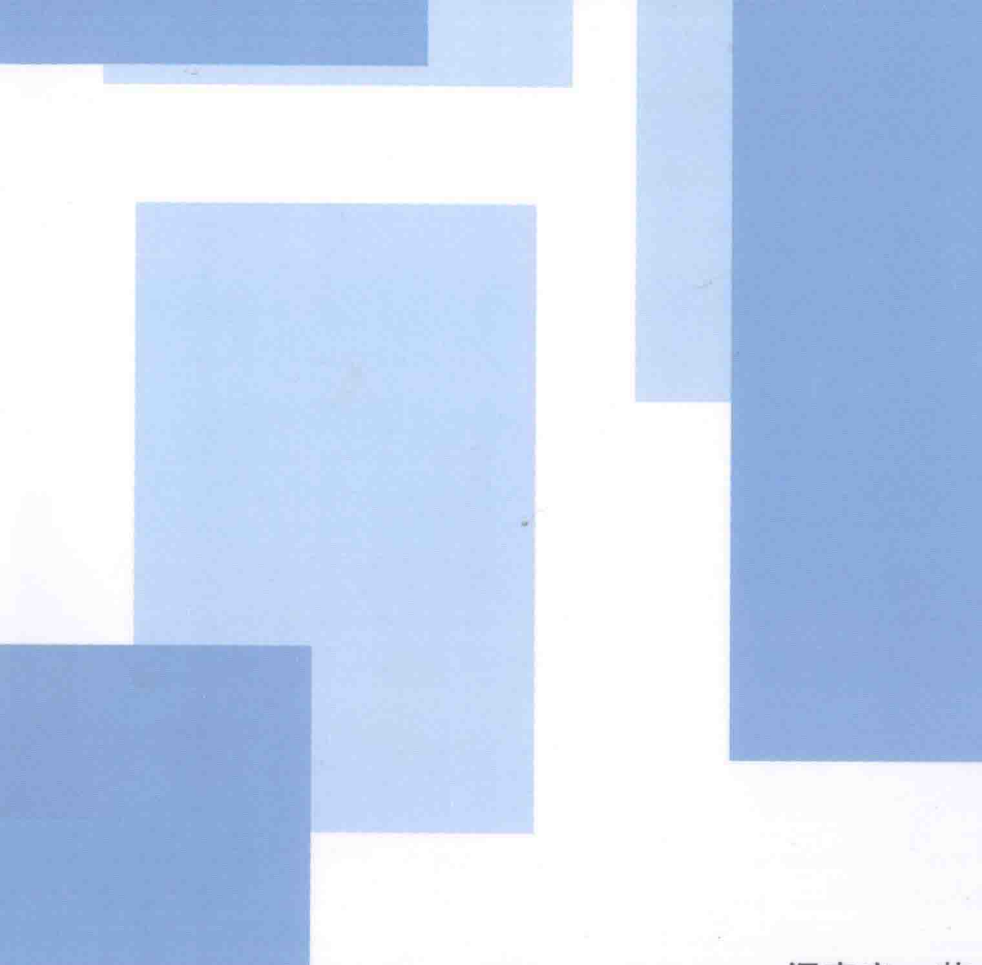
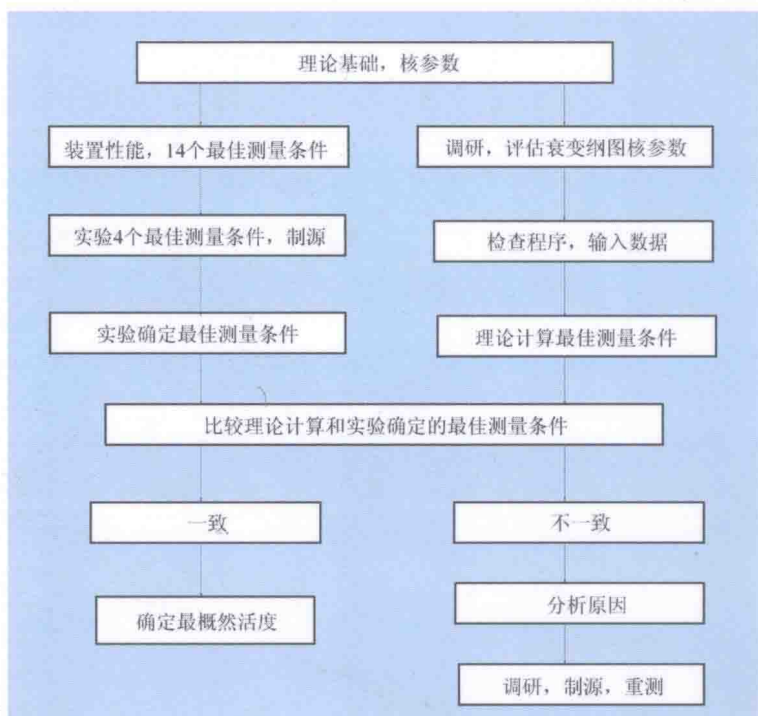




