

^{37}Ar 测量系统的研制与能谱测量方法研究

向永春[†] 龚 建 李 伟 卞直上 郝樊华 王红侠 王 茜 熊宗华

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所 绵阳 621900)

(2006 年 12 月 30 日收到 2007 年 2 月 10 日收到修改稿)

建立了移动式 ^{37}Ar 测量系统.采用 1 L 的正比计数探测器和能谱分析方法对 ^{37}Ar 的测量进行了研究.分析了计数管的坪长、坪斜和本底等特点.结果表明,相比传统的计数方法,采用电子能谱法测量 ^{37}Ar 具有直观、坪长长、坪斜小等优点.相比传统的总计数方法,采用峰本底的方法可以将本底降低约一个量级,从而降低 ^{37}Ar 的探测下限.并研究了工作气体中不同甲烷含量对 ^{37}Ar 的测量能谱和计数管工作电压的影响.结果表明,加入 10% 的甲烷能够较好的改善 ^{37}Ar 的峰形,当甲烷含量大于 10% 时,峰形基本保持不变,而甲烷的含量较高时,达到坪区需要较高的工作电压.

关键词:气体正比计数管, ^{37}Ar ,坪曲线,能谱法

PACC: 2940C, 2970F

1. 引 言

在核试验中有大量中子产生,中子和周围介质中的钙发生 $^{40}\text{Ca}(n,\alpha)^{37}\text{Ar}^{[1]}$ 反应产生大量 ^{37}Ar ,因此通过对 ^{37}Ar 的探测可以判断是否进行过地下核试验.目前 ^{37}Ar 已被全面禁止核试验条约组织(the comprehensive nuclear-test-ban treaty organization,简称 CTBTO)确定为核查核素(CTBT/PC-10/1/Annex II, Appendix VIII). ^{37}Ar 的探测包括取样、分离和测量三部分,因此能否对 ^{37}Ar 进行高灵敏测量是决定这种核查方法是否可行的关键因素之一.

^{37}Ar 是惰性气体,在常温常压下本身很难变成液体,且难以化合生成化合物,即使变成化合物也很难变成液体.而且 ^{37}Ar 在衰变过程中,发出能量降低的 X 射线(2.622 keV)和俄歇电子(2.380 keV),一般探测设备无法满足以上要求.内充气正比计数管具有很好的坪特性、稳定性好、灵敏度高(在灵敏体积内 β 的探测效率为 100%)、探测能量低等优点,适合于 ^{37}Ar 的测量.20 世纪 80 年代核物理与化学研究所曾采用内充气正比计数管测量 ^{37}Ar ,但对 ^{37}Ar 的测量采用定标器的计数方法^[1],这种方法的工作量大,本底较高,计数管体积较小(约 300 ml),无法满足高灵敏度的核查要求.

在国外,目前只有瑞士伯尔尼大学进行 ^{37}Ar 的

测量^[2],但是探测设备位于地下实验室中,无法用于核试验的现场视察.

针对以上问题,采用较大体积的正比计数管,建立了可移动的 ^{37}Ar 测量分系统,提出 ^{37}Ar 的能谱测量方法,并开展了大量有关 ^{37}Ar 的能谱测量研究工作.目前此 ^{37}Ar 测量设备和测量方法作为移动式 ^{37}Ar 探测系统的测量系统,得到全面禁止核试验条约组织的认可.

2. 测量系统的组成

根据现场视察的要求,探测设备必须满足可移动和探测灵敏度高的特点,这意味着整个探测设备要具备重量轻、体积小(比如可以装入越野车内),又有足够高的灵敏度满足视察要求.除采样和分离分系统外,留给 ^{37}Ar 测量系统的空间更小.重量轻与降低本底相矛盾,为此重点从硬件和分析方法两方面进行研究.

