

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2020.05.023

低本底条件下氡及其子体的抑制研究

张 乐¹, 刘书魁², 林兴德², 幸浩洋², 朱敬军¹

(1. 四川大学原子核科学技术研究所 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064;

2. 四川大学物理学院, 成都 610064)

摘 要: 稀有事例的探测需要极低的本底, 氡及其子体是主要的本底来源之一. 文章根据地下实验室 1 725 m³ 液氮除氡需求, 设计了一套液氮除氡系统, 初步测试了 KC-6 系列活性炭在 -10~-120 ℃ 下的除氡效果. 实验结果表明, 误差函数能很好地拟合活性炭在不同温度下的穿透曲线. 拟合数据表明在 -10 和 -30 ℃ 下活性炭对氡的动力学吸附系数分别为 23.01 ± 0.33 和 58.68 ± 0.63 L/g. 有限的实验数据表明在 -120 ℃ 下没有氡溢出, 但是可以算出此时的动力学吸附系数已经大于 432 L/g. 文章中所得到的数据将为低放射本底液氮中氡的去除研究奠定基础.

关键词: 氡; 低本底; 活性炭; 液氮

中图分类号: O571.32 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2020)05-0975-05

Study on the inhibition of radon and its daughters
under low background conditions

ZHANG Le¹, LIU Shu-Kui², LIN Xing-De², XING Hao-Yang², ZHU Jing-Jun¹

(1. Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education,
Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China;

2. College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

Abstract: The detection of rare cases requires a very low background, and radon and its daughters are one of the main background sources. In this paper, a set of liquid nitrogen radon removal system was designed according to the demand for radon removal of 1 725 m³ liquid nitrogen in the underground laboratory, and the radon removal effect of KC-6 series activated carbon was preliminarily tested at -10~-120 ℃. Experimental results show that the error function can well fit the penetration curve of activated carbon at different temperatures. The fitted data shows that the dynamic adsorption coefficients of radon on activated carbon at -10 and -30 ℃ are 23.01 ± 0.33 and 58.68 ± 0.63 L/g, respectively. Limited data indicate that there is no radon overflow at -120 ℃. However, it can be calculated that the dynamic adsorption coefficient is already greater than 432 L/g. The data obtained in this paper could lay a foundation for the study of radon removal from low emission background liquid nitrogen.

Keywords: Radon; Low background; Activated carbon; Liquid nitrogen

收稿日期: 2020-04-15
基金项目: 国家重点研发计划“大科学装置前沿研究”重点专项“高纯锗阵列直接探测暗物质实验”课题三“高纯锗阵列液氮低温系统本底研究和控制”(2017YFA0402203)
作者简介: 张乐(1992-), 男, 河南驻马店人, 硕士研究生, 研究方向为辐射探测与信息获取. E-mail: zhangle0113@163.com
通讯作者: 朱敬军. E-mail: zhujingjun@scu.edu.cn

1 引言

稀有事例的探测,如无中微子双 β 衰变实验、暗物质探测实验,是非常重要的基础前沿物理研究. 无中微子双 β 衰变实验可以确定中微子是否为马约拉纳(Majorana)粒子以及轻子数是否守恒;暗物质探测实验则进一步的了解宇宙起源. 实现高分辨率,低本底,吨量级探测器是这类实验的发展趋势. 由于这类实验都需要极低的本底环境来提高实验的精度^[1],氦(^{222}Rn)及其短寿命子体是其重要的本底组成. 自然界三大放射系的存在,使得几乎所有的材料中都会或多或少的含有 ^{238}U 放射系的核素. 因此当探测器周围的材料屏蔽了外部辐射后,屏蔽材料中的氦及其子体就是主要的本底来源之一. 因此,在需要高灵敏度的探测系统中,通常都有氦的抑制系统^[2].

