

国际辐射单位与测量委员会第 22 号报告

低水平放射性测量

原子能出版社

国际辐射单位与测量委员会

第 22 号报告

低水平放射性测量

1 9 7 2

王恒德 译 陈丽姝 校

原子能出版社

内 容 简 介

本报告从低水平放射性测量的角度, 比较全面地概述了很多测量方法, 内容涉及到有关的统计学知识, 样品的处理, 辐射探测装置的本底来源及降低本底的措施, 低水平的参考源和标准源, 低水平 α 、 β 、 γ 及 X 射线的分析方法和较好的分析装置的性能等。

本书可供从事环境放射性测量、生物医学及其它领域里的弱放射性测量工作者和有关科研人员参考。

Measurement of Low-Level Radioactivity

1972

低水平放射性测量

王恒德 译 陈丽姝 校

原子能出版社出版

北京印刷一厂印刷

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本 $787 \times 1092^{1/32}$ ·印张 $4^{3/8}$ ·字数 94千字

1978年10月北京第一版·1978年10月北京第一次印刷

统一书号: 15175·123

定 价: 0.40 元

目 录

一、绪言	1
1.1 本报告的范围	1
1.2 外来计数	2
1.3 计数统计学方面的一些考虑	4
1.4 分析程序	8
1.5 低水平放射性的标准源和参考源	11
二、样品的处理	13
2.1 引言	13
2.2 样品处理方法	16
2.3 样品和试剂的污染	22
三、 γ 和 X 射线发射体的分析	27
3.1 引言	27
3.2 本底的成分及其减小措施	29
3.3 闪烁计数器	41
3.4 半导体探测器	53
3.5 正比计数器	56
3.6 专门技巧	58
3.7 γ 射线能谱的分析	61
四、 β 粒子发射体的分析	64
4.1 引言	64
4.2 气体放电计数器	65
4.3 塑料闪烁计数器	75
4.4 液体闪烁计数器	77
4.5 契伦柯夫计数器	85
4.6 半导体探测器	87
4.7 特殊放射性核素的分析方法	88

五、 α 粒子发射体的分析	96
5.1 引言	96
5.2 本底	96
5.3 灵敏度	97
5.4 α 粒子探测方法的分类	97
5.5 测量固体源中的 α 粒子总发射率	98
5.6 气态 α 粒子发射体的测量	102
5.7 α 粒子的能谱测定	104
5.8 核径迹技术	107
六、标准源和参考源	108
6.1 引言	108
6.2 某些专门的低水平标准源	109
6.3 标记化合物	112
6.4 最少放射性的源材料	113
参考文献	115

一、绪 言

1.1 本报告的范围

低水平放射性测量涉及到各种情况下的高灵敏分析程序。本报告叙述和讨论了很多这方面的测量方法,并且评价了它们的能力。一般地说,不可能对所有情况都提出简单明确的建议,因此本报告的指导思想是试图帮助读者挑选最适应于各种特定问题的方法。国际辐射单位与测量委员会(ICRU)以前的报告(1963)已经论述了这方面的一些问题,包括放射性强度标准、材料的低水平放射性污染以及样品和活机体的一般测量方法等。

然而不做专门规定就不可能有意义地从数量上定义“低水平放射性”。一般地可以说,本报告涉及的方法都是在一般的计数时间里很难达到预期的计数精度时特别适用。当可能得到的全部放射性很少,或者放射性核素的浓度很低,或者干扰源产生的计数过强时可能出现这类性质的问题。大体上说,放射性浓度在低于 10^{-9} 居里/克的范围内属于低水平,但是并不认为这个规定是严格的或者唯一的。国际原子能机构(IAEA)的各实验室之间对低放射性样品进行比较时发现结果各不相同,说明这个课题值得特别注意(Merten 和 Wortley, 1967)。