2.1. 硬件

2.1.1. 原理

正比计数系统的放射性活度的探测下限为^[3]

$$A_{LD} = 4.66 \sqrt{n_b t / \epsilon I}, \quad (1)$$

式中 A_{LD} 为系统对 ^{37}Ar 的最小探测活度,单位为 Bq;

n_b 为本底计数率,单位为 s^{-1} ; t 为测量时间,单位为 s ; ϵ 为计数管的测量效率; I 为核衰变中该射线的辐射强度。

由(1)式看出,从物理测量方面而言,在低本底的测量中,提高探测装置的灵敏度可以通过以下途径来实现:

- a) 提高计数器的探测效率;
- b) 增长测量时间;
- c) 增加射线的辐射强度;
- d) 降低测量装置的本底。

上述途径的 a) 和 b) 常常受到物理条件、技术条件及其他因素的限制。例如,正比计数管的探测效率已达 90%,不可能有较大的提高空间,在现场视察中,不可能在现场进行长时间测量。因此,增加射线的辐射强度和降低测量装置的本底就成为提高探测装置的灵敏度的主要技术途径。

2.1.2. 大体积正比计数管

本系统采用体积约 1000 mL 的正比计数管,比之于同样条件下的 300 mL 正比计数管,由于其体积增大,将装入更多的样品,从而增加射线的辐射强度,使探测灵敏度提高约 3 倍。提高正比计数管的耐压能力,同样体积可有更多的样品充入正比计数管,也可提高探测灵敏度。但提高正比计数管压力,将需更高的工作电压,易产生放电等不利因素,故本测量系统采用的压力约 200 kPa。采用无氧高导电性铜作为计数管的管壁,以降低计数管的本底计数。正比计数管的参数见表 1。

表 1 正比计数管的参数

管长/mm	550.0
灵敏体积/ml	1000 (957.1) [†]
工作温度范围/°C	-50—150
工作气体	Ar(90%) + CH ₄ (10%)
坪长/V	250
坪斜/(0.01 V ⁻¹)	2%

注:† 标定的实际体积

2.1.3. 屏蔽措施

由于对整体探测系统重量和体积的限制,不可能采用较厚的屏蔽,因此本系统采用 4 cm 的铅作为屏蔽材料(重 195 kg)。4 cm 厚的铅屏蔽 90.7% 的 1460 keV γ 射线,5 cm 厚的铅屏蔽 94.8% 的 1460 keV γ 射线,但重量增至 256 kg,因此采用 4 cm 厚的铅较为合适。由于铅质较软,在铅屏蔽的外层用钢包

住。在计数管和屏蔽体之间有井形塑料闪烁反符合探测器(见图 1)。

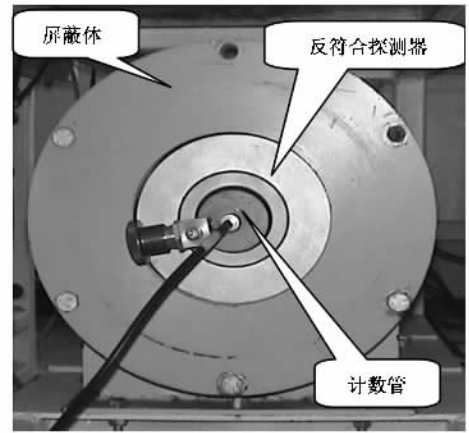


图 1 计数管的屏蔽图

2.1.4. 反符合探测器

对于宇宙射线和其他高能粒子,本测量系统采用反符合探测器进行主动屏蔽。正比计数管位于由塑料闪烁体构成接近 4π 立体角的反符合环中。当宇宙射线(或其他射线)在反符合环及正比计数管中同时产生脉冲,当两路脉冲信号同时输入到反符合电路后,反符合电路将剔除脉冲信号,以上射线产生的本底计数被消除^[4]。

³⁷Ar 测量系统的单元组成见表 2。

表 2 测试系统组成

名称	设备型号	备注
气体正比计数管	LND4953	
反符合探测器	130AP688/5M-E2-P-X	井形塑料闪烁探测器
	2006	气体正比计数器前置放大器
	814A	放大器
	410A	门产生器
	9645	ICB 6kV 高压电源
电子学单元	3102D	0—2 kV 高压电源
	2100-2	NIM 机框 + / - 6V/8A + / - 12V/2A
	9660	ICB 数字信号处理器
	1457	信号延时器
	556A	控制模块
软件	Genie2000	
屏蔽体		4 cm 环形铅屏蔽

2.2. 能谱分析方法

³⁷Ar 为电子俘获衰变核素,电子俘获生成的子核处于激发态,外层的轨道电子将向内层跃迁时发射 X 射线和俄歇电子。³⁷Ar 的衰变^[5,6](表 3,图 2)的特点为射线能量低、电子能量单一,这有利于用正比计数管能谱法测量带来有利因素。

