

放射核素计量学

——第一届国际放射核素计量学讨论会译文集——

中国计量科学研究院

一九七六年

毛主席语录

对于外国文化，排外主义的方针是错误的，应当尽量吸收进步的外国文化，以为发展中国新文化的借镜；盲目搬用的方针也是错误的，应当以中国人民的实际需要为基础，批判地吸收外国文化。

……一切外国的东西，如同我们对于食物一样，必须经过自己的口腔咀嚼和胃肠运动，送进唾液胃液肠液，把它分解为精华和糟粕两部分，然后排泄其糟粕，吸收其精华，才能对我们的身体有益，决不能生吞活剥地毫无批判地吸收。

C0132313



编 者 的 话

第一届国际放射核素计量学夏季讨论会于1972年8月21日~9月1日在南斯拉夫新赫尔策克召开。会上共发表了58篇文章，按内容共分8部分：综述；正比气体测量；液体闪烁测量；符合测量； γ -射线、 x -射线测量和谱仪问题；特殊方法；源的制备；数据和误差的处理。全部文章登在“Nuclear Instruments and methods”杂志的1973, Vol.112, No 1~2上。我们将其中的56篇译出供从事放射性计量工作的同志以及有关的科学技术人员参考。

本书在译校过程中，除我院放射性室和情报室的同志参加外，还有401所、中国计量科学研究院四川分院和上海市计量与测试管理局的有关同志参加，谨致谢意。

由于我们水平所限，译文中难免有不妥之处，欢迎读者批评指正。

情 报 室

1976.10.

R144

50834

ZJX_f

目 录

一、 绪 述

美国放射性计量标准及传递.....	(1)
放射核素计量学对核数据的要求.....	(5)
放射性测量方法的一般情况.....	(10)
国际计量局电离辐射计量咨询委员会的放射核素测量.....	(18)
死时间问题.....	(21)

二、 正比气体测量

内充气计数方面的现状.....	(35)
用内充气计数方法绝对测量氚水的比放射性.....	(41)
应用金属铀作为氚水还原剂的可能性.....	(44)
正比计数管的假脉冲.....	(46)
气体正比计数器对单个电子的探测.....	(54)
低能正比计数器测量中的脉冲高度分布.....	(61)
符合测量用的高气压正比计数管.....	(64)
测量内转换电子 ¹³⁹ Ce、 ¹⁰⁹ Cd、 ^{99m} Tc的高气压4π正比计数管.....	(69)
正比计数管的几个问题.....	(71)

三、 液体闪烁测量

液体闪烁精密计数的现状.....	(79)
液体闪烁计数的基本机制.....	(85)
液体闪烁计数的零探测几率.....	(89)
液体闪烁计数器的余后脉冲.....	(98)
液体闪烁计数中的特殊问题—— ⁸⁷ Y和 ⁶⁷ Ga的标准化.....	(104)

四、 符合测量

符合计数中的效率外推法.....	(111)
符合测量准确度.....	(120)
纯β发射体测量的示踪方法.....	(128)
效率示踪测量中系统误差的来源.....	(136)
韧致辐射计数的可能性和问题.....	(140)
符合测量中一些特殊的问题.....	(149)
使用两个晶体做相加峰计数.....	(157)
用电喷雾的离子交换树脂底衬制备的源进行效率示踪测量.....	(167)

符合计数使用的正比和闪烁计数器	(171)
“SAMAR”均分死时间法—— $\beta-\gamma$ 符合计数法的新途径	(178)
$4\pi\beta-\gamma$ 符合计数及 γ -射线相互比较仪自动换样器	(182)

五、 γ -射线、 x -射线测量和谱仪问题

半导体探测器技术的现状	(185)
γ -谱仪的校准	(194)
在 x -射线范围内半导体探测器效率的标定	(205)
放射性的 x -射线标准	(208)
峰面积的确定	(209)
γ -射线谱的自动分析	(217)
α -粒子的能量标准	(225)

六、特殊方法

量热法测量放射性的最近发展	(229)
放射性量热法——美国标准局工作评述	(238)
多丝计数管	(242)
放射性测量中的相关技术	(248)
$4\pi\gamma$ -电离室测量方法	(255)
小电流的精密测量	(262)
低水平放射性测量	(267)
用大型低本底 γ -谱仪对月球样品中的放射性核素进行无损测定以及最小二乘方拟合法的新的应用	(281)
用 ^{56}Mn 检验测量装置	(286)

七、源的制备和有关问题

定量源制备的现状	(287)
微量称重中的问题	(295)
薄源制备的评述	(303)
制备源的特殊方法	(309)
单分子层放射源的制备	(314)
标准放射性溶液的贮存	(321)

八、数据和误差的处理

实验结果及其准确度的表示	(327)
统计方法应用于计数测量和实验数据的评价	(331)
低活度测量中的误差处理	(339)
关于数据和误差处理的圆桌会议	(346)