可靠地测量低水平放射性所依据的很多基本原理和技巧在高水平放射性测量中也同样是重要的。例如,仪器是类似的,同样需要对样品进行有效地选择,在这两种情况下制源的重复性都是极重要的。本报告只简要地论及与此有关的一

般原理和方法，而把重点放在分析低放射性样品时特别重要的那些问题上，特别是在环境监测方面和医学及生物学工作的某些方面会遇到这类问题上。但是本报告不考虑活机体中的放射体测量。

本报告包括绪言和五个主要的实质性章节。虽然五章中的每一章都基本上自成体系，但是希望读者在详细阅读各章之前注意绪言中提到的有关原理。

参考文献主要是依据其科学价值选择的。既不想罗列一个综合性的文献目录，也不想评论到底是谁先发明的。引证的文献中，1968 年中期以后的比较零散。

1.2 外来计数

在低水平计数中特别麻烦的问题通常是存在外来计数，它可以定义为除要测量的放射性原子之外的任何原因产生的计数。外来计数的来源可以分为两个：(1) 各种因素产生的本底计数；(2) 源内的干扰放射性。

常常通过本底计数来了解这些计数，它们原则上是可以观测到的，因而可以通过测量“模拟源”加以修正，模拟源除了一点放射性也没有之外在各方面都与要测量的未知源相同。这些外来计数是由下列因素产生的：环境中的放射性、探测器本身的放射性、宇宙射线、电子设备的“噪声”脉冲等等。本底修正的准确性主要取决于本底的稳定性。最好的情况是涨落仅仅是由于计数的统计性引起的。实际上，还可能存在另外一些变化。在三、四、五章里详细讨论了本底问题。

干扰放射性可能有不同的形式和效果。首先，它可能存在于未知源或者标准源中。在未知源中，它可能是样品中原

来就有的污染，也可能是在取样过程中增加的污染。为了预防这种污染引起的误差，一般要通过分析一个和待测的未知样品完全相同的“空白样品”（见 2.1.2 节），从测得的未知样品的放射性中减去空白样品的表观放射性。另外，可能要依次测量未知源中两种或多种放射性核素，每种核素都可能干扰别种核素的测量。在标准源中，同样存在着干扰放射性的问题，但是一般并不严重。

另一种干扰放射性问题是其放射性核素的成分。如果未知源中的干扰核素与待测的放射性原子相同，那么用化学或物理方法都不可能从这些原子中鉴别出它来。如果它们是同一元素的不同同位素，那就不能用普通的化学方法进行鉴别，但是可以用物理方法来鉴别。如果是不同的元素，总可以用化学分离来鉴别它，也能够用物理方法鉴别它。

鉴别不同放射性核素最普通的物理方法是依据半衰期进行选择或者依据辐射的类型和能量进行选择。前者对于任何类型的辐射和探测器都是可行的；而后者有效性大大依赖于辐射类型和探测器的特性。常常用闪烁或者半导体探测器通过能谱测定方法来鉴别不同放射性核素发出的 γ 射线。与此相似，常常用气体电离探测器、闪烁探测器或者半导体探测器依据其能量来鉴别 α 粒子。内转换电子的能量是分立的，在特定情况下可以进行有效的能谱分析。 β 粒子则不同，它的能谱是连续的，只能在不同放射性核素之间进行有限的鉴别。对于一定的衰变图，还能够用符合技术进行选择。

就是在半衰期选择的时候，使用能谱测定法或者其它的仪器方法也往往只能减小而不能消除放射性核素之间的干扰。在这些情况下，必须单独估算源中干扰放射性核素对计数的贡献，然后就象本底计数那样扣除它，以便得到待测

放射性原子产生的净计数。对于干扰放射性引起的外来计数进行修正的准确性取决于很多条件，特别是取决于选用的化学或物理方法可能分离的程度和这种分离的重复性。就是在最好的情况下干扰成分引起的计数的统计涨落也会引入误差，就象本底贡献的统计误差那样。

