流气式低本底α/β测量仪的串道特征及干扰修正

李美丽 覃连敬 蒋 岚 郭小敏 梁贵渊
（广东省环境辐射监测中心 广州 510300）

摘要 研究了一系列α、β金属平面源、粉末源及薄层样法自制面源在流气式低本底α/β测量仪上的串道现象。结果显示：^{90}Sr-^{90}Y金属面源以及^{14}C、^{137}Cs、^{90}Sr-^{90}Y、^{40}K粉末源β对α通道的串道比均在0.1%以下，基本可以忽略不计；α金属平面源串道比大小规律表现为^{210}Po < ^{209}Po <^{239}Pu< ^{239}Pu-^{241}Am混合源 <^{241}Am，范围为3.49%~25.4%，发射不同能量粒子的α金属源的串道比差异较大。由于衰变过程产生的内转换电子、俄歇电子以及X射线等在β道产生响应，^{241}Am源的串道比明显高于其他源，^{241}Am粉末源的串道比随单位面积质量厚度增加而增大。α粒子对β通道的串道现象较明显，并与样品制源方式有关，主要是不同制源方式造成的自吸收差异导致的，总体有α粉末源串道比>薄层样法自制α面源>α金属平面源，测量时应重点考虑α粒子对β放射性的串道干扰。通过^{210}Po加标样及牡蛎样品经放化分析制成的电镀源验证，对待测样品源进行一定厚度的铝箔或纸片覆盖，可以有效的减小α粒子对β通道的串道干扰；也可以直接利用串道比对测量计数进行修正，此时需要考虑待测样品源和串道比刻度源的一致性，否则会导致修正结果的偏差较大。

关键词 流气式低本底α/β测量仪，串道干扰，串道比，金属平面源，粉末源
中图分类号 TL12
DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0090
引用该文：
李美丽, 覃连敬, 蒋岚, 等. 流气式低本底α/β测量仪的串道特征及干扰修正[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2024, **42**(2): 020701. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0090.
LI Meili, QIN Lianjing, JIANG Lan, *et al*. Crosstalk interference and correction methods for low background gas-flow proportional counter[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2024, **42**(2): 020701. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2023-0090.

Crosstalk interference and correction methods for low background gas-flow proportional counter

LI Meili QIN Lianjing JIANG Lan GUO Xiaomin LIANG Guiyuan
(*Guangdong Environmental Radiation Monitoring Center, Guangzhou 510300, China*)

ABSTRACT The crosstalk phenomenon and its influence in the determination of gross α and β radioactivity when using a low background gas-flow proportional counter as a measuring instrument was examined in this paper. The crosstalk ratio between α and β channel was measured by using a series of α, β metal planar sources, powder sources, and thin-layer surface sources. The β-to-α crosstalk ratio of ^{90}Sr-^{90}Y metal planar sources and powder sources containing ^{14}C, ^{137}Cs, ^{90}Sr-^{90}Y, or ^{40}K is less than 0.1%, which can be negligible. The crosstalk ratios of α metal planar

第一作者：李美丽，女，1988年出生，2014年毕业于华南理工大学应用化学专业，硕士研究生，主要从事辐射环境监测与化学分析工作，高级工程师
通信作者：覃连敬，高级工程师，E-mail: sysuqlj@163.com
收稿日期：初稿 2023-10-17；修回 2024-01-16
First author: LI Meili (female) was born in 1988, and graduated from South China University of Technology in 2014 with a master's degree in applied chemistry, mainly engaged in radiation environment monitoring and chemical analysis, senior engineer
Corresponding author: QIN Lianjing, senior engineer, E-mail: sysuqlj@163.com
Received 17 October 2023; accepted 16 January 2024

source in ascending order are ^{210}Po, ^{209}Po, ^{239}Pu, ^{239}Pu-^{241}Am mixed source, and ^{241}Am, which range from 3.49% to 25.4%. The crosstalk ratio of ^{241}Am is significantly higher than those of other sources. Furthermore, ^{241}Am powder sources' crosstalk ratio increases with mass thickness. The crosstalk of α particles to β channel is obvious and related to the sample source preparation method. This is mainly due to the difference in self-absorption due to different source preparation methods. Overall, the crosstalk ratio of α powder sources is larger than thin-layer surface sources and metal planar sources. The interference of α-to-β crosstalk should be considered. By covering the sample sources with aluminum foil or paper with a certain thickness, the crosstalk interference of α-to-β can be reduced effectively. Additionally, it is an effective way to directly correct the count rate by the crosstalk ratio. In this case, it is necessary to consider the consistency of the sample source to be measured and the crosstalk ratio scale source, as any discrepancies can lead to a significant deviation in the corrected result.

