

新入网地震水氡观测仪校准方式研究

黄仁桂^{1,2} 赵影^{1,2} 李雨泽^{1,2} 宁洪涛² 周红艳²
毛华² 肖健² 肖孟仁^{1,2} 黄培³

1(江西九江扬子块体东部地球动力学野外科学观测研究站 九江 332006)

2(江西省地震局 南昌 330039)

3(东华理工大学 南昌 330013)

摘要 针对新入网模拟氡观测仪(人工)校准方式选择,按照JJG825—2013测氡仪国家计量检定规程,采用循环法、真空法和流气法三种校准方式进行实验和不确定度评定分析,获得适合新入网地震水氡观测仪校准的校准方法。结果表明:循环法校准闪烁室探测效率最高,影响因素较少,且适合人工和数字测氡仪的校准;真空法校准存在管路气体稀释标准氡气和气压平衡影响,造成真空法采样效率偏低,活度响应(R)偏大;流气法校准由于不断向闪烁室内充入新的氡气,影响闪烁室内氡气的动态稳定,且校准期间充氡气未排本底,造成活度响应(R)偏大且误差偏大。因此,从各项指标上比较,循环法比较适合新入网地震水氡观测仪校准,可为其他新入网水氡仪和氡仪的校准提供参考。

关键词 测氡仪, 水氡观测, 标准氡室, 体积活度响应系数

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.110402

Study on the calibration method of newly connected seismic water radon monitor

HUANG Rengui^{1,2} ZHAO Ying^{1,2} LI Yuze^{1,2} NING Hongtao² ZHOU Hongyan²
MAO Hua² XIAO Jian² XIAO Mengren^{1,2} HUANG Pei³

1(Observatory for Geodynamic of the East Yangtze Block in Jiujiang, Jiujiang 332006, China)

2(Jiangxi Earthquake Agency, Nanchang 330039, China)

3(East China Institute of Technology, Nanchang 330013, China)

Abstract [Background] The calibration of radon measuring instruments is the most important and key technical link to ensure the reliability and accuracy of radon observation data and plays a vital role in seismic monitoring and prediction. [Purpose] This study aims to obtain a calibration method suitable for the calibration of newly connected seismic water radon monitor according to the National Metrological Verification Regulations for Radon Meters (JJG825-2013), the calibration experiment is carried out for the analog radon observatory (manual), which is newly adopted by the seismic network, and the calibration method suitable for the seismic water radon observation is obtained. [Methods] Firstly, the FD-125 radon-thorium analyzer was used as the experimental instrument, the calibration experiments were carried out in the standard radon chamber by three calibration methods: circulation

国家自然科学基金(No.42274235)、地震科技星火计划(No.XH21017Y)、地震国家计量技术规范制修订计划(No.G2022004)资助

第一作者: 黄仁桂, 男, 1986年出生, 2013年于深圳大学获硕士学位, 主要从事地震氡观测技术与计量

通信作者: 周红艳, E-mail: 78340610@qq.com

收稿日期: 2023-03-10, 修回日期: 2023-08-13

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.42274235), Spark Program of Seismic Technology (No.XH21017Y), and Revision Plan for National Metrological Technical Specifications of Seismic (No.G2022004)

First author: HUANG Rengui, male, born in 1986, graduated from Shenzhen University with a master's degree in 2013, focusing on earthquake radon observation technology and metrology

Corresponding author: ZHOU Hongyan, E-mail: 78340610@qq.com

Received date: 2023-03-10, revised date: 2023-08-13

method, vacuum method, and flow-gas method. Then, the volume response coefficients of three methods were calculated, and the uncertainty sources and mathematical models were analyzed according to JJG825—2013 regulation. Measured values by internationally recognized standard AlphaGUARDPQ2000Pro radon meter were taken as theoretical references of radon concentration for radon chambers, hence the uncertainties of three calibration methods were obtained. **[Results]** The results show that the circulation calibration method has the highest detection efficiency and fewer influencing factors, and is suitable for manual and digital radon detector calibration. The vacuum calibration method is affected by the standard radon gas diluted by pipeline gas and pressure balance, resulting in low negative pressure sampling efficiency and high volume activity response coefficient R . As for the flow-gas calibration method, the continuous injecting of radon gas into the scintillation chamber affects the dynamic stability of radon gas in the scintillation chamber, and radon gas is not discharged to the background during calibration, resulting in the high volume activity response coefficient R and high intrinsic error. **[Conclusions]** The cyclic method is more suitable for the calibration of new seismic water radon observatories, and this study provides a reference for the calibration of other new water radon observatories and gas radon observatories.

