

电离室型氚监测仪实验室校准技术

李 明, 徐利军, 毛娜请, 叶宏生, 罗 瑞, 林 敏

中国原子能科学研究院 计量与校准技术重点实验室, 北京 102413

摘要: 电离室型氚监测仪是监测空气中氚气浓度水平最重要的在线监测设备, 为解决国内流气式电离室型氚监测仪的量值传递问题, 开展了电离室型氚监测仪校准技术研究。根据质量流量方法建立氚监测仪的实验室校准装置, 通过控制充入校准装置标准氚气体积, 采用稀释法配制校准用的参考氚气, 用于对电离室型氚监测仪进行校准测试; 同时在研制的实验室校准装置上开展校准过程影响因素对校准结果影响研究; 采用实验室校准装置配制的参考氚气浓度的扩展不确定度为 $3.2\% \sim 3.6\%$ ($k=2$); SP1400 氚监测仪对活度浓度为 $3.10 \times 10^3 \sim 1.98 \times 10^5$ Bq/L 范围内氚气响应线性良好 ($r^2=0.9993$), 校准因子为 0.97, 标准合成不确定度为 $4.3\% \sim 5.0\%$ 。氚监测仪实验室校准装置可配制不同活度浓度的氚气, 对氚监测仪进行校准操作性较好, 易于推广, 准确度高。

关键词: 电离室; 氚监测仪; 实验室校准装置; 参考氚气; 影响因素

中图分类号: X85 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2023)03-0232-08

doi: 10.7538/hhx.2023.45.03.0232

Calibration Technology of Ionization Chamber Tritium Monitor

LI Ming, XU Li-jun, MAO Na-qing, YE Hong-sheng, LUO Rui, LIN Min

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(20), Beijing 102413, China

Abstract: The ionization chamber tritium monitor is the most important on-line monitoring equipment for monitoring the concentration of tritium in the air. In order to solve the problem of quantity value transmission, the calibration technology of ionization chamber tritium monitor was studied. The laboratory calibration device of tritium monitor is established according to the mass flow method. The reference tritium gas for calibration is diluted and prepared by controlling the volume of standard tritium gas filled into the calibration device. The prepared reference tritium gas is used to calibrate the ionization chamber tritium monitor. At the same time, the influence factors of the calibration process on the calibration results are studied on the developed laboratory calibration device; the expanded uncertainty of reference tritium gas concentration prepared by laboratory calibration device is $3.2\% \sim 3.6\%$ ($k=2$); when tritium activity concentration is $3.10 \times 10^3 \sim 1.98 \times 10^5$ Bq/L, the response linearity of SP1400 tritium monitor to tritium gas activity is good ($r^2=0.9993$), the calibration factor is 0.97, and the standard synthetic uncertainty is $4.3\% \sim 5.0\%$. The laboratory calibration device of tritium monitor can prepare tritium gas with different activity concentrations. The calibration method is simple to operate and easy to popularize, which

can meet the needs of tritium monitor calibration.

Key words: ionization chamber; tritium monitor; laboratory calibration device; reference tritium gas; influencing factors

核设施及部分放射性同位素生产场所均开展了空气中氚的监测,其监测结果将为事故工况及场所监测提供重要的分析数据^[1]。常用于工作场所的氚监测仪为流气式电离室型氚监测仪,可准确而有效监测涉氚场所中的气态氚浓度。中国核动力研究设计院洪永侠^[2-3]、吴甜甜^[4]等采用鼓泡法研制气载氚标准装置以产生氟化水蒸气混合气作为氚标准源对氚监测仪进行校准。由于氟化水蒸气的相态变化接近常温常压,所形成的饱和气态受外界(工作环境)温度压力的影响较大,一方面易形成冷凝态产生滞留效应,另一方面饱和气态不易控制导致活度浓度难以准确测量。中国辐射防护研究院冯梅等^[5]建立了氚活度浓度标准装置,采用不同容积的容量瓶(或组合),调节校准氚气的活度浓度值,完成仪器不同量程的校准。该方法配制不同校准氚气时,需要不断更换容量瓶,操作复杂,且存在辐射防护安全隐患。

