

第一次

全国活化分析会议

资料选编

原子能出版社

第一次全国活化分析会议 资料选编

原子能出版社

内 容 简 介

本选编收集了1978年7月在北京召开的第一次全国活化分析会议的部分报告,共64篇。其中包括反应堆中子、14兆电子伏中子和带电粒子的活化分析以及质子激发X射线荧光分析的科研成果和专题评述。

本选编可供从事原子能科学、化学、生物学、环境学、地学、材料科学工作的科技人员以及其它有关人员参考。

第一次全国活化分析会议资料选编

原子能出版社出版

(北京2108信箱)

原子能出版社印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本787×1092¹/₁₆·印张16¹/₄·字数590千字

1981年1月 第一版·1981年1月 第一次印刷

印数001—1700·统一书号:15175·269

定价:3.00元

前 言

1978年7月13日至20日在北京举行了第一次全国活化分析会议。这次会议交流了活化分析(包括中子、带电粒子及其它粒子激发的活化分析)的科研成果及其在国民经济各领域推广应用的成绩与经验。

活化分析技术是核技术应用的一个重要领域。随着各种反应堆、加速器的建造,核物理学的发展及 γ 谱学的建立,特别是近年来锗(锂)探测器和计算机技术的发展,活化分析已成为具有高灵敏度、高选择性、快速及非破坏同时分析多种元素的先进的痕量分析技术。这种分析技术已经广泛地应用于工业、农业、医学和其它科学技术领域。

1958年我国重水型实验反应堆和1.5米回旋加速器建成后,在我国开始了活化分析工作。在开始阶段,主要是利用反应堆中子活化分析方法解决高纯材料和堆材料中的杂质元素的分析问题。六十年代,活化分析工作在全国逐渐铺开。但活化分析在我国得到迅速发展还是七十年代。全国从事活化分析的单位大量增加,分析手段有了明显的改进。除堆中子活化分析工作外,加速器的快中子活化分析、带电粒子活化分析、质子激发X射线荧光分析等工作也都逐步开展起来,并在痕量元素的分析中发挥了独特的作用。其中较为突出的是在半导体材料科学方面的应用。几年来应用活化分析技术分析了高纯硅、锗、砷、镓、砷化镓等半导体材料中的痕量杂质,这对半导体材料的研制和提纯工艺过程起到了一定的作用。

这次大会报告的内容包括了活化分析在各方面的应用情况。用堆中子活化分析法测定硅、锗、砷化镓中的痕量杂质并用带电粒子活化分析法测定高纯硅中的碳、氮、氧、硼和磷,都得到较好的结果。在地球化学和宇宙化学方面,应用活化分析法对吉林陨石雨中的稀土元素和贵金属进行了全面分析,为吉林陨石的形成和演化过程提供了有价值的参考资料。用堆中子活化分析法和加速器快中子活化分析法测定了大量岩石、矿物样品中多种元素,对矿床成因及矿物含量提供了数据。在环境科学方面,用堆中子活化分析法测定了南京、北京等地土壤中若干微量元素的本底值以及官厅水库和蓟运河的水、泥及生物样品中的微量元素,为环境质量评估及污染防治提供了一定的依据。活化分析,包括质子激发X射线荧光分析,在生命科学、考古学、法医学方面的应用也取得了一定成绩。这次会议反映了活化分析技术在我国发展和应用的现状,和为国民经济各领域所作出的积极贡献。提交大会的报告近80篇,本选编收集了其中的64篇(主要是科研成果和活化分析在各领域应用的专题报告以及国内外进展情况),供从事分析工作的人员参考。还要说明的是,已发表过的报告未予收入。

参加本选编编辑、审查工作的有徐永昌、单化民、成源棣、苏宏渊、柴之芳同志。由于我们的水平有限,本选编中不当之处,欢迎读者批评指正。

编 者

1979年3月

目 录

第一部分 堆中子活化分析

多元素堆中子活化分析中的单比较器法·····	(3)
炉焦、炉渣样品中短寿命核素的中子活化分析·····	(14)
地质样品中铀钍的超热中子活化分析·····	(22)
用活化石英舟法研究砷化镓合成工艺中器皿的污染情况(摘要)·····	(28)
中子活化分析法测定土壤中的微量元素·····	(30)
中子活化分析法测定人骨中的钍含量·····	(40)
中子活化分析法测定小麦中微量钍(摘要)·····	(43)
中子活化分析法测定人体皮肤中的痕量铜、锰和锌·····	(45)
心脏组织中痕量元素的仪器活化分析(摘要)·····	(49)
中子活化分析法测定生物组织中的钠和钾(摘要)·····	(51)
水稻、小麦对灌溉水中铬的吸收运转及铬在土壤中转移积累的研究·····	(52)
中子活化分析法研究土壤中的铬含量·····	(58)
吉林陨石中14种稀土元素的中子活化分析·····	(63)
吉林陨石中Ir、Au、Pt和Pd的中子活化分析·····	(71)
吉林陨石中Os和Ru的中子活化分析·····	(75)
两种矿石中8种元素的仪器和放化中子活化分析·····	(79)
中子活化分析法测定铀矿床岩石中的微量元素·····	(84)
地质样品中11种元素的仪器中子活化分析·····	(94)
中子活化分析法测定催化剂中的铂·····	(100)
中子活化分析法测定重水中的微量汞·····	(105)
中子活化分析法测定高纯锗中的痕量杂质·····	(110)
中子活化分析法测定高纯氧化钪中痕量镱和铪·····	(116)
中子活化分析法测定各种高纯材料中的痕量硅·····	(121)
中子活化分析法测定高纯硅中的16种杂质元素·····	(125)
中子活化法测定高纯镓中的杂质·····	(131)
非破坏中子活化分析法测定高纯硅材料中的杂质·····	(137)
高纯硅中痕量元素的中子活化分析·····	(145)
激光光导通讯材料中几种金属元素的中子活化分析(摘要)·····	(150)
中子活化分析法测定氢化锂中的微量氯和铝·····	(151)
滤纸多元素的中子活化分析(摘要)·····	(157)