KEYWORDS Low background gas-flow proportional counter, Crosstalk interference, Crosstalk ratio, Metal planar sources, Powder sources

CLC TL12

低本底α/β测量仪是一种测量低水平α、β放射性活度的仪器，常用于测定样品中总α、总β放射性水平。由于不同粒子在介质中产生的电离密度和射程不同，它们在探测器中产生的脉冲高度也不同。一般地，α粒子与β粒子的能量差别很大，在探测器上产生的脉冲高度差别也很大，通过脉冲高度甄别，理论上可以完全区分α粒子与β粒子。但是由于空气、计数管窗口和源本身的吸收和散射使得粒子能量损失，以致部分α粒子产生的脉冲信号在β道产生计数，出现α和β峰叠加的现象。仪器对落入叠加区域的脉冲无法判断属于α或β，这就给测量结果带来了误差。由于α和β信号不能100%准确甄别，出现α信号计入β通道，或者β信号计入α通道的现象，称之为串道现象。通常用串道比来表征仪器测量时α与β通道之间的相互串道干扰程度，其大小关乎测量结果的准确性。ISO 10704—2019[1]和ISO 9697—2018[2]指出，在测量水中总β活度浓度时需要考虑α放射性对β通道计数的串道干扰，并要求使用^{239}Pu源校正仪器的串道干扰[2]。我国现行总α、总β放射性测定标准HJ 898—2017和HJ 899—2017也明确提出，若仪器同时测量α和β计数，且α(β)射线对β(α)道的串道比不能忽略时，应在计算总β(α)放射性活度时进行串道修正[3-4]。国内外使用的低本底α/β测量仪根据探测器的不同可分为三类：流气式正比计数器、固体闪烁探测器和半导体探测器。由于流气式正比计数器具有本底相对较低、探测效率高的特点[5]，目前，全国辐射环境监测机构普遍使用流气式低本底α/β测量仪进行α、β放射性测量。从工作原理上流气式正比计数器α射线对β道的串道干扰比固体闪烁探测器要明显[6-8]，ISO 9697—2018[2]明确指出，使用固体闪烁探测器和半导体探测器低本底测量仪可以忽略α射线对β道的串道影响，但是使用流气式正比计数器测量时则需要考虑α射线对β道的串道影响。因此，对流气式低本底α/β测量仪的串道干扰特征进行系统深入的研究是很有必要的。目前，关于低本底α/β测量仪串道的报道主要集中在仪器设计和研制上[5,9-11]，而串道干扰对测量结果的影响程度及干扰修正报道较少。Semkow等[12]对气体正比计数器的串道现象进行过报道。格日勒满达呼等[13]探讨了流气式正比计数器测量标准粉末源时的串道干扰现象。李周等[14]通过假设统计检验的方法研究了串道现象对测量结果的影响。欧频等[15]和唐桦明等[16]报道了固体闪烁探测器低本底α/β测量仪的串道现象。

本工作对一系列α、β金属平面源、粉末源及薄层样法自制面源在流气式正比计数器上测量时的串道现象进行了系统研究，总结了不同形态标准源的串道规律及特征，并验证了使用适当遮挡物覆盖样品源屏蔽α粒子或通过串道比修正的方法在消除串道干扰中的可行性，对低水平α、β放射性的准确测量具有积极参考意义。

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

MPC 9604型流气式低本底α/β测量仪，美国ORTEC公司生产，α本底<0.057 counts/min、β本底<0.75 counts/min，α面源(^{241}Am电镀源)探测效率(2π)≥42%，β面源(^{90}Sr-^{90}Y电镀源)探测效率

≥55%。

实验用到以下标准源：金属平面源（^{239}Pu、^{241}Am、^{239}Pu-^{241}Am、^{210}Po、^{209}Po、^{90}Sr-^{90}Y）；粉末源（^{241}Am、优级纯KCl、碳酸钙（^{14}C））；自制粉末源（碘铋酸铯（^{137}Cs）、碳酸锶（^{90}Sr-^{90}Y））；薄层样法自制面源（将标准溶液滴至不锈钢盘缓慢烘干制成，包括^{209}Po和^{242}Pu标准源）。

1.2 串道比计算

按《流气正比计数器总α、总β测量仪》（JJG 1100—2014）[7]检定规程，串道比是指仪器测量单一α或β标准源时，在β道或α道的计数与α道和β道的总计数之比。

对于α标准源，α射线对β道的串道比见式（1）。

$$\chi_{\alpha\to\beta}=\frac{n_{\alpha\to\beta}}{n_{\alpha\to\beta}+n_{\alpha}} \tag{1}$$

对于β标准源，β射线对α道的串道比见式（2）。

$$\chi_{\beta\to\alpha}=\frac{n_{\beta\to\alpha}}{n_{\beta\to\alpha}+n_{\beta}} \tag{2}$$

式中：$\chi_{\alpha\to\beta}$为α射线对β道的串道比；$n_{\alpha\to\beta}$为测量α标准源时，β道的净计数率；n_{α}为测量α标准源时，α道的净计数率；$\chi_{\beta\to\alpha}$为β射线对α道的串道比；$n_{\beta\to\alpha}$为测量β标准源时，α道的净计数率；n_{β}为测量β标准源时，β道的净计数率。

在同一探头上测量各种标准源，累计净计数不少于10 000，并根据公式（1）或公式（2）计算相应的串道比。

2 结果与讨论

2.1 β对α的串道影响

β金属平面源的串道比结果示于表1，β粉末源的串道比结果示于表2和图1。结果显示，β源的串道比范围为0~0.070%，均在0.1%以下，几乎可以忽略不计。^{90}Sr-^{90}Y金属面源测量时β射线对α通道的串道比结果与文献报道[5,14]相符。对于^{14}C、^{137}Cs和^{90}Sr-^{90}Y、^{40}K粉末源，随着β粒子的平均能量不断增大，串道比在单位面积质量厚度10~30 mg/cm^{2}范围内依次降低。β粉末源的串道比与单位面积质量厚度没有明显的线性关系。对^{90}Sr-^{90}Y源，金属平面源和粉末源两种不同形式的串道比差别不大。

