

γ 能谱法确定 CTBT 国际比对样品的零时

王世联, 王 军, 张利兴, 樊元庆, 张自禄, 常印忠

(禁核试北京国家数据中心和北京放射性核素实验室, 北京 100085)

摘要: 文章介绍利用不同质量链上两种裂变产物或同一质量链上母子体裂变产物的活度比来确定 CTBT 国际比对样品零时的方法。通过 2001 至 2004 年度 CTBT 放射性核素实验室滤材样品的国际比对方法进行了检验, 零时的计算值与参考值在不确定度范围内一致。

关键词: 零时; 活度比; 裂变产物; CTBT 国际比对

中图分类号: TL816.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6931(2006)S0-0117-05

Dating Zero Time of CTBT Intercomparison Sample by Gamma Spectrometry

WANG Shi-lian, WANG Jun, ZHANG Li-xing, FAN Yuan-qing,
ZHANG Zi-lu, CHANG Yin-zhong

(CTBT Beijing National Data Centre and Radionuclide Laboratory, Beijing 100085, China)

Abstract: The paper introduces the method of dating the zero time by utilizing the activity ratio of two fission products in no-isobaric or parent-daughter fission products in isobaric. The method was applied to determine the zero time of filter sample in the CTBT radionuclide laboratories intercomparison from 2001 to 2004. The calculated results are very good agreement with referent values in the range of uncertainty.

Key words: zero time; activity ratio; fission products; CTBT intercomparison

全面禁止核试验条约(CTBT)国际监测系统的 80 个放射性核素监测台站和 16 个核素实验室组成了能够连续监测全球大气放射性的监测网络。核素实验室的主要功能是对台站监测样品进行再分析, 目的是确证台站的分析结果和事件的级别, 并且通过分析台站的常规样品对台站分析结果进行质量控制^[1]。

对于核事件的监测和甄别, 放射性核素的 γ 能谱分析是 1 种基本的、高灵敏度的技术。

由于可被监测的放射性核素大多为裂变产物, 且只能由核裂变产生, 因此, 放射性核素监测中的 γ 能谱分析方法无疑是可以为核事件的发生提供无可争议证据的有效手段^[2]。一旦有核事件发生, 1 个或几个监测台站的监测样品将被用于回推和确定核事件发生的时间和地点, 而且, 所有核查技术获取的结果将被融合对事件进行判别, 其中的 1 项重要工作是确定核事件发生的时间, 即零时。

近年来,CTBT 临时技术秘书处每年组织 1 次气溶胶样品的国际比对和分析工作,来提高放射性核素实验室 γ 能谱分析水平和对异常事件零时回推的能力。

1 原理与方法

CTBT 监测的相关放射性核素中的 51 种裂变产物^[3](包括 4 种氙同位素)分别属于 36 个不同质量链。和某些同位素比(如¹⁴C/¹²C)可用来测定地质或者古年代一样,裂变产物的活度比可用来提取大量有关核事件的信息。利用同一质量链上的母子体裂变产物(如¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰La、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb 和⁹⁹Mo-⁹⁹Tc 等)或不同质量链上的两裂变产物活度比^[4]可确定核事件的零时。

1.1 裂变产物活度的计算

一般情况下,裂变产物活度的计算公式为:

$$A = \frac{n\epsilon_p}{\epsilon_p p_\gamma} \cdot \frac{\lambda t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}} F_c \quad (1)$$

其中: n 为测量得到的裂变产物特征 γ 射线峰的计数率; t 为 γ 能谱开始获取至参考时间的的时间间隔; t_m 为 γ 谱的测量时间; λ 为核素的衰变常量(s^{-1}); ϵ_p 为 γ 射线的全能峰效率; p_γ 为 γ 射线的发射几率; F_c 为级联符合相加效应校正因子,它与样品测量条件下的 γ 全能峰效率、总效率及核素的衰变性质有关,对无级联符合相加效应的核素, $F_c=1$ 。