美国放射性计量标准及传递

放射性是Antoine Henri Becquerel于1896年发现的。20世纪初，居里夫人采用了最初的放射性的任意单位，并报告她的结果。在某种意义上说，基准体现了方便的关系，无论在什么地方进行测量，其结果都可以和基准比对。居里夫人对几种不同矿物的放射性加以对比。当电离电流流经有被测矿物的一层粉末状的铺在平行板电容器下面的一块板上时，其测量单位是流过电容器 10^{-11} 安的电离电流。不同来源的沥青铀矿，其放射性也不同，从 1.6×10^{-11} 安到 8.3×10^{-11} 安。30多年以后，用给定几何形状的劳里岑验电器按漂移速率在单位时间内偏转的刻度对给定剂量 ^{32}P 的生物效应进行过类似测量。这可能是一种粗略的标准，但它能使在一个实验室里得到的实验结果同另一个实验室里所得的结果按照 ^{32}P 给定的单位建立密切的关系。

随着各种放射性元素的分离与纯化，世界各国研究所实验均用强放射性的元素镭。这就需要有一个比居里电离室饱和电流更基本的这种元素的标准。于是，1910年放射学与电学大会指定一个委员会安排镭的国际主基准和副基准的制备工作。这是在1911年由居里和Otto Hönigschmid制备的。1912年委员会在巴黎开会，对上述标准进行比对。选择了居里和Hönigschmid制备的两个基准，现在一般称为1911年巴黎和维也纳镭基准。这两个基准由国际计量局和维也纳镭研究所保管。后来的20年，所有国家的镭基准都用这两个国际镭基准检定。1934年，因考虑到1911年基准的安全问题，Hönigschmid又制备了20个新的镭基准，就是现在都熟悉的Hönigschmid基准。其中之一选作国际镭主基准，由国际计量局保管。50年代，很多比对，不论是用 γ 射线测量，还是用微量热法，都是在Hönigschmid国家基准之间进行的。比较的结果在1959年的国际放射性单位和测量委员会的报告中报导过。（表1略）比对的结果之一于1959年得到国际计量局电离辐射咨询委员会特别研究小组的推荐。国家的和国际计量局的Hönigschmid基准系统整个应被作为国际镭基准。因此，在该系统中，任何一个或几个基准的比较将与国际基准构成一定的关系。这个推荐为在放射性方面建立国际的和国家的测量系统提供了基本条件。第一个放射性镭基准是质量基准。测量1克镭的放射性便得到放射性物质的活度，用居里来定义，或更简单的说用1/秒来定义。最初，居里的定义是与1克镭平衡的氡的量。早些时候测量表明：这个氡的量发射 α 粒子的速率为 3.7×10^{10} 秒 $^{-1}$ 。但后来，用改进的技术测量表明，与这个值有很大差别，趋于 3.6×10^{10} 秒 $^{-1}$ 。1950年在伦敦召开的第六次国际放射学大会将居里定义改为对于任何放射性物质衰变率为 3.700×10^{10} 秒 $^{-1}$ 。随着放射性材料使用的扩展，人们就希望建立国家和国际的放射性基准。但存在两个问题：一是放射性寿命不同，有长有短；第二，每一种放射核素具有本身特有的衰变方式，因而也就相应地存在不同的测量问题。这样就没有不变的放射性基准。镭的寿命相对地较长，但作为基准不是很理想的。主要因为它与其各代子体平衡

时, 会发出很多种辐射, 美国标准局作了些尝试, 通过照射度的测量, 同其它放射性物质作了比较。在某种意义上讲, 这太主观和太依赖于测量仪器。然而对各种被检定的装置来讲, 镭可用来检查或监视它们的长期性能。

40年代后期, 加拿大国家研究院的乔克河研究所(现在的加拿大原子能有限公司)(AECL)和美国标准局(NBS)进行过人工制备的放射核素的相互比对。最早的测量包括 ^{60}Co 和 ^{131}I 。50年代初期, 这种相互比对测量在英国扩展至四个研究所, 即: 原子能研究中心、医学研究委员会、皇家癌症医院和国家物理研究所(NPL)。AECL、NPL和NBS的科学指导人员对这些活动做了有益的说明。1955年, 国际放射性单位和测量委员会建立了放射性基准小组委员会。同年8月, 在法兰克福召开了第一次会议。

会议只承认NBS和NPL两个研究所在当时制备和发放的放射性基准, 并提出在世界范围内发展放射性国际相互比对测量。

国际放射性单位和测量委员会以后十年在促进国际测量方面的成就是显著的。但在1963年, 它认为国际计量局是国际基准的合适的保存所, 故从这方面退出。

该委员会1955~1958年发起了国际放射性测量一系列的国际比对, (见1959年报告, 表3略)。大约从60年代中期, 联合国国际原子能机构也发起一些环境材料方面低水平放射性的国际比对测量。