在第二章里将要讨论减小干扰的化学和物理或二者之一分离方法，在第三、四、五章里讨论仪器方法。

1.3 计数统计学方面的一些考虑

本报告在计数统计学方面只限于探讨比较那些可供选用的测量方法的统计价值。就是在这个很有限的领域里，也还没有对可能提出的很多问题作出普遍性的回答。举例来说，某项测量要求给出几个互相独立的结果，比如一个样品中的放射性核素发射五种 γ 射线，用能谱测定法分析每种 γ 射线的放射性，这时“最佳测量”的概念是含糊的，而且分析方法之间的选择相应地也是模棱两可的。除此之外，在用成熟的数学方法，如加权最小二乘法拟合程序（3.7.2节），来处理复杂的数据（比如在多道分析器上记录的放射性核素混合物的 γ 射线能谱）时，越来越多地要用到数字计算机。这些技术往往有很高的统计效能，亦即这些方法能从得到的大量数据中提取最多的情报。因此建议用这些方法来分析特定的测量结果，尤其是当结果很复杂的时候。但是在粗略地比较各种方法时并不一定非用它们不可。此外，处理许多普通分析方法得到的简单结果也不必使用它们。

在比较那些基本类型测量程序的统计价值时，长期使用了几简单的概念(Loevinger 和 Berman, 1951; NGRP, 1961; ICRU, 1963)。由于这些概念有助于我们理解低水平

放射性分析中的很多问题，所以这里作简要地介绍。它们都是基于假设所有的计数率都是稳定的，即只有计数的统计性产生的涨落。实际上，还可能存在其它不稳定的来源，因为重复测量的结果，呈现出比单独计数统计涨落大的分散性。

最常用到的一个简单概念是“最小总计数时间 T ”，它是为了得到一定精度的净源计数率计数所讨论的源和本底时必须花费的时间。用到的第二个概念是放射性核素的“本底等效放射性”，这个放射性引起的仪表读数与所用装置的本底读数相等。这个概念虽然容易理解，但是单独用它来鉴别哪种方法能给出最高的计数精度并不够充分。用到的第三个概念是“最小可探测放射性”，即在给定的计数时间里，使仪器读数增加的总量等于在这段时间里记录到的本底的三倍标准偏差所相当的放射性核素的放射性。象“本底等效放射性”那样，这个概念不能单独用来鉴别对所讨论的源的几种测量方法之间哪一种统计学上最精确。探测极限问题本来就是个复杂的问题，而且它的规定是有些任意性的。Currie (1968) 就现在的意义论述过这个问题。

本报告建议用优质因子来比较不同的测量方法，它定义为 $1/T$ 。以三种有代表性的测量条件来考查优质因子是有益的。第一种情况，假设未知源及其相应的模拟源没有干扰放射性。定义下列各项：

S = 未知源中待测放射性原子产生的计数率；

B = 模拟源的计数率；

T_{S+B} = 未知源的计数时间；

T_B = 模拟源的计数时间；

$\epsilon = \sigma_S / S$ = 由计数的统计涨落引起的 S 的相对标准偏差。

可以证明，对于任何特定的计数精度，当

$$\frac{T_{S+B}}{T_B} = \sqrt{\frac{S+B}{B}} \quad (1.1)$$

时量 $T_{S+B} + T_B$ 有最小值。那么最小总计数时间 T 等于 $T_{S+B} + T_B$ ，而优质因子由下式给出：

$$\frac{1}{T} = \epsilon^2 \cdot \frac{S^2}{(\sqrt{S+B} + \sqrt{B})^2} \quad (1.2)$$

(见 IGRU, 1963, 26 页)