对于较复杂的母子体衰变,母体裂变产物的活度 A_1 按式(1)计算,子体的活度 A_2 需扣除在测量时间 t_m 内由母体衰变至子体的贡献。根据实测母子体核素的 γ 峰净计数率 n_1 、 n_2 (校正了本底、真符合相加效应和死时间的影响后),对应的 γ 峰发射几率 $p_{\gamma 1}$ 、 $p_{\gamma 2}$ 和峰效率 ϵ_1 、 ϵ_2 ,子体活度的计算公式为:

$$A_2 = \frac{n_2}{\epsilon_2 p_{\gamma 2}} \cdot \frac{\lambda_2 t_m}{1 - e^{-\lambda_2 t_m}} - \frac{A_1}{1 - e^{-\lambda_2 t_m}} \cdot \left[1 - \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} (\lambda_1 e^{-\lambda_2 t_m} - \lambda_2 e^{-\lambda_1 t_m}) \right] \quad (2)$$

1.2 利用不同衰变链上的裂变产物推算零时

假设裂变产物 i 和 j 为不同质量链上的初始裂变产物,或者它们的所有前驱母体半衰期与之相比很小,且在测量时刻所有前驱母体都已衰变完全,则在核事件发生后 t 时刻裂变产

物 i 和 j 的活度比为:

$$\frac{A_i}{A_j} = \frac{Y_i(E)\lambda_i}{Y_j(E)\lambda_j} e^{(\lambda_j - \lambda_i)t} \quad (3)$$

其中: $Y_i(E)$ 和 $Y_j(E)$ 分别为裂变产物 i 和 j 的累积产额(中子能量为 E); λ_i 和 λ_j 分别为裂变产物 i 和 j 的衰变常量。

零时的计算公式则为:

$$t = \frac{1}{\lambda_j - \lambda_i} \ln \left(\frac{A_i}{A_j} \cdot \frac{Y_j(E)\lambda_j}{Y_i(E)\lambda_i} \right) \quad (4)$$

可以用来计算零时的裂变产物有¹⁰³Ru-¹⁴⁷Nd、⁹⁵Zr-¹⁰³Ru、¹⁴¹Ce-¹⁴⁷Nd、¹⁴¹Ce-¹⁴⁴Ce 和⁹⁵Zr-¹³⁷Cs等。利用式(4)确定零时的不确定度主要取决于活度比、累积产额和半衰期的不确定度。

1.3 用同一衰变链母子体衰变关系确定核事件的零时

在裂变产物分析过程中,也可以利用未达到平衡的同一衰变链母子体裂变产物(如¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰La、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb 和⁹⁹Mo-⁹⁹Tc 等)的活度比来确定核事件的零时。

对如¹⁴⁰Ba \rightarrow ¹⁴⁰La的简单衰变情况,设 λ_1 和 λ_2 分别为母体¹⁴⁰Ba 和子体¹⁴⁰La 的衰变常量,由放射性衰变规律可得 t 时刻母体和子体的活度 A_1 和 A_2 分别为:

$$A_1 = N_f Y_1(E) \lambda_1 e^{-\lambda_1 t} \quad (5)$$

$$A_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_f Y_1(E) (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_f Y_2(E) \lambda_2 e^{-\lambda_2 t} \quad (6)$$

其中: N_f 为核燃料裂变数; $Y_2(E)$ 为子体裂变产物的独立产额。

因此, t 时刻母子体的活度比为:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) + \frac{Y_2(E)\lambda_2}{Y_1(E)\lambda_1} e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \quad (7)$$

核事件零时的计算公式则为:

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \frac{\frac{1}{\lambda_2} \cdot \frac{A_2}{A_1} - \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1}}{\frac{Y_2(E)}{Y_1(E)\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1}} \quad (8)$$

