

WHO-IRC 和 IAEA-AQCS 国际比对样品的 γ 谱分析

刘广山 黄治俭 祖其荣 宋海龙

(中国辐射防护研究院, 太原 030006)

摘要 报道了本实验室 1991—1994 年间参加 WHO-IRC 和 IAEA-AQCS 组织的环境样品放射性测量国际比对工作。用 2 台 HPG γ 谱仪, 相对方法和效率曲线方法测量了土壤样品、沉积物样品和水介质样品; 用自吸收校正方法测量了生物样品。对 WHO-IRC No. 57Vi300 号样品, 在 28 个报出数据的实验室中, 本实验室测量值与推荐值的平均相对偏差最小, 为 3.04%。

关键词 环境样品, 国际比对, γ 谱分析, 放射性测量。

Gamma Spectrum Analysis of WHO-IRC and IAEA-AQCS International Intercomparison Samples

Liu Guangshan Huang zhijian Zhu Qirong Song Hailong

(China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006)

Abstract This paper reports the WHO-IRC and IAEA-AQCS international intercomparison that author's laboratory had participated during 1991—1994. The samples were measured with 2 HPG γ spectrometers. The soil, sediment and water samples were measured by relative method and efficiency curve method. The biological samples were measured by self-absorption correction method. The relative deviation of measured value from recommended value were analyzed for WHO-IRC No. 57Vi300 sample. It has been given that the average deviation of the results is minimum, i. e. 3.04%.

Keywords environmental sample, international intercomparison, γ spectrum analysis, radio-determination.

本实验室分别于 1985 年和 1991 年开始参加世界卫生组织-国际放射性参考中心(WHO-IRC)和国际原子能机构分析质量控制服务部(IAEA-AQCS)组织的放射性测量国际比对。1991—1994 年间的 WHO-IRC 比对样品有河底沉积物、地下水、白葡萄酒、牛奶、流出物和矿泉水; IAEA-AQCS 比对样品有土壤、海底沉积物、草和乌蛤肉。本文介绍了本实验室用于参加比对样品测量的 γ 谱方法和部分比对结果。

1 测量仪器和方法

用由美国 CANBERRA 公司引进的 2 台

HPGe 探测器-S/95 多道分析器 γ 谱仪测定样品, 探测器晶体体积分别为 137cm³ 和 131cm³, 对⁶⁰Co 1332keV γ 射线分辨为 1.87keV 和 1.89keV, 相对效率为 38.4% 和 31.3%; 在 CANBERRA 747 铅室内, 积分本底分别为 1.56 计数/s(40—2000keV 能区)和 1.82 计数/s(10—1600keV 能区); CANBERRA 747 铅室结构为 1cm 的低碳钢+ 10cm 的低本底铅+ 0.05cm 镅+ 0.16cm 的铜。谱仪连接 IBM-PS/2-30 计数机, 用 SPECTRAN-AT 谱分析软件

刘广山: 男, 38 岁, 硕士, 副研究员, 现在厦门大学海洋系
收稿日期: 1997-05-15

分析谱数据。

收到比对样品后, 先将原装样品直接放在探测器端帽上收集谱数据并进行定性分析, 如果样品几何条件不规则或与刻度源几何条件不一致, 则将样品重新封装再测量。本实验室采用几何条件为 $\phi 75 \times 25\text{mm}$ 、 $\phi 75 \times 50\text{mm}$ 、 $\phi 75 \times 75\text{mm}$ 的聚乙烯塑料盒封装样品。

2 效率刻度方法

2.1 标准与刻度源

用核工业北京地质研究院生产的纯铀 (GBW04303)、铀镭平衡 (GBW04305)、钍 (GBW04308) 粉末标准和中国计量科学研究院生产的 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 标准溶液, 将上述标准源和分析纯 KCl 试剂 (含 KCl99.9%) 分别掺入土壤介质制成土壤介质源物质。掺合土壤介质由 SiO_2 (73%)、 Al_2O_3 (18%) 和 Fe_2O_3 (9%) 分析纯化学试剂混合、磨细、160 目过筛制成。制好的源物质装入样品盒制成土壤介质刻度源。