在现有可供选择的测量装置中，在统计学上最有利的是那些对于所讨论的源能给出最大优质因子的装置。在特定情况下，(1.2)式可以简化为：

$$\text{如果 } S \gg B, \text{ 则 } \frac{1}{T} \approx \epsilon^2 S$$

$$\text{如果 } S \ll B, \text{ 则 } \frac{1}{T} \approx \frac{\epsilon^2 S^2}{4B}$$

因此，在这两种情况下为了得到最大的优质因子，可以分别简单地使 S 或者 S^2/B 最大。

第二种测量情况，考虑一个未知源，用适当的空白样品为它制备一个相应的源，使在测量两个源时包含的干扰放射性产生的计数率都是 I 。那么可以看出，分析程序就完全象第一种情况那样，只要把 B 改为 $B+I$ 就行了。因此应按下述关系分配测量时间：

$$\frac{T_{S+(B+I)}}{T_{B+I}} = \sqrt{\frac{S+(B+I)}{B+I}} \quad (1.3)$$

$$\text{而 } \frac{1}{T} = \epsilon^2 \frac{S^2}{[\sqrt{S+(B+I)} + \sqrt{B+I}]^2} \quad (1.4)$$

第三种测量情况在能谱测定中是很常见的。为了清楚起

见,讨论一个特殊的例子:用 NaI(Tl)晶体和两台单道脉冲高度分析器分析源中的 ^{85}Sr , 源内还含有的 ^{47}Ca 作为干扰放射性。可以分三步进行测量:(1) 测量其计数的统计误差可以忽略的足够高放射性的纯 ^{47}Ca 源。然后记录 0.48~0.54 兆电子伏(未知源中的 ^{85}Sr 峰的位置)和 1.25~1.35 兆电子伏(^{47}Ca 主峰的位置)这两个能带中的计数。计算第一个能带中的计数率对第二个能带中的计数率之比 r 。在这种情况和在很多其它情况下选择能带位置使 $r \ll 1$ 将是有益的;(2) 测量模拟源的本底,在能带 0.48~0.54 兆电子伏中得到的计数率为 B , 在能带 1.25~1.35 兆电子伏中得到的计数率为 B_1 ;(3) 测量未知源,在能带 0.48~0.54 兆电子伏中得到的计数率为 $S+B+I$, 在能带 1.25~1.35 兆电子伏中得到的计数率是 $(I/r)+B_1$ 。与前面的符号一致,用 S 表示 ^{85}Sr 的计数率, I 是在能带中由于 ^{47}Ca 的干扰产生的计数率。可以看出,如果

$$\frac{T_{S+(B+I)}}{T_B} = \sqrt{\frac{S+(B+I)+r^2(B_1+I_1)}{B+r^2B_1}} \quad (1.5)$$

则对于一定的计数精度第二步(即 $T_{S+(B+I)}$)和第三步(即 T_B)总的测量时间取其最小值 T 。

最后,在此情况下,

$$\frac{1}{T} = \epsilon^2 \frac{S^2}{[\sqrt{S+(1+r)I+(B+r^2B_1)} + \sqrt{B+r^2B_1}]^2} \quad (1.6)$$

如果象一般情况那样, $r \ll 1$, 那么上面的公式简化为

$$\frac{T_{S+(B+I)}}{T_B} \approx \sqrt{\frac{S+(B+I)}{B}} \quad (1.5a)$$

和

$$\frac{1}{T} \approx \epsilon^2 \frac{S^2}{[\sqrt{S+(B+I)} + \sqrt{B}]^2} \quad (1.6a)$$

此外, 如果 $I \ll B$ (忽略干扰放射性) 公式(1.6 a) 就变成公式(1.2)。如果 $B \ll I$, 公式(1.6 a) 就变成

$$\frac{1}{T} \approx \epsilon^2 \cdot \frac{S^2}{S+I}$$

而且当 $S \gg I$ 时 $1/T$ 趋近于 $\epsilon^2 S$, 当 $S \ll I$ 时 $1/T$ 趋近于 $\epsilon^2 S^2/I$ 。