第二部分 14兆电子伏中子活化分析

用中子发生器做快中子活化分析·····	(161)
14兆电子伏中子活化分析法测定矿样中的硅、铝、铁和镁·····	(167)
14兆电子伏快中子活化分析法测定稻米中的粗蛋白质含量·····	(172)

14 兆电子伏中子活化分析法测定工业废水中的痕量氟	(176)
棉花样品中氟的 14 兆电子伏中子活化分析 (摘要)	(181)
14 兆电子伏中子活化分析法测定钛中氧 (摘要)	(182)
14 兆电子伏中子活化分析聚乙烯中的含氧量 (摘要)	(184)

第三部分 带电粒子活化分析及其它

带电粒子活化分析的标定方法	(187)
α 粒子活化分析法测定硅中痕量氧	(194)
硅中微量碳的仪器氘子活化分析	(197)
质子活化分析法测定硅、石英和陨石中痕量硼	(201)
用萃取分离 ^{18}F 的方法测定铜、锗和砷化镓中的微量氧	(205)
用超滤膜预浓缩水中的痕量元素	(209)
人体全血样品的质子激发X射线分析	(214)
质子激发X射线分析法测定痕量元素	(219)
同位素源激发能量色散X射线分析的若干应用	(229)
薄层活化分析法测定活塞环的磨损 (摘要)	(234)
径迹活化分析法测定云母、玻璃、矿物、玻璃陨石和铀溶液中的铀含量	(235)

第四部分 活化分析装置

堆中子活化分析用的自动快速输送系统	(243)
堆中子活化分析用的自动辐照装置	(249)
加速器活化分析自动控制的单管道气动实验装置	(254)
带电粒子活化分析用的气动传送辐照装置	(260)

第五部分 计算机在活化分析中的应用

中子活化分析数据处理用的电子计算机程序	(265)
小型台式计算机在中子活化分析数据处理中的应用	(268)
质子激发的复杂X射线谱的计算机分解	(275)
X射线能谱重迭峰的非线性最小二乘法分解	(284)

第六部分 评 述

活化分析在生命科学中的应用	(291)
中子活化分析在宇宙化学和地球化学研究中的应用	(302)
活化分析在半导体工艺研究中的应用	(314)
反应堆中子活化分析的历史和现状	(324)
中子发生器和同位素中子源的活化分析	(338)
带电粒子活化分析的现状和趋势	(344)
粒子激发X射线分析法	(356)
标准参考物质及其在活化分析中的应用	(370)

第 一 部 分

堆中子活化分析

多元素堆中子活化分析中的单比较器法

田伟之 汤锡松 方朝萌

(中国科学院原子能研究所)

一、引言

在活化分析中,从测到的放射性计数推导元素含量(称之标准化)有两种基本方法,即相对法和绝对法。

相对法:由于消除了绝大多数与核参数和实验参数有关的误差,有较高的准确性,所以迄今为止一直是最广泛使用的标准化方法。其缺点是:制备、照射和测量各待测元素的标准不便;不能测定事先未预期的元素;不适于与计算机结合的大量样品多元素自动化分析。

绝对法:其利弊恰与前者相反。此法虽然一直有人尝试和探讨^[1-7],但由于有关核常数的准确度不够高^[8],至今尚不能常规使用。

有鉴于此,一种既有绝对法的简便性又不失相对法准确性的半绝对法——单比较器法,受到了越来越多的重视。

所谓单比较器法,是指仅用一种或几种核素(比较器)的标准(而不是所有待测元素的标准)与样品对照,进行多元素分析的方法。各待测元素的标准比放射性可以从比较器的测量比饱和放射性 A_s , 乘以实测因子 K 得到:

$$K = \frac{A_{s,p}}{A_{s,*}} = \frac{M^*}{M} \cdot \frac{\gamma}{\gamma^*} \cdot \frac{e_p}{e_p^*} \cdot \frac{\Theta}{\Theta^*} \cdot \frac{\hat{\phi}}{\hat{\phi}^*} \cdot \frac{\hat{\sigma}}{\hat{\sigma}^*} \quad (1)$$

$$A_{s,p} = A_p / S \cdot D \cdot C \quad (2)$$

这里, $\hat{\phi}$ 为规定堆中子通量^[9], $\hat{\sigma}$ 为规定堆中子截面^[9], $S = 1 - \exp(-\lambda t_i)$, $D = \exp(-\lambda t_d)$, $C = [1 - \exp(-\lambda t_m)] / \lambda t_m$; (λ 为衰变常数, t_i 、 t_d 、 t_m 分别为照射、冷却和测量时间); A_p 为测量的特征峰比强度; e_p 为全能峰效率; Θ 为靶核同位素丰度; M 为原子量。带 * 者代表比较器, 无 * 者代表待测元(核)素。

首次详细评价此法的是吉拉迪 (Girardi) 等人^[10]。他们在固定的照射孔道, 以固定的测量系统测定了一系列核素对一个比较器的 K 值, 并在以后的常规分析中使用这些 K 值。近年来, 有人^[11, 12]以 Zn 作比较器将吉拉迪的方法完全自动化。

