

# 便携式氚测量仪现场校准技术研究及装备研制

陈 华<sup>1</sup>, 丁大杰<sup>1</sup>, 卓仁鸿<sup>1</sup>, 文德智<sup>1</sup>, 吕己禄<sup>1</sup>,  
郑 慧<sup>1</sup>, 成 晶<sup>1</sup>, 袁永刚<sup>1</sup>, 雷家荣<sup>2</sup>, 陈志林<sup>1,\*</sup>

1. 中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621000;

2. 中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621000

**摘要:**根据 PVT 方法研制了便携式氚测量仪现场校准装备。使用经检定的电离室装置对初始的氚气浓度进行了测量并作为校准装备的气源, 根据 PVT 方法稀释配制了校准用的参考氚气, 参考氚气浓度的不确定度为 5.00%, 满足 EJ/T 1077-1998 关于检验源的要求。使用放射性气体活度标准装置对配制的参考氚气进行了绝对测量, 测量结果与理论计算结果相对误差为 0.81%。并采用配制的参考氚气进行了便携式氚测量仪的校准测试, 结果表明, 便携式氚测量仪现场校准装备可以满足便携式氚测量仪的现场校准需求。

**关键词:**便携式氚测量仪; 现场校准; 参考氚气; PVT 方法

中图分类号: X85 文献标志码: A 文章编号: 0253-9950(2021)03-0274-05

doi: 10.7538/hhx.2021.43.03.0274

## Technique and Development of Device for In-Situ Calibration of Portable Tritium Measurement Instruments

CHEN Hua<sup>1</sup>, DING Da-jie<sup>1</sup>, ZHUO Ren-hong<sup>1</sup>, WEN De-zhi<sup>1</sup>, LYU Ji-lu<sup>1</sup>, ZHENG Hui<sup>1</sup>,  
CHENG Jing<sup>1</sup>, YUAN Yong-gang<sup>1</sup>, LEI Jia-rong<sup>2</sup>, CHEN Zhi-lin<sup>1,\*</sup>

1. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621000, China;

2. China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621000, China

**Abstract:** An in-situ calibration device of portable tritium measurement instruments based on PVT method was developed. The concentration of the initial tritium, which was the gas source of the device and was diluted to be the reference tritium gas according to the PVT method, was measured by the calibrated ionization chamber device and its uncertainty is 5.00%, which meet the requirements of EJ/T 1077-1998. The relative error of the concentration of the reference tritium gas between the measured result, which was carried out by the radioactive gas activity standard device and the calculated result is 0.81%. A test of calibration function of a portable tritium measurement instrument was carried out with the reference tritium gas. The results show that the calibration device can meet the needs of in-situ calibration of portable tritium measurement instruments.

**Key words:** portable tritium measurement instrument; in-situ calibration; reference tritium gas; PVT method

基于电离室测氡原理的便携式氡测量仪已广泛应用于核设施外环境和工作场所的空气中氡浓度监测<sup>[1-3]</sup>,其现场校准的需求日益突出。中国原子能科学研究院的陈细林等<sup>[4]</sup>利用氡水蒸气空气源作为氡测量仪器的校准源,建立了一个较大的封闭空间,可以放置多达12台待校准仪器在此空间内同时校准。仪器在校准过程中完全沉浸在含氡气体内,可能由于氡的吸附效应等导致沾污。中国核动力研究设计院的洪永侠<sup>[5-6]</sup>、吴甜甜<sup>[7]</sup>等对鼓泡法产生标准氡气的分馏系数等进行了研究,在校准便携式氡测量仪时,使用鼓泡法产生参考氡气并引入一台传递仪器进行量值传递。该法需对传递仪器进行校准,且对鼓泡过程的温度控制要求较高。中国原子能科学研究院罗瑞等<sup>[8]</sup>通过破碎密封氡气源并采用称量稀释的方式,实现了标准氡气的制备。该法采用的稀释系统复杂,且氡气源为一次性破碎消耗品,不可重复使用。由于标准气态氡源不易获取和操作,国内目前尚无便携式氡测量仪的可靠校准方式。为了满足便携式氡测量仪的量值溯源需求,本工作拟采用PVT方法产生参考氡气并对其量值传递过程进行研究。