Key words Radon measuring instruments, Water radon observation, Standard radon chamber, Volume activity response coefficient

氡是一种无色、无味、无臭且具有放射性的气体元素^[1],在地壳运动时会被释放出来^[2]。基于地壳中氡的释放特性,氡观测是我国地震观测台网中最重要的测项之一,应用于地震监测和预测^[3],在地震趋势分析和短临震情研判中发挥着重要作用^[4]。近年来,在国内外地震监测与预测领域备受重视^[5-8],用于测量氡浓度的测氡仪在地震监测预报中得到越来越广泛的应用^[9-10]。测氡仪的观测过程中,需要定期对仪器进行校准^[4]。校准是保证观测数据的可靠性与准确性的最重要、最关键技术环节,对利用氡进行地震监测、预报的效果具有至关重要的作用^[4,11-12]。长期以来,我国地震氡观测台网一直采用传统的固体氡气源校准。目前固体源出现不同程度的装置故障^[6,12],大部分装置已报废停止使用。由于高体积活度氡气固体源采购审批手续复杂,一旦购买后不但要长期接受放射性监管,而且国家放射性物质运输管理制度严格,给氡源的定期质检也带来极大困难^[4,13-16]。

为了推进地震氡观测技术的发展,中国地震局监测预报司把氡室的开发应用列为重点科技研究项目^[11],委托江西省地震局建立地震氡观测仪检测平台(标准氡室)^[16],对行业内在线观测和新入网测氡仪进行年度校准和定型检测。目前测氡仪校准方法有循环法、真空法和流气法三种方式,由于氡观测仪器检测平台建成不久,需要制定入网水氡观测仪校准相适应的操作规范,针对地震氡观测的测氡仪校准采用一种更适合的校准方法^[17],同时,为更好发挥地震氡观测仪检测平台效能,本文对将入地震氡观测台网的FD-125氡钍分析仪器进行校准方式研究,对三种校准方法进行实验对比,研究结果对制定新

入网地震水氡观测仪定型检测规范相关技术有实验参考作用,也可以验证地震氡观测仪检测平台的量值能否可靠地传递给氡浓度测量仪。

1 校准方法及计算介绍

氡室是20世纪80年代发展起来的装置,称为“氡环境试验装置”,配合国际公认标准器AlphaGUARDPQ2000Pro测氡仪进行监控,作为氡室理论参考氡浓度,按照JJG825—2013测氡仪国家计量检定规程对仪器校准环境进行要求,氡室调控温度(20±1)℃、湿度调控(30±2)%,实验室无影响正常工作的机械振动和电磁干扰^[18]。氡室在温湿度控制稳定后,进行氡浓度控制,箱体内达到目标浓度后平衡3h以上进行校准实验。氡室校准测氡仪以响应系数(R)、相对固有误差(不超过20%)和年偏离量(不超过20%)三个计量参数衡量校准结果是否符合规范要求。本次对新入网地震水氡观测仪进行检测,由于用FD-125氡钍分析仪器的闪烁室为首次校准,所以不做年偏离量计算,仅对闪烁室响应系数(R)和相对固有误差进行计算,为了适应地震氡观测台网需求,测氡仪体积活度响应在JJG825—2013测氡仪国家计量检定规程三个参考氡气体活度基础上增加三个高浓度进行校准测量,即分别稳定在800 Bq·m⁻³、1 500 Bq·m⁻³、3 000 Bq·m⁻³、6 000 Bq·m⁻³、10 000 Bq·m⁻³和15 000 Bq·m⁻³, R 值的相对固有误差按式(1)计算^[19]:

$$E_i = \frac{R_i - \bar{R}}{\bar{R}} \times 100\% \quad (1)$$

式中: E_i 为第*i*个测量点测氡仪响应系数的相对固有误差; R_i 为被检测氡仪在第*i*个测量点的响应系数; \bar{R}

为被检测氡仪响应系数均值。取各测量点中响应系数相对固有误差绝对值最大值作为被检测氡仪的相对固有误差。

在地震氡观测中,仪器需要读格值,使用同一套仪器,格值是一致的,即地震行业刻度闪烁室通常用校准系数 $K(R=K \times \text{格值})$, $K < 0.009 (R < 18.42)$ 满足规范要求, K 值按式(2)计算^[20]:

$$K = \frac{C_{\text{std}} V}{(N - N_0) \times 10^6} \quad (2)$$

式中: V 为闪烁室的体积,500 mL; N 为闪烁室的脉冲计数,脉冲 $\cdot \text{min}^{-1}$; C_{std} 为经过气压、室温后校准后的氡浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

被检测氡仪的体积活度响应取三个测量点的体积活度响应下的 K 值求平均值^[19],按式(3)计算:

$$\bar{K} = \frac{1}{j} \sum_{j=1}^j K_j \quad (3)$$

式中: V 为闪烁室体积,500 mL。本文用体积活度响应(R)代替校准系数(K)。

2 实验方法及分析

地震氡观测仪检测平台(标准氡室)主要包括温湿度调控氡箱(4 m³)、固体氡发生器、输补氡气路装置、降氡排放系统、氡室控制及管理系统和UPS电源,如图1所示。采用流气式固体氡发生器,在温湿度调控氡箱内提供持续稳定的氡浓度环境。实际上,氡室内氡气衰变、泄漏等导致浓度降低,平台控制系统通过间歇补充氡方式使氡室内氡浓度在一定误差(0.5%)范围内保持动态稳定^[21]。平台控制系统通过常量补充氡气方式,首次补充氡气后,氡气浓度稳定控制期间,使用氡标准参考仪器测定或系统理论计算的氡浓度值与氡室氡浓度期望值比较,当氡浓度值小于或等于期望值减去其误差下限时,系统自动开启氡发生器进行间歇补充氡气,保证标准氡室在校准实验期间保持相对稳定的氡浓度环境^[22-23]。