根据相关标准^[6-7]规定,为保证测量结果准确性,需采用与待测对象相同的标准源对氚监测仪进行校准。本工作拟采用质量流量控制法建立实验室校准装置以产生参考氚气,开展氚监测仪校准方法研究;同时根据电离室测氚原理,开展校准回路内气体组分、湿度、压强以及氚记忆效应对校准结果影响的研究。

1 实验室校准装置的建立

1.1 氚监测仪工作原理

理想情况下,所有进入电离室灵敏体积的射线能量均用于电离室内工作气体,且产生的电离离子均被收集,这时电离室将输出饱和电流(I_s)信号。根据式(1)电离室内氚活度浓度可表示为:

$$C = \frac{I_s \bar{W}}{EVe\epsilon\eta} \quad (1)$$

式中: E ,氚衰变发出的 β 射线的平均能量,5.7 keV; I_s ,电离室收集到的饱和电流,A; C ,电离室内氚活度浓度,Bq/m³; V ,电离室的灵敏体积,m³; e ,电子电量, 1.6×10^{-19} C; \bar{W} 为单位离子对的平均电离功,eV; ϵ ,电离室内能量沉积效率; η ,电离室内离子收集效率。

1.2 校准原理

采用文献^[8]推荐方法设计氚监测仪校准装置,实现校准的最佳方法是将已知活度的含氚空气排放到一个可精确控制的体积中,再通过阀门调节以恒定流速通过待校装置,并循环足够长的时间,使测量达到平衡,记录平衡时的读数。校准因子的计算如式(2)所示。

$$K = \frac{A_0/V_{校}}{N_c - N_b} \quad (2)$$

式中: K ,校准因子; A_0 ,氚气标准源活度; $V_{校}$,校准回路的体积; N_c ,平衡状态下氚监测仪的活度浓度读数; N_b ,本底读数。

1.3 校准装置构成及工作原理

氚监测仪校准装置由本实验室自制^[9],由氚气标准源、干燥空气源、回路、可连接待校仪器接口、温度计、压力计、循环泵、真空泵、尾气处理系统等组成,如图1所示。

校准时,首先利用真空泵将校准回路内空气完全排出;标准氚气源活度已知,打开标准氚气前端减压阀,通过质量流量计控制向校准回路内充一定量的标准氚气;关闭氚气进气阀,打开空气进气阀,向校准回路内充空气至常压;关闭空气进气阀,将氚监测仪与校准回路连接,气体循环混合平衡后,记录氚监测仪响应值。

2 参考氚气的配制

2.1 主要试剂

标准氚气为自制,采用质量法多级稀释分装,利用自行研制的长度补偿型内充气正比计数测量装置对标准氚气进行定值,氚活度浓度为 $10^4 \sim 10^5$ Bq/L;英国国家物理研究所(NPL)提供的标准氚气活度浓度为 191.8×10^5 Bq/L(2018年8月);其他试剂均为分析纯,国药集团化学试剂有限公司。

2.2 校准回路体积的确定

校准装置经检漏合格后,对校准回路体积进行测定。根据校准原理,校准实验中氚气标准源的活度由充入校准装置内标准氚气源体积及活度浓度决定,虽然气瓶中氚气标准源的活度值是经过绝对测量的已知值,但接入校准装置后受体积

变化的影响,校准回路内氚气活度浓度值发生变化,因此校准回路体积 V 的准确测定极为重要。该体积包括校准管道、缓冲瓶、阀门间隙、氚监测仪电离室以及校准装置与氚监测仪连接软管等所有气体充斥的区域。

为了能够在较宽量程范围内对氚监测仪进行校准,需要在校准装置内实现不同浓度氚参考源的配制,由于氚气标准源活度浓度值为固定值,本工作采用量热法质量流量计控制氚气标准源充入体积,然后根据氚气标准源充入体积与校准回路体积

的比值,最终确定校准回路中参考氚气活度浓度。

因此测量过程中需要精确测定的体积包括两部分:氚气标准源充入体积和校准回路的体积。氚气标准源充入体积由经校准的质量流量计测得,校准回路的体积采用 $pVTt$ 法^[10](也叫气体标定法)和几何尺寸测量法测定。由于氚监测仪测试范围较广,选用两种不同量程的氚监测仪(SP1400 和 M347 氚监测仪,美国 OVEROFF 公司)作为被校仪器与校准装置组成校准回路,测定结果列入表 1。