如同其它科学领域一样, 放射性基准是需要用毫不含糊的定义来叙述观察到的效应。这样, 如果用长度和时间基准定义已知通量密度, 用质量、长度与时间基准定义已知能量的 α 粒子轰击铍表面, 在单位时间内, 单位体积能放出多少中子? 对于一个给定的 α 粒子能量, 已知单位体积的铍原子数以后这个实验就简化为对 $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$ 反应的有效截面测量。通过使用基准、在Vince得到的有效截面就能与在chalk(乔克河)测量的有效截面相比较, 而不必从一个地方往另一个地方搬动仪器和人员。对使用一定放射性而引起的生物和生理效应也能够通过不同研究者使用检定测量装置的活度基准相互比对。所有这些表明, 在国内和国际上放射性基准都有继续使用的价值。总之, 大多数有关的放射核素是能够生产的, 但是要保持任何时候持续不断的供应, 包括对短寿命的活度基准, 则超出了大多数国家的国家研究所和商业研究所的能力。因此, 世界上对放射性基准的要求是用复杂程度不同的检定装置来满足, 其中包括: 用放射性基准检定衰变类型的宽频谱放射核素, 使国家或国际放射性测量系统实现标准化。美国的 ^{131}I 国家基准在检定间隔期间用NBS的 $4\pi\gamma$ 电离室和密封的镭进行检查。希望检查 ^{131}I 测量装置的任何研究所, 可在任何时候将放射核素溶液送往NBS进行检验。NBS也检验国际上分发的 ^{131}I 以保证国家系统与国际系统的一致。

对放射性测量的日益增长的需要给我们, 特别是国家研究所的义务是使国内外测量系统始终保持一致。在缺乏永久基准的情况下, 为保持上述系统的存在, 需要做些什么呢? 如果在病人服药上出现检定差错, 例如, 用 $^{99\text{m}}\text{Te}$ 或 ^{198}Au , 在几个月以后向法院起诉, 是无论如何也找不出证据来。放射性基准不是一种可以放在仓库里作为未来参考用的物质。

在美国标准局, 关于国家放射性测量系统, 我们采用的术语不是每个人都喜欢的。

我们想找一个比我们用的术语追溯性 (Traceability) 更好的词。美国任何地方的研究所能追溯到包括NBS的国家测量系统, NBS反过来可追溯到包括国际计量局的国际测量系统。在环境水平方面是否可追溯到国际原子能机构? 国际放射性单位与测量委员会 (ICRU)、国际计量局 (BIPM) 和国际原子能机构 (IAEA) 的相互比较还没有建立基准。他们仅仅建立了在一定时期里某些国家研究所在一定量值 (准确度) 范围内达到相互一致的测量, 而另一些研究所可能得超出上述准确度范围的测量。这些研究所数量上可能超过前者, 这也好! 这表明得到大多数人的同意。

美国很多商行发放放射性标准。美国1972年生产的放射性同位素, 包括放射药物费用约8千万美元。有关当局把动力反应堆和核燃料加工厂流出的放射物质规定一定的限额。总之, 联邦和州的主管部门和工业部门都想从国家放射性测量系统得到追溯性。为得到这个追溯性, 我们正着手于国内比对计划。该计划是仿照最近25年来国际上所取得的结果。我们认为有“直接”和“间接”两个追溯性, 而且在国际、国内都存在。当国内其它研究所制备一组被检定的放射性标准, 并任意选择几个样品交给国家计量标准研究所检验时, 这就是对国家放射性测量系统的直接追溯性。任何研究所将样品交给国际计量局, 就是对国际放射性测量系统的直接“追溯性”。一般说来, 国家标准研究所作不到。

当国家研究所把未知的待检定的放射性样品送到一个或更多的测量实验室, 反过来, 这些实验室所进行的测量与国家研究所在某些特定限度范围内相一致时, 可以说有1%、5%等等的追溯性。同样, 追溯性也用于国家研究所与国际计量局之间。过去进行一些努力, 取得了这样的追溯性。间接追溯性仅表明: “低水平的研究所有潜力进行与国家放射性测量系统和国际放射性测量系统相一致的测量。然而, 这样的实验室还没有建立一致的测量, 除非反复进行相互比对, 而且国际放射性测量系统内部关系在前几年大大削弱了, 把重点更多地放在书本上而不是放在相互比对测量上。为了保存国际放射性测量系统, 最简单的方法是对发射 α 射线的核素, 至少应该将二个或更多的装有上述放射性核素的标准溶液安瓶周期地送到国家研究所, 进而送到国际计量局检验。可惜到现在, 国际计量局还没有提供这样的检定业务。该项检定需要保存有设计很好的 $4\pi\gamma$ 电离室。国际原子能机构讨论了发展这种装置的可能性。

如果一个研究所经常用NBS放射性基准检定其自己的测量装置, 在我们看来, 这不能算是有了追溯性。只有当这个研究所对未知的样品能进行活度测量, 其值与我们的值在特定误差范围内一致, 我们才能认为追溯性已经建立起来, 那时不用NBS标准就可以得到。