阎春光 著

放射性活度测量综合法

中国原子能出版社



ISBN 978-7-5022-6329-4



9 787502 263294 >

定价: 36.00元

放射性活度测量综合法

阎春光 著

中国原子能出版社

图书在版编目(CIP)数据

放射性活度测量综合法 / 阎春光著. —北京:

中国原子能出版社, 2014. 7

ISBN 978-7-5022-6329-4

I. ①放… II. ①阎… III. ①放射性活度—测量

IV. ①O615.13

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2014)第 163262 号

放射性活度测量综合法

出版发行 中国原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100048)

责任编辑 侯茸方

装帧设计 马世玉

责任校对 冯莲凤

责任印制 潘玉玲

印 刷 北京九州迅驰文化传媒有限公司

经 销 全国新华书店

开 本 850mm×1168mm 1/32

印 张 8.375 字 数 219 千字

版 次 2014 年 8 月第 1 版 2014 年 8 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 978-7-5022-6329-4 定 价 36.00 元

网址: <http://www.aep.com.cn>

E-mail: atomep123@126.com

发行电话: 010-68452845

版权所有 侵权必究

符号说明

n, N 测量点数目

T_c 计数持续时间

M 放射源质量

SD 标准偏差绝对值

$T_{1/2}$ 半衰期

E_β β 射线能量

N_{bj} 外推法 j 次方幂拟合活度, $j=1, 2, 3$

N_{0j} 综合法 j 次方幂拟合活度, $j=1, 2, 3$

$E_{\beta\max}$ (keV) β 射线最大能量

$\overline{E}_\beta$ (keV) β 射线平均能量

E_x 确定活度需要的能量

$\overline{E}_\beta / E_{\beta\max}$ β 射线平均能量和最大能量比

E_{xu} 最佳拟合区上限 X_0 对应的能量

$p_{\max}$ β 射线最大动量

E_{amth} (keV) 理论计算的放射源最大允许自吸收能量

E_{amex} (keV) 实验测定的放射源最大允许自吸收能量

$\overline{p}$ β 射线平均动量

p_1 β 射线效率约 0.5 时对应的动量

$\epsilon_{\beta\max}$ β 射线最高观察效率

p_2 β 谱形达到最高点对应的动量

p_3 β 射线效率变化最快对应的动量

ϵ_β β 射线效率

ϵ_γ γ 射线效率

$\epsilon_{\beta\gamma}$ β 计数器记录 γ 射线的概率

τ_β β 道死时间

τ_γ γ 道死时间

σ_0 死时间引入的不确定度
 σ_u 拟合区上限引入的不确定度
 σ_1 计数统计引入的不确定度
 σ_{γ_0} γ 道本底引入的不确定度
 σ_l 拟合区下限引入的不确定度
 σ_s 效率函数斜率引入的不确定度
 σ_R 符合分辨时间引入的不确定度
 $\sigma_m = \Delta m / m$ 称重引入的不确定度
 $\sigma_{T1/2}$ 半衰期引入的不确定度

σ_j 标准偏差。 $j=1,2,3$,表示拟合方幂幂次(次数)(拟合幂次),数值在不小于 0.01% 时,用百分数表示,如数值为 1.96,表示 1.96%,大于 0.01% 小于 0.1%,用四舍五入,0.014% 记为 0.01%,0.095%,记为 0.1%,当小于 0.01% 时用指数表示, 8.2×10^{-5} ,不用 0.0082% 表示。

