迭代零几率和外推的数学计算,可通过数据采集和处理的自动化得以解决。

表 2 ^{14}C 的比活度测量结果和比较

Table 2 Measurement results of ^{14}C and comparison

| 方法 | 测量结果/ $\text{Bq} \cdot \text{mg}^{-1}$ | 参考值/ $\text{Bq} \cdot \text{mg}^{-1}$ | 相对偏差/% |
|-------------|--|---------------------------------------|--------|
| 双管符合相对探测阈外推 | 76.81 | 76.88 | - 0.09 |
| 双管符合迭代零几率外推 | 76.59 | 76.88 | - 0.38 |

表 3 双管符合迭代零几率外推法的不确定度分析

Table 3 Analysis of uncertainty for repeatedly replace non-detection probability extrapolation method

| 误差源项 | 估计方法 | $\delta(^3\text{H})/\%$ | $\delta(^{14}\text{C})/\%$ | 合成不确定度 $u/\%$ | | 总不确定度 $U/\%$ | |
|----------|---|-------------------------|----------------------------|---------------|-----------------|--------------|-----------------|
| | | | | ^3H | ^{14}C | ^3H | ^{14}C |
| 计数统计误差 | 误差传递公式 | 0.2 | 0.2 | | | | |
| 称量误差 | $\Delta m/m$ | 0.2 | 0.2 | | | | |
| 死时间校正 | $N \Delta \tau_a / (1 - N \cdot \Delta \tau_a)$ | 0.02 | 0.02 | 0.7 | 0.6 | 3 | 2 |
| 符合分辨时间校正 | $\Delta \tau_c \cdot N_{\text{acc}} / (\tau_c \cdot N_c)$ | 0.02 | 0.02 | | | | |
| 本底误差 | $(B/t)^{1/2} \cdot N^{-1}$ | 0.2 | 0.2 | | | | |
| 外推误差 | 最小二乘法计算 | 0.6 | 0.4 | | | | |

注:表中 N_{acc} 为偶然符合计数率; B 和 t 分别为本底计数及其计数时间;合成不确定度 u 按 $u = (\sum \delta_i^2)^{1/2}$ 计算,总不确定度 U 按 $U = 3$ 计算

中国核动力研究设计院的黎玉萍、刘献忠、漆明森同志参加了实验工作,在此表示感谢。

参 考 文 献

- Gibson JAB, Gale HJ. Absolute Standardization With Scintillation Counting J Sci Instrum, 1968, 2(1): 99
- Gibson JAB. Liquid Scintillation Counting as Absolute Method Symposium Liquid Scintillation Counting, 1971, 2: 23.
- Houtemas H. Probability of Non-detection in Liquid Scintillation Counting Nucl Instrum Methods, 1973, 112(1—2): 121.
- Song L, Wu XZ, Wang ZE. Liquid Scintillation Counting for the Standardization of β particle Emitters Nucl Instrum Methods, 1980, 175: 503
- Wu XZ, Song L, Wang ZY, et al. Standardization of ^{14}C by Liquid Scintillation Coincidence Int J Appl Radiat Isotopes, 1987, 38(10): 891.
- 复旦大学,清华大学合编. 原子核物理实验方法(上册). 第二版修订本. 北京:原子能出版社, 1985. 300—302.
- 翟盛庭,沈峰. 自动绝对测量 ^{99}Tc 活度. 原子能科学技术, 1994, 28(3): 241.
- 翟盛庭,王依华. YS-01 多功能液体闪烁测量装置及其高分辨率特性. 核动力工程, 1987, 8(4): 89.

- 9 翟盛庭, 沈峰, 楼滨乔. 通用自动计数与数据处理装置及应用. 核电子学与探测技术, 1992, 12(2): 116.
- 10 翟盛庭, 孙志芬. 一种简单的准对数变换器. 第一次全国液体闪烁探测技术学术会议资料汇编 西安 1982.
- 11 翟盛庭, 黎玉萍, 刘献忠. 温度对液体闪烁体效率的影响. 原子能科学技术, 1996, 30(5): 459.
- 12 翟盛庭, 刘友湘, 周昌贵. 用液体闪烁计数测量¹⁴C-碳酸钡比活度. 核动力工程, 1987, 8(1): 67.

ABSOLUTE MEASUREMENTS OF SPECIFIC ACTIVITY OF ³H AND ¹⁴C BY LIQUID SCINTILLATION COUNTING METHODS

Zhai Shengting

(Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610005)

ABSTRACT

The basic principles of liquid scintillation counting of single photomultiplier extrapolation method and double photomultipliers coincidence method for absolute measurements of specific activity of ³H and ¹⁴C, are described briefly. The method of relative detection threshold extrapolation was used in correction of non-detection probability. The new method of non-detection probability extrapolation is put forward. The deviations measured from the reference values of specific activities are in the range of 2% to 0.4% for ³H and ¹⁴C, respectively.

Key words Liquid scintillation counting Absolute measurement ³H ¹⁴C Specific activity

放射性排放对环境的影响

Environmental Impact of Radioactive Releases

本书 1995 年由 IAEA 出版。

由 IAEA 组织于 1995 年 5 月 8—12 日在维也纳举行了“放射性排放对环境的影响”国际专题讨论会, 有来自 39 个国家和 5 个国际机构的 222 名专家出席。会上有 51 篇口头发言和 90 篇张贴论文。

这次讨论会的主要目的是评论这一专题研究的最近进展, 以及放射性核素环境迁移的新信息, 并为技术信息交流提供了论坛, 此外还为介绍 IAEA 两个规划 VAMP 和 IASAP 的研究结果提供了机会。口头报告的论文主要内容如下: 1. 全球影响评价综述; 2. 环境监测新的作用综述; 3. 放射性核素向大气排放; 4. 放射性核素向水生环境的排放; 5. 陆地环境中的放射性核素; 6. 淡水环境的放射性核素迁移; 7. 环境模式试验; 8. 放射学影响评价; 9. 环境补救措施; 10. 专题讨论。

摘自中国原子能科学研究院《科技信息》