我们想着重强调一下, 在美国我们试图建立并保存国家放射性测量系统。随着放射性核素在各个不同领域的越来越广泛地应用, 可以设想测量技术和设备的供应将落后于要求。放射性测量还不是普遍值得可信的。在美国, 对国家放射性测量系统的追溯性要求越来越多, 联邦管理当局, 州卫生研究所及公共事业机构需要, 商业部门和顾客需要, 医院和医务人员需要, 乃至病人都需要。研究机构同样需要可靠的放射性基准, 如有效截面测量, 以便可以同其它研究机构相比对。

美国标准局已尽力提供直接和间接追溯性。以前通过商业部门分配短寿命的 ^{32}P 。

^{131}I 和 ^{198}Au 标准溶液，分配部门总是送给我们两个安瓿进行测量。如果我们的结果与它们的相差 2% 以上，分配部门通常随即发出证明书，给出 NBS 的测量值，这就是对国家放射性测量系统的直接追溯性。

最近，美国病理学院 (CAP) 和美国原子能委员会要求美国标准局向各医院和医学研究所及几个环境放射性测量研究所发送检定过的，而且密封的样品以建立直接追溯性，我们已经分配过了四次，对 CAP 来说，我们正在进行另一种形式的追溯性实践。

一次分配 ^{59}Fe 和 ^{131}I 的安瓿，接收部门被要求告诉放射性核素及其活度，另一次要求医生和医务技术人员给病人注射一瓶 30 毫升含有已知量的 ^{51}Cr 的血浆，然后联同使用的皮下注射器一同送给我们检验，这些结果示于图 3、图 4 和图 5 (略)。

在环境实际工作方面，要求我们向当时控制监视核发电站的六个研究所提供标准和混合 γ 射线核素的样品。

放射核素计量学对核数据的要求

Boris Grinberg

(法国电离辐射计量室)

1. 前 言

任一使用的放射核素都至少包含一定数量的衰变纲图特征知识。用户对放射核素的主要兴趣是所发射出的辐射（性质、能量、强度）以及半衰期。当把放射核素扩大使用到许多科学和应用场合上时，这种需要就变得明显和很重要。这点就是为什么，早在1959年L. Slack和K. Way就提出一个题为“在经常使用中的放射性原子的辐射”的报告；分别由不同小组所公布的其他材料，由于在数据图表、表格等形式下出现和收集了核数据，就常常多多少少地被限制在一个所给定的场合上。

当核数据的这种需要，对多数放射核素的用户是重要的时候，它就成为电离辐射计量学、特别是那些发放标准的实验室的工作基础。除去所有其他考虑之外，任何一个计量工作者的基本目标首先是改进测量准确度。在电离辐射计量学中，作为现在的形势这种改进比技术本身的改进更多地依赖于衰变纲图参数知识。这种努力总是为着改进准确度，而不是技术对技术。这些实验室所提供标准质量，特别是它所包含的不准确度都直接地影响着用了它们而进行的测量和精度。换句话说，衰变图参数的这些知识会直接或间接地影响着活度测量的可靠性。这点不仅适应于活度计量学上，但也适用于电离辐射的剂量学上。

几个典型例子，特别是参考了所评价过的数据，一般能给出计量学中对衰变数据需要的概念。例如，让我们考虑 ^{125}I ，这个核现在在医学上应用的很广泛，因而需要提供它的标准。它是伴有有一个很强的同质异能过渡（35千电子伏）的电子捕获来衰变的。一种直接测量活度的可能方法是用 X_k （捕获）— X_k （内转换）符合。需要下列参数知识： $P_k = k$ 层捕获几率（75%量级）， $\omega =$ 荧光产额， α_i ， $\alpha_k =$ 总的和 k 转换系数。 $^{99}\text{Mo} + ^{99m}\text{Tc}$ 是另一个有有趣地例子。它的衰变图相当复杂（有7个 β -射线或伴有很多 γ -射线）。因为有半衰期为6小时Tc的活性贡献是不可忽略的，用符合法进行活度测量就要求知道 β 分枝比和Tc的内转换系数。如果在分离之后再对Mo进行测量，也还是需要知道分枝比的。在测量低能 β -发射体的情况中，就像 ^3H 和 ^{63}Ni ，使用量热计方法平均 β -能量知识是需要的。

所有这些只是几个例子，还可以给出其他例子。但活度的直接测定不是放射性计量学所涉及的唯一问题。用户碰到的问题也要考虑。例如在用 γ -谱仪对 γ -发射体的活度做间接测量的情况下，也需要分枝比和内转换系数的知识。这点对于刻度和测量本身都是确实的。 ^{241}Am ， ^{109}Cd ， ^{138}Ce ， ^{141}Ce ， ^{204}Hg ， ^{51}Cr 和 ^{137}Cs 这些核素就正是这种情

况。所要说的其要点是放射核素用户需要有好的半衰期数据。根据我的观点它也属于计量学范畴。最后，在放射分析中，特别在弱活度的情况下，要能分辨其杂质，不把杂质当成发射体是需要知道 γ -能量和活度。