X^j 拟合方幂

σ_{ij} 截距不确定度, $i=1,2,3$,表示拟合方幂次(次数),数值表示方法同上。

X $(1-\epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$,效率函数自变量

X_a 外推截距

X_u 拟合区上限

X_l 拟合区下限

X_{uth} 理论计算的最佳拟合区上限

X_{uex} 实验确定的最佳拟合区上限

$(1-K)_{th}$ 理论计算的效率函数斜率数值

$(1-K)_{ex}$ 实验测定的效率函数斜率数值

X_g 曲率中心位置

X_p 曲率半径

X_{fth} 理论计算的效率函数斜率符号

X_{fex} 实验确定的效率函数斜率符号

X_{zth} 理论计算的效率函数曲率中心位置

X_{zth} 实验确定的效率函数曲率中心位置

- $\Delta_{\gamma 11}$ 不同 γ 窗线性拟合活度之差
- X_{γ} γ 窗位置
- Δ_{jm} 拟合方幂 j 所得活度最大值和最小值之差, $j=1, 2, 3$
- ΔX X 范围内不确定度(%), X 变化范围和相应各项不确定度
- Δ_j 偏离最概然活度值, $j=1, 2, 3$, 表示拟合方幂数值, 表示方法同上
- Δ_{ij} 不同拟合方幂拟合活度之差, Δ_{12} 表示一、二次方幂拟合活度之差, Δ_{13} 表示一、三次方幂拟合活度之差
- $U(x)$ 活度扩展不确定度
- $U_s(x)$ 溶液比活度扩展不确定度

目 录

符号说明

第 1 章 绪论	(1)
1.1 活度测量的产生、发展和应用	(1)
1.1.1 活度测量的产生	(1)
1.1.2 提高活度测量准确度的三项措施	(2)
1.1.3 活度测量应用	(6)
1.2 综合法产生的历史背景概述	
——近一个世纪发展起来的主要活度测量方法	(12)
第 2 章 方法	(18)
2.1 综合法产生的原因、概述和总程序	(18)
2.1.1 综合法产生的直接原因——Baerg 外推法	(18)
2.1.2 综合法概述	(21)
2.1.3 总程序	(23)
2.2 理论基础、核参数的重要性	(24)
2.2.1 理论基础	(24)
2.2.2 核参数重要性概述	(26)
2.3 理论计算最佳测量条件	(28)
2.3.1 活度标准、理论计算和计算理论 β 谱形意义	(28)
2.3.2 理论计算最佳测量条件的内容和方法	(35)
2.3.3 理论计算最佳测量条件程序	(50)

2.4	实验确定最佳测量条件	(51)
2.4.1	实验意义	(51)
2.4.2	实验方法	(55)
2.4.3	实验确定最佳测量条件程序	(59)
2.4.4	采用实验方法的条件及特点	(61)
2.5	理论计算和实验结果的分析、结论和处理	(64)
2.5.1	证明的重要性	(64)
2.5.2	影响理论计算和实验确定最佳测量条件不确定度因素	(65)
2.5.3	综合法确定最概然活度的观点和原则	(67)
2.6	应用于纯 β 辐射体测量	(68)
2.7	核素的粗略分类	(68)
2.7.1	无需理论即能计算最佳测量条件的核素	(68)
2.7.2	理论可计算 8 个最佳测量条件的核素	(69)
2.7.3	理论可计算最佳拟合区上限和放射源最大允许自吸收的核素	(70)
2.7.4	理论可计算斜率数值、符号、曲率中心、曲率半径的核素	(71)
2.7.5	理论不能计算最佳测量条件的核素	(72)
2.8	测量建议	(72)
2.8.1	最高准确度测量	(72)
2.8.2	高准确度测量	(74)
2.8.3	一般测量	(75)
第 3 章	^{147}Nd 活度测量	(79)
3.1	计算最佳测量条件的依据	(79)
3.2	理论计算最佳测量条件	(81)
3.2.1	费米理论 β 谱形	(81)