国际上抑制氦的本底干扰一般有以下三个途径:降低氦的析出、减弱氦的扩散、氦的移除和纯化. 前两个方面的解决途径就是选用低本底的材料和用电抛光的方法使材料的内壁光滑,或者用化学的方法给材料进行酸洗钝化,在材料的内表面形成一层致密的氧化膜,以减弱氦的扩散. 针对氦的移除和纯化,使用的方法有蒸馏、吸附和洗气. 在连续除氦的方法中,吸附是国际上低本底实验中最广泛的除氦方法之一. 美国 LUX-ZEPLIN 实验利用 Saratech 系列的活性炭成功地使液氦探测器中的氦活度降到了 1 mBq 以下,满足了实验的要求^[3]. 日本 XMASS 实验用 Shirasagi 系列的活性炭进行应用前的测试,发现在进行气-气循环时,活性炭能将每 700 L 的氦中的氦活度从 12 mBq 降到 1.3 mBq,与理论预期的一致^[4].

由清华大学牵头的中国暗物质探测实验(CDEX)合作组,在中国锦屏地下实验室进行暗物质探测实验,实验室上方的岩层厚度为 2 400 m,是目前世界上最深的地下实验室. 在未来的高纯锗阵列实验中把探测器浸泡在液氮中,盛液氮的容器是一个圆柱形不锈钢容器,其中液氮的体积大约为 1 725 m³. 为保证高纯锗有一个较低本底的工作环境,液氮中氦的纯化就成了一个关键的问题. 氦会源源不断的从不锈钢容器的表面释放出来,因此设计一个能连续稳定运行的液氮纯化系统就显得尤为重要. 通过理论计算,液氮罐里的液氮日蒸发量小于 2.6 m³,基于这个事实,把蒸发的氮气通过活性炭去吸附氮气中的氦,然后把纯化后的氮气

经过加压降温冷凝到液氮罐里,从而实现对液氮的纯化. 文章依据这一实际情况设计了一套原型实验装置,研究了连续通气的情况下,温度对活性炭除氦能力的影响,对以后地下实验室氮气循环净化系统的应用提供理论支撑.

2 实验原理

定量描述活性炭吸附氦能力大小通常用动力学吸附系数 $K_a(\text{L/g})$ 表示,即单位质量的活性炭在某一特定条件下能够处理的含氦气体的体积. 根据亨利定律,当氦在氮气中的含量很低,即其分压比较低时,单位质量的活性炭所能处理的含氦氮气的体积与氦浓度无关^[5]. 前人的研究发现,活性炭的动力学吸附系数通常与温度有较为明显的依赖关系,温度越低,活性炭的吸附效果越好,即 K_a 越大^[6-7]. 还有研究表明,活性炭的吸附能力还与其所处环境的压强有一定的关系,压强越大, K_a 越大^[8]. 另外,在载流气体以一定的速率经过活性炭,气流不是很大时(0.06~0.14 m/s)时,活性炭对氦的吸附能力基本没有影响,在气体流速很低时,活性炭对氦的吸附能力会由于扩散作用而下降.

实验上测量活性炭动力学吸附系数的方法一般有三种:静态平衡法,脉冲进气法和连续进气法. 静态平衡法是将已知浓度的含氦气体通入装有活性炭的密闭容器中,密封一段时间,然后测量稳定后含氦气体的氦浓度水平,计算动力学吸附系数. 该方法测量原理简单,操作方便,但是实验没有考虑到氦的衰变所带来的影响,适合对精度要求不太高时活性炭动力学吸附系数的测量.

脉冲进气法和连续进气法共同的理论基础都是塔板理论^[9]. 脉冲进气法也称为时刻分析法. 将高氦氮气注入装有活性炭的容器中,控制脉冲的时间,其出口端的氦浓度可用下式表示:

$$y\left(\frac{t}{\tau}\right)=\frac{\alpha n^n}{(n-1)!}\left(\frac{t}{\tau}\right)^{n-1}e^{-n\frac{t}{\tau}} \tag{1}$$

其中 α 表示注入的氦浓度值, τ 表示含氦气体在活性炭床的穿透时间,即活性炭开始吸附到其半穿透的时间, t 表示测量时间, n 表示活性炭的等效理论层数,无量纲. 通过测量出口端氦浓度的变化曲线,可以得到穿透时间 τ . 进而采用下式得到活性炭的动力学吸附系数:

$$\tau=\frac{K_a \times m}{f} \tag{2}$$

式中, m 表示活性炭床的质量, f 表示含氡气体的流量. 该方法考虑到了氡在活性炭中的衰变, 能够准确地得到活性炭的动力学吸附系数, LUX 合作组就是用此方法测量活性炭的动力学吸附系数的.