表1 β金属平面源的串道比测量结果
Table 1 β -to-α crosstalk ratio for metal planar β sources

核素 Radionuclide	编号 Serial No.	活性区域直径 / mm Dimension of active surface	源强度（表面发射率）/ (min·2πsr)$^{-1}$ Surface emission rate in 2π steradian	串道比$\chi_{\beta\to\alpha}$ / % Crosstalk ratio $\chi_{\beta\to\alpha}$
^{90}Sr-^{90}Y	1	20	9.35×10^2	0.040±0.002
	2	20	1.15×10^3	0.042±0.002
	3	20	2.89×10^3	0.051±0.002
	4*	20	9.24×10^2	0.007 1±0.000 4

注：*，4为阳极氧化铝箔放射源，其余为电镀源。
Note: *, Number 4 is anodized aluminum foil radioactive source, the rest is electroplated sources.

表2 β粉末源的串道比测量结果
Table 2 β -to-α crosstalk ratio for β powder sources

粉末源 Powder source	核素 Radionuclide	β粒子平均能量 / keV Average energy of β	活性区域直径 / mm Dimension of active surface	串道比*$\chi_{\beta\to\alpha}$ / % Crosstalk ratio $\chi_{\beta\to\alpha}$
$CaCO_3$	^{14}C	49.5	20	0.060±0.002
$Cs_3Bi_2I_9$	^{137}Cs	174	20	0.042±0.002
$SrCO_3$	^{90}Sr（^{90}Y）	195.8（933.6）	20	0.016±0.001
KCl	^{40}K	560.18	20	0.004 0±0.000 2

注：*，粉末源的串道比为单位面积质量厚度10~50 mg/cm^{2}范围内的均值。
Note: *, The crosstalk ratio of powder source is the mean value in the range of 10~50 mg/cm^2 mass thickness.

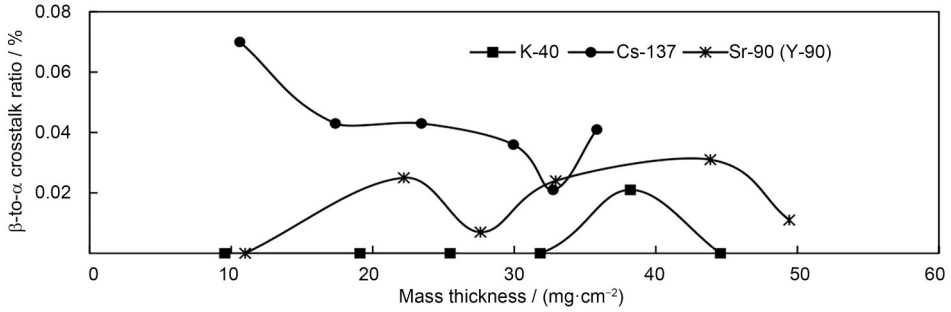

图1 不同质量厚度的β粉末源的串道比
Fig. 1 Crosstalk ratio of β powder sources with different mass thicknesses

2.2 α对β的串道影响

2.2.1 α金属平面源

^{209}Po、^{210}Po、^{239}Pu、^{241}Am及^{239}Pu-^{241}Am混合源等α金属平面源的串道比测量结果示于表3。α金属平面源串道比大小表现为：^{210}Po<^{209}Po<^{239}Pu<^{239}Pu-^{241}Am<^{241}Am，范围为3.49%~25.4%，这与文献[12]报道结果一致。发射不同能量粒子的α金属源的串道比差异较大，且粒子能量与串道比大小之间无明显规律，这种差异可能主要是由核素的放射性衰变特点决定的。由于α衰变过程产生的内转换电子、俄歇电子以及X射线的脉冲信号可能与β粒子脉冲无法区分，造成串扰和β道的错误计数[1,12]，另外流气式低本底测量仪对能量大于4 keV的X、γ射线和能量大于40 keV的电子都有响应，而^{241}Am衰变过程可产生内转换电子、俄歇电子以及X射线等，并在β道产生响应，所以^{241}Am金属源的串道比明显高于其他金属源。

^{209}Po源串道比略大于^{210}Po源，可能还与自制的^{209}Po金属源的物理特性如源的厚度及平整度有关，这些因素直接影响自吸收效应的大小。

表3 α金属平面源的串道比
Table 3 α-to-β crosstalk ratio for α planar standard sources

平面源 Planar source	主要辐射方式、辐射能量及分支比 Main radiations and decay energy	活性区域直径 / mm Dimension of active surface	源强度（表面发射率）/ (min·2πsr)$^{-1}$ Surface emission rate in 2π steradian	串道比$\chi_{\alpha\to\beta}$ / % Crosstalk ratio $\chi_{\alpha\to\beta}$
^{209}Po*	<α>4883 keV, 79.24% <α>4885 keV, 19.71% <α>4622 keV, 0.55% <γ>260.5 keV, 0.254% <γ>896.28 keV, 0.445%	23	/	3.77±0.27
^{210}Po	<α>5304 keV, 100%	35	2.188×10^{4}	3.49±0.11
^{239}Pu	<α>5157 keV, 70.77% <α>5144 keV, 17.11% <α>5105 keV, 11.94% <γ>12.975 keV, 0.034% <γ>51.624 keV, 0.027%	20	5.70×10^{2}	7.34±0.38
^{239}Pu-^{241}Am	/	20	^{241}Am：19.0 Bq; ^{239}Pu：16.1 Bq	17.50±0.89
^{241}Am	<α>5485 keV, 84.8% <α>5443 keV, 13.1% <γ>59.54 keV, 35.78% <γ>26.34 keV, 2.40%	20	3.72×10^{2}	25.4±1.3

注：*，^{209}Po源为^{209}Po标准溶液电镀在纯度99.99%的银片上得到的金属面源。
Note: *, The ^{209}Po source was prepared by electroplating ^{209}Po from a standard solution onto silver sheet with purity of 99.99%.