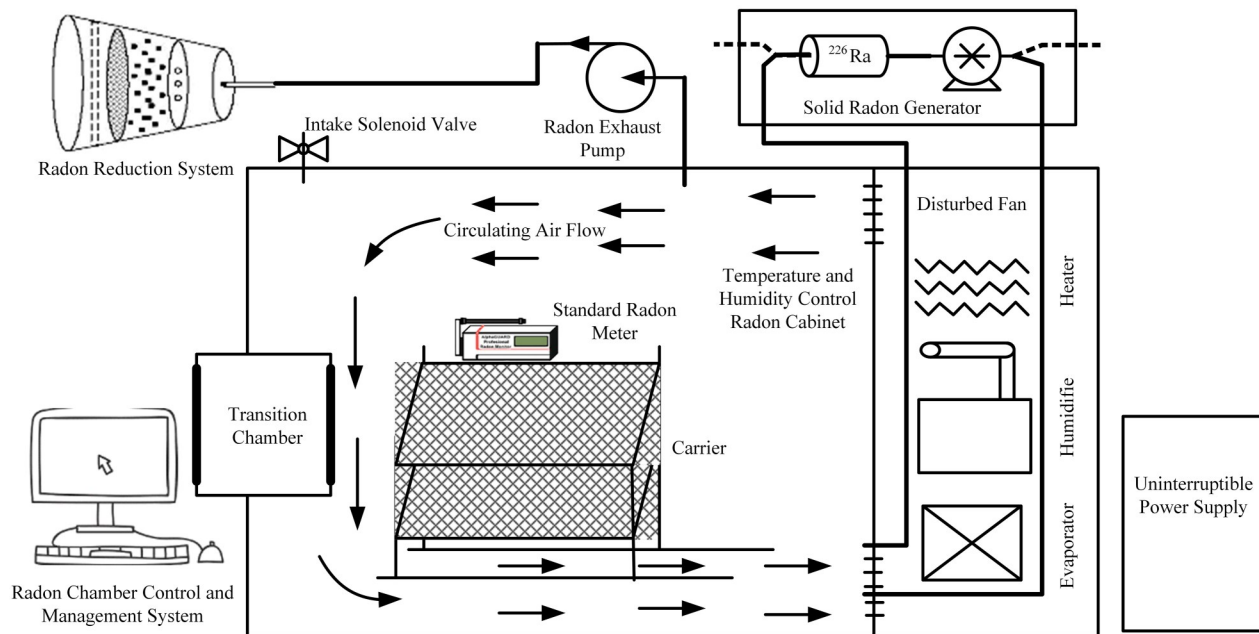


图1 地震氡观测仪检测平台(标准氡室)结构图
Fig.1 Structure diagram of seismic radon observation platform (standard radon chamber)

FD-125型氡钍分析仪亦称室内射线分析仪,与定标器配合使用能测量放射元素铀钍样品的射气,也能用于测定水样品及坑道中微量氡射气的浓度。闪烁室是两个内部涂ZnS(Ag)闪烁体的有机玻璃半球,圆盘上可同时安装三个闪烁室,其中一个位于光电倍增管的上端,是被测闪烁室,其他两个处于避光状态,等待测量,借助手柄改变圆盘上闪烁室的位置,这样可在不停机条件下,连续更换闪烁室样品,直至测量完毕^[22]。仪器选用新采购的中核(北京)核

仪器厂氡钍分析仪FH463B/FD125(024/026),选用4个闪烁室(编号分别为1802#、1803#、1804#、1805#)用于实验。实验开始前,对FH463B定标器进行了工作高压和阈值的确定,高压为-580 V,阈值为0.8圈,对4个闪烁室进行了密封性能检查和本底测量,保证实验仪器设备工作正常、性能良好。氡室内配备AlphaGUARDPQ2000Pro测氡仪,采用扩散法测量监控,测值作为理论氡参考浓度。分别采用以下三种方法进行实验:1)循环法校准是将已知的氡

气源和测氡仪通过橡皮管或者其他对氡吸附少的管子连接起来,形成循环密封系统,静置1~3 h,使得整个容器达到氡浓度平衡、均匀,再测量计算其校准系数^[21];2)真空法是将要校准的测氡仪容器抽成真空,再将其同氡气源连接,将已知浓度氡气缓慢吸入容器来测量,静置1~3 h,使得整个容器达到氡浓度平衡、均匀,再测量计算其校准系数^[21];3)气流法是将已知的氡气源和测氡仪连接起来,氡气定速进入容器进行实时测量,再计算其校准系数^[21]。

2.1 校准实验

体积活度响应是测氡仪定期校准参数,实验在地震氡观测仪检测平台(标准氡室)内6个相对稳定参考氡气体积活度从低到高依次进行实验。标准氡室到达目标浓度并稳定3 h后,取氡气进入闪烁室,根据地震地下流体观测方法中要求封闭静置1 h。本实验也采用选择取气封闭静置1 h,然后测量^[20],单次计数时间为10 min,连续测量三次取平均值。每次实验前对闪烁室进行本底测量,每次测量时间

10 min,连续测量三次,计数取平均值。

循环法是将闪烁室、气泵($1.3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$)、氡箱取气孔用气管连接,形成循环密封系统,打开开关K1、K2,启动气泵进行气体循环,记录气泵开启时间,循环10 min后关闭气泵,封闭闪烁室并记录时间,循环采样见图2(a)。

真空法是将闪烁室、真空表和真空泵连接,先打开K1,启动真空泵对闪烁室抽真空(3~5 min),观察真空表基本达到 -0.1 MPa ,关闭K1,缓慢打开K2,保持真空表指针匀速恢复10 min到常压,封闭闪烁室并记录时间,真空采样示意图见图2(b)。