为了摆脱“固定孔道”的限制, 德科特 (DeCorte) 等人引入了不同堆中子谱的 K 值转换^[13]:

$$\hat{\phi} \hat{\sigma} = \phi_{1,h} \sigma_{1,h} + \phi_e I_0 \quad (3)^{[14-16]}$$

$$K = \frac{A_{sp}}{A_{st}} = \frac{M^*}{M} \cdot \frac{\gamma}{\gamma^*} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_p^*} \cdot \frac{\Theta}{\Theta^*} \cdot \frac{\sigma_{th} \frac{\phi_{th}}{\phi_c} + I_0}{\sigma_{th}^* \frac{\phi_{th}}{\phi_c} + I_0^*} \quad (4)$$

$$K_{anal} = K_{ref} \cdot \frac{(F_{anal} + D_{st})(F_{ref} + D_{comp})}{(F_{anal} + D_{comp})(F_{ref} + D_{st})} \quad (5)$$

其中, $F = \phi_{th}/\phi_c$ 热、超热通量比; $D = I_0/\sigma_{th}$ 共振积分对热截面比; ref 表示参考孔道; anal 表示分析孔道; st 表示某待测核素标准; comp 表示比较器。

为了求解 F , 需同照两个具有合适核参数的核素[见表 1 式 (iv)]——通量监测器。人们进一步提出可以使用具有合适参数的同一元素的两个同位素作通量监测器^[17, 18]。

为了摆脱固定测量系统的限制, 西蒙尼茨 (Simonits) 等人提出^[19, 20], 编纂式 (6) 的 K_0 比编纂上述的 K 更有价值。

$$K_0 = \frac{M^*}{M} \cdot \frac{\Theta}{\Theta^*} \cdot \frac{r}{r^*} \cdot \frac{\sigma_{th}}{\sigma_{th}^*} = \frac{A_{sp}}{A_{st}^*} \cdot \frac{\varepsilon_p^*}{\varepsilon_p} \cdot \frac{F + D^*}{F + D} \quad (6)$$

其中, γ 为 γ 射线发射率。很明显, K_0 是与照射和测量条件完全无关的组合核常数。为了编纂和使用 K_0 , 除了要用通量监测器测定 F 外, 尚需刻度测量系统的效率 ε_p 。

本工作考查了 ^{59}Co — ^{197}Au , ^{121}Sb — ^{68}Zn , ^{123}Sb — ^{64}Zn , ^{94}Zr — ^{90}Zr 用作通量监测器的有效性; 着重分析了 Zr 通量监测器的特点、局限性及其处理方法; 研究了测量条件归一化的某些实验细节; 建议编纂 $Q (= A_{sp}/\varepsilon_p(D + F))$ 代替西蒙尼茨的 K_0 , 这样, 可以更灵活地选择比较器核素; 初步测定了 24 种核素 34 条 γ 射线的 Q 值, 并将对 Au 的 Q 比—— K_0^{Au} 与理论 $K_0^{\text{Au}} \left(\frac{M_{\text{Au}}}{M} \cdot \frac{\Theta}{\Theta_{\text{Au}}} \cdot \frac{\gamma}{\gamma_{\text{Au}}} \cdot \frac{\sigma_{th}}{\sigma_{th, \text{Au}}} \right)$ 进行了比较。

二、实验和结果

本工作使用的单比较器法的实验过程示于表 1。下面仅就几个问题作一说明。

表 1 单比较器法实验框图

参 考 孔 道

1. 测定谱仪的相对效率曲线, 并查得所需的 ε_p 。

2. 照射各元素标准, 在一定几何下测得 A_p 。

$$A_{sp} = A_p / S \cdot D \cdot C \quad (i)$$

3. 测定参考孔道的 $(\phi_{th}/\phi_c)_\oplus$

① Cd 比法: 将某个 I_0/σ_{th} 确知的核素进行有 Cd 和无 Cd 包的两次照射。

$$(R_{Cd})_\oplus = \left[\frac{A_{sp}}{(A_{sp})_{Cd}} \right]_\oplus \quad (ii)$$

$$(\phi_{th}/\phi_c)_\oplus = [(R_{Cd})_\oplus - 1] \cdot I_0/\sigma_{th} \quad (iii)$$

② 通量监测器法 (双核素法, 解方程法)

$$(\phi_{th}/\phi_c)_{\text{参}} = \frac{\frac{M_2}{M_1} \frac{\Theta_1}{\Theta_2} \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \frac{\sigma_{th,1}}{\sigma_{th,2}} \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_1 - \left(\frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}}\right)_{\text{参}} \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_2}{\left(\frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}}\right)_{\text{参}} - \frac{M_2}{M_1} \frac{\Theta_1}{\Theta_2} \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \frac{\sigma_{th,1}}{\sigma_{th,2}}} \quad (\text{iv})$$

①、②法的结果核对后, 给出准确的 $\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c}\right)_{\text{参}}$

4. 各核素的 I_0/σ_{th} 由文献查得, 或以Cd比法测得[利用(ii),(iii)式]。

5. 计算并编纂各核素的 $(Q_0)_{\text{参}}$

$$(Q_0)_{\text{参}} = \frac{A_{sp}}{\varepsilon_p} / \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{参}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right) \right] \quad (\text{v})$$

任一分析孔道

1. 选一个比较器和两个通量监测器, 将三者(或二者)的已知量元素与样品对照, 测得 $(A_{sp, \text{比}})_{\text{分}}, (A_{sp, 1})_{\text{分}}, (A_{sp, 2})_{\text{分}}$ 。

2. 查效率曲线, 得 $\varepsilon_{p, 1}, \varepsilon_{p, 2}, \varepsilon_{p, \text{比}}, \varepsilon_{p, \text{标}}$ 。