2.2.2 α粉末源

不同质量厚度的^{241}Am粉末源的串道比测量结果示于图2。总体而言，^{241}Am粉末源串道比较大，最高达38.2%，普遍比金属面源大；随单位面积质量厚度增加而增大；在单位面积质量厚度小于50 mg/cm^{2}时，5 cm直径的粉末源串道比大于3 cm直径源，随着单位面积质量厚度的增加，两者差距不断缩小。

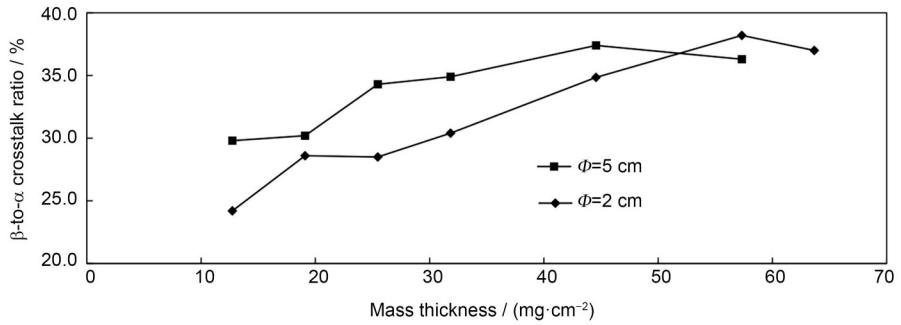

图2 不同质量厚度的^{241}Am粉末源的串道比
Fig. 2 Crosstalk ratio of ^{241}Am powder sources with different mass thicknesses

2.2.3 薄层样法自制α面源

薄层样法自制源是通过将标准溶液直接移液滴至不锈钢盘再缓慢烘干制成的。用移液枪分别移取一定量的^{209}Po、^{242}Pu标准溶液于2 cm直径的不锈钢盘中，尽量使溶液在不锈钢盘中分布均匀，在电热板或烘箱中缓慢烘干。从测量结果来看，在实验活度范围内，自制的^{209}Po源串道比整体上随活度的增加不断增大。由电热板烘干的源串道比略高，串道比范围为8.3%~15%；由烘箱烘干的源串道相对较小，其值范围在3.7%~9.2%。主要原因是在单位面积质量厚度相同的条件下不同处理方式得到的样品源表面规整程度不一致导致自吸收效应不一致。加热蒸干^{209}Po标准溶液时有明显残渣析出（与标准液体体系有关），电热板烘干的源因受热不均而表面凹凸不平，由于自吸收效应导致从源表面发射出来的α粒子能量范围较大；而烘箱烘干的^{209}Po源表面相对比较平整，α粒子自吸收较小，从而造成两种处理方式下串道结果有差异。利用^{242}Pu标准溶液做了小范围活度内的串道比测试。在0.5~1.6 Bq活度范围内，其串道比为6.5%~8.2%，且随着活度的增大串道比趋于稳定，这可能与制得的^{242}Pu源渣量很少，源表面非常平整，自吸收效应较稳定有关。

从自制^{209}Po源、^{242}Pu源串道比实验结果可以看出，薄层样法自制α标准源的串道比大于金属面源，这是由源的厚度、平整度等物理特性导致的自吸收差异造成的。

与β源不同，α源的串道比受制源方式的影响较大，串道比大小总体表现为α粉末源＞薄层样法自制α源＞α金属平面源，其根本原因是自吸收差异导致的。薄层样法的样品源被测物质的质量厚度一般小于1 mg/cm^2，基本可以忽略样品的α自吸收，但实际操作中样品厚度在样品盘内的均匀性不易控制，其自吸收效应大于金属平面源。粉末源的厚度及不平整度导致的自吸收效应更明显，使得α粒子能量损失，所以有更大比例的α粒子在β道产生脉冲信号。

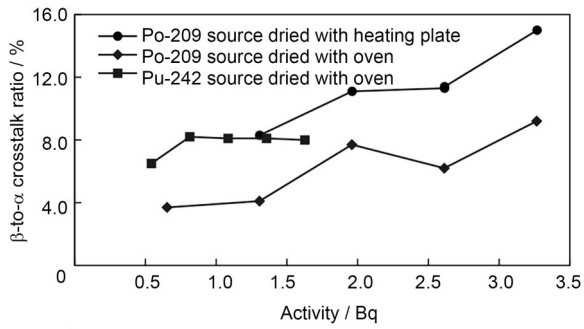

图3 薄层样法自制面源^{209}Po、^{242}Pu的串道比
Fig. 3 Crosstalk ratio of ^{209}Po and ^{242}Pu sources made by thin layer method