如果子体的初始活度与母体的初始活度相比非常小,即 $Y_2(E) \ll Y_1(E)$,则式(8)可以简化为:

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left[1 - \left(1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right) \frac{A_2}{A_1} \right] \quad (9)$$

对于子体裂变产物存在同质异能核素时,推算零时稍微复杂一些。如 ^{95}Zr - $^{95}\text{Nb}^m$ - ^{95}Nb 衰变链,其衰变形式如图 1 所示,图 1 中的 k_i 为衰变链分支比。

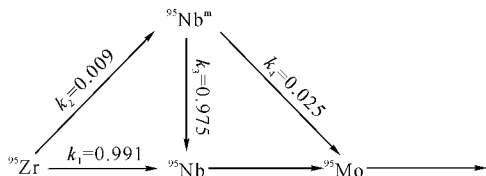


图 1 $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}^m \rightarrow ^{95}\text{Nb}$ 衰变示意图

Fig. 1 $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}^m \rightarrow ^{95}\text{Nb}$ decay chain

如果考虑同质异能核素 $^{95}\text{Nb}^m$ 的贡献,则子体裂变产物 ^{95}Nb 活度由两部分组成,一部分是 ^{95}Zr 直接衰变为 ^{95}Nb ,另一部分是 ^{95}Zr 经 $^{95}\text{Nb}^m$ 后再衰变为 ^{95}Nb 。

令 λ_1 、 λ_2 和 λ_3 分别为 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 和 $^{95}\text{Nb}^m$ 的衰变常量, Y_1 为 ^{95}Zr 的累积裂变产额, y_2 和 y_3 分别为 ^{95}Nb 和 $^{95}\text{Nb}^m$ 的独立产额,则 ^{95}Zr 直接衰变为 ^{95}Nb 对 ^{95}Nb 活度的贡献 A_{21} 为:

$$A_{21} = k_1 N_f Y_1 \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_f y_2 \lambda_2 e^{-\lambda_2 t} \quad (10)$$

^{95}Zr 经 $^{95}\text{Nb}^m$ 后再衰变为 ^{95}Nb 对 ^{95}Nb 活度的贡献 A_{22} 为:

$$A_{22} = k_2 k_3 N_f Y_1 (h_1 e^{-\lambda_1 t} + h_2 e^{-\lambda_2 t} + h_3 e^{-\lambda_3 t}) + N_f y_3 \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_3} \quad (11)$$

其中: $h_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)}$, $h_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_2)}$, $h_3 = \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)}$ 。

^{95}Nb 活度 A_2 则为:

$$A_2 = A_{21} + A_{22} = k_1 N_f Y_1 \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_f y_2 \lambda_2 e^{-\lambda_2 t} + k_2 k_3 N_f Y_1 (h_1 e^{-\lambda_1 t} + h_2 e^{-\lambda_2 t} + h_3 e^{-\lambda_3 t}) + N_f y_3 \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_3} \quad (12)$$

母子体的活度比则为:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{A_2}{N_f \lambda_1 Y_1 e^{-\lambda_1 t}} = a e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} + b e^{-(\lambda_3 - \lambda_1)t} + c \quad (13)$$

其中,系数 a 、 b 和 c 分别为:

$$a = k_2 k_3 \frac{\lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} - k_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{y_2}{Y_1} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{y_3}{Y_1} \frac{1}{\lambda_1 (\lambda_3 - \lambda_2)};$$

$$b = k_2 k_3 \frac{\lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{y_3}{Y_1} \cdot \frac{1}{\lambda_1 (\lambda_2 - \lambda_3)};$$

$$c = k_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} + k_2 k_3 \frac{\lambda_3}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)}。$$

式(13)是超越方程,无解析解。但可将式(13)进行级数展开对零时 t 进行求解,或采用迭代法求解。事实上,由于 ^{95}Nb 和 $^{95}\text{Nb}^m$ 的独立产额与 ^{95}Zr 的累积产额相比非常小(表 1),因此,式(13)可简化为:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} k_1 [1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}] + \frac{k_2 k_3}{\lambda_1} [h_1 + h_2 e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} + h_3 e^{-(\lambda_3 - \lambda_1)t}] \quad (14)$$