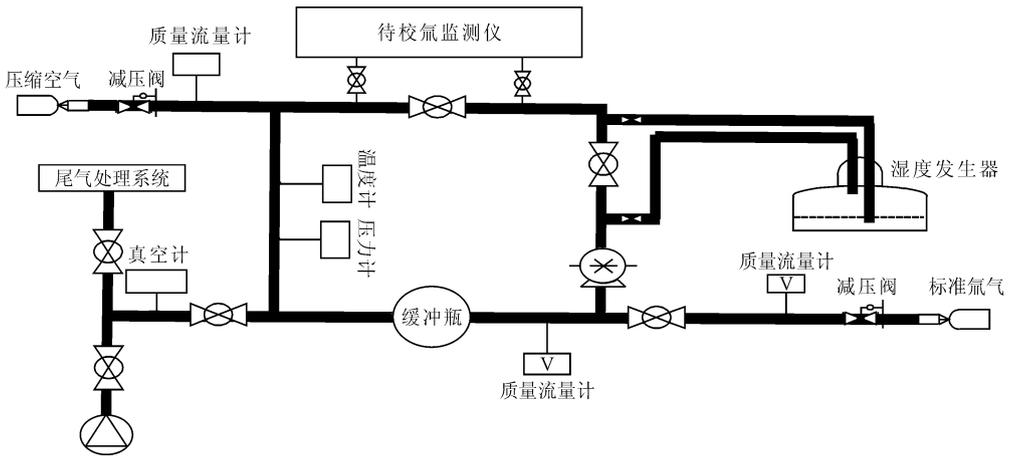


图 1 氚监测仪校准装置

Fig. 1 Calibration device of tritium monitor

表 1 校准回路体积

Table 1 Volume of calibration loop

氚监测仪型号	管路体积/cm ³	监测仪与校准装置连接管路体积/cm ³	电离室体积/cm ³	校准回路体积/cm ³
SP1400	7 167	14. 80	1 425	8 606. 80
M347	7 167	1 427	4 015	12 609

2.3 参考氚气活度浓度的计算

由于校准回路体积及质量流量计测得标准氚气源充入体积均为标准条件下(273. 15 K、101. 325 kPa)的体积,而在实际校准过程中,需要对温度、压力进行修正。实际校准条件下的参考氚活度浓度(C')按照式(3)计算。

$$C' = \frac{p_1}{101. 325} \times \frac{V_1}{V_{校}} \times C_0 \times \frac{273. 15}{\theta_1 + 273. 15} \quad (3)$$

式中: V_1 ,质量流量计记录的充入校准装置的氚气标准源体积,mL; $V_{校}$,校准回路的体积,mL; C_0 ,校准时氚气标准源活度浓度,Bq/L; p_1 ,校准回路内气体的压强,kPa; θ_1 ,校准回路内气体的温度,℃。

根据放射性衰变规律, C_0 的计算如下:

$$C_0 = e^{-\lambda t} C = e^{-t \ln 2 / T_{1/2}} C_{出厂} \quad (4)$$

式中: λ ,氚半衰期常数; t ,氚气标准源的衰变时间,a; $T_{1/2}$,氚的半衰期,12. 33 a; $C_{出厂}$,氚气标准源出厂活度浓度,Bq/L,本工作为 $191. 8 \times 10^5$ Bq/L。

首先对校准回路抽真空至 1 kPa,在真空条件(≤ 2 kPa)下将 $2. 36 \times 10^4 \sim 9. 68 \times 10^5$ Bq/L 放射性氚气标准源注入自行研制的氚监测仪实验室校准装置中,随后再向装置中注入干燥空气($\varphi = 79\% N_2 + \varphi = 21\% O_2$)至回路压力为常压,使装置内的氚气活度稀释到满足氚监测仪的测量范围,将注入的标准氚气与合成空气循环一定时间混合均匀后,计算此校准回路中氚气参考源的活

度浓度,由于氚监测仪测试范围较广,选用两种不同量程的氚监测仪作为被校仪器与校准装置组成校准回路,氚气参考源活度浓度计算结果列入表2。由表2可知:采用质量流量计控制标准氚