2.3 减小串道干扰的方法及验证

根据上述实验结果，β射线对α道的串道比在0.1%以下，基本可以忽略不计；α射线对β道的串道比较高，主要考虑α对β放射性测量的干扰。本文推荐样品源覆盖及计数率串道修正两种方法来减小α串道的干扰。

2.3.1 遮挡物覆盖样品源法

由于α粒子很容易被纸、铝箔等材料屏蔽，因此，可使用合适的遮挡物（如一定厚度的纸片或铝箔等）覆盖样品源，将α粒子屏蔽，减小α粒子对β通道的串道，从而减小对β放射性测量结果的影响，但会牺牲一定的β探测效率[12]。对不同的α金属面源，用铝箔或纸片覆盖后测量其α、β计数率，结果见表4。当铝箔厚度仅为0.016 7 mm时，^{239}Pu和^{209}Po金属源的β/α_0比值反而增大，这是由于α粒子经过覆盖物后能量急剧衰减，使得α粒子产生的脉冲与β粒子产生的脉冲无法区分，从而导致串入

β通道的计数比例增加；当铝箔厚度为0.033 4 mm或纸片为0.106 mm时，β/α_0比值急剧下降；继续增加铝箔或纸片的厚度，β/α_0比值不再明显下降，说明α粒子基本被阻挡完全，不再被探测器所探测到，串道的β计数率趋于稳定。对于^{241}Am源，由于衰变过程产生的内转换电子、俄歇电子以及X射线、γ射线等的贯穿能力较强，即使覆盖更厚的铝箔纸或片，β/α_0仍达3.43%。

表4　覆盖铝箔、纸片对串道的影响
Table 4　Influence on crosstalk of covering aluminum foil or paper

平面源 Planar source	不同铝箔厚度下的β/α_0值 / % β/α_0 value at different aluminum foil thicknesses				不同纸片厚度下的β/α_0值 / % β/α_0 value at different paper thicknesses	
	0	0.016 7 mm	0.033 4 mm	0.050 1 mm	0.106 mm	0.212 mm
^{239}Pu	7.92	8.41	0.58	0.50	0.68	0.50
^{241}Am-^{239}Pu	21.2	9.67	2.05	1.75	2.66	2.07
^{241}Am	34.1	10.9	3.88	3.43	5.03	3.89
^{209}Po	3.92	10.7	0.60	0.34	0.53	0.44

注：α_0为无覆盖时的α净计数率，β为β道的净计数率。铝箔厚度0.016 7 mm/层，质量厚度3.2 mg/cm^2；纸片厚度0.106 mm/层，质量厚度8 mg/cm^2。
Note: α_0 is the net count rate of alpha without covering. β is the net count rate of beta. The thickness of aluminum foil is 0.016 7 mm per layer, with mass thickness of 3.2 mg/cm^2. The thickness of paper is 0.106 mm per layer, with mass thickness of 8 mg/cm^2.

2.3.2　计数率串道修正法

已知样品净计数率和串道比，可推算出α粒子串入到β通道的份额或者β粒子串入到α通道的份额，经扣除相应份额后得到真实净计数率。当α净计数率明显高于β净计数率时，α粒子对β通道计数的串道影响不可忽视，此时真实的β净计数率可按公式(3)扣除由α串道引起的那部分计数贡献。

$$n_{\beta修正} = n_\beta - \frac{\chi_{\alpha\to\beta}}{1-\chi_{\alpha\to\beta}} \cdot n_\alpha \qquad (3)$$

式中：$n_{\beta修正}$为真实β净计数率；n_β为表观总β净计数率；$\chi_{\alpha\to\beta}$为α源的串道比；n_α为总α净计数率。

2.3.3　样品的测量应用及验证

加标样测量。为了验证遮挡物覆盖法对减小串道干扰的可行性，加入α放射性核素^{209}Po作干扰项进行^{210}Pb加标样的测量，自沉积后的铜片样品源用不同厚度的铝箔覆盖进行α、β计数，结果见表5。

表5　加标水样的样品源经铝箔覆盖前后^{210}Pb测量结果
Table 5　Measurements of ^{210}Pb in spiked water samples covering without and with aluminum foil

^{210}Pb加标量 / Bq ^{210}Pb added value		2.079	2.079	2.079	2.079
^{209}Po / Bq		0.0	2.083	4.166	8.333
覆盖铝箔	β净计数率/(count·min^{-1}) β Net count rate	51.010	52.334	58.113	63.600
（0 mm）	α净计数率/(count·min^{-1}) α Net count rate	35.993	72.391	103.502	184.457
Cover with Al foil	^{210}Pb测量值/Bq ^{210}Pb report value	2.18	2.24	2.49	2.72
(0 mm)	与理论值相对偏差/% Relative deviation	4.9	7.7	19.8	30.8
覆盖铝箔	β净计数率/(count·min^{-1}) β Net count rate	36.564	37.622	41.934	44.434
（0.033 4 mm）	α净计数率/(count·min^{-1}) α Net count rate	0.047	0	0.015	0.015
Cover with Al foil	^{210}Pb测量值/Bq ^{210}Pb report value	1.92	1.98	2.21	2.34
(0.033 4 mm)	与理论值相对偏差/% Relative deviation	−7.6	−4.8	6.3	12.6
覆盖铝箔	β净计数率/(count·min^{-1}) β Net count rate	36.481	37.284	41.234	42.921
（0.050 1 mm）	α净计数率/(count·min^{-1}) α Net count rate	0	0	0.019	0.015
Cover with Al foil	^{210}Pb测量值/ Bq ^{210}Pb report value	1.95	1.99	2.21	2.30
(0.050 1 mm)	与理论值相对偏差/% Relative deviation	−6.2	−4.3	6.3	10.6