## 1 PVT方法原理

理想气体(PVT系统)的状态方程如下:

$$pV = nRT \quad (1)$$

式中: $p$ ,气体的压强,Pa; $V$ ,气体的体积, $\text{m}^3$ ; $n$ ,气体的物质的量,mol; $R$ ,理想气体常数, $8.314 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$ ; $T$ ,气体绝对温度,K。

根据氡的放射性衰变规律,其活度浓度 $C(\text{Bq}/\text{m}^3)$ 的计算如下:

$$C = \frac{\lambda f N_A n}{V} = \frac{\lambda f N_A p}{RT} \quad (2)$$

式中: $\lambda$ ,氡的衰变常数, $1.781 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ ; $f$ ,气体中氡的分压比例, $f=1$ ; $N_A$ ,阿伏伽德罗常数, $6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ 。

根据式(2),同一氡气在不同的温度和压强条件下,其活度浓度、温度和压强之间满足式(3)。

$$\frac{C_1}{C_2} = \frac{p'_1 T_2}{p_2 T_1} \quad (3)$$

若已知初始温度( $T_1$ )、压强( $p'$ )和活度浓

度( $C_1$ ),则通过式(3),可以通过测量气体温度( $T_2$ )和压强( $p_2$ )参数,计算得到该气体的活度浓度( $C_2$ )。

为了保障便携式氡测量仪校准装备的使用次数,在初始灌装氡气的时候需要灌装较高初始活度浓度的氡气,然后利用PVT法通过扩大体积的方式进行逐级稀释从而产生合适浓度的参考氡气。进行第一次稀释的时候,装备气路为第一级缓冲容器,其体积为 $V_1$ ,进行第二次稀释的时候接入第二级缓冲容器和待校准的仪器,装备气路体积变为 $(V_1 + V_2 + V_{\text{仪器}})$ ,此时的参考氡活度浓度( $C'$ )的计算公式如式(4)。

$$C' = \frac{p_1 - p}{p_0} \times \frac{V_1}{V_1 + V_2 + V_{\text{仪器}}} \times C_0 \times \frac{t_0 + 273.15}{t_1 + 273.15} \quad (4)$$

式中: $V_1$ ,第一级缓冲容器的体积,mL; $V_2$ ,第二级缓冲容器的体积,mL; $V_{\text{仪器}}$ ,待校准仪器的体积,mL; $C_0$ ,灌装氡气的初始活度浓度,Bq/L; $p_0$ ,灌装氡气的初始压强,Pa; $t_0$ 、 $t_1$ ,灌装氡气的初始温度和第一次稀释时的氡气温度, $^{\circ}\text{C}$ ; $p_1$ ,第一次稀释之后的压强,Pa; $p$ ,第二次稀释之后的压强,Pa。

## 2 参考氡气的配制和绝对测量

### 2.1 参考氡气的配制和绝对测量流程

参考氡气的制备、校准以及便携式氡测量仪的校准流程示于图1。在配制参考氡气时,首先对整个气路抽真空,然后关闭所有阀门,将校准气路分为独立封闭的小体积。打开氡气瓶的阀门,将气瓶内的标准氡气经减压阀释放到第一级缓冲容器内,关闭减压阀并记录此时第一级缓冲容器内的气体压强和温度参数。然后打开一、二级缓冲容器之间的阀门,将氡气的体积扩大,进行氡气浓度的稀释。将待校准的仪器进出气口分别接入气路系统,打开阀门给气路补充空气,待气路内压强与大气平衡后,关闭该阀门,将待校准仪器的校准气压条件与工作时的气压调节一致。由于配制参考氡气时,首先对气路抽真空,且标准氡气的压强为负压,因此包含补空气过程在内,整个配气的气路压强均小于大气压,可以实现氡气在气路内的包容,从而保障了操作人员的辐射安全。