气的量,可以调节参考氚气的活度浓度值,标准氚气活度浓度值与回路中氚活度浓度标称值相比,利用校准装置进行参考氚气制备,稀释比可达8~600倍以上,满足仪器不同量程段的校准。

表2 氚监测仪实验室校准装置制备的氚气参考源活度浓度
Table 2 Activity concentration of tritium reference source prepared by laboratory calibration device of tritium monitor

氚监测仪型号	序号	标准氚气活度浓度/ (Bq · L ⁻¹)	标准氚气加入体积/mL	氚监测仪和校准回路总体积/L	回路中氚活度浓度标称值/ (Bq · L ⁻¹)
M347	1-1	2.36 × 10 ⁴	15.1	12.609	3.73 × 10 ¹
	1-2	9.68 × 10 ⁵	39.5	12.609	4.00 × 10 ³
	1-3	9.68 × 10 ⁵	112.6	12.609	1.14 × 10 ⁴
	1-4	9.68 × 10 ⁵	202.0	12.609	2.05 × 10 ⁴
	1-5	9.68 × 10 ⁵	404.4	12.609	4.10 × 10 ⁴
SP1400	2-1	8.91 × 10 ⁵	90.3	8.607	1.23 × 10 ⁴
	2-2	8.91 × 10 ⁵	179.0	8.607	2.45 × 10 ⁴
	2-3	8.91 × 10 ⁵	344.6	8.607	4.71 × 10 ⁴
	2-4	8.91 × 10 ⁵	815.6	8.607	1.11 × 10 ⁵

根据参考氚气源活度浓度计算公式(3)和(4)可得,参考氚气源活度浓度计算结果的不确定度主要由氚气标准源活度值的不确定度和校准回路体积不确定度引入。氚气标准源活度值引入的不确定度主要来自氚气标准源活度浓度量值和半衰期两方面。校准回路的体积由中国计量科学研究院协助测定,同时考虑体积测量受温度及压力影响,对温度及压力进行修正,因此包含温度计与压力计测量引入的不确定度。校准结果的不确定度评定列入表3。由表3可

知:采用 10⁴ Bq/L 量级的氚气标准源制备氚气参考源,氚气参考源活度浓度的标准合成不确定度为 1.59%;采用 10⁵ Bq/L 量级的氚气标准源制备氚气参考源,氚气参考源活度浓度的标准合成不确定度为 1.79%。

综上,在 20~25 °C、98.6~102.5 kPa 时,经过理论计算,采用活度浓度为 2.36 × 10⁴~9.68 × 10⁵ Bq/L 的标准氚气,可制备活度浓度为 3.73 × 10¹~1.11 × 10⁵ Bq/L 的氚气参考源,相对扩展不确定度(k=2)为 3.2%~3.6%。

表3 氚气参考源活度浓度不确定度评定
Table 3 Evaluation on uncertainty of activity concentration of tritium reference source

来源	不确定度分量	类型	相对标准不确定度/%	
			10 ⁴ Bq/L 氚气标准源	10 ⁵ Bq/L 氚气标准源
氚气标准源活度	氚气标准源的活度浓度量值	A	1.46	1.68
	流量计测量氚标准气体积	B	0.25	0.25
	半衰期	B	0.1	0.1
校准回路体积	回路体积的测量	A	0.55	0.55
	气体温度	B	0.05	0.05
	气体压力	B	0.18	0.18
			1.59% ¹⁾	1.79% ¹⁾
			3.2% ²⁾	3.6% ²⁾

注:1) 标准合成不确定度

2) 相对扩展不确定度(k=2)

3 校准过程影响因素研究

由电离室的原理可知,辐射离子均能使气体产生正离子和电子,当电离室用于氚的测量时存在着很多的影响因素,将影响电离室测氚的灵敏度、准确度、应用范围等,因此在本工作中对校准回路内气体组分、湿度、压强以及氚记忆效应对校准结果的影响开展研究。