连续进气法是将稳定浓度的含氡氮气以一定的气流比速通过装有活性炭的炭床. 该方法也是连续测量出口端含氡气体的氡浓度变化. 由穿透理论可知, 该方法测量的穿透曲线将是一条“S”型曲线, 然后对曲线进行误差拟合得到穿透时间 τ . 利用(2)式即可得到 K_a . 连续进气法的优势是实验方法简单, 紧贴工程应用中的实际情况, 也得到了广泛的应用. 本实验将采用连续进气法在不同的条件下测量活性炭对含氡氮气吸附能力的影响.

3 实 验

3.1 实验器材

活性炭: 北京科诚光华活性炭有限公司生产的 KC-6 系列的椰壳活性炭, 其相关指标如表 1.

表 1 KC-6 的参数指标

Tab. 1 Parameters of KC-6

粒度/目	粒径/mm	堆积密度/ ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$)	比表面积/ ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)
10 ~ 20	0.4 ~ 3	0.4 ~ 0.55	900 ~ 1 300

氡源: 活度为 13 kBq 的 ^{226}Ra 源, 由于该源是在极其干燥的环境下使用的, 导致其释放率只有 60%, 故而不同流量下, 氡浓度的实际值比理论值低;

流量计: 成都莱峰科技有限公司, 流量调节范围 0.00~5.00 L/min;

压力表: 成都中阳实业公司;

温度计: 厦门宇电自动化科技有限公司;

烘烤箱: 四川山立低温设备有限公司, 温度调节范围: 室温~399 $^{\circ}\text{C}$.

测氡仪: 美国 DurrIDGE 公司, RAD7 测氡仪;
此外, 所有连接管道均为 304BA 管, 使用前均用了 15% 的 HNO_3 +1.7% 的 HF 溶液酸洗两个小时 15% 的 HNO_3 溶液钝化 30 min, 然后分别用去离子水洗净和氮气吹干.

3.2 实验流程

实验流程图如图 1 所示:
实验前先将活性炭用去离子水洗两遍, 去除里面的粉末. 然后将洗好的活性炭放在烘烤箱中以 120 $^{\circ}\text{C}$ 的温度烘烤 8 h, 烘干后称重量记录, 装入活

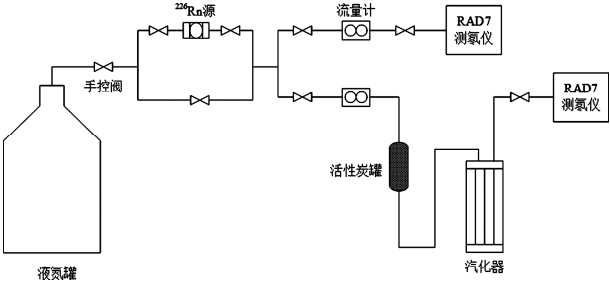


图 1 连续进气法活性炭除氡示意图
Fig. 1 Schematic of radon removal by activated carbon with continuous air intake

性炭罐中, 把活性炭罐装入烘烤箱中并将活性炭罐接入高纯氮气瓶中通气 8 h, 期间保持烘烤箱的温度不变. 为了在实验的时候保证氡浓度的稳定, 氡源在使用的前一天保持排气 1 h, 第二天再排气 1 h, 这样在做实验的时候出口端氡浓度就是稳定的. 但出于节省时间的考虑, 在未进行实验时也一直保持通气. 活性炭处理完成后装入温控敞口罐中, 其设计图及实物图如图 2a, 图 2b 所示.