气流法是将各个闪烁室、气泵($0.5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$)、氡箱取气孔用气管独立连接,形成气流,从开始启动氡室就连接上,一直连接,测量时把闪烁室放在定标器上测量,依次在氡室内6个参考氡气体积活度稳定3 h后下进行连续测量,连续单次计数时间为10 min,连续测量3次取平均值,气流法采样如图2(c)所示。

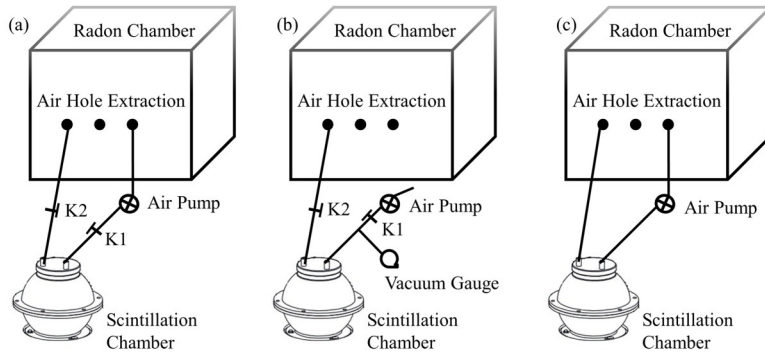


图2 氡室校准FD125闪烁室 (a) 串联循环采样,(b) 真空取气,(c) 气流法取气

Fig.2 Calibration of FD125 scintillation chamber with standard radon chamber
(a) Series cycle sampling, (b) Vacuum negative pressure gas extraction, (c) Flow gas extraction

2.2 结果分析

1)循环法各测量点闪烁室的响应系数 R 如表1所示,4个闪烁室在6个浓度下校准的 R 值小,采样效率高,均满足要求,相对标准偏差小于20%,校准测试结果均满足规程要求。各闪烁室各次校准相对误差看,循环法校准的响应 R 值比较小,即探测效率比较高。在理论氡参考浓度 $8\ 800 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右时响应 R 值较小,相对于其他浓度下的响应 R 值相对误差较大,查看实验日志,该浓度下进行循环时间超过10 min,为12 min左右,循环时间越久闪烁室氡覆盖越充分,即闪烁室探测效率越高。

2)真空法各测量点闪烁室的响应系数 R 如表2所示,1802#、1805#闪烁室相应 R 值和相对误差满足要求,1803#、1804#闪烁室都存在 R 值超过,各闪烁

室各次校准系数 R 较大,超出地震行业 R 值小于18.42的要求^[20],可能的原因是负压取样时,管道中存在少了的空气,标准氡气被稀释,造成探测效率比较低。

3)气流法各测量点闪烁室的响应系数 R 如表3所示,1803#闪烁室相应 R 值接近18.42,其他闪烁室都存在 R 值和相对误差满足要求。可能是各个闪烁室独立与氡室连接,其各自本底可能存在差异,造成各个 R 值出现偏差较大。在理论氡参考浓度 $5\ 500 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右时响应 R 值较大,相对其他浓度下的响应 R 值相对误差较大,而在理论氡参考浓度 $13\ 000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右时响应 R 值较小,相对误差也较大,经查实验日志,无其他影响因素。根据表3发现,响应 R 值变化规律,从低浓度到高浓度,各闪烁室响应 R 值总体趋势先增大后减小,理论氡参考浓

表1 循环法各测量点闪烁室的响应系数 R
 Table 1 Response coefficient R of scintillation chamber at each measuring point of cyclic method

闪烁室序号 Scintillation chamber number	理论氡参考浓度 Theoretical radon concentration / $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	本底计数 Background count N_0	测量点计数 Measuring points count N_i	响应系数 Response coefficient R_i	\bar{R}	各次校准相对误差 Relative error of each calibration / %
1 802#	782.29	17	593, 657, 588	12.86	12.30	4.60
	1 570.29	20	1 286, 1 296, 1 262	12.19		0.84
	3 028.57	23	2 358, 2 263, 2 326	12.94		5.21
	5 828.57	60	4 446, 4 616, 4 362	12.93		5.16
	8 818.28	28	8 210, 8 294, 8 157	10.54		14.28
	17 024.00	16	13 558, 13 566, 13 546	12.31		0.14
1 803#	753.71	23	509, 516, 530	14.90	14.03	6.19
	1 609.14	19	1 085, 1 090, 1 090	14.74		5.01
	3 069.71	30	2 109, 2 102, 2 131	14.43		2.79
	5 883.43	63	3 971, 4 081, 4 034	14.53		3.53
	8 754.29	25	7 540, 7 375, 7 405	11.56		17.61
	17 280.00	26	12 071, 12 085, 12 065	14.05		0.09
1 804#	773.14	19	580, 545, 549	14.05	13.79	1.87
	1 644.57	30	1 174, 1 138, 1 097	14.56		5.57
	3 033.14	54	1 943, 2 107, 1 945	15.28		10.79
	5 938.29	142	4 172, 4 316, 4 171	14.26		3.42
	8 859.43	35	7 565, 7 664, 7 658	11.43		17.15
	17 289.14	24	12 633, 12 876, 13 134	13.17		4.50
1 805#	785.71	23	672, 657, 660	12.02	11.74	2.44
	1 624.00	111	1 246, 1 308, 1 263	13.70		16.68
	2 946.29	93	2 489, 2 428, 2 614	11.94		1.70
	5 604.57	53	4 815, 4 809, 4 807	11.54		1.70
	8 722.29	39	9 142, 8 978, 9 084	9.46		19.40
	17 161.14	24	14 335, 14 144, 14 438	11.77		0.27