3.1 校准回路内气体组分影响研究

气体组分的不同影响电离室中电离电流的产生,因此在校准过程中,对校准回路中不同气体组分对电离室响应影响进行研究。氚气标准源基质气体通常为氮气,在校准过程中,为与实际状况接近,通常配制参考氚气的基质气体为空气;另外,为对校准回路内氚气活度浓度进行验证,在校准回路中接入了正比计数管,正比计数管工作气体为氙气+甲烷($\varphi=10\%$)混合气体(简称 P10 气体)。因此选取三种不同的气体作为校准回路中的基质气体,分别加入同样体积的氚气标准气,考察 SP1400 氚监测仪在不同组分气体下对氚的响应,结果列入表 4。由表 4 可知:当气体组分为干燥空气和氮气时,基质气体种类对氚监测仪响应结果影响较小;当气体组分为干燥 P10 气体时,对氚监测仪响应结果影响较大。因为从电离室测氚原理可知,气体的平均电离功依赖于电离室内工作气体成分、辐射类型以及入射粒子能量。 β 射线在空气、氮气等气体中的电离能都很接近,大多数在 30 eV 左右,因此其产生的电离电流也就接近。因此在校准过程中选择空气或氮气作为氚气参考源基质气体均可行。而对于 P10 气体,则需要对测量结果进行修正。

表 4 校准回路内气体组分对 SP1400 氚监测仪响应结果的影响

Table 4 Influence of gas composition on response results of SP1400 tritium monitor

基质气体	活度浓度测量值/ ($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$)	\bar{W}/eV	饱和电流/ ($\text{pA} \cdot \text{Ci}^{-1}$)
干燥空气	1.67×10^3	36.0	0.930
干燥氮气	1.64×10^3	36.6	0.915
干燥 P10 气体	1.89×10^3	26.4	1.261

注:参考氚气活度浓度(C')为 $1.62 \times 10^3 \text{ Bq/L}$, $1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$

3.2 校准回路内气体湿度影响研究

根据亨利定律,溶解于饱和盐溶液中气体的

摩尔浓度在温度一定的条件下,和与之平衡的蒸汽气压成正比,气液两相中的水含量也会达到平衡。因此本工作采用对饱和盐溶液^[11]鼓泡的方法营造不同湿度环境,将校准回路内气体与饱和盐溶液营造的湿度环境气体通过充分平衡,在不同湿度条件下进行实验,之后再采用干燥空气多次吹洗法去除循环回路中残余氚及水蒸气,使氚监测仪本底降至 74 Bq/L ($2 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$)。

湿度实验结果列于表 5。表 5 结果表明,随着混合气体湿度的增大,同一氚活度下(校准回路中初始氚活度浓度为 $1.03 \times 10^3 \text{ Bq/L}$)氚监测仪净响应值($C_{\text{净}}$)逐渐降低,湿度对氚监测仪测量具有较大的影响,且为非线性关系。这归因于空气具有一定的湿度,不同的湿度含有的水分子数量不同,存在自吸收、H 同位素交换的影响。

表 5 不同饱和盐溶液湿度下 SP1400 氚监测仪的净响应
Table 5 Net response of SP1400 tritium monitor to activity under different humidity conditions

盐溶液	饱和盐溶液 理论湿度/%	相对 湿度/%	$C_{\text{净}}^{1)}/$ ($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$)
		0	1 063
LiCl	12	18.1	880
MgCl ₂	33	40.2	807
NaBr	59	66.0	697
NaCl	75	80.3	477

注:1) 该值为扣除本底后的响应值

2) 初始氚活度浓度为 $1.03 \times 10^3 \text{ Bq/L}$

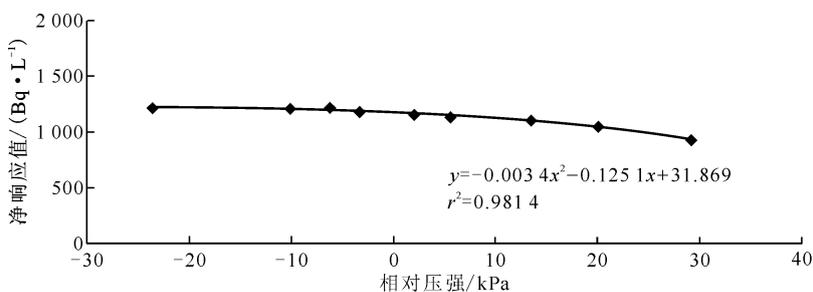
针对湿度对校准结果影响,在相对湿度 38% 条件下,对 SP1400 氚监测仪在不同活度浓度的氚气条件下进行响应实验,结果示于图 2。由图 2 可知:同一湿度下(相对湿度为 38%),SP1400 氚监测仪对活度浓度为 $9.5 \times 10^2 \sim 1.96 \times 10^4 \text{ Bq/L}$ 的氚气线性响应良好($r^2=0.9993$)。