从这三个实例, 可以对本报告中考虑的许多这类问题得出简单的统计学概括。如果外来计数率 $X \equiv B + I$, 那么在下述计数条件下优质因子 $1/T$ 接近最大值: 当 $S \gg X$ 时使 S 最大, 或者当 $S \ll X$ 时使 S^2/X 最大。

应当指出, 优质因子不是无量纲的, 因此不给单位的数值是没有意义的。然而常常是 S 以 (计数/衰变) $\times 100$ 为单位, B 以计数/分为单位, 然后 S^2/B 就只给数值, 不写单位。这种作法应当禁止。

1.4 分析程序

在一定的分析问题中, 原则上这样选择分析程序, 即根据具体情况使 S 或者 S^2/X 为最大, 而且应避免导致 S 和 X 不能重复的非统计性误差。必须考虑: (1) 各种样品处理和制源方法可能有的长处; (2) 待探测的辐射类型; (3) 获得最佳计数条件的方法。这些问题是相互关联的, 只有在全盘考虑之后才能选出最有效的分析程序。

样品处理系指从样品基质和从样品里还存在着的其它放射性核素中全部或者部分地分离待测放射性核素的过程。制源系指更具体地将待测放射性核素转化为适应于测量它时所用的特定探测器的化学或物理形态, 它不可能与样品处理割

裂开来。样品处理有两个主要目的。首先是通过减小辐射在样品中的自吸收来增加样品计数率 S ；其次是可以清除干扰放射性，至使 S^2/I 有可能增大多个数量级。在第二章里用实例并参阅特定程序的摘要，详细讨论了低放射性样品的处理。在第三、四、五章里针对一定探测器和放射性核素在制源时出现的一些问题进行了研究。

很多放射性核素，可以选择 γ 射线或者 β 粒子作为待测的辐射。对几种放射性核素或者几个平衡衰变链说来可能在 α 、 β 和 γ 射线之间存在着其它选择。辐射能够达到探测器的样品质量厚度与辐射在该物质中的射程密切相关。 α 、 β 和 γ 射线的射程逐个增大不只一个数量级，从（在密度为 1 克/厘米³ 的物质中）小于 0.1 毫米到几个毫米、直到很多厘米。另一方面，由于这个原因及其它原因，探测器的本底也相应地显著增加同一数量级。如果可以用的样品质量有好多克，并且不可能浓缩其中包含的待测放射性核素，或者由于某种原因不希望这样做，那么利用发射的 γ 射线（如果有的话）可以测到最低浓度的放射性。就是说，在确定有利的统计条件下（即高 S^2/B ） γ 射线使得 S 的增加能够超过探测器 B 的增加。与此相反，如果样品质量本来就少，或者为了测量，可以把放射性核素浓缩为一个小源，那么 S 可能很少依赖于辐射穿透物质的能力，这样具有较低 B 的 β 或者（甚至更明显的） α 粒子探测器也能够测到较低水平的放射性。

如果可以利用的辐射不止一种，那么还要考虑每种辐射在抗干扰放射性方面的选择能力。如前所述， γ 射线和 α 粒子有很大的能谱选择性，而 β 粒子则很小。在第三、四和五章里讨论了与这三种类型辐射的低水平计数有关的一些特殊性问题。

已经研制了各式各样的辐射探测器，并提出了使用它们的方法。按照所要达到的不同目的，低放射性测量的重点是：（1）通过把源放在探测器跟前或者里面、研制大的探测器以及选择那些对各个光子或粒子响应几率高的探测器来增加 S ；（2）通过重屏蔽和反符合技术、使用放射性清洁的材料以及研制小的探测器来减小 B ；（3）通过改进能谱测量方法和符合技术来减小 I 。进行这些设计都必须注意可靠性和稳定性，因为不管其放射性水平怎样，在测量任何源时它们都是重要的。在第三、四、五章里将详细讨论这些问题。