从结果来看，不覆盖铝箔时，测量结果与理论值相对偏差最大达到30.8%，覆盖0.033 4 mm、0.050 1 mm厚的铝箔的情况下，测量结果与理论值相对偏差最大值可下降到12.6%和10.6%，可见，

通过样品源覆盖法将α射线屏蔽可有效减小α射线对β通道的串道干扰，减小测量误差。特别是当α计数率明显高于β计数率时，这种屏蔽α射线的方法能明显降低β放射性的测量误差。

上述^{210}Pb加标样进行计数率串道修正前后的测量结果见表6。修正前，随着干扰参数α净计数率增大，β净计数率也逐渐增大，^{210}Pb测量值受影响越明显，当α净计数率从35.993 count/min增大到184.457 count/min，测量结果与理论值相对偏差从4.9%增大到30.8%；而经计数串道修正后，^{210}Pb测量值与理论值相对偏差降为2.1%~16.6%。尽管进行了计数修正，随着α净计数率的增大，串道影响仍然无法完全消除，这可能是由于计算串道比的刻度源与实际样品源不一致导致的。

表6　计数率串道修正前后加标水样的^{210}Pb测量结果

Table 6　Measurements of ^{210}Pb in spiked water samples without and with crosstalk corrections

^{210}Pb加标量/Bq ^{210}Pb added value		2.079	2.079	2.079	2.079
干扰项	^{209}Po / Bq	0.0	2.083	4.166	8.333
interference	α净计数率 / min^{-1} α Net count rate	35.993	72.391	103.502	184.457
串道修正前	β净计数率 / min^{-1} β Net count rate	51.010	52.334	58.113	63.600
Crosstalk	^{210}Pb测量值 / Bq ^{210}Pb report value	2.18	2.24	2.49	2.72
uncorrected	与理论值相对偏差 / % Relative deviation	4.9	7.7	19.8	30.8
串道修正后	β净计数率 / min^{-1} β Net count rate	49.654	49.607	54.214	56.652
Crosstalk	^{210}Pb测量值 / Bq ^{210}Pb report value	2.12	2.12	2.32	2.42
corrected	与理论值相对偏差 / % Relative deviation	2.2	2.1	11.6	16.6

注：α对β通道的串道比$\chi_{\alpha\to\beta}$取3.63%。

Note: The α-to-β crosstalk ratio was 3.63%.

以上两种方法相比，当α净计数率高出β净计数率数倍的情况下，用遮挡物覆盖样品源屏蔽α粒子的方法减小串道干扰的效果更明显。

实际样品测量。对牡蛎干样进行湿法消解后分别参考EJ/T 859—1994（铜片自沉积法）[17]和D7535—2009（离子交换法）[18]进行^{210}Pb活度测量，测量结果示于表7。牡蛎样品中^{210}Po含量远远高于^{210}Pb，自沉积法制得的样品源存在^{210}Po及^{210}Pb的子体^{210}Bi，α串道对^{210}Bi的β计数测量干扰不可忽视。对待测样品源用铝箔或纸片覆盖后测量。

表7　样品源覆盖前后牡蛎样品中^{210}Pb的测量结果

Table 7　Measurements of ^{210}Pb in oyster samples covering without and with coverings

牡蛎样品 Oyster samples	自沉积法 Self deposition method			离子交换法 Ion exchange method	两种方法的相对偏差 Relative deviation of two methods	
	无覆盖/(Bq·kg^{-1}) No covering ^{210}Pb	覆盖物 Covering	覆盖/(Bq·kg^{-1}) With covering ^{210}Pb	^{210}Pb / (Bq·kg^{-1})	无覆盖 / % No covering	覆盖 / % With covering
JY1	0.67±0.18	铝箔	0.24±0.15	0.17±0.03	59.5	17.1
JY2	3.12±0.45	(0.033 4 mm)	2.94±0.36	2.73±0.55	6.7	3.7
ZJ1	0.50±0.12	Al foil	0.50±0.12	0.47±0.09	3.1	3.1
ZJ2	1.17±0.22	(0.033 4 mm)	0.33±0.23	0.38±0.08	51.0	−7.0
MM1	0.38±0.15		0.42±0.15	0.75±0.15	−32.7	−28.2
MM2	1.56±0.28		0.84±0.31	0.56±0.11	47.2	20.0
YJ1	0.29±0.13		0.37±0.13	0.39±0.08	−14.7	−2.6
YJ2	0.39±0.13		0.28±0.18	0.48±0.09	−10.3	−26.3
SW1	1.15±0.31	0.212 mm纸片	0.64±0.30	0.59±0.12	32.2	4.1
SW2	0.33±0.15	0.212 mm paper	0.31±0.20	0.45±0.09	−15.4	−18.4