3.2.2	β 射线效率	(87)
3.2.3	效率导数	(92)
3.2.4	观察效率和放射源最大允许自吸收能量	(95)
3.2.5	最佳拟合区上限	(96)
3.2.6	最佳拟合方幂、效率函数斜率数值、符号和 归一化效率函数随动量的变化	(98)
3.2.7	确定曲率中心	(101)
3.2.8	效率函数曲率半径	(105)
3.2.9	最佳 γ 窗位置	(109)
3.3	装置	(110)
3.3.1	装置结构与历史概况	(110)
3.3.2	装置性能参数设置的最佳条件和改善性能的 简单做法	(112)
3.4	制源	(117)
3.4.1	衬托膜的制备	(117)
3.4.2	定量取样	(118)
3.4.3	源的制备	(120)
3.5	实验	(122)
3.5.1	实验标准	(122)
3.5.2	实验前装置的准备工作	(123)
3.5.3	实验和 ¹⁴⁷ Nd 实验效率函数	(124)
3.6	实验确定最佳测量条件	(127)
3.6.1	确定最佳拟合区上限	(127)
3.6.2	确定最佳拟合方幂、效率函数斜率数值、符号、 曲率中心位置和曲率半径	(135)
3.6.3	最佳拟合区上限条件下的部分结论	(144)
3.6.4	最佳 γ 窗位置	(148)

3.6.5	最佳测量条件下确定最概然活度的部分结论	(150)
3.7	不确定度	(159)
3.7.1	最佳条件下的不确定度	(163)
3.7.2	拟合区上限对不确定度的影响	(165)
3.7.3	γ 窗位置对不确定度的影响	(172)
3.7.4	残差	(180)
3.7.5	计算 ^{147}Nd 活度不确定度	(182)
第4章	^{63}Ni 活度测量	(187)
4.1	活度测量意义及计算最佳测量条件的根据	(187)
4.1.1	^{63}Ni	(187)
4.1.2	^{60}Co	(188)
4.1.3	^{134}Cs	(189)
4.2	理论计算最佳测量条件	(191)
4.2.1	^{63}Ni 最佳测量条件	(191)
4.2.2	^{60}Co 最佳测量条件	(192)
4.2.3	^{134}Cs 最佳测量条件	(196)
4.2.4	计算 $^{60}\text{Co}+^{63}\text{Ni}$ 混合源最佳测量条件	(204)
4.2.5	计算 $^{134}\text{Cs}+^{63}\text{Ni}$ 混合源最佳测量条件	(205)
4.3	装置与实验	(206)
4.4	实验确定最佳测量条件	(208)
4.4.1	^{60}Co 最佳测量条件	(208)
4.4.2	^{134}Cs 最佳测量条件	(215)
4.4.3	$^{63}\text{Ni}+^{60}\text{Co}$ 混合源最佳测量条件	(221)
4.4.4	确定 $^{63}\text{Ni}+^{134}\text{Cs}$ 混合源最佳测量条件	(224)
4.4.5	确定活度最佳条件及 ^{63}Ni 比活度结果	(229)
4.5	计算 ^{63}Ni 比活度不确定度	(230)

附录 1	理论能计算效率函数斜率数值、符号、曲率 中心的核素	(243)
附录 2	理论能计算放射源最大允许自吸收、最佳拟合区 上限的核素	(249)
附录 3	^{177}Lu 最佳测量条件、最概然活度和不确定度的 实验确定	(252)
附录 4	理论计算 β 谱形、效率、平均能量的程序 (BSAEC)	(254)
感谢		(256)

第1章 绪 论

1.1 活度测量的产生、发展和应用

1.1.1 活度测量的产生

1896年贝克勒耳(Becquerel)发现了天然放射性现象,这是人们第一次观察到的核衰变现象。原子核自发地放射各种射线的现象,称为放射性。放出的射线有带正电的 α 射线、 β^+ 射线、带负电的 β^- 射线、不带电的X射线、 γ 射线和中子。放射性计量学^①是研究放射性核素单位时间发生衰变数目、射线和物质作用产生效应及其应用的科学技术。本书在原有方法基础上,研究核素通过放射 β^- 射线衰变时,测量单位时间发生衰变数目的方法,即活度测量方法。