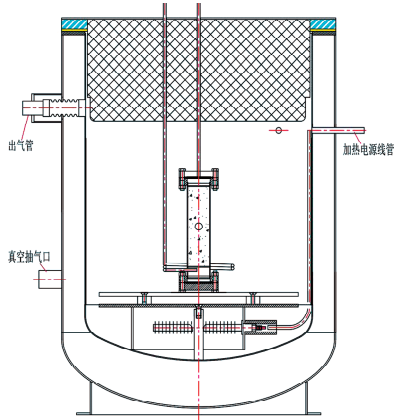


图 2a 温控敞口罐设计图
Fig. 2a Design drawing of temperature controlled open tank

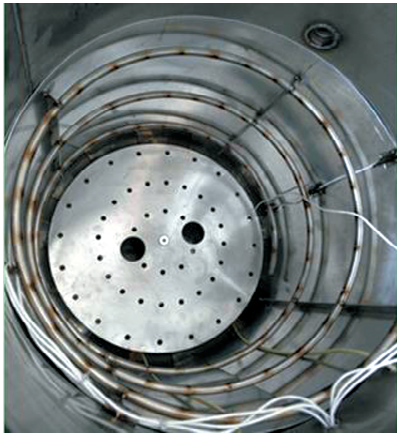


图 2b 温控敞口罐实物图
Fig. 2b Real figure of temperature controlled open tank

图中网格部分为绝热层,敞口罐底部有加热系统,内壁周围盘了一根螺旋状的不锈钢管道,其上面开有很多小孔,其目的是使液氮能够均匀的喷淋在敞口罐内,让内部的温度均匀降下来. 敞口罐内部的温度由外部的温控系统控制,误差在 $\pm 2\text{ }^{\circ}\text{C}$ 之内. 当敞口罐内部的温度高于所设定的温度时,打开电磁阀,液氮点喷进入敞口罐;当温度达到设定温度时,关闭电磁阀. 由于活性炭的传热性能比较差,活性炭内部的温度达到所设定的温度相对于碳罐达到所设定的温度有短暂的延迟. 在采数前为了保证活性炭的工作温度达到所设定的温度,根据之前的测试经验,在炭罐达到所设温度之后,停留 5 min 就能保证活性炭达到所设定的温度. 在装置的出口端连接测氢仪,由于使用连续吹气法测量活性炭的动力学吸附因子,因此在使用测氢仪时应将其内部的泵关闭,并调成 sniff 模式,调成 sniff 模式是为了降低测量误差. 一切准备就绪后,打开相应的阀门,并开启测氢仪. 测量后的原始实验数据导入到电脑中进行处理.

4 结果与讨论

为了确定活性炭合适的工作质量,首先测量了 19.6 和 43.6 g 的活性炭在 $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下的穿透曲线,其结果如图 3、4 所示:

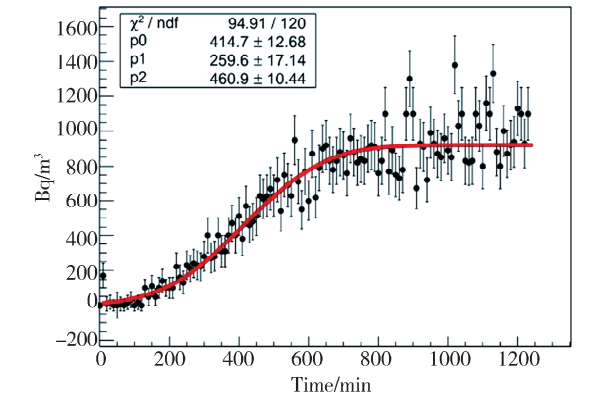


图 3 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 19.6 g 活性炭的穿透曲线
Fig. 3 The penetration curve of activated carbon at 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 19.6 g

通过用误差函数对以上的数据拟合得到在 $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的情况下,19.6 和 43.6 g 活性炭对氢的动力学吸附系数分别为 $21.16\pm 0.65\text{ L/g}$ (19.6 g), $24.95\pm 0.26\text{ L/g}$ (43.6 g). 结果表明,在实验误差允许的情况下,使用 20 g 以上的活性炭就能满足实验需求.