2. 在核数据评价范围内的现状

如果用户对一个特殊的衰变图或一个给定参数有兴趣，显然他可以在文献上查找这些数据。那样的文献目录工作常常是很长的，有时是失败的，原因是对一个指定参数，不同的作者会给出不同的值。这方面的例子可以给出很多，特别是对半衰期。例如对 ^{60}Co 所引用的6个半衰期是躺在71和 (72 ± 4) 天之间，这个分散常常大于它们包含的不准确度（当误差是已知的情况）所期望的分散。一些作者经常地没提到这个误差，若是提到了一般也只是考虑偶然误差。在这些情况下，就必须去挑选那些是该保留的，而那些是该舍去的，以及那些该是采用的。如果用户决定把这项工作进行到底，这种选择是要建立在有点客观准则的基础上。那么他将决定是不是只取保留值的平均，还是取所有发表了数字或者他保留下来数字的权重平均。在后一种情况，当作者没给误差时，方法本身能估计出所包含的不准确度。我们可以看见，对这样的任务少数实验者是可以胜任的，而且当他们偶尔如此做了，由于没有发表则结果一般是对科学团体的一个损失。

这就是为什么用户除了在很特殊的情况下（在专业计量工作者的情况下）只不过是从现在表格上取数据。那些表格对大多数核素一般都是编辑很好的，而且有些则包含着有生气的评定。即使存有多次私人的评定，但作为在放射性计量中所需要的详细评定是不可能得到的；特别，没有一个表格包含着有适当定义的法则，以及含有这些参数最终值和准确度相应测定得来的实验结果的关键性的评定。

3. 新的努力

由这个情况以及还因为他们本身是需要的，在试图计算100多个最重要的放射核素衰变图参数中，四个欧洲实验室做了联合的努力。这个小组的目标不是做编辑者的工作，而是从事电离辐射计量学专门研究者的工作。对于每个参数，为用户提供一个“最佳”形式以及在一个给定的可信水平上给出它们的总的不确定度。所做的这个评价要尽可能按着适当定义的法则来做。一旦这个方案被接受了，下一步就是确定借以完成这项工作的方法。我认为这个小组的经验，所遵循的方法和所得到的结果很可能是有兴趣的，因此，我现在要稍微扩大一下这个问题。后面很多材料都是从这个小组发表的报告中取出来的。首先这对个小组的结构说几句，在开头它包括：荷兰核物理基础研究所(IKO)；欧洲联营核测量中心局(BCMN)；西德物理技术研究院(PTB)；法国的电离辐射计量实验室(LMRI)。

从一开始就明确，要做的第一件事情是确定一定数量的适当定义的法则。这些法则将是评定者们为尽可能减少主观判断所要遵循的。这些法则对任何一个完整评价（对报告结果的校正和均匀分配误差）所采用的后面步骤都起一定的引导作用；如有必要，舍去可疑数据；最后确定最佳值和它的总不确定度。

这是普通的目的，但怎样去达到它还不是那么明显。唯一的方法是阐明这个情况，确立这些法则也许目标在于正视直接在经验基础上的困难。因此这个小组决定承担评价 ^{58}Co ， ^{65}Zn ， ^{51}Cr ， ^{90}Sn ， ^{60}Co 几个同位素。它们之中的每一个都被属于不同实验室的两个评定者评定过，而且工作是互相独立的。这样得来结果的相互比对显出的矛盾多少是和误差估计有关的。在一系列的沉长工作之后，可能说，有时经过激烈讨论在这些分散问题上，以及所用法则上达到了一致。特别是在这点上或者误差的分配上，这些法则代表着这个小组参加者之间的一个折衷意见，但它们似乎可能有某些疑问，当然也是不完善的，尽管如此他们都代表着这个小组想要建立的基础。这些要点之一，正是现在存有很大困难以及这个小组举行的会议上所讨论的问题，就是误差的分配。把一个已知参数的一系列值合并成最终“最佳”数字，仅在赋予单个数据以可相比较的误差基础上才有适当地可能。误差在这儿是被定义为在给定的可信度和自由度（ f 是独立测量次数 n 减去所提取数据的数目，一般是 $f = n - 1$ ）时一个结果偏离未知真值的估计极限。而且总误差的分配意味着偶然和系统误差的组合。

4. 误差分配的法则

下面简短地总结一下所采用的法则以及推导它们的想法。偶然误差是对测量结果统计起伏的指示，它通常和标准偏差 e （依赖于取实验数据的测量数目 n ，而且这些数据是对已知系统误差的影响做过校正的）接近，