从表7结果可见，自沉积法样品源无覆盖测量时两种方法的相对偏差的绝对值为3.1%~59.5%，通过覆盖物屏蔽α粒子后，两种方法的相对偏差的绝对值为3.1%~28.2%。经覆盖处理后，两种分析

方法测量结果更趋向一致。

串道干扰也可以通过串道比进行计数率修正来扣除。表8为β计数率修正前后计算得出的牡蛎样品中^{210}Pb结果，修正前后两种方法的相对偏差的绝对值分别为6.7%~47.2%和4.0%~29.7%。某些样品修正后两种方法相对偏差仍较大，一方面可能是样品活度太低计数误差大，另一方面可能是因为串道比的刻度源与样品源存在一定的差异。

表8　计数率串道修正前后牡蛎样品中^{210}Pb的测量结果

Table 8　Measurement results of ^{210}Pb in oyster samples without and with crosstalk corrections

样品 Samples	自沉积法 Self deposition method		离子交换法 / (Bq·kg^{-1})	两种方法的相对偏差 Relative deviation of two methods	
	修正前 / (Bq·kg^{-1}) Crosstalk uncorrected ^{210}Pb	修正后 / (Bq·kg^{-1}) Crosstalk corrected ^{210}Pb	Ion exchange method ^{210}Pb	修正前 / % Crosstalk uncorrected	修正后 / % Crosstalk corrected
揭阳牡蛎 Oysters in Jieyang	3.12	2.96	2.73	6.7	4.0
茂名牡蛎 Oysters in Maoming	1.56	0.31	0.56	47.2	−28.7
阳江牡蛎 Oysters in Yangjiang	0.39	0.26	0.48	−10.3	−29.7

3　结论

探究了一系列α、β金属平面源、粉末源、薄层样法自制面源在流气式低本底α/β测量仪的串道现象，结果表明：无论哪种形式的β源，β粒子对α通道的串道影响都很小，均在0.1%以下，基本可以忽略不计；^{14}C、^{137}Cs和^{90}Sr-^{90}Y、^{40}K粉末源的串道比与单位面积质量厚度没有明显的线性关系。发射不同能量粒子的α金属源的串道比差异较大，α金属平面源串道比大小规律表现为^{210}Po<^{209}Po<^{239}Pu<^{239}Pu-^{241}Am<^{241}Am，范围为3.49%~25.4%，这主要是由核素的放射性衰变特点决定的。^{241}Am衰变过程产生的内转换电子、俄歇电子以及X射线等在β道产生响应，因此，^{241}Am金属源的串道比明显高于其他金属源。^{241}Am粉末源的串道比随单位面积质量厚度增加而增大。α粒子对β通道的串道现象较明显，一般有α粉末源串道比＞薄层样法自制α源＞α金属平面源，这与制源方式不同导致的自吸收差异有关，应主要考虑α粒子对β放射性测量的串道干扰。

在实际环境样品总α、总β放射性测量中，一般情况下α放射性远低于β放射性，即使$\chi_{\alpha\to\beta}$串道比较大，α粒子串道造成的β计数增长也是极少的，此时可忽略α串道对β放射性测量的影响。当α净计数率明显高于β净计数率时，应当重点考虑α串道对β放射性测量结果的影响。通过^{210}Po加标样及牡蛎样品经放化分析制成的电镀源验证了对待测样品源进行一定厚度的铝箔或纸片覆盖，可以有效减小α粒子对β通道的串道干扰；也可以直接利用串道比对测量计数进行修正，此时需要考虑待测样品源和串道比刻度源的一致性，否则会导致修正结果误差较大。当α净计数率高出β净计数率数倍的情况下，用适当的遮挡物覆盖屏蔽α粒子的方法减小串道干扰的效果更明显。

作者贡献声明　李美丽负责实验分析、数据处理和论文撰写；覃连敬负责整体方案设计、实验指导和审核论文；蒋岚、郭小敏参与实验分析、数据收集过程；梁贵渊负责样品采集。所有作者均已阅读并认可该论文最终版的所有内容。

参考文献

1　International Organization for Standardization. Water quality—Gross alpha and gorss beta activity—test method using thin deposit: ISO 10704—2019[S]. London: BSI Standards Limited 2019, 2019.

2　International Organization for Standardization. Water quality—Gross beta activity—Test method using thick source: ISO 9697—2018[S]. London: BSI Standards Limited 2019, 2019.

3　中华人民共和国环境保护部. 水质总α放射性的测定 厚源法: HJ 898—2017[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2017.
Ministry of Environmental Protection. Water quality — determination of gross alpha activity — thick source method: HJ898—2017[S]. Beijing: China Environment Press, 2017.

4　中华人民共和国环境保护部. 水质总β放射性的测定 厚源法: HJ 899—2017[S]. 北京: 中国环境科学出版社,

2017.

Ministry of Environmental Protection. Water quality - determination of gross beta activity - thick source method : HJ899—2017[S]. Beijing: China Environment Press, 2017

5 宋家斑, 李小双, 陆小军, 等. 低水平α、β放射性测量仪器计量性能的测试分析[J]. 上海计量测试, 2019, **46**(2): 8-10. DOI: 10.3969/j.issn.1673-2235.2019.02.003.