最初的活度测量是由居里夫人进行的。20世纪的头十年,居里夫人采用薄锡铂制成很简单的验电器,测量沥青中镭衰变辐射的 α 粒子。 α 粒子使验电器两叶片带上相同电荷,产生斥力,使叶片张开。电荷越多,张开角度越大,利用这个现象可以判断放射性是否存在,并测量其含量多少,用任意单位建立其含量多少的联系。这标志着活度测量的开始和放射性计量学的诞生。

^① 亦称电离辐射计量学,因为原子核衰变放出射线后,和物质发生作用,使物质电离或激发。受激原子退激发出次级辐射,这些次级辐射射线也会使物质电离而发生辐射。



在一个世纪前居里夫人开始测量活度时^[1],标准意味着方便的关系,无论在什么地方测量,其结果都可以按给定单位建立联系,Cavallo 说这是一种粗略的标准。放射性计量学产生的历史事实表明,最初标准的选择任意性很强。1910 年召开的放射学和电学大会指定了专门委员会制备镭基准。1912 年,通过比对建立了由居里夫人和 Otto Hönigschmid 制备的镭标准。这是放射性的第一个标准,标志着放射性计量学标准的建立。现在,一般称其为镭基准。在后来的 20 年里,所有国家的镭基准都使用这两个国际镭基准检定。第一个放射性镭基准是质量基准,测量 1 g 镭放射性便得到放射性物质的活度。

1.1.2 提高活度测量准确度的三项措施

提高活度测量准确度需要多方投入,多种工作配合,采取多项措施。这里只谈建立国家和国际组织、进行活度测量比对和开展学术交流等三项措施,并简要介绍国内国际历史及现状。主要目的是想说明,要发展活度计量,需要改善目前活度比对和学术会议存在的局限性,而其基础和关键是建立新的活度测量方法。因为,举行比对和学术会议,目的是获得准确度较高的活度和相应的不确定度。统计不确定度和装置性能参数引入的系统影响不确定度一般量值小,而且在一定条件下可控制在一定范围内。所以,比对和学术会议主要是确定不同方法(或相同方法在不同测量条件下)引入的系统影响不确定度,而更主要的是发现可能存在的未知部分。所以,比对的基础是测量方法和测量条件。学术会议讨论的也多是测量方法及其相关技术。

1. 建立国家和国际组织

20 世纪 50 年代是核能事业新兴发展时期,就目前和今后一个时期而言,核能事业仍然在我国核科学、核技术领域起重要作用。活度测量在核技术应用中是定量的基础。建立组织是放射性



活度计量的基础和保障。我国和世界上大多数国家建立三级组织机构负责国家放射性计量准确度提高和量值统一。我国三级计量机构最高是中国计量科学研究院,二级是省、部门、市级,三级是县、医院、企业等基层应用单位。负责世界范围计量准确度提高和量值统一的机构简述如下。1875年,在美国和英国等18个国家召开的米制会议上,决定在法国塞佛尔建立国际计量局。1958年,建立国际计量局电离辐射计量咨询委员会,由于研究内容广泛,分为四个小组。第二组从事放射性核素计量,目的是提高测量活度的准确度和一致性。包括活度测量技术改进,以及活度测量所需的常数测定。后来建立国际放射性核素计量委员会,工作小组扩展为6个,其中有放射性核素计量技术,非中子核数据等。国际计量组织最主要工作是组织国际放射性核素溶液比活度的比对。

2. 活度测量比对

所谓比对,是用同一种核素的放射性溶液由国际(或国家)计量组织发放到参加实验室或单位,各单位自由选择测量方法、测量装置和条件,测定活度结束后把结果返回到组织单位,然后开会讨论。这是集国际(或国家)所有从事活度测量人员的智力、国家财力,对同一种核素进行集中优势力量的大会诊、大考试、大检查,是通过测量比对和讨论希望对测量方法、装置、条件等得到有价值共识的机会。所以,各个国家、实验室、参加人员都很重视该项工作。

我国由中国计量科学研究院组织,于1973年5月4日在武汉举行了第一次 ^{60}Co 放射源的活度测量比对,参加单位16个,比对结果分散度为6%(一个单位分别用小立体角和G-M计数器测量,结果和计量科学研究院比分别偏低1.4%和偏高25%)。1978年6月28日在上海举行了 ^{134}Cs 放射性溶液的比活度测量比对,参加单位18个,比对结果分散度1.8%。以后,又有放射性计量