$$e = t(s, \alpha) s / \sqrt{n} \quad (1)$$

这里 t 是自由度为 f ，可信度为 α 的学生式 t 值， S 是标准偏差：

$$S^2 = \sum (X_i - \bar{X})^2 / (n - 1) \quad (2)$$

不同偶然误差的组合是根据基于高斯分布假设基础之上的统计定律来完成的。测量方法的精度（重复性）特点在于测量结果的这种标准偏差。

（残留）系统误差 δ_i 是对结果做了系统起伏修正之后对剩下的误差估计。估计这种系统误差并不简单，是要求对实验过程做彻底的研究。它们具有合成特征，并与测量次数无关。由于符号常常是未知的，建议尽可能指定为对称的系统误差为 $\pm \delta_i$ 。如果非对称误差被指定了，则别的过程跟着也就发生了。所有可能的系统误差影响，以及它们的估计和残留不确定度估计的完整清单都要对每一个测量来完成。明确地测定系统误差是不可能的，这是因为它们的分布常常是不知道的。建议从每个可能得到的迹象对这个系统误差估计合理的误差限。在一次测量中，不同的个别（残留）系统误差必须合并成总的系统误差 δ 。对几个个别误差，或者几个主要的个别误差建议采用简单相加： $\delta = \sum \delta_i$ 对于很多大小可比的个别的系统误差，它的统计组合建议是： $\delta = (\sum \delta_i^2)^{1/2}$ 。对中间情况，就要在这两种建议的解决方法中挑选一个合理估计。

一个测量的偶然和总系统误差必须合成为可以表达所得结果特征的一个总误差（总的不确定性，准确度）。因为系统误差的分布是未知的这点是不可能做得不模棱两可的。还有，可以使用不同的模型，推演出理所当然的公式。作为折衷的解决方法，建议使用简单的法则，

$$\Delta = \frac{1}{3} (ts/n^{1/2} + \delta) \quad (3)$$

它是相应于68%的可信水平，在多数情况下，这个法则对于一个测量的总误差或者准确度将给出合理的估计。它的优点是，在3倍后差不多给出99.7%的可佳水平的估计。

5. 所采用的评定法则

如果对于所用常数或比较新的公式可能给出较好值时，则所报告的结果就是正确的。若作者主张的误差同采用的定义不一致时，误差就要根据上面给出的法则给定。如果新给定的误差比最准确结果的误差的三倍还大时，或者对它不可能给定任何误差的话，则该数据就该舍去。为了测出最后的“最佳”值以及它的总不确定度，就得分辨一系列情况，好象不可能对可碰到各种情况评定者都采用一个唯一法则。所考虑的这些情况是：使用同样方法的一个作者的最好结果，或者是从一些有点独立的方法上得来的结果。实际情况的细致分类是有点任意性，这是不可避免的。在中间的情况下，找到一个合理的折衷在于能对最终结果给出最好的近似值。主要的法则是，所要求的最后准确度是在68%可信水平上来估计的。

6. 结 语

在许多情况中，按照上述法则所确定的不确定度可能仍然对用户是不满足的，这点可能是来自如下不同原因：在测量时间内有杂质，所报告的结果有那样大的分散，甚至在考虑了所包含的不确定度也不能给出一个最佳值、等等。这个视在的失败的结论是要对上述参数做重新测定。当评论者碰到这种情况，就必须不犹豫的建议，要进行新的测定。对 ^{138}Ba 的半衰期存在两组值： $(10.352 + 0.040)$ 和 $(7.8 + 0.1)$ 年。显然这里不能推荐一个最佳值。在这种情况下，半衰期要重新测量。

在所建议要进行评定的大约100个核素中只有5个是达到了被评定的程度。这么小的数目是只有几个人做这件工作所造成的，很多时间又是花费在寻找一致的评定法则上以及评定本身的彻底编辑上占去了很多时间。如果工作是按照合理的速度进行的话，这个小组每年是可以扩展20个核素，另外所有这个小组的成员都是计量学范围上的研究工作者，不仅仅是一个编辑者，在同样的时间上意味着他们只可以在这上面工作部分时间。这些成员们希望其他物理工作者加入他们的行列，并分担他们的工作。在这个途径上，这个组就不只限制在几个欧洲实验室，而使得工作在比较广泛但尚不是国际范围上进行。

讨 论：

Campion：可靠的核常数在放射核素标准的应用上是特别需要的。所以请求所有作者，谁发表常数的实验值，谁也就充分详细地发表它的不确定度。这样计算者就可以准确的评价这个数据。不确定度的组合是一个折衷问题。由此可见，每个个别的不确定性，特别是系统的不确定度就会是清楚的和处于毫不含糊的状态。

Taylor：如果充分的使用是决定于放射核素的标准时，就需要有较准确的核数据，然而我不同意，在标准化的建立上总是需要的说法。例如在 ^{125}I 和 ^{51}Cr 的标准化上使用符合方法时，在本质上能和衰变图参数无关的给出精确的衰变率，这是因为这些参数实际值不参与符合公式。

Grinberg: 做为例子我同意外推方法不要求这些参数知识, 当用这种方法测量 ^{125}I 的例子就是这种情况。但是 ^{125}I 也可以在我的报告中提到的其他方法来测量, 而在那种情况下, 一系列的参数知识就是需要的。此外, 我相信从确定可能发生的系统误差或改进精度上, 计量工作者是要求采用可能多的活度测量方法。例如在Tc的情况下, 目前用外推法得到的精确度是2~3%, 而别的方法是0.5%。关于 ^{51}Cr 要补充的是这个核素不是用做EC标准, 而是作 γ —射线标准使用。

放射性测量方法的一般情况

A. Spornol

(原子能测量中心局)