用分析纯 KCl 试剂 (含 KCl99.9%) 配成 10% 的 KCl 溶液, 调节 pH = 3~4, 然后加入 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 标准溶液, 摇匀后分别装入 $\phi 75 \times 25\text{mm}$ 和 $\phi 75 \times 75\text{mm}$ 样品瓶制成水介质刻度源。

在制源的同时取 1ml (或 1g) 标准溶液或粉末标准, 点源模拟测定源的准确度。制作刻度源的同时制作一个与已有刻度源几何条件相同的刻度源, 并进行比对测量, 以检验新制作的刻度源准确度。

2.2 土壤、沉积物与水介质样品的效率

土壤、沉积物和水介质样品已有刻度源, 各核素的测量用相对方法, 刻度因子 C 和样品中核素比活度 A 的计算公式为:

$$C = \frac{N_c/T_c - n_{bc}}{A_c} \quad (1)$$

$$A = \frac{N/T - n_b}{CW(1 - m)} \quad (2)$$

(1) 和 (2) 式中 N_c 、 N 、 T_c 、 T 、分别为刻度谱、样品谱峰面积和谱数据收集时间、 n_b 、 n_{bc} 是样品容

器和刻度源介质本底峰计数率, A_c 是刻度源活度, W 是样品重量或体积, m 是样品含水率, 液体样品 $m = 0$ 。

当刻度源不含待测量核素时, 用效率曲线方法。对已有能量点的效率作对数多项式拟合得到效率刻度曲线:

$$\ln \epsilon = \sum_{i=0}^n a_i (\ln E)^i \quad (3)$$

式中 ϵ 是效率, $\epsilon = C/Y$, Y 是 γ 射线分支比; E 为 γ 射线能量, a_i 是拟合参数, n 是多项式次数, 一般取 $n = 2 \sim 4$, 样品中的核素比活度为:

$$A = \frac{(N/T - n_b)}{\epsilon Y W (1 - m)} \quad (4)$$

2.3 生物样品的效率

生物样品介质化学成分和密度与掺合土壤或水差别较大, 用自吸收校正方法由掺合土壤或水介质相同几何条件的刻度谱得到其效率, 自吸收校正公式为:

$$A_s = \frac{1 - \exp(-\mu_p \rho H)}{\mu_p \rho H} \quad (5)$$

式中 μ_p 、 ρ 为介质 γ 射线质量吸收系数和介质密度, H 为样品等效吸收厚度。用 Octavian Sima 建立的方法计算得到^[1], μ_p 值根据样品介质成分由下式计算:

$$\mu_p = \sum_{i=1}^n W_i \mu_{pi} \quad (6)$$

式中 μ_{pi} 、 W_i 为介质各组分 γ 射线质量吸收系数和组分比例。 μ_{pi} 值有表可查。为了进行环境样品测量, 笔者曾根据各种介质元素组成文献值和本实验室测量值列出了一些介质元素配方^[2]。

3 部分比对结果

表 1 列出了本实验室 γ 谱分析测定的几种样品的结果、组织者给出的推荐值及其 2 者的比值^[3~7], 为了与其它实验室进行比较, 笔者对 WHO-IRC No. 57Vi300 号样品各实验室报出结果与推荐值的偏差进行了分析, 并计算了平均相对偏差。由于样品中每个核素活度水平和定值难易程度不同, 从而造成测量结果离散程度不同, 为了使每个核素在平均偏差中有相同的权重, 以每个核素全部实验室测定结果的平

均值相对标准差的倒数为权求各个实验室测定值与 IRC 推荐值的平均相对偏差, 公式为:

$$\sigma_r = \frac{1}{S} \sum_{i=1}^3 \frac{|A_i - A_r|}{\sigma_m A_r} \tag{7}$$

$$S = \sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_m} \tag{8}$$

表 1 部分比对结果

核素	IAEA-373			IAEA-375			IAEA-134			IAEA-135			No. 57Vi300		
	A_i	A_r	A_i/A_r	A_i	A_r	A_i/A_r	A_i	A_r	A_i/A_r	A_i	A_r	A_i/A_r	A_i	A_r	A_i/A_r
^{134}Cs	1113	1167	0.95	507	463	1.09				5.38	5.20	1.03	201	207	0.97
^{137}Cs	12050	12350	0.98	5452	5281	1.03	61.2	49.8	1.23	1374	1108	1.24	450	456	0.99
^{40}K	393	432	0.91	424	424	1.00	218	212	1.03	566	560	1.01	13.5	14.9	0.91
^{226}Ra				23.2	19.9	1.17									
^{238}U				27.6	25.0	1.10									
^{228}Th				19.7	21.4	0.92				41.6	38.2	1.09			
^{60}Co							5.38	4.5	1.19						
^{241}Am							43.1	38.2	1.13	289	318	0.91			