可以用实际例子来说明上面相互制约的考虑。假设某放射性核素衰变时发射一种 β 粒子和一种 γ 光子。可以用低水平正比计数器测量 β 粒子，其本底为 1 计数/分，效率（每发射一个 β 粒子产生的计数）为 0.30，样品容量为 0.1 克。另外还可以用一个 7.6 厘米（直径） $\times$ 7.6 厘米（厚）的 NaI (Tl) 探测器测量 γ 射线，其本底（只在全能峰范围内）为 20 计数/分，效率（全能峰范围）为 0.10，样品容量为 5 克。对于低放射性样品，给出任何特定计数精度所需的计数时间应反比于 S^2/B ， S 正比于效率和样品中放射性的乘积。源没有进行浓缩，也没有其它放射性核素的干扰，如果样品的量足以装满每个探测器，那么相应的计数时间将是：

$$\begin{aligned}\frac{T_{\gamma}}{T_{\beta}} &= \left(\frac{S^2}{B}\right)_{\beta} / \left(\frac{S^2}{B}\right)_{\gamma} \\ &= \frac{[(0.30) \times (0.10)]^2}{1} / \frac{[(0.10) \times (5.0)]^2}{20} \\ &= 7.2 \times 10^{-2}\end{aligned}$$

另一方面，如果现有的样品量较少（例如 0.1 克）以至每个探测器都容纳得下全部样品，那么相应的计数时间为

$$\begin{aligned}
 \frac{T_{\gamma}}{T_{\beta}} &= \left(\frac{S^2}{B} \right)_{\beta} / \left(\frac{S^2}{B} \right)_{\gamma} \\
 &= \frac{[(0.30) \times (0.10)]^2}{1} / \frac{[(0.10) \times (0.10)]^2}{20} \\
 &= 180
 \end{aligned}$$

因此，只要能够取得大量的样品，那么 γ 射线探测器在很短的测量时间里就能达到预期的统计精度，而当只采得很少的样品的时候， β 粒子探测器更为有利。

然而，为浓缩放射性核素而处理了样品将会改变上述结论。在把放射性核素全部提取出来并可以忽略源的质量的极限情况下，两种探测器都能够测到整个样品的总放射性，但是从统计学上看，总要优先选用 β 粒子探测器。同样，若有干扰放射性存在，就要看它是发射 β 粒子还是 γ 射线，如果是发射 γ 射线，也还要看能否用像能谱测定法或者符合计数这样一些仪器方法分辨不同的 γ 射线，这不同于上面的分析。不管是样品制备还是仪器方法对消除干扰更为有利，分别判定仍然是必要的。

1.5 低水平放射性的标准源和参考源

几乎所有的放射性测量，不管是低水平还是高水平的，都基于未知源和参考源相比较。往往不需要知道用绝对单位表示的参考源的放射性。因而它只能对未知源提供归一化的结果。例如，可以把1毫升血浆中的放射性表示为口服放射性的百分比。在这种情况下，参考源是在实验过程中就地制备的，它常常取自引入该系统放射性溶液的一部分。有的参考源不只用于一个实验室和一次实验，而是把它作为一个较宽范围测量归一化的工具，这就不再需要知道参考源的绝对

放射性了。但是在一些特殊的问题中，如前所述，取出一部分样品来测量，那么整个样品的均匀性也许更为重要。最后，在某些场合下，特别是要求知道吸收剂量率的情况下，确实需要知道未知样品的绝对放射性，因此必须知道参考源的绝对放射性，即必须使用标准源。

国际辐射单位与测量委员会(ICRU)，以前(1963, 1968)讨论过标准源和参考源问题，既注意到了高放射性源也注意到了低放射性源，对后者说来污染和有时由于操作造成的损失都是相当不利的。最近几年，在制备标准源方面有了进一步广泛的发展，并已出现了实验室之间的相互比较。在第六章里，专门讨论有关低水平源的发展情况。