SONG Jiaban, LI Xiaoshuang, LU Xiaojun, *et al*. Testing and analysis of low-level alpha and beta radioactivity measuring instruments' metering performance[J]. Shanghai Measurement and Testing, 2019, **46**(2): 8-10. DOI: 10.3969/j.issn.1673-2235.2019.02.003.

6 国家质量监督检验检疫总局. 低本底α、β测量仪: JJG 853—2013[S]. 北京: 中国标准出版社, 2013.

General Administration of Quality Supervision,Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Low background alpha/beta measuring instruments: JJG 853-2013[S]. Beijing: China Quality Inspection Press, 2013.

7 国家质量监督检验检疫总局. 流气正比计数器总α、总β测量仪检定规程: JJG 1100—2014[S]. 北京: 中国质检出版社, 2014.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Gas-flow proportional counter gross alpha and gross beta measuring instruments: JJG 1100—2014[S]. Beijing: China Quality Inspection Press, 2014.

8 蒋岚, 吴桂标, 张家俊. 我国相关标准水样总α、总β放射性分析方法应用中存在的问题及应对[J]. 辐射防护通讯, 2019, **39**(3): 33-36. DOI: 10.3969/j. issn. 1004-6356.2019.03.007.

JIANG Lan, WU Guibiao, ZHANG Jiajun. Problems and countermeasures in the application of water sample gross α and gross β radioactivity analysis methods in China's relevant stardards[J]. Radiation Protection Bulletin, 2019, **39**(3): 33-36. DOI: 10.3969/j. issn. 1004-6356.2019.03.007.

9 吕宁, 过惠平, 鲍卫红, 等. 大面积薄窗流气式正比计数器工作电压设置研究[J]. 核电子学与探测技术, 2014, **34**(9): 1123-1127. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2014.09.021.

LYU Ning, GUO Huiping, BAO Weihong, *et al*. Research on the working voltage setting method for a thin-window large areas flow gas proportional counter[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2014, **34**(9): 1123-1127. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2014.09.021.

10 兴雁, 吴炳麟, 龙成志, 等. 新型智能低本底α、β测量仪的研制[J]. 核电子学与探测技术, 2015, **35**(10): 998-1001. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2015.10.012.

XING Yan, WU Binglin, LONG Chengzhi, *et al*. A new intelligent low background α, β counting measurement system[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2015, **35**(10): 998-1001. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2015.10.012.

11 杨志杰, 梁珺成, 杨豪, 等. 新型低本底α/β测量系统设计[J]. 核电子学与探测技术, 2019, **39**(2): 228-234. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2019.02.021.

YANG Zhijie, LIANG Juncheng, YANG Hao, *et al*. The new design of a low background α/β measurement system [J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2019, **39**(2): 228-234. DOI: 10.3969/j. issn. 0258-0934.2019.02.021.

12 Semkow T M, Parekh P P. Principles of gross alpha and beta radioactivity detection in water[J]. Health Physics, 2001, **81**(5): 567-574. DOI: 10.1097/00004032-200111000-00011.

13 格日勒满达呼, 哈日巴拉, 许潇, 等. 探讨串道现象对饮用水中的总放射性测量结果的影响[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2014, **34**(10): 780-782. DOI: 10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2014.10.016.

Gerilemandahu, Haribala, XU Xiao, *et al*. Influence of crosstalk phenomenon on the measurement of gross alpha and gross beta radioactivity in drinking water[J]. Chinese Journal of Radiological Medicine and Protection, 2014, **34**(10): 780-782. DOI: 10.3760/cma. j. issn. 0254-5098.2014.10.016.

14 李周, 李鹏翔, 张静, 等. 串道现象对测量结果的影响[J]. 原子能科学技术, 2017, **51**(7): 1286-1289. DOI: 10.7538/yzk.2017.51.07.1286.

LI Zhou, LI Pengxiang, ZHANG Jing, *et al*. Influence of crosstalk phenomenon on measurement result[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2017, **51**(7): 1286-1289. DOI: 10.7538/yzk.2017.51.07.1286.

15 欧频, 郑雪婷, 谭敏瑜, 等. 闪烁体低本底α/β测量仪在饮用水总α与总β测定时的串道修正[J]. 核技术, 2021, **44**(9): 090202. DOI: 10.11889/j. 0253-3219.2021.hjs.44.090202.

OU Pin, ZHENG Xueting, TAN Minyu, *et al*. Crosstalk correction for determination of gross alpha and beta radioactivities in drinking water using a low background scintillation counter[J]. Nuclear Techniques, 2021, **44**(9):

090202. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.090202.

16 唐桦明, 张玮亮, 罗海恩, 等. 水中总α、总β放射性实验的影响因素及测量方法讨论[J]. 辐射防护, 2022, **42**(4): 301-306.
TANG Huaming, ZHANG Weiliang, LUO Haien, *et al*. Discussion on influential factors and measuring methods of total α and total β radioactivity in water[J]. Radiation Protection, 2022, **42**(4): 301-306.

17 中国核工业总公司. 水中铅-210的分析方法: EJ/T 859—1994[S]. 北京, 中国标准出版社, 1994.
China National Nuclear Industry Corporation. Determination of lead-210 in water: EJ/T 859—1994[S]. Beijing, Standards Press of China, 1994.

18 American Society for Testing and Materials (ASTM). Standard test method for lead-210 in water: D7535—2009 [S/OL]. (2024-01-04)[2024-01-16]. https://www.astm.org/d7535-09r15.html.