3. 计算 $(\phi_{th}/\phi_c)_{\text{分}}$

① 计算式同式(iv) (“参”改为“分”)。

② 若在参考孔道也曾用这两个通量监测器定 $\phi_{\text{比}}$, 则可用下式计算:

$$\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{分}} = \frac{\left(\frac{A_{sp, 1}}{A_{sp, 2}} \right)_{\text{参}} \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_1 \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{参}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_2 \right] - \left(\frac{A_{sp, 1}}{A_{sp, 2}} \right)_{\text{分}} \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_2 \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{参}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_1 \right]}{\left(\frac{A_{sp, 1}}{A_{sp, 2}} \right)_{\text{分}} \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{参}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_1 \right] - \left(\frac{A_{sp, 1}}{A_{sp, 2}} \right)_{\text{参}} \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{分}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_2 \right]} \quad (\text{vi})$$

4. 由文献查得 $\left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_1, \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_2, \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_{\text{比}}, \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}}\right)_{\text{标}}$, 从左面的编纂查得 $(Q_0, \text{比})_{\text{参}}$ 和所有待测核素的 $(Q_0, \text{标})_{\text{参}}$ 。

5. 计算

$$K_{0, \text{标}} = \frac{(Q_0, \text{标})_{\text{参}}}{(Q_0, \text{比})_{\text{参}}} \left[= \frac{(Q_0, \text{标})_{\text{分}}}{(Q_0, \text{比})_{\text{分}}} \right] \quad (\text{vii})$$

$$(Q_0, \text{比})_{\text{分}} = \frac{A_{sp, \text{比}}}{\varepsilon_{p, \text{比}}} / \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{分}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_{\text{比}} \right] \quad (\text{viii})$$

$$(Q_0, \text{标})_{\text{分}} = K_{0, \text{标}} (Q_0, \text{比})_{\text{分}} \quad (\text{ix})$$

$$A_{sp, \text{标}} = (Q_0, \text{标})_{\text{分}} \cdot \varepsilon_{p, \text{标}} \cdot \left[\left(\frac{\phi_{th}}{\phi_c} \right)_{\text{分}} + \left(\frac{I_0}{\sigma_{th}} \right)_{\text{标}} \right] \quad (\text{x})$$

$$A_{p, \text{标}} = A_{sp, \text{标}} \cdot S \cdot D \cdot C \quad (\text{xi})$$

注 角注“参”表示参考孔道, “分”表示分析孔道, “比”表示比较器, “标”表示任一元素的标准。

1. 测量条件的归一化

对一个指定的测量系统, ε_0 与如下三个量有关: γ 射线能量; 测量几何; 对级联辐射叠加效应的校正。

(1) $\varepsilon_p(E_\gamma)$ 曲线刻度

架高在 160 毫米以下时, 使用了一套绝对刻度的单 (或双) γ 标准源 (^{67}Co , ^{203}Hg , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{22}Na , ^{88}Y); 架高在 160 毫米以上时, 使用多 γ 源 ^{152}Eu , ^{75}Se , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 。对我们的 70 厘米 $^3\text{Ge}(\text{Li})$ 探测器的测量结果示于图 1。

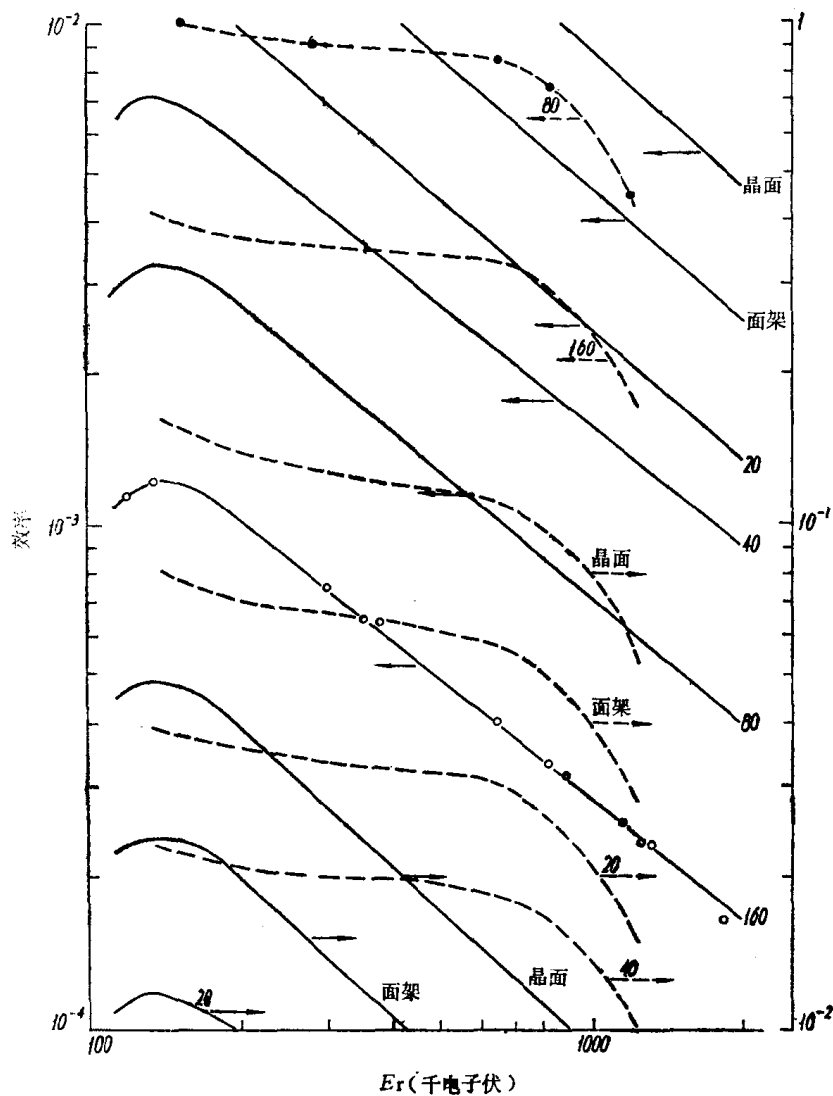


图 1 全能峰绝对效率曲线和绝对总效率曲线

——全能峰效率曲线; ----总效率曲线。线旁的数字表示测量位置。源形状: $\Phi 9$ 面源。

(2) 不同测量位置的效率比测定

在活化分析中, 常需对强度相差几个数量级的样品进行比较测量。而一般 $\text{Ge}(\text{Li})$ 谱仪, 在一个位置测量时的源强动态范围不过 5—10 倍。所以, 测定不同位置的效率比具有实际意