一级站组织了 ^{131}I 比对。两个单位共对 10 余个核素进行了十几次比对。

国际上,在 1955—1967 年期间,第二组发起了多次比对。例如,在 1961—1967 年连续 7 年间,分别进行了 ^{32}P 、 ^{131}I 、 ^{199}Au 、 ^{60}Co 、 ^{204}Tl 、 ^{35}S 、 ^{60}Co 、 ^{241}Am 、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y 、 ^{54}Mn 和 ^{60}Co 等十余个核素比对。起初是国家间小范围进行。后来由国际原子能机构(IAEA)组织国际间比对及其学术讨论会议。前三次,分别是 1959 年、1966 年在维也纳,1972 年在前南斯拉夫举行。从第四次于 1981 年 5 月 11—15 日在波兰华沙举行,由国际放射性核素计量委员会(ICRM)组织。后来几年里,不但由于组织比对工作量大,而且对比对结果不满意,决定暂停比对。同时认为,对于在全世界提高准确度总课题,应成立多个工作小组,每个小组深入研究一个与放射性核素计量有关的特殊课题,如符合原理、微量称重、检验放射性核素参考技术的研究、假脉冲探测和估计等。此后,首先安排比较先进的实验室小范围比对,达到预期目标后,再安排大范围国际比对。采用这种方式又进行了 ^{226}Ra 、 ^{125}I 、 ^{134}Cs 、 ^{152}Eu 、 ^{139}Ce 、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 、 ^{237}Np 、 ^{89}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{65}Zn 、 ^{58}Co 、 ^{88}Y 等 20 余种核素比对。其中, ^{139}Ce 放射性溶液在 1974 年进行了只有 5 个实验室参加的小范围比对,然后在 1976 年进行了有 23 个实验室参加的大范围国际比对,溶液浓度分散度达到 1.1%,是比较满意的一次比对。

国际、国内比对和学术会议概况、基本结论类似。下面以国际比对为例谈谈浅见。

半个多世纪以来,科研人员已经对几十种核素进行了几十次比对。参加单位从几个实验室增加到几十个国家,论文从几篇增加到几十篇,人员从一二十增加到一二百人。

对复杂衰变纲图核素,参会人员觉得如果自己的结果处在比较集中的地方,就猜想可能是好的,如果自己的结果处在边缘的地



方,就猜想可能是差的。大会发言除组织单位安排人员介绍自己的测量情况外,少有人主动对比对结果发表看法。因为所有结果都是按照操作程序得到的,除了个别由于操作失误偏离太远的以外,所有结果无理由抛弃,都应予以承认。参会人员想要根据比对数据对测量方法(或相同方法在不同测量条件下)或者全部比对结果做出从理论到实验的完整、准确、一致的且符合核素衰变特征的说明,面临着较大的困难。这种状况持续了一定时间,形成这种情况的原因是确定活度没有标准可供参考。这就是新建方法需要解决的问题——确定活度应有不随人员和装置变化的参考标准。

有了标准以后,存在的问题就可能解决,例如:

- 1) 判断测量方法的优劣,首先看确定活度的标准的内容,标准的客观性、唯一性和不变性越强,测量方法越可靠。其次看标准的实现方法和技术途径,方法越科学、严密、灵敏,准确性越好,如果能被另一种方法证明则更好。
- 2) 判断测量条件是否最佳,主要看实际测量条件和根据标准确定的测量条件二者的一致程度、测量条件数目和可解释程度。
- 3) 比对活度的推荐值,可通过最佳测量方法和最佳测量条件得到。

3. 开展学术会议

放射性计量学学术会议,起初主要内容是活度测量及其相关研究,由于活度测量应用范围不断扩大,学术会议内容也不断扩大。放射性核素计量学第一次国际学术会议,由国际原子能机构主持,于1955年10月14日在维也纳召开。参加这次会议的国家有14个,论文37篇,主要内容是活度测量及其相关技术。到2001年,已经召开了13次大型国际会议。起初不定期,从1993年在英国特丁顿召开以后,由于参加国家、录稿数量的及参会人员增加,变为每2年一次的定期会议。2001年5月13—18日,在德国不伦瑞克市召开的第13届放射性核素计量学及其应用国际会