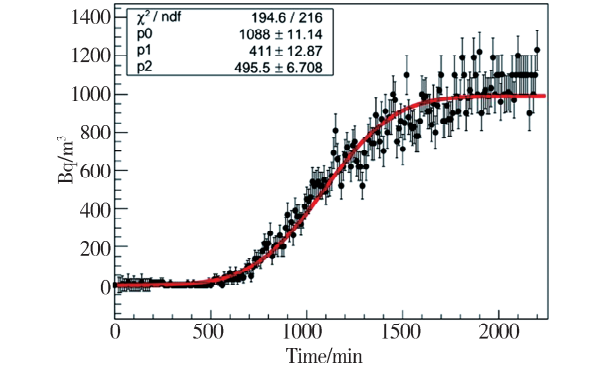


图 4 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 43.6 g 活性炭的穿透曲线
Fig. 4 The penetration curve of activated carbon at 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 43.6 g

为测试活性炭在不同温度下对氢的吸附效果,用 31 g 活性炭分别在 -10 和 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下做了实验,结果如图 5、6 所示. 可以看到,在其他条件都相同的情况下,活性炭在不同温度下,其穿透曲线的不同之处主要体现在:相比于 -10 、 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下的全穿透时间更长,并且穿透过程中的曲线走势也较为平缓,这是与穿透理论相符的. 通过拟合计算得到 $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时的 K_a 为 $23.01\pm 0.33\text{ L/g}$, $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时的 K_a 为 $58.68\pm 0.63\text{ L/g}$.

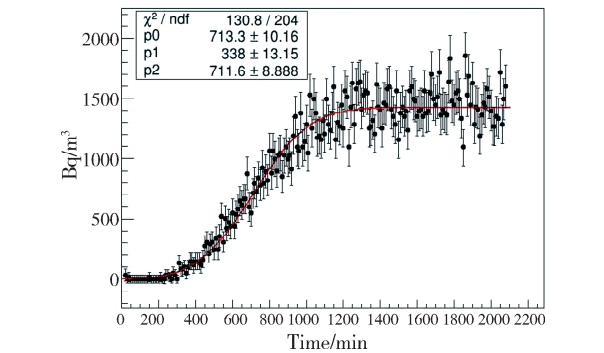


图 5 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 31 g 活性炭的穿透曲线
Fig. 5 The penetration curve of activated carbon at 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 31 g

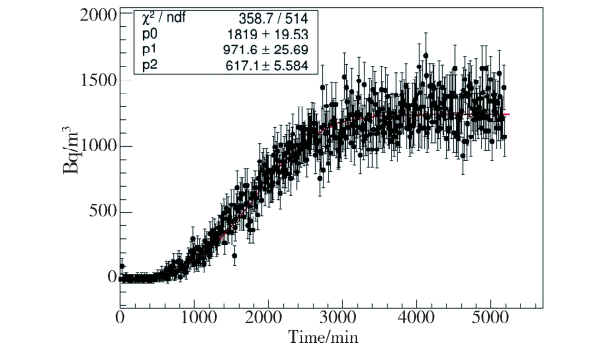


图 6 1 L/min, $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$, 31 g 活性炭的穿透曲线
Fig. 6 The penetration curve of activated carbon at 1 L/min, $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$, 31 g

图7是在低于氡的沸点($-62\text{ }^{\circ}\text{C}$)下进行的实验,在 $-120\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下测了8 640 min后依然没有氡溢出,此时关闭氡源,但仍旧保持通氮气.然后关闭温控系统,让其自然升温,发现当温度升高至 $-78\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时测氡仪开始有读数.按照理论计算,可以得到活性炭罐中氡原子的数目为:

$$N = \frac{c_0}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

其中 c_0 为氡浓度, λ 为氡的衰变常数.将8 640 min代入可得此时氡原子的数目大约为其极限值的0.66.由(2)可得此时的动力学吸附系数大于432 L/g.

