

## 4πγ 电离室活度测量标准装置

陈宝林 周维姝 谭永康 朱黎明 唐方东

(上海市计量技术研究所)

文章叙述了所建立的4πγ 电离室活度测量标准装置的结构和性能。说明了用<sup>125</sup>I作为探针,对源瓶子进行筛选的必要性。电离室共刻度了26个核素,刻度的总不确定度(3σ)在1.2%—4.6%。导出了一条完整的4πγ 电离室效率曲线,可用来预言未作过刻度的核素的刻度值。

关键词 4πγ 电离室, 活度标准, 性能和刻度, 效率曲线, γ 辐射核素。

### 一、前 言

4πγ 电离室稳定性好,再现性强,电离电流测量精密度高,源的位置效应小,由于这些特点,使得它自五十年代初出现以来,至今仍是最常用的核素活度测量仪器之一。

到了七十年代,出现了充高压氮气或氩气的电离室,它较之以前的自由空气型电离室,大大提高了测量灵敏度和精密度。但是由于充有高压气体,存在着泄漏的可能性,一旦泄漏,所作的刻度将前功尽弃。国际计量局考虑到这种可能性,在所建立的γ 辐射核素活度测量国际参考系统<sup>[1]</sup>中,并排放置二个相同的高气压4πγ 电离室,它们互相用作对方密封性的检验。但这一来,费用和刻度工作量大大增加。另一方面,4πγ 电离室刻度的不确定度在多数情况下主要由标准源活度的不确定度决定。考虑到这些情况,我们决定采用自由空气型电离室。

### 二、测 量 原 理

4πγ 电离室是电流型电离室。工作在饱和区,饱和电流:

$$I = C \cdot A \quad (1)$$

式中 $A$ 为核素的活度, $C$ 是一个常数,它主要是由核素特性、电离室的结构和源的形态尺寸等决定。对确定的电离室来说,不同的核素对应有不同的常数,这些常数一般由实验确定。利用一系列标准源,分别置于电离室井中,测量其电离电流值,然后求出与每一个标准源对应的常数,称之为刻度值(或刻度系数):

$$C = I_s / A_s \quad (2)$$

式中 $A_s$ 为标准源的活度, $I_s$ 为用该标准源所测得的电离电流。电离电流 $I$ 是采用Townsend平衡补偿法<sup>[2]</sup>进行测量的。

4πγ 电离室通常用来测量溶液状的体源。我们按惯例采用规格化的源瓶子和规定源溶液量的方法。

### 三、装 置

整套装置的原理图如下:

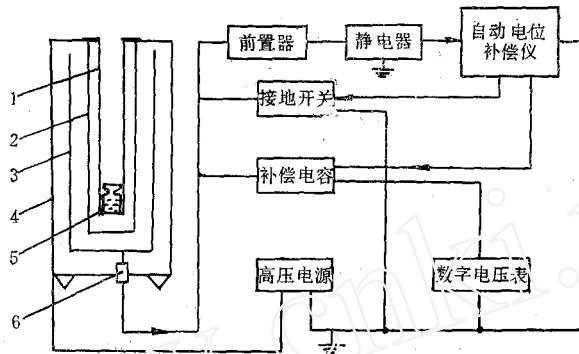


图 1  $4\pi\gamma$  电离室活度测量装置

Fig 1  $4\pi\gamma$  ionization chamber equipment for activity measurement

1——源支架；2——内高压极；3——收集极；4——外高压极；5——放射源；  
6——绝缘子。

1. 电离室 内高压极(即井壁)和外高压极均由铝制成。内高压极壁厚 2 mm, 直径 73 mm, 井深 357 mm。收集极用铜制成。电离室容积约 7.74 l。待测源用有机玻璃支架定位, 置于井中央。电离室周围用 10 mm 厚的铸铁作为屏蔽, 它同时也起到机械上稳定的作用。