表 3 ³⁷Ar 的衰变数据

辐射类型	能量/keV	绝对强度/%
EC ₁		100
eAuk	2.380	81.7
Xk	2.622	8.5
半衰期	35.04 ± 0.04d	

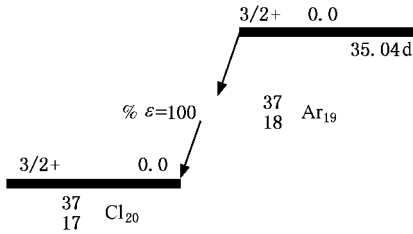


图 2 ³⁷Ar 的衰变纲图

3. 实验内容和结果

3.1. ³⁷Ar 的能谱

将装有⁴⁰Ca 粉末的密封石英管放入反应堆辐照,使⁴⁰Ca 和中子发生⁴⁰Ca(*n*, α)³⁷Ar 反应.将生产的³⁷Ar 样品经过简单的化学处理后充入正比计数管,然后加入工作气体到预定的压力.等气体平衡后进行测量.为了更清楚说明³⁷Ar 能谱和本底的特点,采用弱样品长时间的实测能谱.图 3 是约 0.37 Bq ³⁷Ar 在 167880 s 时间内的测量能谱图.

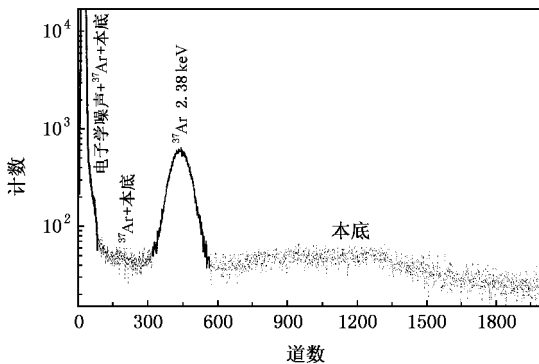


图 3 ³⁷Ar 能谱图

在图 3 中,³⁷Ar 能峰右边(约 600—2000 道)为本底计数,而且在 1200 道附近,本底计数较高.而³⁷Ar 能峰避开此位置,位于电子学噪声和本底较高之间.此处本底较低,可以降低³⁷Ar 样品的探测下限.

3.2. 不同压力下计数管的坪长和坪斜

将一定活度的³⁷Ar 样品充入计数管,初始压力为 100 kPa,进行坪曲线测量^[7].测量结束后,往计数管内继续充入工作气体,使之压力达到 200 kPa,而样品量保持不变,对计数管再次进行坪曲线测量.继续充入工作气体直到计数管的压力为 300 kPa.测量结果如下表 4.

表 4 正比计数器坪曲线测量

坪曲线	计数管压力/kPa		
	100	200	300
坪长/V	450	550	250
坪斜(/100 V)	0.38%	0.39%	1.49%

由表 4 看出,计数管的坪斜和坪长与计数管内气体压力有关,当计数管内气体压力为 100 和 200 kPa 时,具有较好的坪特性,当计数管内气体压力升至 300 kPa 时,计数管的坪长变小,坪斜变差.

3.3. 计数管的工作电压与压力的关系

方法同 3.2 节,将一定活度的³⁷Ar 样品充入计数管,初始压力为 100 kPa,进行测量.测量结束后,往计数管内继续充入工作气体,使之压力达到 150 kPa,而样品量保持不变,对计数管再次测量.调节工作电压,使两次测量时的³⁷Ar 能峰重合.继续重复以上过程,直到计数管的压力为 400 kPa.做出正比计数管在不同压力和工作电压的关系(见图 4).

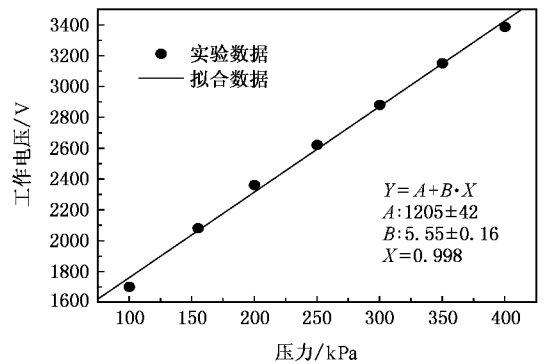


图 4 计数管的工作电压与计数管压力的关系

由图 4 得出,正比计数管的工作电压随计数管压力的升高而升高,当计数管压力升高 1 kPa 时,计数管的工作电压升高(5.55 ± 0.16)V.