1. 引言

放射性计量学的范围仍然在非常迅速地发展着。估计每年都有几千篇与此范围有关的论文发表。但是，最近刊物的大多数论文都与特殊的应用或改进的问题有关。而对于放射性计量学的一般原理和基本问题似乎是已经解决了，或至少在近10年里也是被承认了。因此，有可能根据若干系统的原理决定下列评论范围。这次系统的研究的主要目的是概括目前的技术状况，探索未被发现的可能性，说明各种方法之间的相互关系。

系统性质的三类问题对于计量学者来说好象是最重要的，所以在这儿论述它。第一类是系统的研究放射性蜕变统计特性的结果。具体的说，将要考虑到放射性测量的主要的局限性和可能性问题；第二类问题是系统的评论在各种条件下放射性测量所利用的物理效应和化学效应。用一篇简短的论文是不可能完成这个评论的。但是，能够努力找到一个系统的分类，并且根据最重要的可能的基本准则评论这些分类，特别是对于未被发现的可能性的一种检验；由系统观点出发论述的第三个问题是评论非常精密测量所需要的条件。

因为“放射性测量方法”范围是十分大的，首先要定义它意味的是什么，以及在下列的应用中要受到那些限制，这可能是有用的。第一个词“放射性”，好像从来没有十分满意地定义过。国际放射性单位与测量委员会(ICRV)的最新建议没有精确地定义“自发地”转换和“同质异能”态，而且忽略了与核转换有关的原子效应。还有最近承认的放射性单位秒⁻¹，是不完全满意的，因为它至少在字面上与属于一个周期过程的“赫兹”相同。如果由于核子过程的一切种类的原子核转换，自发的和诱导的，都被包括了，特别是包括了所有核反应和一切种类的从中子和裂变碎片到介子和光子的粒子，那么，这个定义放射性最重要的问题就似乎可以被避免了。当然，关于放射性测量方法的系统评论，在这广泛的意义上讲，是不能用几页文字就能给出的。因此，下面将一般地，仅限于放射性最常见的类型， α ， β^\pm ， γ 辐射和电子俘获来评论。与这篇文章标题的第二个词“测量”有关的问题，在这儿，一般来说是不重要的。对于我们的使用“测量”能成功地被定义为“对于接受体所分配的数目”，更进一步分析，参阅文献[4.5]标题的最后一个词“方法”的精确定义更是困难。为我们目的，如果测量的基本物理原理或计算方法不“大犬”相同的话，可以适当的充分的定义，所考虑的这两种方法是不同的。

2. 放射性蜕变的统计性质以及放射性测量的统计性质的结果

(1) 引言

一个样品的放射性总是由两个统计因数来表征, 即在某时刻的平均蜕变率 \bar{r} 和平均蜕变率的方差 $S_{\bar{r}}^2$ (或方差均方根, 标准偏差) 来表征。方差可由一系列测量或由统计模型推导出。在这儿忽略了系统误差的影响。

支配放射性蜕变的统计规律——(一般是一个好的近似)——是一个参数, 不连续的——几率的泊松分布, 较早时候它叫做小数定律。在 Δt 时间间隔里, 当出现平均事件数 $\bar{n} = \bar{r} \Delta t$ 的这个测量条件下, 对于出现 n 个事件几率 $P_n(\bar{n})$, 所使用的大多数表示式:

$$P_n(\bar{n}) = \bar{n}^n e^{-\bar{n}} / n! \quad (1)$$

这个定律可以用许多不同的方法推导出, 尤其是做为其它分布的极限定律, 例如, 做为二次分布的极限定律, 它是泊松过程差分—微分方程的解。或者根据几个(两~四个)基本公理推导出它。但是, 大概最基本的推导是用了相邻事件之间间隔几率分布:

$$p_1(t, \bar{r}) \Delta t = \bar{r} e^{-\bar{r} \Delta t}, \quad (2)$$

这儿 $p_1(t, \bar{r}) \Delta t$ 是计数开始后或出现在 $t-t + \Delta t$ 时间间隔里的其它事件之后的第一个事件的几率。这个关系式能够成立的唯一的必要且充分条件是相邻事件之间距离为 d 时的负指数几率分布:

$$P_{d>t}(\bar{r}) = e^{-\bar{r}t} \quad (3)$$

这是泊松过程的一个基本特征, 它使理解泊松过程的一系列性质比等效事件的分布[式(1)]容易得多。

泊松过程的许多其它的性质可以推导出, 它们之间的相互关系已确立, 已完成许多有用的概括和近似的推演。在这儿仅仅给出一个“简短”的评论是很不可能的, 但是, 也提到了几个例子。对于测量目的特别有意义的是各种变量, 因为它们只包含一个分布参数 λ (分别等同于 \bar{n} 或 \bar{r}) 的简单形式。围绕平均值的第一个非零变量是: $M_2 =$ 方差, $S^2 = \lambda, M_3 = \lambda, M_4 = \lambda + 3\lambda^2$, 以及在原点周围是: $m_1 = \lambda, m_2 = \lambda + \lambda^2$, 等等。有用的一般化的例子是混合的泊松分布, 例如, 截尾分布和stuttering分布, 对于死时间修正(看下面), 可能是有的, 以及censored分布, 在这分布中, 除去相邻事件的数目, 那么剩下的不变化的数目是(Erlang process), 对于定标线路的分析是有用的。为了多种用途, 尤其为统计检验和估算, 不连续的泊松分布可以足够的精密度地由连续的正态的(高斯)分布所近似。