令 $\delta = \frac{k_2 k_3}{\lambda_1} [h_1 + h_2 e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} + h_3 e^{-(\lambda_3 - \lambda_1)t}]$ (15)

则零时的计算公式为:

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left[1 + \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_2 k_1} \left(\frac{A_2}{A_1} - \delta \right) \right] \quad (16)$$

在计算零时的过程中,首先令 $\delta = 0$, 求出零时的初值,然后代入式(16)中进行迭代求解。

1.4 零时计算的不确定度

计算零时的不确定度主要来自活度比测量的不确定度、裂变产额的不确定度和半衰期的不确定度等。活度比测量的不确定度主要有 γ 射线峰面积的不确定度、峰效率的不确定度和真符合相加效应校正的不确定度等。

表 1 ^{95}Zr 、 $^{95}\text{Nb}^m$ 和 ^{95}Nb 的裂变产额

Table 1 Fission yield of ^{95}Zr , $^{95}\text{Nb}^m$ and ^{95}Nb

核素	^{95}Zr 累积产额	$^{95}\text{Nb}^m$ 独立产额	^{95}Nb 独立产额
$^{235}\text{U(T)}$	6.48×10^{-2}	2.48×10^{-7}	1.06×10^{-5}
$^{235}\text{U(F)}$	6.44×10^{-2}	9.05×10^{-9}	4.42×10^{-8}
$^{235}\text{U(H)}$	5.31×10^{-2}	1.46×10^{-6}	1.18×10^{-5}
$^{239}\text{Pu(T)}$	4.88×10^{-2}	1.32×10^{-6}	5.65×10^{-6}
$^{239}\text{Pu(F)}$	4.526×10^{-2}	3.94×10^{-7}	1.92×10^{-6}
$^{239}\text{Pu(H)}$	3.96×10^{-2}	5.55×10^{-6}	4.49×10^{-5}

注: $^{235}\text{U(T)}$ 代表 ^{235}U 热中子裂变; $^{235}\text{U(F)}$ 代表 ^{235}U 裂变谱中子裂变; $^{235}\text{U(H)}$ 代表 ^{235}U 14.8 MeV 中子裂变

2 应用

在2001至2004年的CTBT国际放射性核素实验室滤材样品的国际比对中,只有 ^{95}Zr - $^{95}\text{Nb}^m$ - ^{95}Nb 衰变链没有达到平衡,采用式(16)来计算零时,零时的计算结果和参考值列于表2^[5-8],不确定度的扩展因子为2。

由表2可以看出,零时的计算值与参考值在不确定度范围内符合很好。其中,2001年比对中的零时计算结果与参考值仅差0.31 d,2002年比对中的零时计算结果与参考值相差0.54 d,2003年比对中的零时计算结果与参考值相差0.26 d,2004年比对中的计算结果与参考值相差仅1.5 h。因此,利用母子体关系可

以准确确定CTBT国际比对样品的零时。

利用不同衰变链上两裂变产物的活度比推算了2001年和2004年比对样品的零时,零时的计算值和参考值列于表3。

由表3的结果可以看出,根据不同衰变链上的两裂变产物活度比也可以确定核事件的零时,但计算结果与参考值间的偏差较大。产生较大偏差的主要原因是辐照后的 ^{235}U 样品经过了化学流程处理,由于不同核素的物理化学性质的不同,裂变产物之间的活度比发生了或大或小的变化。另外,裂变产物活度(如表3中 ^{137}Cs)的不确定度大也是引起较大偏差的主要因素之一。