表2 真空法各测量点闪烁室的响应系数 R
 Table 2 Response coefficient R of scintillation chamber at each measuring point by vacuum method

闪烁室序号 Scintillation chamber number	理论氡参考浓度 Theoretical radon concentration / $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	本底计数 Background count N_0	测量点计数 Measuring points count N_i	响应系数 Response coefficient R_i	\bar{R}	各次校准相对误差 Relative error of each calibration / %
1 802#	883.43	20	525, 508, 588	16.63	17.40	7.08
	1 604.57	47	934, 940, 996	17.28		3.47
	3 177.14	55	1 756, 1 833, 1 890	17.57		1.84
	6 569.14	69	3 369, 3 640, 3 909	18.02		0.69
	11 702.86	58	6 072, 6 358, 6 376	18.46		3.12
	18 020.57	46	10 470, 10 594, 10 833	16.44		8.13
1 803#	945.71	14	432, 505, 508	19.81	18.99	4.27
	1 614.86	60	777, 892, 923	19.67		3.57
	3 136.00	29	1 652, 1 752, 1 811	17.969		5.40
	6 971.43	28	3 356, 3 397, 3 538	20.07		5.65
	11 702.86	33	5 778, 6 210, 6 190	19.02		0.13
	17 280.00	26	12 071, 12 085, 12 065	17.43		8.23
1 804#	948.00	12	458, 516, 441	20.20	19.03	6.23
	1 638.86	36	894, 866, 879	19.03		0.06
	3 117.71	33	1 572, 1 685, 1 799	18.48		2.80
	6 848.00	35	3 430, 3 524, 3 585	19.28		1.42
	11 629.71	25	5 660, 6 000, 6 210	19.20		0.99
	17 974.86	84	9 779, 9 753, 10 041	18.01		5.27
1 805#	958.29	26	581, 609, 591	16.54	16.75	1.32
	1 690.29	51	928, 986, 1 005	17.96		7.17
	3 028.57	27	1 882, 1 875, 1 910	15.93		4.92
	6 491.43	52	3 891, 4 002, 4 247	15.92		5.00
	11 849.14	28	6 768, 6 850, 7 413	16.62		0.80
	18 194.29	90	9 933, 10 135, 10 629	17.57		4.87

表3 流气法各测量点闪烁室的响应系数 R
 Table 3 Response coefficient R of scintillation chamber at each measuring point of flow-gas method

闪烁室序号 Scintillation chamber number	理论氡参考浓度 Theoretical radon concentration / $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	本底计数 Background count N_0	测量点计数 Measuring points count N_i	响应系数 Response coefficient R_i	\bar{R}	各次校准相对误差 Relative error of each calibration / %
1 802#	796.67	—	571, 544, 623	13.47	12.77	5.46
	1 589.33	—	1 243, 1 222, 1 258	12.54		1.79
	2 781.33	—	1 951, 2 020, 1 997	13.69		7.22
	5 445.33	—	3 990, 3 848, 3 911	13.62		6.63
	9 642.67	—	7 781, 7 777, 7 613	12.23		4.26
	13 770.67	—	12 256, 12 183, 12 087	11.08		13.26
1 803#	788.00	—	347, 368, 345	21.84	18.23	19.85
	1 480.00	—	858, 838, 850	17.08		6.29
	2 749.33	—	1 621, 1 584, 1 508	17.14		5.95
	5 674.67	—	2 662, 2 589, 2 611	21.21		16.36
	9 642.67	—	5 837, 5 656, 5 679	16.50		9.47
	13 184.00	—	8 304, 8 137, 8 420	15.58		14.50
1 804#	776.67	—	509, 527, 509	14.77	15.47	4.52
	1 494.67	—	929, 933, 981	15.45		0.14
	2 840.00	—	1 902, 1 869, 1 732	15.16		1.98
	5 632.00	—	3 149, 3 247, 3 087	17.45		12.80
	9 760.00	—	6 126, 6 172, 6 103	15.58		0.74
	14 122.67	—	9 617, 9 531, 9 678	14.40		6.91
1 805#	753.33	—	557, 608, 593	12.59	11.54	9.13
	1 542.67	—	1 383, 1 446, 1 394	10.73		6.97
	2 808.00	—	2 513, 2 493, 2 449	11.07		4.08
	5 813.33	—	4 176, 4 223, 4 269	13.66		18.35
	9 482.67	—	8 843, 8 506, 8 547	10.76		6.75
	13 461.33	—	12 843, 12 595, 12 513	10.42		9.67

度 $5\ 500\ \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右时处于中间测点, 闪烁室内的氡及其子体达到“动态稳定”需要时间更久, 即响应 R 值相对于其他测点误差较大。而在高浓度 $13\ 000\ \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右时, 浓度达到最高, 同时一直连接氡室, 补氡时间也最长, 探测效率达到最高, 即相对于其他浓度下 R 值误差也较大。