3.3 校准回路内气体压强影响研究

对于一个确定的电离室,壁效应主要由电离室中的压强决定。陈志林^[12]在不同压强下对两个不同体积的电离室的壁效应进行了实验,结果表明,电离室内压强只要在一个标准大气压以上,电离室壁效应就基本忽略不计。

但是为了减少外界 γ 干扰,目前氚监测仪均具有 γ 补偿功能,由于补偿室内气体及压强已定,测量室中相对压强的变化也会对 γ 补偿造成一定的影响。因此以 M347 氚监测仪为研究

对象,通过调节校准回路中气压值,研究校准回路内气体相对压强对氚监测仪 γ 补偿能力在校准过程中的影响,便于今后用户在实际使用中对监测仪读数进行压强修正。实验结果示于图3。由图3可知:随着校准回路中的相对压强的逐渐增大,在同一氚气活度浓度下,M347氚监测仪的氚活度浓度测量值先保持平缓后逐渐降低。考虑到我国各地大气压值在58(西藏自治区-那曲)~101 kPa内,在该压强范围内M347氚监测仪受压强的影响较小,测量的氚活度浓度值无明显差异。



氚气活度浓度为 1.02×10^3 Bq/L

图3 不同相对压强下 M347 氚监测仪净响应值

Fig.3 Net response values of M347 tritium monitor under different relative pressures

3.4 校准回路内氚记忆效应影响研究

校准装置长期运行后,氚会吸附在校准回路及被校电离室的电极及器壁上,造成校准回路的氚污染,使得被校电离室测量值偏高,导致校准结果失真。因此,进行测量前需要将上次测量残留的氚影响消除。一般用空气浸泡冲洗校准与被校电离室来减低氚对校准装置及待校仪器的污染。将空气引入电离室后,由于氚浓度差异,吸附在电离室电极及器壁上的氚会自然扩散到空气中,使得氚污染程度降低,测量的本底值下降。

本工作在干燥的气路环境下,对校准回路中 1.2×10^5 Bq/L 的氚气通过初次监测后,通过多次洗涤^[13](抽真空-充空气至大气压)研究氚记忆效应对氚监测仪响应的影响,结果示于图4。由图4可知:洗涤6次之后可基本消除氚对监测仪电离室表面污染造成的记忆效应,从而为后续校准实验提供指导。