表2 零时计算结果与参考值的比较

Table 2 Comparison of zero time between referent values and calculated results

年度	活度比计算 参考时刻	零时参考值	参考值 不确定度/d	零时测量值	测量值 不确定度/d
2001	2001-10-14 12:00	2001-09-24 07:43	1.08	2001-09-24 15:07	0.57
2002	2002-05-01 12:00	2002-04-17 04:48	0.14	2002-04-16 15:45	1.85
2003	2003-09-25 08:58	2003-09-08 17:14		2003-09-08 23:31	0.79
2004	2004-12-01 12:00	2004-11-08 01:13	0.30	2004-11-08 02:40	1.10

表3 利用不同衰变链上两裂变产物活度比计算的样品零时

Table 3 Zero time calculated by non-isobaric fission products

年度	核素	半衰期/d	裂变产额/%	活度/Bq	零时计算值	偏差/d
2001	^{103}Ru	39.26	3.040 5	18.40(0.29)		
	^{147}Nd	10.98	2.839 0	23.99(0.84)	2001-9-23 19:44	-0.50
	^{141}Ce	32.50	5.847 0	47.60(1.21)		
	^{147}Nd	10.98	2.839 0	23.99(0.84)	2001-9-19 10:20	-4.89
	^{141}Ce	32.501	5.847 0	47.60(1.21)		
2004	^{144}Ce	284.893	5.328 0	8.15(0.23)	2001-9-18 2:10	-6.23
	^{95}Zr	64.02	6.479 1	1.07(0.04)		
	^{147}Nd	10.98	2.839 0	1.08(0.06)	2004-11-13 17:50	5.63
	^{95}Zr	64.02	6.479 1	1.07(0.04)		
	^{137}Cs	10 982.77	6.205 2	0.011 1(0.002 2)	2004-10-4 22:28	-34.17

注:括号内数据为活度的不确定度;偏差=零时计算值-零时参考值

3 讨论

两裂变产物活度比可以用来确定CTBT比对样品的零时。其中,利用同一质量链上母子体裂变产物的活度比推算的零时较准确可

信;利用不同质量链上的两裂变产物活度比确定零时时,应选用质量链上的初始裂变产物或那些所有前驱母体半衰期与之相比很小的裂变产物,且在测量时刻所有前驱母体都已衰变完

全,同时要求使用的裂变产物的核参数尤其是其裂变产额要准确。

从式(3)和式(7)中可看出,两裂变产物活度比包含了裂变产额,因此,通过两裂变产物的活度比还可以提取裂变材料和中子谱能量等相关信息,值得深入研究。

参考文献:

- [1] KARHU P, CLAWSON R. Radionuclide laboratories supporting the network of radionuclide stations in verification of the comprehensive nuclear-test-ban treaty[J]. KERNTECHNIK, 2001, 66(3):126-128.
- [2] MATTHEWS M, SCHULZE J. The radionuclide monitoring system of the comprehensive nuclear-test-ban treaty organisation: From sample to product[J]. KERNTECHNIK, 2001, 66(3): 102-112.
- [3] de GEER L E. Comprehensive nuclear-test-ban treaty; Relevant radionuclides[J]. KERNTECHNIK, 2001, 66(3):113-120.
- [4] NIR-El Y. Dating the age of a nuclear event by gamma spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, 60:197-201.
- [5] 王军,张利兴,张自禄,等. 2001年度CTBT放射性核素实验室滤材样品的比对测量[R]. 西安:西北核技术研究所,2002.
- [6] 王军,王世联,常印忠,等. 2002年度CTBT放射性核素实验室滤材样品的比对测量[R]. 西安:西北核技术研究所,2003.
- [7] 王世联,王军,张利兴. 2003年度CTBT放射性核素实验室滤材样品的比对测量[R]. 西安:西北核技术研究所,2004.
- [8] 王世联,王军,常印忠,等. 2004年度CTBT放射性核素实验室滤材样品的比对测量[R]. 西安:西北核技术研究所,2005.