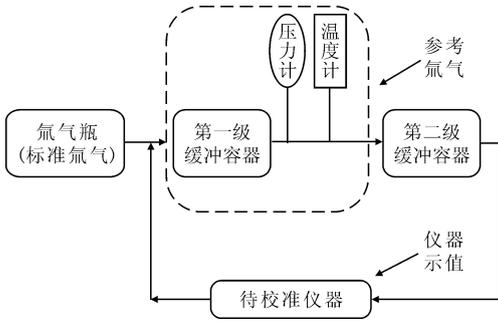


图1 参考氚气的配制以及便携式氚测量仪的校准流程

Fig. 1 Process of dilution of reference tritium gas and calibration of portable tritium measuring instruments

使用碳纤维高压气瓶作为氚气瓶,向其内灌装一定量的氚气,测量灌装后氚气瓶压强( $p_0$ )和温度( $t_0$ ),并使用经检定的电离室装置测量灌装之后氚气瓶内的氚气初始活度浓度( $C_0$ ),然后将其作为标准氚气。标准氚气经缓冲容器稀释之后,使用式(4)可计算得到稀释后的氚气活度浓度的理论值( $C'$ ),对其取样并使用国防科技工业5116二级计量站的放射性气体活度测量装置进行校准测量,可得到稀释后缓冲容器内的氚气活度浓度测量值( $C_{\text{det}}$ ),比较两者的相对误差以验证PVT方法配制的参考氚气的准确性和可靠性。将待校准仪器接入便携式氚测量仪校准装备,使用待检仪器进行测量,通过仪器示值与参考氚浓度值( $C_{\text{det}}$ )的比较,即可实现便携式氚测量仪的校准。

## 2.2 实验验证

利用氦质谱检漏系统对氚气瓶检漏合格后,使用实验室氚气源对其进行灌装,灌装过程中使用压力计、温度计和电离室对氚气瓶内的压强、温度和氚活度浓度进行测量。灌装过程中,首先对灌装气路抽真空至 $-95.0\text{ kPa}$ ,然后使用气体扩散的方式,将实验室氚气扩散灌装到氚气瓶内。灌装完成之后,氚气瓶内的压强为 $-10.3\text{ kPa}$ ,氚气温度为 $25.1\text{ }^\circ\text{C}$ ,使用经检定的电离室装置测得灌装的氚气初始活度浓度 $C_0 = 3.05 \times 10^8\text{ Bq/L}$  ( $U_r = 5.00\%$ )。  $C_0$ 的不确定度分量包括:电离室装置的不确定度( $5.00\%$ )和测量不确定度( $0.02\%$ )。

按照图1的流程,研制了如图2所示的便携式氚测量仪校准装备,其操作界面如图3所示,该装备外形尺寸为 $73\text{ cm} \times 40\text{ cm} \times 25\text{ cm}$ ,质量为

$24.88\text{ kg}$ ,可满足便携式氚测量仪现场校准的遂行需求。该装备将氚气瓶内的初始氚气经过体积分别为 $V_1 = 28.0\text{ mL}$ 和 $V_2 = 564.7\text{ mL}$ 的两级缓冲容器稀释,制备了参考氚气,其理论值为 $C'$ ,使用体积为 $20.0\text{ mL}$ 的取样容器对稀释后的氚气进行取样,并使用中国工程物理研究院核物理与化学研究所电离辐射计量站的放射性气体活度标准装置进行测量,其测量值为 $C_{\text{det}}$ ,两者的差异比较列入表1。