3.4. 计数管的工作电压与甲烷含量的关系

将一定活度的³⁷Ar 样品充入计数管,向计数管充入氩气使计数管初始压力为 151.3 kPa,进行测量.测量结束后,往计数管内充入甲烷气体,使之含

量为 5%,而样品量保持不变,对计数管再次测量,通过调节工作电压使³⁷Ar 能峰在同一位置,而其他参数保持不变.继续重复以上过程,直到计数管中甲烷的含量到 25%.表 5 是工作电压与气体样品中的甲烷含量的实验结果.

表 5 计数管的工作电压与甲烷含量的关系

甲烷含量/%	0	5	10.7	13.2	16.6	20.7	25
气压/kPa	151.3	159.3	169.4	174.4	181.4	189.3	202.2
工作电压/V	2000	2023	2252	2340	2475	2616	2845

当一定量的甲烷气体充入计数管的同时计数管内的压力同样升高,因此计数管的工作电压不仅与甲烷含量有关,而且与计数管内的压力有关.采用 3.3 节中得出的工作电压与计数管内压力的关系式,扣除压力的影响,再进行平移,使甲烷含量为零时的工作电压为零.最终结果见图 5.

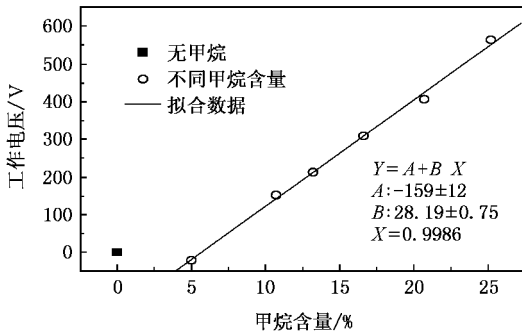


图 5 计数管的工作电压与甲烷含量的关系

由图 5 看出,当甲烷含量为 5%时,工作电压相比无甲烷时有所降低.当甲烷含量大于 5%时,工作电压相随无甲烷含量的升高而升高,成线性关系.当甲烷含量增加 1%时,工作电压上升 $(28.19 \pm 0.75) V$.

3.5. ³⁷Ar 能谱与甲烷含量的关系

对 3.4 节中,不同甲烷含量的能谱结果见图 6.

由图 6 看出,当甲烷含量为零时,³⁷Ar 能峰较宽,而能峰的前沿、本底和电子学噪声相互重合.当甲烷含量为 5%时,³⁷Ar 能峰变窄,能峰的前沿和电子学噪声基本能够分开,但平台较高.当甲烷含量为 10.7%时,和甲烷含量为 5%相比,³⁷Ar 能峰基本保持不变,但能峰的前沿和电子学噪声基本进一步分开,平台降低.当甲烷含量为 20.7%时,和甲烷含量为 10.7%相比,两种基本相同,但前者需要更高的工作电压.因此在³⁷Ar 的测量中工作气体为 P10

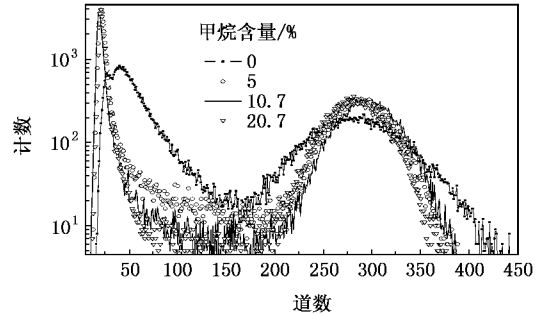


图 6 ³⁷Ar 能谱与甲烷含量的关系

(10% CH₄ + 90% Ar) 气体较为合适.以下测量中工作气体均为 P10 气体.

3.6. 本底

3.6.1. 总本底

在以上条件下,正比计数管在无屏蔽、有反符合和有反符合加屏蔽体的情况下,相同时间内的实验本底能谱见图 7,本底计数见表 6.