义。我们以定量稀释法制备了一系列定比源,测定了从晶面到 600 毫米架高的几个标准位置的效率比,结果示于图 2。

对于无曲线可用的非标准测量位置,可以使用有效作用深度 (EAD) 原理^[21 22](见图 3),就近修正到标准位置,然后使用曲线。实测 EAD (E_v) 曲线示于图 2。

(3) 级联辐射叠加效应及其处理办法

当两个或几个级联发射的 γ 射线同时进入探测器时,可能形成一个组合脉冲。每个光子在探测器中可以损失部分能量 (P) 或全部能量 (W)。于是,两条 γ 级联时,可能有如下三种效应: (i) $W_1 + W_2$, 产生合峰; (ii) $W_1 + P_2$ 或 $W_2 + P_1$, 产生峰损失[(i) 中两个全能峰亦将有损失]; (iii) $P_1 + P_2$, 仅产生连续本底,并不影响峰强度。

以图 4 所示的简单纲图为例,作为一级近似,可以写出如下的校正公式:

$$R_1 = 1 - \varepsilon_{T,2} \cdot \frac{G_2}{G_1} \quad (7)$$

$$R_2 = 1 - \varepsilon_{T,1} \cdot \frac{G_1}{G_2} \quad (8)$$

$$R_3 = 1 + \frac{G_1 P_1 \cdot G_2 P_2}{G_3 P_3} \quad (9)$$

这里, R_i 为全能峰中计到的 γ_i 计数与 γ_i 的全吸收数之比; G_i 为第 i 个 γ 的相对发射几率; $\varepsilon_{T,i}$ 为 γ_i 的绝对总效率; P_i 为 γ_i 的全能峰绝对效率。

麦克卡利厄姆 (McCallium) 等人给出了一般校正公式^[23]。

除了 γ - γ 级联外,与所测的 γ 射线处于级联发射的 X 射线、 β^+ 湮没光子、 β^- 及其韧致辐射等都将产生叠加效应。

在活化分析中,峰损失效应远比“合峰”效应重要。我们的办法是: (i) 通过测量峰总比 $P/T(E_v)$ 结合 $\varepsilon_p(E_v)$ 得到一组总效率曲线 $\varepsilon_T(E_v)$ (见图 1 虚线)。80 毫米测量位置 ε_T 全线皆小于 1%。我们确定 160 毫米以上不考虑叠加效应; (ii) 160 毫米以下分三种情况: a) 无级联关系时,直接使用效率曲线; b) 处于简单的 γ - γ 级联时,使用式 (7) — (9) 和图 1 进行校正; c) 处于复杂的 γ - γ , γ -X, γ - β 级联时,以定量稀释法实测对 160 毫米的效率比,然后使用曲线数据。

2. 通量比 $F(= \Phi_{th}/\Phi_e)$ 的测定

在参考孔道 Ch(R) 以 ^{198}Au 和 ^{60}Co 的 Cd 比法以及四套通量监测器 (^{59}Co - ^{197}Au ,

表 2 参考孔道的 F 值

方 法		$F(= \Phi_{th}/\Phi_e)$
Cd 比法	^{198}Au	34.0
	^{60}Co	35.4
通量监测器法	^{59}Co - ^{197}Au	35.8
	^{68}Zn - ^{121}Sb	33.3
	^{64}Zn - ^{123}Sb	36.4
	^{94}Zr - ^{96}Zr	32.2
平 均		35.4 ± 1.6

表 3 三个分析孔道的 F 值

孔 道	监 测 器	$F(= \Phi_{th}/\Phi_e)$	
		单 次	平 均
Ch(A1)	^{59}Co - ^{197}Au	17.5	17.55
	^{94}Zr - ^{96}Zr	17.6	
Ch(A2)	^{59}Co - ^{197}Au	32.0	32.0
	^{94}Zr - ^{96}Zr	32.0	
Ch(A3)	^{59}Co - ^{197}Au	56.5	56.5