4 实验室校准及校准装置特性

4.1 实验室校准

本工作利用活度浓度为 $2.36 \times 10^4 \sim 8.91 \times$

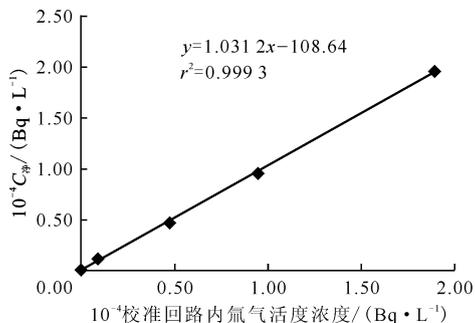


图2 相对湿度为38%时 SP1400 氚监测仪净响应值

Fig.2 Net response values of SP1400 tritium monitor under relative humidity 38%

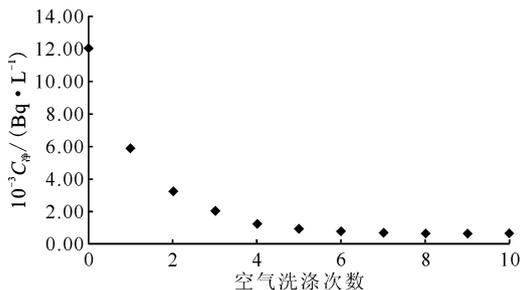


图4 氚记忆效应影响

Fig.4 Effect of tritium on memory

10^5 Bq/L 的氚气标准源,对 SP1400 氚监测仪在相同环境条件下对不同氚活度响应进行了实验。SP1400 氚监测仪量程为 $37 \sim 7.4 \times 10^5$ Bq/L。由于 SP1400 氚监测仪探测下限为 $1 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$,且存在本底扣除,在低量程段监测较困难,因此对 SP1400 氚监测仪进行校准实验时未对 $10 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$ 以下显示区段进行校准实验,校准结果列入表6,氚监测仪对不同活度浓度的氚参考源响应特性示于图5。由图5可知:在氚气活度浓度在 $3.10 \times 10^3 \sim 1.98 \times 10^5$ Bq/L,SP1400 氚监测仪具有良好的线性($r^2 = 0.9993$)。

表 6 SP1400 氚监测仪对氚活度浓度的净响应值

Table 6 Net response values of SP1400 tritium monitor to tritium activity concentration

标准氚气活度浓度/ (Bq · L ⁻¹)	标准氚气 加入体积/mL	回路中氚活度浓度 标称值/(Bq · L ⁻¹)	氚监测仪读数/ (μCi · m ⁻³)	测量本底/ (μCi · m ⁻³)	活度浓度测量值/ (Bq · L ⁻¹)	校准 因子
2.36 × 10 ⁴	242.6	3.10 × 10 ³	93.0	0	3.22 × 10 ³	0.92
8.91 × 10 ⁵	90.3	1.23 × 10 ⁴	350.2	2	1.27 × 10 ⁴	0.96
8.91 × 10 ⁵	179.9	2.45 × 10 ⁴	694.3	2	2.41 × 10 ⁴	0.95
8.91 × 10 ⁵	345.8	4.71 × 10 ⁴	1 311.7	2	4.92 × 10 ⁴	0.97
8.91 × 10 ⁵	814.9	1.11 × 10 ⁵	3 136.3	4	1.20 × 10 ⁵	0.96
8.91 × 10 ⁵	1 453.6	1.98 × 10 ⁵	5 531.5	6	2.04 × 10 ⁵	0.97

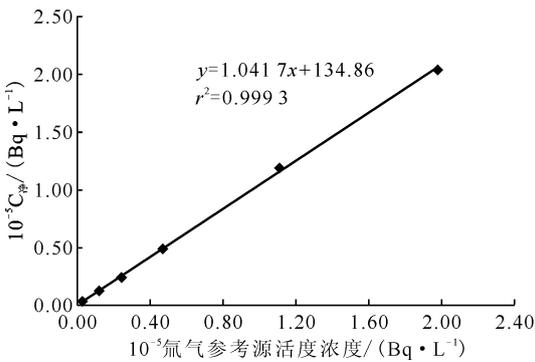


图 5 不同氚活度浓度下 SP1400 氚监测仪净响应值

Fig. 5 Net response values of SP1400 tritium monitor under different tritium activity concentration

4.2 校准方法验证

为了验证所建立的氚监测仪校准装置的可靠性,本实验对同一台氚监测仪(NPL 已校准的 SP1400 氚监测仪)进行校准。实验中分别利用实验室自研的氚气标准源(自定值)和 NPL 提供的标准氚气源,在该实验室校准装置上,配制相同量级活度浓度的氚气参考源对 SP1400 氚监测仪进行校准,统一修正到标准环境(273.15 K、101.325 kPa)下,通过比较校准系数来验证该校准装置的可行性,具体结果列入表 7。由表 7 可知:两种氚气标准源的校准因子相近,且均符合该设备最大允许误差 5% 以内的要求。从而验证了所建立的校准装置各项参数如校准回路体积、流量计流量的准确性和校准装置的可靠性。

表 7 SP1400 氚监测仪校准验证

Table 7 Verification of SP1400 tritium monitor

氚气标准源 来源	标准氚气活度浓度/ (Bq · L ⁻¹)	标准氚气加入 体积/mL	回路中氚参考源活度 浓度/(Bq · L ⁻¹)	活度浓度测量值/ (Bq · L ⁻¹)	校准 因子
NPL	1.66 × 10 ⁵ ¹⁾	528	1.35 × 10 ⁴	1.39 × 10 ⁴	0.97
自制	8.91 × 10 ⁵	90.3	1.23 × 10 ⁴	1.27 × 10 ⁴	0.96