2. 电离电流测量系统 自动电位补偿仪<sup>[3]</sup>是本所自行研制的, 它按 Townsed 平衡补偿法自动进行电位补偿, 静电计在这里起指零作用。并向自动电位补偿仪输出开门启动讯号和关门结束讯号。接地开关是用于簧继电器接通静电计原有的手按短路系统。高压电源由电池串联而成。 $4\pi\gamma$  电离室和电测系统整套装置放在恒温室中。

#### 四、性能和校正实验

1. 本底 本底电流一般在 0.03~0.04 pA, 它相当于  $1.48 \times 10^4$  Bq (即 0.4  $\mu$ Ci) 的  $^{60}\text{Co}$  源产生的电离电流值。

2. 重复性 电离电流大于 1 pA 时, 十次测量的平均值标准偏差好于 0.22%。

3. 系统的稳定性 用 1 mg 的  $^{226}\text{Ra}$  源进行监测, 从 1982 年 11 月至 1986 年 8 月, 4 年时间内作了 14 次测量, 得到的单次测量的标准偏差为 0.28%。

4. 饱和损失和线性 在七个相差四个数量级的电离电流(相当于源的活度相差四个量级)下, 分别作饱和特性测量, 结果表明: 在 1~5500 pA 区间, 电离电流的饱和损失均在 0.1%~0.2% 之间。

我们也作了电离室的线性测试。选用  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  作线性跟踪, 每隔 4 h 测量一点, 持续了四天四夜。据衰减曲线求得的半衰期为 6.022 h, 结果表明, 在 0.4~8000 pA 电离电流范围内, 电离室的线性良好。

5. 轴向响应 分别用  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{125}\text{I}$  做了轴向响应测量。它们均为体源(直径从 12 mm 到 20 mm, 高度从 0.1 mm 到 10 mm)。得到的结果表明: 在离源支架底 3 cm (系为我们采用的规格化源瓶子的有效高度)内, 响应变化小于 0.6%。

6. 径向响应 我们采用  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{125}\text{I}$  等核素作了径向响应测量, 其中  $^{226}\text{Ra}$  为固体点源(直径 1.65 mm, 高 5 mm), 其余为液体针状源(直径约 5 mm, 高约

10 mm), 结果表明, 在偏离轴心 10 mm 内(我们采用的规格化源瓶子的半径即为 10 mm), 响应变化小于 1%。

**7. 源溶液的自吸收** 分别用  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{125}\text{I}$  等核素做了源溶液自吸收测量, 实验是通过逐次加入非放射性载体溶液进行的。结果表明发射光子能量越低, 源溶液自吸收越严重。例如对  $^{125}\text{I}$ , 当溶液质量增加到 3.3 g 时, 自吸收已达 3%, 足以影响测量结果。为了减小由于源溶液量的差异所引入的误差。我们规定源溶液量一律为 1 g。

**8. 瓶壁吸收和选瓶子实验** 我们用  $^{125}\text{I}$  做成直径 5 mm, 液面高 10 mm 的针状源, 用它作为灵敏探针对华北制药厂生产的 10 ml 青霉素瓶子(内径~20 mm, 壁厚~1 mm) 进行严格的筛选, 从中选出电离电流一致性好于  $\pm 0.15\%$  的瓶子作为盛放源溶液的规格化瓶子。采用  $^{125}\text{I}$  而不像有些作者<sup>[4,1]</sup>用  $^{241}\text{Am}$  作为测试探针, 是因为  $^{125}\text{I}$  发射的光子平均能量(28.4 keV)比  $^{241}\text{Am}$ (~60 keV)更低。据吸收估算, 青霉素瓶对 28.4 keV 光子的吸收比对 60 keV 光子的吸收约大 6 倍, 因而用  $^{125}\text{I}$  作探针, 对于壁厚的微小差异比  $^{241}\text{Am}$  反映更灵敏。