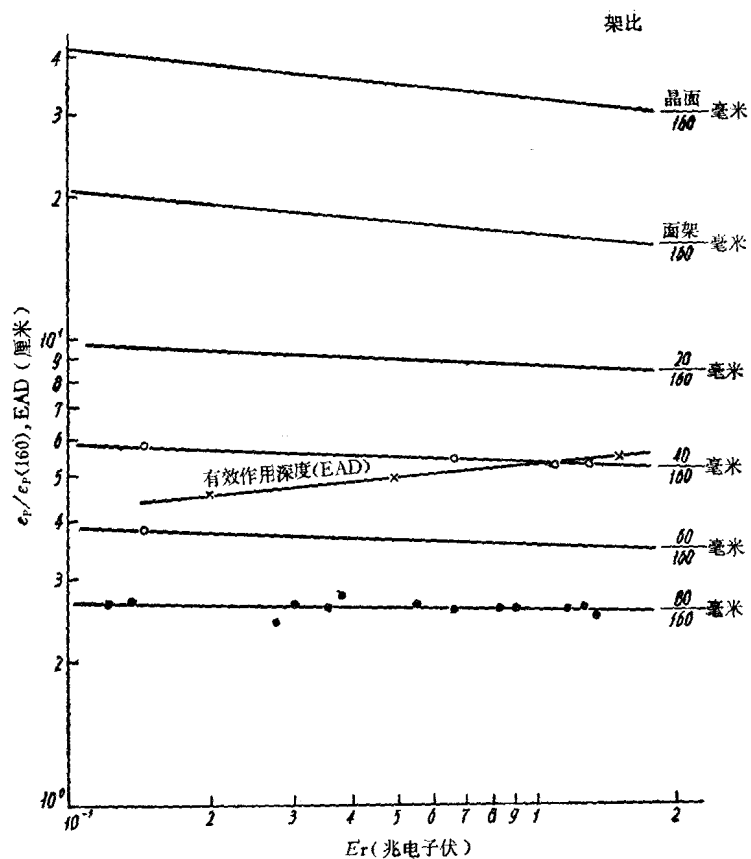


图2 不同测量位置的效率比

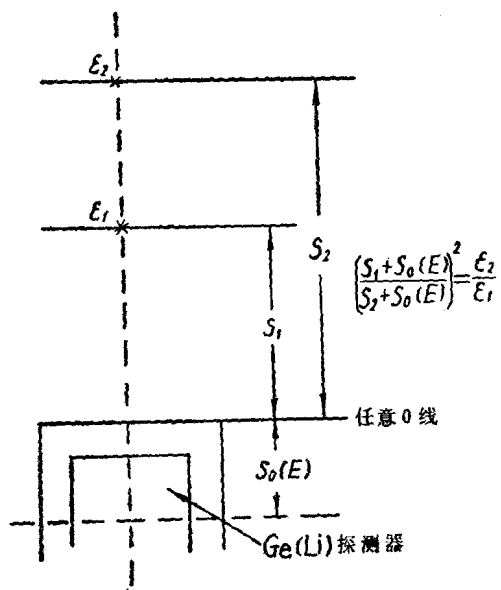


图3 有效作用深度示意图

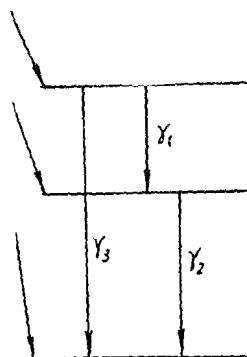


图4 叠加效应示意图

$^{68}\text{Zn}-^{121}\text{Sb}$, $^{64}\text{Zn}-^{123}\text{Sb}$, $^{94}\text{Zr}-^{96}\text{Zr}$) 同时测定 F , 结果见表 2。平均值为 35.4 ± 1.6 , 相对标准偏差仅 4.7%, 证明了这些通量监测器的有效性。在分析孔道 Ch(A1), Ch(A2), Ch(A3) 使用 $^{59}\text{Co}-^{107}\text{Au}$ 和 $^{94}\text{Zr}-^{96}\text{Zr}$ 监测器测定 F , 结果列于表 3。

3. 组合核常数 K_0 和 Q 的实验测定

在参考孔道 Ch(R) 实测并编纂了 24 种核素、34 条 γ 射线的 Q 值。以 Au 作比较器计算了相应的 K_0^{Au} 。在不同 F 的三个分析孔道测定了部分核素的 Q 和 K_0^{Au} 。全部结果列于表 4。为与“单独”核常数的文献值^[24, 25]比较, 表 4 中一并列出了理论 Q 和 K_0^{Au} (理论

$$Q = \frac{\Theta \cdot \gamma \cdot \sigma_{\text{th}}}{M}, K_0^{\text{Au}} = Q/Q_{\text{Au}}).$$