注:1) 衰变修正到校准日当天

5 校准结果不确定度评定

根据校准因子的计算公式(2)可得,校准结果的不确定来源包括参考氚气源引入的不确定度(具体见表 3)、电离室型氚监测仪读数引入的不确定度。氚监测仪读数不确定度来源有示值稳定性、示值分辨率、量程段不确定度、仪器稳定性。

综上,依据 JJF1059.1-2012^[14],对于活度浓度为 40~10⁵ Bq/L 的氚气,校准结果具体不确定度评定结果列入表 8。由表 8 可知:标准合成不确定度为 4.3%~5.1%。

表 8 不确定度评定结果

Table 8 Results of uncertainty evaluation

不确定度来源	不确定度分量	评定方法	不确定度/%
参考氚气	表 3	B	1.59~1.79
氚监测仪读数	示值读数	A	0.011~2.51
	示值分辨率	B	0.4
	量程	B	4
	校准中测量重复性	B	0.47
			4.3%~5.1% ¹⁾

注:1) 标准合成不确定度

6 结 论

依据氚监测相关规定,基于质量流量控制法设计并建立了氚监测仪实验室校准装置。通过控制进入校准装置氚气标准源的活度,实现利用一已知活度浓度的氚气标准源可制备不同活度浓度的氚气参考源,稀释比可达8~600倍,可提供参考氚气源的活度浓度为 $3.73 \times 10^1 \sim 1.11 \times 10^5$ Bq/L,相对扩展不确定度为3.2%~3.6% ($k=2$),满足氚监测仪校准要求。

采用建立的实验室校准装置不仅可对单台氚监测仪进行校准,而且还可以串联方式对多台氚监测仪进行校准,同时还可在实验室校准装置上开展校准过程影响因素研究,从而为后续开展氚监测仪现场校准提供理论指导。

参考文献:

[1] 杨怀元. 我国核设施与环境氚的监测[J]. 辐射防护通讯, 1994, 14(3): 4-14.

[2] 洪永侠, 程瑛, 漆明森, 等. 气载氚监测仪现场校准技术[J]. 核化学与放射化学, 2016, 38(1): 38-42.

[3] 洪永侠, 吴甜甜, 程瑛. 气载氚监测仪校准技术研究[C]. 中国核学会 2015 年学术年会, 2015, 9 月 21—24 日, 绵阳. 2015: 11-15.

[4] 吴甜甜, 洪永侠, 刘琢艺. 便携式氚监测仪现场校准装置设计[J]. 科技视界, 2020, 5: 79-81.

[5] 冯梅, 韦应靖, 李德红, 等. 氚活度浓度标准装置的

建立[J]. 辐射防护, 2020, 40(4): 271-276.

- [6] 深圳市计量检测研究院, 福建省计量科学技术研究所. GB/T7165.5-2008 气态排出流(放射性)活度连续测量监测设备[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- [7] Phillips H, Dean J. Good Practice Guide 114: the examination, testing and calibration of tritium-in-air monitors for radiation protection[S]. UK: National Physical Laboratory, 2015.
- [8] International Electrotechnical Commission. IEC 60761-5 equipment for continuous monitoring of radioactivity in gaseous effluents: specific requirements for tritium monitors[S]. UK: British Standards Institute, 2002.
- [9] 李明, 徐利军. 一种氚监测仪实验室校准装置: 中国, ZL 2019 1 1344069. 5[P]. 2020-04-03.
- [10] 国家质量监督检验检疫总局. JJG619-2005 PVT_t法微小气体流量标准装置检定规程[S]. 北京: 中国标准出版社, 2005.
- [11] 郝光宗, 邢丽缘, 梁强威. 饱和盐水溶液湿度固定点(1): 原理及制备[J]. 传感器世界, 1999, 11: 1-4.
- [12] 陈志林. 氚工艺系统中测量氚电离室基础问题研究[D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2016.
- [13] 胡迭雨, 张学森. 高浓度氚测量中的记忆效应恢复技术研究[J]. 科技风, 2018(1): 209-210.
- [14] 国家质量监督检验检疫总局. JJF1059.1-2012 测量不确定度的评定与表示[S]. 北京: 中国标准出版社, 2013.