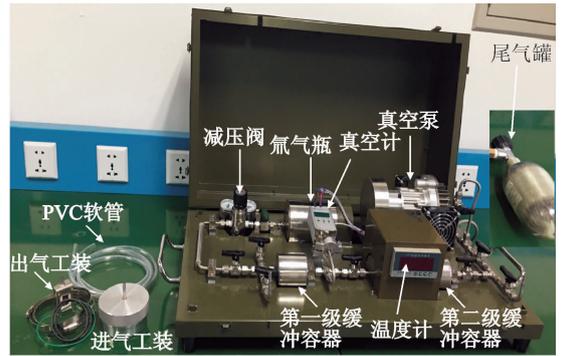


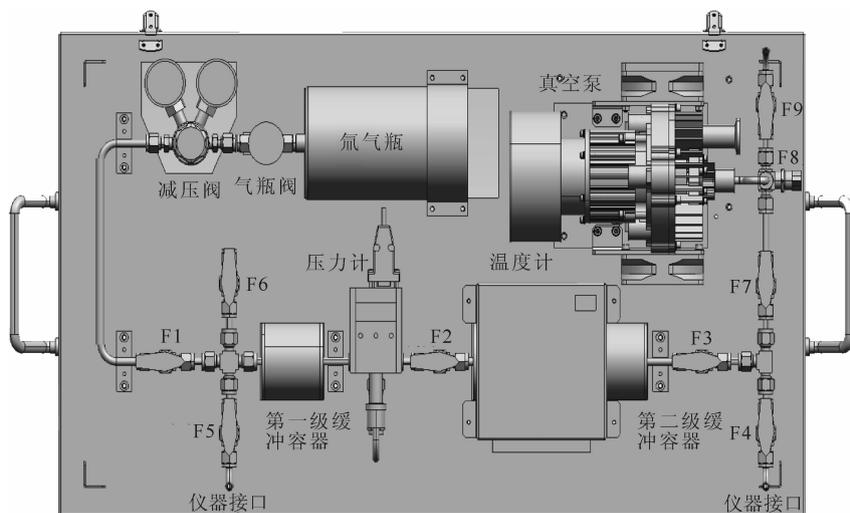
图2 便携式氚测量仪校准装备

Fig. 2 Calibration system of portable tritium measuring instruments

参考氚气的配制过程中,首先关闭阀门F1、F4—F6和F9,打开真空泵将装备气路整体抽真空至 $-94.9\text{ kPa}$ ( $p$ ),关闭阀门F2、F3和F8。然后打开氚气瓶的阀门、减压阀和阀门F1,向第一级缓冲容器充入氚气至压强为 $-79.9\text{ kPa}$ ( $p_1$ ),关闭减压阀和气瓶阀。然后打开阀门F2,将氚气向第二级缓冲容器稀释(增大氚气的体积)至压强为 $-79.2\text{ kPa}$ ,计算得到参考氚气的活度浓度 $C' = 2.50 \times 10^6\text{ Bq/L}$ ,其不确定分量包括:初始氚浓度的不确定度( $5.00\%$ )、温度计引入的不确定度( $0.14\%$ )和压力计引入的不确定度( $0.01\%$ ),其合成不确定度 $U_r = 5.00\%$ 。将取样容器内的气体导入放射性气体活度标准装置进行测量,测得的样品氚活度浓度 $C_{\text{det}} = 2.48 \times 10^6\text{ Bq/L}$  ( $U_r = 2.50\%$ ),两者相对误差为 $0.81\%$ 。

## 3 现场校准功能的初步测试

将实验室现有的便携式氚测量仪(品牌:OVERHOFF,型号:MODEL 400SBD $\gamma$ C,电离室体积 $V_{\text{仪器}} = 440\text{ mL}$ )连接至研制的便携式氚测量仪校准装备进行校准功能测试。在测试过程中,



F1—F9 阀门

图 3 便携式氚测量仪校准装备操作界面

Fig. 3 Interface of calibration system of portable tritium measuring instruments

表 1 参考氚气的理论值及测量值比较

Table 1 Comparison of calculated result and measured result of concentration of reference tritium gas

$p/\text{kPa}$	$p_1/\text{kPa}$	$t_0/^\circ\text{C}$	$C'/(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$	$C_{\text{det}}/(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$	相对误差
-94.9	-79.9	21	$2.50 \times 10^6 (U_r=5.00\%)$	$2.48 \times 10^6 (U_r=2.50\%)$	0.81%