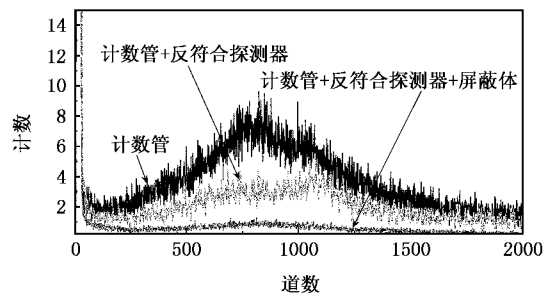


图 7 在不同情况下计数管的本底能谱

表 6 在不同情况下计数管的本底

本底	裸管	有反符合无屏蔽体	有反符合加屏蔽体
总计数/s ⁻¹	7.8	3	1.1
峰本底/s ⁻¹	0.6	0.23	0.16

由图 7 和表 6 可以看出,采用屏蔽和反符合的能够降低计数管本底,由裸管的 7.8 s^{-1} 降到有反符合加屏蔽体的 1.1 s^{-1} .

3.6.2. 峰本底

由于 ^{37}Ar 能够在计数管内形成较好的单能峰,因此可采用峰本底作为测量 ^{37}Ar 的本底. ^{37}Ar 峰本底是指在 ^{37}Ar 峰下本底计数(见图 8),实验结果见表 6.

由表 6 看出,采用峰本底的方法可以将本底降低约一个量级,从而降低 ^{37}Ar 的探测下限.

4. 结 论

建立了 ^{37}Ar 测量系统,重量和体积可以满足可

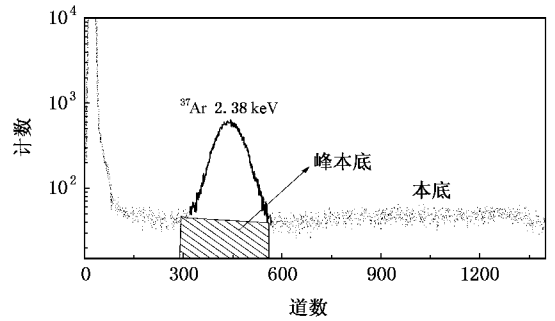


图 8 峰本底示意图

移动要求.采用能谱法测量 ^{37}Ar 具有直观、坪长长、坪斜小等优点.相比传统总计数方法,采用峰本底的方法可以将本底降低约一个量级,从而降低 ^{37}Ar 的探测下限.

- [1] Gu D C 1994 *Method and Technology of Measurement for Radionuclide Activity* (Beijing Science Press) p324 (in Chinese) 古当长 1994 放射性核素活度测量的方法和技术(北京:科学出版社)第 324 页]
- [2] Loosli H H , Heimann M , Oeschger H 1980 *Low-level Gas Proportional Counting in an Underground Laboratory Radiocarbon* **22** 461—469
- [3] Gu D C 1994 *Method and Technology of Measurement for Radionuclide Activity* (Beijing Science Press) p296 (in Chinese) 古当长 1994 放射性核素活度测量的方法和技术(北京:科学出版社)第

296 页]

- [4] Chang J T , Wu L A 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1132 (in Chinese) [常君 、吴令安 2003 物理学报 **52** 1132]
- [5] P M Endt 1990 *Nucl. Phy* **1** A521
- [6] Richard B F , Virginia S S , Coral M B , Jean Z S Y , Frank Chu 1996 *Table of Isotopes CD-ROM Eighth Edition Version 1.0* p775
- [7] An J G 1995 *Ionization and Radiation Detector* (Beijing : Atomic Energy Press) p124—126 (in Chinese) 安继刚 1995 电离辐射探测器(北京:原子能出版社)第 124—126 页]

Development of a system of measuring ^{37}Ar by spectrum method

Xiang Yong-Chun[†] Gong Jian Li Wei Bian Zhi-Shang Hao Fan-Hua

Wang Hong-Xia Wang Qian Xiong Zong-Hua

(*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineer Physics, Mianyang 621900, China*)

(Received 30 December 2006 ; revised manuscript received 10 February 2007)

Abstract

A portable system of measuring ^{37}Ar has been developed. Measurement of ^{37}Ar is realized by the proportional counter and spectrum analysis method. Plateau length, plateau slope and background have been analyzed. Compared with traditional counting method, the present method has the advantages of visibility, longer plateau length and smaller plateau slope. background is reduced by an order of magnitude which decreases the detection limit. Working gas of 10% methane improves the peak shape. Greater concentration of methane is not necessary because it does not make the peak shape better but needs higher working voltage.

Keywords : gas proportional counter, ^{37}Ar , plateau curve, spectrum method

PACC : 2940C, 2970F

[†] E-mail :xiang20030818@yahoo.com.cn