3 不确定度分析

在地震氡观测仪检测平台(标准氡室)提供稳定温度、湿度和氡浓度环境条件下, 依据 JJG825—2013《测氡仪检定规程》开展测量, 分析得到数学模型及不确定度来源。

3.1 数学模型

$$R = R_s \times \frac{\bar{N}}{\bar{N}_0} + \delta(W) \quad (4)$$

式中: R 为被检测氡仪校准因子; R_s 为标准氡体积活度测量仪校准因子; \bar{N} 为被检测氡仪读数平均值, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$; \bar{N}_0 为标准氡体积活度测量仪读数平均值,

$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$; $\delta(W)$ 为检定装置的年稳定性。

3.2 不确定度来源

标准氡室氡体积活度值的不确定度 u_1 ; 测氡仪测量响应重复性 u_2 ; 标准氡室的年稳定性 u_3 。

1) 标准氡室氡体积活度值的不确定度来源于标准氡体积活度测量仪校准因子的不确定度和标准氡室内氡体积活度的测量重复性。

a) 标准氡体积活度测量仪校准因子的不确定度引入的标准不确定度, 由检定证书给出:

$$u_{11} = \frac{U_{\text{rel}}}{k} = 5.3\% \quad (5)$$

b) 标准氡室内氡体积活度的测量重复性引入的标准不确定度, 采用 A 类评定获得, 在相同条件下, 用标准器对氡室给定氡浓度进行测量, 连续测量 10 次。标准氡体积活度测量仪读数平均值的相对实验标准差按式(6)求得:

$$s(N) = \frac{1}{\bar{N}} \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (N_i - \bar{N})^2}{n(n-1)}} \quad (6)$$

且标准氡室内氡体积活度的测量重复性引入的标准不确定度 $u_{12} = s(\bar{N})$ 。

则标准氡室氡体积活度值的不确定度引入的标准不确定度 u_1 为：

$$u_1 = \sqrt{u_{11}^2 + u_{12}^2} \quad (7)$$

2) 被检测氡仪测量不同浓度下校准结果响应重复性引入的标准不确定度采用 A 类评定获得, 根据相对标准偏差计算 u_2 。

3) 标准氡室的年稳定性引入的标准不确定度采用 B 类评定获得, 标准氡室的年稳定性小于 2%, 满

足均匀分布 ($k = \sqrt{3}$), 则区间半宽度 $a = 2\%$, 计算得 u_3 :

$$u_3 = \frac{a}{k} = 1.15\% \quad (8)$$

不确定度来源相互独立, 测氡仪校准因子测量结果的合成标准不确定度可按下式合成:

$$u_c = \sqrt{u_1^2 + u_2^2 + u_3^2} \quad (9)$$

测氡仪校准因子测量结果的相对扩展不确定度 $U_{rel} = ku_c$, 计算得到三种校准方法标准不确定度分量如表 4 所示。

表 4 三种校准方法不确定度评定(%)
Table 4 Evaluation of uncertainty of three calibration methods (%)

校准方式 Calibration mode	不确定度分量 Uncertainty component u_i			合成标准 不确定度 Synthetic standard uncertainty u_c	相对扩展 不确定度 Relative extended uncertainty U_{rel}
	标准氡体积活度测量结果 Standard radon volume activity measurements u_1	校准结果响应重复性 Calibration result response repeatability u_2	装置的年稳定性 Annual stability of the device u_3		
循环法 Circulation method	6.0	1.6	1.15	6.3	12.6
真空法 Vacuum method	6.2	1.3		6.4	12.8
流气法 Flow gas method	5.5	3.2		6.5	13.0

4 结论与讨论

FD125 氡钍分析仪采用三种校准方法校准结果活度响应 R 对比如图 3 所示, 可以看出, 应用氡室校准相同的闪烁室, 采用循环法校准要比真空法和流气法校准得到的响应系数 R 要小, 且相对固有误差能满足规范要求; 采用真空法静置 1 h 校准和流气法, 体积响应系数 R 已接近不合格。循环法校准比流气法校准相对稳定, 且 R 值一致性更好。

经分析得到: 真空法校准相对于循环法校准得到的 R 值偏大, 主要是真空法采样效率偏低, 存在影

响因素包括: 1) 管路气体对标准氡气的稀释, 真空法校准气路流向闪烁为单向, 气路的空气与氡气混合后稀释, 降低了与标准氡气氡浓度; 2) 存在气压平衡影响, 标准氡室内气压为常压, 闪烁室为负压, 10 min 内很难达到完全平衡。流气法校准相对于循环法校准得到的 R 值偏大, 且相对偏差较大, 主要原因有: 1) 流气法校准不断地向闪烁室内充入新的氡气, 闪烁室内的氡及其子体达到“动态稳定”; 2) 由于各闪烁室校准浓度依次从低到高, 校准期间未排本底, 可能有本底升高造成相对偏差加大。

针对新地震氡观测台网水氡观测仪开展不同采样方式校准实验和不确定度评定分析, 得出以下结论:

1) 根据地震水氡观测要求, 使用闪烁测氡仪进行测量水中氡浓度时, 采样方式应选择对应氡活度响应系数 R , 可以有效减少氡测量误差, 在地震氡观测中采样方式可能影响观测结果, 应在后续制定规范中进行进一步规定。