首先对连接的整个气路抽真空至 $-95.0 \text{ kPa}(p)$ , 然后经气瓶阀、减压阀和阀门 F1 向第一级缓冲容器充入氚气, 充入氚气之后的压强为 $-93.0 \text{ kPa}(p_1)$ , 然后关闭所有阀门, 打开阀门 F2—F5 将第一级缓冲容器的氚气扩散至整个校准气路, 此时的气路压力低于大气压, 打开阀门 F6 向气路内补充空气, 观察压力计示值, 当其示值为“0.00”(即气路内压强与大气压强平衡时)迅速关闭阀门 F6, 避免氚气泄露。在此过程中, 气路内的压强一直保持在负压, 避免了氚气向气路外泄漏, 实现了氚气的包容和人员的防护。

使用式(4)计算得到校准气路内的氚活度浓度  $C'=1.98 \times 10^5 \text{ Bq/L}$ , 合成不确定度  $U_r=5.01\%$ , 满足参考检验源的活度浓度约定真值的不确定度应不超过 $\pm 10\%$ 的要求<sup>[9]</sup>。配制不同浓度参考氚气进行测试, 便携式氚测量仪的测定值和校准结果列入表 2。

经过现场校准功能测试, 便携式氚测量仪的相对固有误差小于 $11\%$ , 满足“相对固有误差不超过 $\pm 30\%$ ”的规定<sup>[9]</sup>。便携式氚测量仪校准装备实现了便携式氚测量仪的校准功能。

表 2 便携式氚测量仪的氚活度浓度测量值和校准结果

Table 2 Measurement and calibration results of portable tritium measuring instruments

$C'/(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$	$C_{\text{det}}/(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$	相对固有误差	校准因子 ( $k$ )
$1.98 \times 10^5 (U_r=5.01\%)$	$2.19 \times 10^5$	10.60%	0.90
$4.94 \times 10^4 (U_r=5.01\%)$	$5.12 \times 10^4$	3.64%	0.96
$9.88 \times 10^3 (U_r=5.01\%)$	$9.65 \times 10^3$	-2.33%	1.02

## 4 结 论

根据 PVT 方法研制了便携式氚测量仪现场校准装备, 配制了参考氚气并使用放射性气体活度标准装置对其进行了校准测量, 测量结果与理论计算结果相对误差为 $0.81\%$ , 证明 PVT 方法制备参考氚气可行, 配制的参考氚气不确定为 $5.00\%$ , 满足现场校准对于参考检验源的要求。

采用研制的便携式氚测量仪校准装备开展了便携式氚测量仪的现场校准实践, 结果表明该装备可以满足便携式氚测量仪的遂行校准需求。

对于研制的便携式氡测量仪校准装备,其氡气源的稳定性、气路系统的吸附和记忆效应等的改善均是下一步工作需要关注的重点。

#### 参考文献:

- [1] 陈志林,常瑞敏,宋国暄. 开放式测氡电离室研制, GF-A0136139G[R]. 绵阳:中国工程物理研究院, 2009.
- [2] 卢艳,王和义,黄宁,等. 电离室测氡技术研究进展[J]. 核电子学与探测技术, 2012, 32(9): 1032-1037.
- [3] 陈志江,王中成. 基于流气式测氡电离室的便携式氡测量仪研制, GF-A9032220G[R]. 绵阳:中国工程物理研究院, 2019.
- [4] 陈细林,沈恩伟,魏可新,等. 用于辐射防护的空气中氡测量仪的校准实践[M]//中国原子能科学研究院年报. 北京:中国原子能出版社, 2012:246.
- [5] 洪永侠. 氡气流发生器系统同位素分馏系数实验研究[J]. 科技视界, 2015(23): 247-306.
- [6] 洪永侠,程瑛,漆明森,等. 气载氡监测仪现场校准技术[J]. 核化学与放射化学, 2016, 38(1): 38-42.
- [7] 吴甜甜,洪永侠,刘琢艺,等. 便携式氡监测仪现场校准装置设计[J]. 科技视界, 2020(5): 79-81.
- [8] 罗瑞,徐利军,叶宏生. 氡气标准气的研制[C]//第二届中国氡科学与技术学术交流会, 四川成都, 2017. 北京:中国化学会, 2017.
- [9] 毛用泽,卢建东. EJ/T 1077-1998 用于辐射防护的空气中氡的测量和监测设备[S]. 北京:中国核工业总公司, 1988.