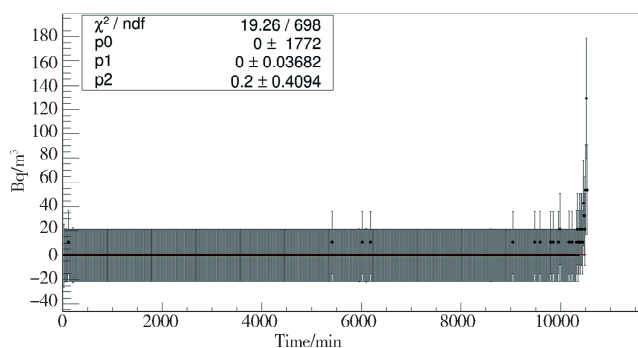


图7 1 L/min, $-120\text{ }^{\circ}\text{C}$, 20 g 活性炭的在通气 8640 分钟没有氡溢出,然后调大流量至 2.5 L/min,通了 165 min 后依然无氡气溢出.此时关闭氡源,并一直通氮气,活性炭的穿透曲线

Fig. 7 Activated carbon had no radon overflow after aeration for 8 640 min at 1 L/min, $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 31 g, then increasing the flux to 2.5 L/min, and there is still no radon overflow after aeration for 165 min. At this point, close the radon source and inlet the nitrogen, activated carbon penetration curve is formed

5 结 论

文章通过自行设计的活性炭除氡系统进行了 KC-6 系列的活性炭在低温及极低温情况下对氡吸附的实验.由于活性炭颗粒之间存在空隙,我们

首先通过实验确定了较为合适的活性炭的工作质量.相同质量下,活性炭温度越低对氡的吸附效果越好,当温度在 $-120\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时,按照公式可以算得 K_a 大于 432 L/g.而且,通过连续法测量的活性炭的穿透曲线可以用误差函数很好的拟合.

参考文献:

- [1] 薛明萱. 基于 ^{100}Mo & ^{116}Cd 目标核素的无中微子 [D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2019.
- [2] Wójcik M, Zuzel M. Low- ^{222}Rn nitrogen gas generator for ultra-low background counting systems [J]. Nucl Instrum Meth A, 2005, 539: 427.
- [3] Pushkin K, Akerlof C, Anbajagane D, *et al.* Study of radon reduction in gases for rare event search experiments [J]. Nucl Instrum Meth A, 2018, 903: 267.
- [4] Abe K, Hieda K, Hiraide K, *et al.* Radon removal from gaseous xenon with activated charcoal [J]. Nucl Instrum Meth A, 2012, 661: 50.
- [5] Cohen B L, Cohen E S. Theory and practice of radon monitoring with charcoal adsorption [J]. Health Phys, 1983, 45: 501.
- [6] Paewpachon P, Chanyotha S. Development of the charcoal adsorption technique for determination of radon content in natural gas [J]. Radiat Prot Dosim, 2017, 177: 40.
- [7] Guo L, Wang Y, Zhang L, *et al.* The temperature dependence of adsorption coefficients of ^{222}Rn on activated charcoal: an experimental study [J]. Appl Radiat Isot, 2017, 125: 185.
- [8] Pocar A. Low Background Techniques and Experimental Challenges for Borexino and its Nylon Vessels [D]. New Jersey: Princeton University, 2003.
- [9] Gaul W C, Underhill D W. Dynamic adsorption of radon by activated carbon [J]. Health Phys, 2005, 88: 371.

引用本文格式:

中 文: 张乐, 刘书魁, 林兴德, 等. 低本底条件下氡及其子体的抑制研究[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 975.

英 文: Zhang L, Liu S K, Lin X D, *et al.* Study on the inhibition of radon and its daughters under low background conditions [J]. J Sichuan Univ: Nat Sci Ed, 2020, 57: 975.