2) 通过循环法、真空法和流气法三种校准方法对比, 采用循环法(循环时间大于 10 min)静置 1 h 校准, 采样效率最高; 真空法效率最低, 流气法由于“动态稳定”造成偏差较大。目前地震氡观测台网氡钍分析仪 FH463B/FD125 测氡仪校准选择循环法(循

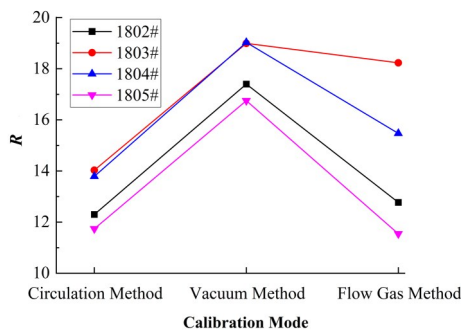


图 3 FD-125 测氡仪三种校准方法的结果对比
Fig.3 Results comparison of three calibration methods for FD-125 radon meter

环时间大于 10 min)效果最佳。

3)根据地震氡观测仪检测平台(氡室)给定温度、湿度和氡浓度环境条件下展开测量,建立测氡仪校准因子测量数学模型。分析校准结果的不确定度来源及合成标准不确定度,得到循环法、真空法和流气法相对扩展不确定度 12.6%、12.8% 和 13.0%,符合 JJG825—2013《测氡仪检定规程》要求,因此地震氡观测仪检测平台的量值能够可靠地传递给氡浓度测量仪。

作者贡献说明 黄仁桂负责研究的提出及设计、数据的收集和整理、文章的起草和最终版本的修订;赵影负责循环法校准实验,并对进行实验数据的收集;李雨泽负责真空法校准实验,并对进行实验数据的收集;宁洪涛负责流气法校准实验,并对进行实验数据的收集;周红艳负责三种校准方法实验数据处理和分析;毛华负责实验结果不确定的计算和分析;肖健负责课题项目的监督和管理;肖孟仁负责最终版本的修订;黄培负责研究结果绘图及英文翻译。

参考文献

- 李煜鑫,程亚平. 氡在地下水环境评估中的应用研究[J]. 地下水, 2023, 45(2): 4 - 7. DOI: 10.19807/j.cnki.DXS.2023-02-002.
LI Yuxin, CHENG Yaping. A study on the application of radon in groundwater environmental assessment[J]. Ground Water, 2023, 45(2): 4 - 7. DOI: 10.19807/j.cnki.DXS.2023-02-002.
- 刘磊,苏维刚,李霞,等. 2022年1月8日门源M6.9地震前青海地区逸出气氡异常特征分析[J]. 地震工程学报, 2022, 44(2): 380 - 388. DOI: 10.20000/j.1000-0844.20220210004.
LIU Lei, SU Weigang, LI Xia, et al. Anomaly characteristics of radon in escape gas in Qinghai area before Menyuan M6.9 earthquake on January 8, 2022[J]. China Earthquake Engineering Journal, 2022, 44(2): 380 - 388. DOI: 10.20000/j.1000-0844.20220210004.
- 黄仁桂,赵影,李雨泽,等. 地震氡观测计量溯源初步探究[J]. 地震, 2019, 39(2): 183 - 190. DOI: 10.3969/j.issn.1000-3274.2019.02.017.
HUANG Rengui, ZHAO Ying, LI Yuze, et al. Preliminary study on the traceability of the observation and measurement of radon for earthquake monitoring[J]. Earthquake, 2019, 39(2): 183 - 190. DOI: 10.3969/j.issn.1000-3274.2019.02.017.
- 任宏微,姚玉霞,黄仁桂,等. 地震监测氡观测仪器校准新方法研究[J]. 地震, 2016, 36(3): 46 - 54.
REN Hongwei, YAO Yuxia, HUANG Rengui, et al. A new calibration method of emanometer in earthquake monitoring[J]. Earthquake, 2016, 36(3): 46 - 54.
- Hofmann W, Arvela H S, Harley N H, et al. ICRU Report 88, Measurement and reporting of radon exposures[J]. Journal of the International Commission on Radiation Units and Measurements, 2012, 12(2): 1 - 191.
- Durrani S A. Radon concentration values in the field: correlation with underlying geology[J]. Radiation Measurements, 1999, 31(1 - 6): 271 - 276. DOI: 10.1016/S1350-4487(99)00105-5.
- Geller R J. Earthquake prediction: a critical review[J]. Geophysical Journal International, 1997, 131(3): 425 - 450. DOI: 10.1111/j.1365-246X.1997.tb06588.x.
- Takeuchi Y, Okumura K, Kajita T, et al. Development of high sensitivity radon detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1999, 421(1 - 2): 334 - 341. DOI: 10.1016/S0168-9002(98)01204-2.
- 黄仁桂,周红艳,任宏微,等. 基于流体力学设计地震气氡观测[J]. 深圳大学学报(理工版), 2019, 36(5): 531 - 537. DOI: 10.3724/SP.J.1249.2019.05531.
HUANG Rengui, ZHOU Hongyan, REN Hongwei, et al. Design of seismic gas radon observation system based on hydromechanics[J]. Journal of Shenzhen University (Science and Engineering), 2019, 36(5): 531 - 537. DOI: 10.3724/SP.J.1249.2019.05531.
- 张炜,邢玉安,邢如英. 地下水中氡含量离散度变化与地震的短临前兆[J]. 地震学报, 1987, 9(3): 312 - 318.
ZHANG Wei, XING Yu'an, XING Ruying. Variation of dispersion of radon content in groundwater and short-term and imminent precursors of earthquakes[J]. Acta Seismologica Sinica, 1987, 9(3): 312 - 318.
- 黄仁桂,肖健,李雨泽,等. 地震氡观测仪检测平台的设计初探[J]. 地震工程学报, 2018, 40(S1): 163 - 169.
HUANG Rengui, XIAO Jian, LI Yuze, et al. A preliminary study of the design of emanometer measurement platform in earthquake monitoring[J]. China Earthquake Engineering Journal, 2018, 40(S1): 163 - 169.
- 盛云峰,万骏. 用罐装氡气校准测氡仪的方法研究[J]. 辐射防护, 2017, 37(6): 472 - 475.
SHENG Yunfeng, WAN Jun. Study on the method for calibration of radon detector with canned radon[J]. Radiation Protection, 2017, 37(6): 472 - 475.