表 4 理论和不同孔道的实验 K_0^{Au} (Q) 值

核素, E_γ	孔 道					核素, E_γ	孔 道	
	理 论	Ch(R)	Ch(A1)	Ch(A2)	Ch(A3)		理 论	Ch(R)
$^{42}\text{K}1524$	9.35×10^{-4} (4.49×10^{-4})	8.90×10^{-4} (1.26×10^{-2})	8.64×10^{-4} (3.36×10^{-2})			$^{76}\text{As}559$	5.33×10^{-2} (2.56×10^{-2})	5.43×10^{-2} (0.770)
$^{46}\text{Sc}889$	1.23 (0.590)			1.26 (9.30)	1.18 (3.01)	$^{187}\text{W}479$	3.25×10^{-2} (1.56×10^{-2})	2.80×10^{-2} (0.393)
$^{51}\text{Cr}320$	2.71×10^{-3} (1.30×10^{-3})	2.76×10^{-3} (3.92×10^{-2})	2.85×10^{-3} (0.111)	2.65×10^{-3} (1.96×10^{-2})		686	3.92×10^{-2} (1.88×10^{-2})	3.60×10^{-2} (0.512)
$^{60}\text{Co}1332$	1.32 (0.636)	1.34 (19.0)	1.45 (56.3)	1.33 (9.82)	1.43 (3.67)	$^{152\text{m}}\text{Eu}842$	2.81 (1.35)	2.86 (40.7)
$^{64}\text{Cu}511$	3.77×10^{-2} (1.81×10^{-2})	3.61×10^{-2} (0.513)	3.83×10^{-2} (1.49)	3.50×10^{-2} (0.258)	3.84×10^{-2} (9.85×10^{-2})	964	2.61 (1.25)	2.45 (34.8)
$^{65}\text{Zn}1115$	6.07×10^{-3} (2.91×10^{-3})	6.47×10^{-3} (9.20×10^{-2})	6.02×10^{-3} (0.234)		5.17×10^{-3} (1.94×10^{-2})	$^{153}\text{Sm}103$	0.215 (0.103)	0.201 (2.85)
$^{69\text{m}}\text{Zn}438$	4.07×10^{-4} (1.95×10^{-4})	4.51×10^{-4} (6.42×10^{-3})			3.81×10^{-4} (1.43×10^{-3})	$^{160}\text{Tb}298$	9.03×10^{-2} (4.33×10^{-2})	8.87×10^{-2} (1.26)
$^{72}\text{Ga}834$	5.80×10^{-2} (2.78×10^{-2})	5.15×10^{-2} (0.730)		6.80×10^{-2} (0.502)	4.85×10^{-2} (0.124)	$^{181}\text{Hf}482$	4.43×10^{-2} (2.13×10^{-2})	5.00×10^{-2} (0.716)
$^{95}\text{Zr}724$	8.86×10^{-5} (4.26×10^{-5})	9.00×10^{-5} (1.28×10^{-3})	8.74×10^{-5} (3.40×10^{-3})		8.85×10^{-5} (3.13×10^{-4})	133	2.23×10^{-2} (1.07×10^{-2})	2.50×10^{-2} (0.360)
756	1.13×10^{-4} (5.42×10^{-5})	1.11×10^{-4} (1.57×10^{-3})	1.07×10^{-4} (4.17×10^{-3})		1.08×10^{-5} (3.83×10^{-3})	$^{59}\text{Fe}1099$	7.45×10^{-5} (3.58×10^{-5})	7.82×10^{-5} (1.11×10^{-3})
$^{97}\text{Zr}743$	1.17×10^{-5} (5.63×10^{-6})	1.26×10^{-5} (1.79×10^{-4})	1.12×10^{-5} (4.35×10^{-4})			1292	5.85×10^{-5} (2.81×10^{-5})	5.87×10^{-5} (8.34×10^{-4})
$^{140}\text{La}487$	6.21×10^{-2} (2.98×10^{-2})	6.13×10^{-2} (0.870)	5.45×10^{-2} (2.12)		6.30×10^{-2} (1.61×10^{-1})	$^{131}\text{Ba}124$	2.90×10^{-5} (1.39×10^{-5})	3.50×10^{-5} (5.03×10^{-4})
$^{141}\text{Ce}145$	3.69×10^{-3} (1.77×10^{-3})	3.41×10^{-3} (4.92×10^{-2})	4.37×10^{-3} (0.170)	3.28×10^{-3} (2.42×10^{-2})		$^{110\text{m}}\text{Ag}658$	3.96×10^{-2} (1.90×10^{-2})	4.15×10^{-2} (0.590)
$^{122}\text{Sb}564$	3.83×10^{-2} (1.84×10^{-2})	4.32×10^{-2} (0.617)	4.11×10^{-2} (1.60)		3.81×10^{-2} (9.77×10^{-2})	884	3.08×10^{-2} (1.48×10^{-2})	3.20×10^{-2} (0.455)
$^{124}\text{Sb}602$	2.88×10^{-2} (1.38×10^{-2})	2.78×10^{-2} (0.396)	2.55×10^{-2} (0.99)		2.52×10^{-2} (6.45×10^{-2})	$^{182}\text{Ta}1121$	8.96×10^{-2} (4.30×10^{-2})	8.58×10^{-2} (1.22)
$^{198}\text{Au}412$	1.00 (0.479)	1.00 (14.2)	1.00 (38.9)	1.00 (7.38)	1.00 (2.56)	1221	6.98×10^{-2} (3.35×10^{-2})	6.68×10^{-2} (0.950)
$^{233}\text{Pa}312$	2.52×10^{-2} (1.21×10^{-2})	2.65×10^{-2} (0.376)	2.57×10^{-2} (1.00)	2.74×10^{-2} (0.202)		$^{134}\text{Cs}604$	0.443 (0.213)	0.400 (5.68)

由表 4 可见, 对于绝大多数已测定核素, 理论和不同孔道的实验 K_0^{Au} 值在 10% 以内一致。只有极个别数据分歧大于 15%。计算中用的核参数引自文献[24, 25]。

三、讨 论

1. 半衰期 T 对 A_p 的误差传递

单比较器法需要将测量比计数 A'_p 推算到 A_p :

$$A_p = A'_p \cdot f_T = A'_p \cdot f_s \cdot f_d \cdot f_m \quad (10)$$

$$f_s = (1 - e^{-\frac{t_i}{T} \ln 2})^{-1} \quad (11)$$

$$f_d = e^{\frac{t_d}{T} \ln 2} \quad (12)$$

$$f_m = \frac{\ln 2}{T} / (1 - e^{-\frac{t_m}{T} \ln 2}) \quad (13)$$

$$C_s = \left| \frac{df_s}{f_s} \right| / \left| \frac{dT}{T} \right| = \frac{t_i}{T} \ln 2 / (e^{\frac{t_i}{T} \ln 2} - 1) \quad (14)$$

$$C_d = \left| \frac{df_d}{f_d} \right| / \left| \frac{dT}{T} \right| = \frac{t_d}{T} \ln 2 \quad (15)$$

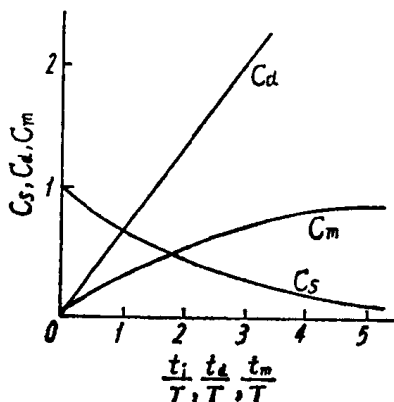


图 5 $C_s - \frac{t_i}{T}$, $C_d - \frac{t_d}{T}$, $C_m - \frac{t_m}{T}$ 关系曲线

$$C_m = \left| \frac{df_m}{f_m} \right| / \left| \frac{dT}{T} \right| = 1 - \left[\frac{t_m}{T} \ln 2 / (e^{-\frac{t_m}{T} \ln 2} - 1) \right] \quad (16)$$