表 2 WHO-IRC No. 57Vi300 号样品各实验室测量值与平均值的相对偏差/ %

实验室编号	^{40}K	^{134}Cs	^{137}Cs	平均相对偏差
1	16.4	- 6.1	9.4	9.05
2	0.0	- 11.8	4.8	6.62
3	112.8	13.7	27.2	32.9
4	47.6	27.2	28.9	30.6
5		- 8.9	- 5.9	6.27
6	- 34.9	- 11.8	3.0	10.2
7	14.1	- 9.6	7.3	9.03
8	11.4	- 6.9	4.5	6.27
9	18.8	- 7.5	7.8	9.03
10	2.0	6.0	5.8	5.44
11	118.9	- 5.6	12.7	23.3
12	- 48.0	- 16.1	- 5.8	14.9
13	3.3	- 10.4	0.1	4.33
14	0.7	- 15.8	- 4.3	8.11
15	53.7	- 3.5	5.3	10.7
16	- 4.0	- 64.5	- 5.1	27.0
17	115.4	- 30.4	- 7.4	29.4
18	9.4	- 2.8	7.4	5.90
19	307.4	- 14.5	48.4	68.1
20	74.5	- 29.6	- 19.1	30.0
21	3.8	- 21.4	- 10.2	13.5
22	- 6.0	- 16.9	- 7.3	10.7
23	0.7	- 10.8	4.5	6.36
24	- 9.3	- 3.1	- 1.4	3.04
25	12.8	- 6.3	6.0	6.96
26	908.1	- 12.3	11.2	124
27	- 32.9	- 10.8	5.2	10.7
28	40.9	- 1.7	9.4	10.5

4 结语

(1) γ 谱分析中, 由于目前还不具备各种介质的刻度源供商业购买, 所以效率刻度仍然是

式中: σ_r 是平均相对偏差, A_i 是各核素测定值, A_r 是 IRC 参考值, σ_m 是全部实验室测定结果平均值标准差. 结果列于表 2, 24 号是本实验室, 可以看出, 本实验室测定结果与推荐值平均相对偏差为最小.

应用 γ 谱分析工作的一项主要内容. 本实验室在长期的放射性测量工作中建立了上述效率刻度方法并在参加国际比对中取得较好的比对效果.

(2) 环境样品测量中, 效率刻度准确性是准确测量的必要条件, 本工作使用国家标准和计量科学研究院的标准源制作刻度源, 并对标准源和制好的刻度源进行检验, 保证了刻度效率的准确性.

参 考 文 献

1 Octavian Sima. Photon Attenuation for Samples in Marinelli Beaker Geometry: an Analytical Computation. Health Physics, 1992, **62**(5): 445

2 刘广山. 低水平放射性 γ 放射性测量的谱分析和制样方法. 辐射防护通讯, 1996, **16**(5): 33

3 IRC Note No. 41 Report Concerning Intercomparison on a Wine Sample No. 57Vi300. 1992

4 Strachnov V, Valkovic V, Danesi P R et al. Preliminary Report, Intercomparison Run IAEA-373: Determination of Radionuclides in Grass. 1993, 1

5 Strachnov V, Valkovic V, Danesi P R et al. Preliminary Report, Intercomparison Run IAEA-375: Determination of Radionuclides in Soil. 1993, 1

6 Ballestra S, Gastaud J, Lopez J J et al. Report on the Intercomparison Run IAEA/AL/62, International Atomic Energy Agency Marine Environmental Laboratory. 1993, 3- 4

7 Ballestra S, Gastaud J, Lopez J J et al. Report on the Intercomparison Run IAEA/AL/63, International Atomic Energy Agency Marine Environmental Laboratory. 1993, 3- 4