- 13 黄仁桂, 李雨泽, 赵影, 等. 地震氡观测仪野外比测系统主要性能测试[J]. 核电子学与探测技术, 2022, 42(6): 1108 - 1115. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2022.06.028. HUANG Rengui, LI Yuze, ZHAO Ying, *et al.* Main performance test of field comparison system of seismic radon observation instrument[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2022, 42(6): 1108 - 1115. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2022.06.028.
- 14 黄仁桂, 陈家兴, 许云廷, 等. 地震监测氡观测仪检测平台设计[J]. 中国计量, 2019(5): 85 - 88. DOI: 10.16569/j.cnki.cn11-3720/t.2019.05.031. HUANG Rengui, CHEN Jiaxing, XU Yunting, *et al.* Design of detection platform for radon observation instrument for earthquake monitoring[J]. China Metrology, 2019(5): 85 - 88. DOI: 10.16569/j.cnki.cn11-3720/t.2019.05.031.
- 15 黄仁桂, 罗齐彬, 姚玉霞, 等. 微型氡室应用于地震测氡仪校准实验[J]. 大地测量与地球动力学, 2020, 40(8): 865 - 869. DOI: 10.14075/j.jgg.2020.08.018. HUANG Rengui, LUO Qibin, YAO Yuxia, *et al.* Calibration experiment of earthquake radon measuring instrument using the miniature radon chamber[J]. Journal of Geodesy and Geodynamics, 2020, 40(8): 865 - 869. DOI: 10.14075/j.jgg.2020.08.018.
- 16 黄仁桂, 陈俊松, 周红艳, 等. 地震氡观测仪计量检定系统与实验分析[J]. 中国地震, 2019, 35(4): 666 - 675. HUANG Rengui, CHEN Junsong, ZHOU Hongyan, *et al.* Metrological verification system of seismic radon observation instrument and its experimental analysis[J]. Earthquake Research in China, 2019, 35(4): 666 - 675.
- 17 熊锐. HD-MIN 微型氡室控制系统的设计与实现[D]. 南昌: 东华理工大学, 2015. XIONG Rui. Design and implementation of HD-MIN miniature radon chamber control system[D]. Nanchang: East China Institution of Technology, 2015.
- 18 张雄杰, 张叶, 汤彬, 等. 密闭型氡室中放射性平衡变化规律的探讨[J]. 核电子学与探测技术, 2012, 32(2): 192 - 195. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2012.02.017. ZHANG Xiongjie, ZHANG Ye, TANG Bin, *et al.* The discussion on radioactive equilibrium variation in airtight radon chamber[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2012, 32(2): 192 - 195. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2012.02.017.
- 19 国家质量监督检验检疫总局. 测氡仪检定规程: JIG 825—2013[S]. 北京: 中国标准出版社, 2014. General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Radon measuring instruments: JIG 825—2013[S]. Beijing: Standards Press of China, 2014.
- 20 中国地震局. 地震水文地球化学观测技术规范[M]. 北京: 地震出版社, 2014. China Earthquake Administration. Technical specification for seismic hydrogeochemical observation[M]. Beijing: Seismological Press, 2014.
- 21 闫钊帆, 梁珺成, 杨志杰, 等. 标准测氡仪的量值溯源方法研究[J]. 计量学报, 2020, 41(2): 250 - 256. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2020.02.21. YAN Yifan, LIANG Juncheng, YANG Zhijie, *et al.* Research on the method of traceability the value of standard radon monitor[J]. Acta Metrologica Sinica, 2020, 41(2): 250 - 256. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2020.02.21.
- 22 张洋, 徐明, 孙高峰, 等. 氡室建标中几个技术问题的解决办法[J]. 计量学报, 2017, 38(2): 234 - 237. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2017.02.24. ZHANG Yang, XU Ming, SUN Gaofeng, *et al.* Solution of building the standard laboratory of radon[J]. Acta Metrologica Sinica, 2017, 38(2): 234 - 237. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2017.02.24.
- 23 杨志杰, 李则书, 侯胜利, 等. 氡子体体积活度的液体闪烁计数方法研究[J]. 计量学报, 2015, (3): 328 - 332. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2015.03.22. YANG Zhijie, LI Zeshu, HOU Shengli, *et al.* Research on the progeny volume activity measuring method of ^{222}Rn with liquid scintillation counting[J]. Acta Metrologica Sinica, 2015, (3): 328 - 332. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2015.03.22.