(2) 由于放射性统计性质, 所引起的放射性测量的局限性

由于一系列的原因, 使放射性测量结果用泊松分布描述受到限制。首先, 泊松定律只是对于大量的样品的放射性的是好的近似。用一个简单的盒子模型, 很容易理解这点, 盒子里有 R —红色的, $(N-R)$ 个白色的, 其它方面一样的球。如果一次取样是抽出几个球, 记录, 然后放回盒子, 那么超几何函数描述了在这个样品中红色球的分布。这分布依赖于三个参数 n, N 和 $R/N = P$; 如果取样只有一个球的话, P 是找到红色球的几率。假如盒子的存数(是不变化, 比如: 取样品球一个接一个地拿出来, 每一个球记录

之后，又放回去，就得到了二项分布。它再也不依赖 N ，而仅仅依赖两个参数 n 和 P 。二项分布也可以做为一个大的 N 的超几何函数的近似推导。一个参数的泊松分布最后由非常小的 P 和十分大的 n 值的二项分布的近似而得到。参数 $pn = \bar{n}$ 仍然保留，但是有限的，一般是小的（这也说明“小数”定律的名称）。于是泊松近似仅仅是对大的总体（ $N \gg \bar{n}$ ）和大的样品 $n \gg \bar{n}$ 有效。其实，放射性测量与上叙模型的任何一种都不十分相符，因为一个蜕变了的原子从总体中出来后，决不会回到“盒子”里去。但是，在这情况下，倘若总体（ N ）的变化或样品（ n ）的任何变化不影响平均值（ \bar{n} ）的话，泊松分布将是可使用的。换句话说，蜕变数目，在所要求的精度水平，对于没有蜕变的放射性原子来说是可以忽略的。在大多数应用中，这恰恰是真实的，但是，如果测量的核素有相当短寿命，放射性子体产物已生成，或计数数目十分小的话，可能产生相当大的误差。其它分布函数的应用，尤其上面提到的那些分布函数以及合成的或混合的具有非一常数平均值泊松分布，在这样的情况下，可以是方便的。

对于泊松分布适用性的第二个局限性是由于彼此完全独立的事件（记录的事件）的基本假定。因此，每一个相互关系式，尤其被测量装置的死时间所引起的每一个相互关系，明显地畸变了泊松分布。这很容易在死时间畸变的间隔分布的情况时看出，如果 τ 是死时间（非一延长的）只有在 $t = \tau$ 时，分布是有限的，在 $t < \tau$ 时，将等于0。这个分布，截尾的泊松分布；以及某一事件的几率，也依赖于以前事件的命运所有在的那个过程，（Markov链）在近几年都作过精确地研究。Muller在这个讨论会上给出评论，因此在这儿仅提到通过相互关系推导标准偏差和根据畸变的分布确定死时间。由于后脉冲可以引起其它干扰关系，将不在这儿讨论。

泊松定律适用性的第三个局限性是由本底引起的。如果本底不服从泊松分布，——比如，如果本底主要是噪音或在某些同时的实验中引起——那末总的计数率也显示一个非一泊松畸变。如果本底是泊松函数，总计数也将服从泊松定律。但是，在大多数情况下，两个泊松变量之差构成的净计数是不十分容易，而且当本底比得上真实效应时，可能发生问题。如果一个计数装置给出泊松分布结果，对于刻度总是十分成功的。能够自动地完成这个检验的系统在文献[20]中叙述。

还有，放射性指数蜕变规律 $n(t) = n(0)\exp(-\lambda t) = n(0)\exp(-0.69315t/t_{1/2})$ 是利用一些统计假定推导的，比如，彼此完全独立事件的假定。好像这些假设的后果对于半衰期的测定仍不是完整地研究过，但是，由此所引起的某些问题在新近的刊物中十分广泛地论述了。在某些比较新的理论研究方面，指数蜕变规律的主要确实性是被怀疑的，但是，这种怀疑好像在计量学的应用中引不起什么问题。

(3) 基于统计性质基础上的放射性测量的可能性

确定一个源的平均蜕变率（它做为基础的泊松分布的唯一参数），大概唯一使用的方法是测量某一时间间隔的蜕变数。像在零死时间，零本底等等理想的条件下这样的测量，确实给出数据的最大值。但是，在某些实际条件下，情况可以不同。倘若还有其它测量方法更方便的话，这就需要进行检验。实际上，如果能够找到适当的测量程序的话。由泊松分布推导的许多关系式中的任何一个关系式，都可以用于这个唯一参数的测定，在这儿指的是平均蜕变率的测定。例如，立刻就会明白，相邻事件之间平均距离的