C_s 、 C_d 、 C_m 分别对 $\frac{t_i}{T}$ 、 $\frac{t_d}{T}$ 、 $\frac{t_m}{T}$ 标绘得图 5。

2. $R (= A_{p,1}/A_{p,2})$ 对 F 的误差传递

将表 1 式 (iv) 微分可得:

$$Z_t = \left| \frac{dF}{F} / \frac{dR}{R} \right| = \frac{(F + D_1)(F + D_2)}{F |D_2 - D_1|} \quad (17)$$

分析式 (17) 可引出: (i) Z_t 恒大于 1; (ii) $|D_2 - D_1|$ 越大 Z_t 越小 (F 精度高); (iii) $F = \sqrt{D_1 D_2}$ 时 Z_t 有极小。

3. F 对 K 的误差传递

由微分式 (4) 可得:

$$Z_k = \left| \frac{dK}{K} / \frac{dF}{F} \right| = \frac{F |D_{s,1} - D_{c,omp}|}{(F + D_{c,omp})(F + D_{s,1})} \quad (18)$$

由式 (18) 可以看出: (i) Z_k 恒 < 1 ; (ii) $|D_{s,1} - D_{c,omp}|$ 越小 Z_k 越小; (iii) $F = \sqrt{D_{s,1} \cdot D_{c,omp}}$ 时 Z_k 有极大 (F 应远离 $\sqrt{D_{s,1} \cdot D_{c,omp}}$)。

4. 几种常用通量监测器——比较器的评价

表 5 和表 6 分别列出了一些常用的通量监测器、比较器的核素的有关核常数和它们的优缺点。很明显, $[^{94}\text{Zr}-^{96}\text{Zr}/^{94}\text{Zr}]$ 一套[监测器/比较器]最优。

表 5 几种监测器、比较器的核素的有关核数据

元素	σ_{abs}	I_{abs}	靶核	σ_0 (靶)	I_0 (靶)	$I_0/g\sigma_0$	产生核	$T_{1/2}$	$E_\gamma(I_\gamma)$, 千电子伏(%)	说 明
Co	37.5	75	^{59}Co	37.34 ^a	70 ^a	1.87	^{60}Co	5.272年	1173.2(99.9) 1332.5(100)	同质异能态和基态之和
Au	98.8	1535	^{197}Au	98.8	1550	15.7	^{198}Au	2.695天	411.8(96.8)	$\sigma_0(^{198}\text{Au})=25000$ 靶
In	194	3200	^{115}In	161 ^b	2780 ^b	17.26	^{116m}In	54.2分	417.0(33) 1293.4(82)	两个同质异能态截面和
Mn	13.3	14.2	^{55}Mn	13.23	14.06	1.06	^{56}Mn	2.58时	846.6(100)	
Ag	63.6	760	^{109}Ag	4.98	81.1	16.28	^{110m}Ag	252天	1811.2(29.4) 657.7(94.4) 884.7(71.1)	
Sn	0.63	8	^{112}Sn	0.7 ^a	27.4 ^a	38.6	^{113}Sn ↓ ^{113m}In	115天 1.658时	无 γ 391.4(69)	电子俘获衰变到 ^{113m}In
Ru	2.6	4.2	^{116}Sn	0.006	0.49	81	^{117}Sn	14天	158.4(90.9)	
			^{96}Ru	0.25	6	24	^{97}Ru	2.89天	215.7(87.5) 324.5(11.0)	
			^{102}Ru	1.3	4.2	3.23	^{103}Ru	39.6天	497.1(90.0) 610.3(5.4)	
			^{104}Ru	0.47	4.6	9.78	^{105}Ru ↓ ^{105}Rh	4.44时 35.5时	469.4(10.1) 724.4(19.2) 306.3(5.44)	$\sigma_0(^{105}\text{Rh})=16000$ 靶 $I_0(^{105}\text{Rh})=11000$ 靶
Zr	0.18	1.0	^{94}Zr	0.055	0.3	5.45	^{95}Zr ↓ ^{95}Nb	65.5天 35.1天	724.2(44.4) 756.7(54.8) 765.8(99.9)	
			^{96}Zr	0.020	5.0	250	^{97}Zr ↓ ^{97m}Nb ↓ ^{97}Nb	16.8时 54秒 13.6分	弱 $\gamma(<1)$ 743.3(91.7%) 657.9(98.25)	与 ^{97}Zr 平衡
							^{65}Zn	244天	1115.5(50.75)	
							^{69m}Zn	13.8时	438.7(95)	
Sb	5.4	175	^{121}Sb	6.2	180	29	^{122}Sb	2.72天	564.0(66.3)	
			^{123}Sb	4.0	120	30	^{124}Sb	60.2天	602.7(93) 1691.0(45.7)	

注: 1. σ_{abs} 和 I_{abs} 分别为元素的热中子和共振中子吸收截面(靶);

2. σ_0 和 I_0 分别为核素的 2200 米/秒截面和超 Cd 共振积分(靶);

3. $g\sigma_0=\sigma_{th}$, 热中子活化截面(靶)。

(i) $^{94}\text{Zr}-^{96}\text{Zr}$ $|D_2 - D_1| = 244.6$, 在常用监测器中 D 差最大, 对常用的 F 范围 (20—200) Z_f 最低; (ii) Zr 吸收截面小, 可以使用细丝或薄片, 不必配制溶液, 操作简便; (iii) ^{95}Zr 的 724.2、756.7 千电子伏 γ 和 ^{97m}Nb (与 ^{97}Zr 平衡) 的 743.2 千电子伏 γ 都处于无级联或很少级联的状态, 不需作叠加校正。此三线能量相近。若以 724 千电子伏加 756 千电