我们还用不同壁厚的玻璃试管套在安瓿瓶外面作了壁吸收校正实验。所用的核素有  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{125}\text{I}$  等。实验表明, 瓶壁吸收随着光子能量降低而迅速增大。特别是对  $^{125}\text{I}$ , 当壁厚相差 0.02 mm 时, 壁吸收变化达 3.3%, 这将成为最大的误差来源。

## 五、刻 度

共用 26 个核素对电离室作了刻度, 大体上把常用的  $\gamma$  放射性核素和医用核素都刻度了, 结果列于表 1。刻度所用的标准源主要来自三个方面: 英国 R. C. C, 法国 LMRI, 另一部分是我们自行研制的。

表 1 中,  $^{137}\text{Cs}$  刻度值是英国 R. C. C 标准源与法国 LMRI 标准源刻度的平均值, 两者偏差为 0.3%。

$^{60}\text{Co}$  刻度值是英国 R. C. C 标准源和我们自制标准源刻度的平均值, 两者偏差为 0.31%。同一核素作重复刻度的目的, 是为了观察两家之间是否存在严重的系统偏差。由  $^{137}\text{Cs}$  和  $^{60}\text{Co}$  的刻度检验, 所存在的偏差均在电离电流的测量误差之内, 表明相互之间不存在严重的系统偏差。

上表中, 刻度值的总不确定度为三倍的标准源活度值的不确定度与电离电流的不确定度之方和根。其中电离电流测量的不确定度所含的各个分量列于表 2。表 2 中, 不确定度的分类和合成方法, 均是按照国际计量局关于实验不确定度的规定<sup>[5]</sup>, 其中 A 类不确定度是用统计方法计算的分量。B 类不确定度是用其它方法计算的分量。

## 六、效 率 曲 线

如果能得到一条  $4\pi\gamma$  电离室的效率随光子能量变化的曲线, 那是很有意义的, 这时就可像 NaI(Tl) 或 Ge(Li) 探测器那样测量未曾刻度过的核素, 这对半衰期很短, 以至根本不可能进行绝对测量的核素的活度标定特别有用。已有一些作者<sup>[1,6-9]</sup>利用各自的处理方法得到了这样的曲线。我们采用物理分析的方法导出了一条适用于我们的电离室的效率曲线。

表 1 核素刻度结果

Table 1 The radionuclide calibration factors of the  $4\pi\gamma$  chamber

核素	主要光子能量/MeV	刻度值/ $\text{pA} \cdot (3.7 \times 10^7 \text{Bq})^{-1}$	总不确定度/ $\%(3\sigma)$	标准源来源
$^{125}\text{I}$	0.0284	3.324	4.5	法国 LMRI
$^{241}\text{Am}$	0.0595	4.112	1.8	北京原子能院
$^{109}\text{Cd}$	0.088 0.0226	1.211	4.5	LMRI
$^{57}\text{Co}$	0.1237	14.25	2.0	LMRI
$^{90\text{m}}\text{Tc}$	0.1405	12.94	3.7	自制
$^{141}\text{Ce}$	0.1454 0.0368	8.16	1.4	北京原子能院
$^{203}\text{Hg}$	0.279 0.074	14.11	3.0	LMRI
$^{61}\text{Cr}$	0.320	1.829	2.5	LMRI
$^{113\text{m}}\text{In}$	0.392 0.0247	12.63	4.0	自制
$^{85}\text{Sr}$	0.514	21.89	2.5	LMRI
$^{137}\text{Cs}$	0.662 0.0323	22.40	2.0	LMRI, RCC
$^{54}\text{Mn}$	0.835	30.77	2.0	RCC
$^{65}\text{Zn}$	1.115 0.511	19.25	2.5	RCC
$^{60}\text{Co}$	1.253	80.17	1.5	自制 RCC
$^{22}\text{Na}$	1.275 0.511	80.04	1.5	RCC
$^{88}\text{Y}$	1.836 0.898	82.23	2.0	LMRI
$^{113}\text{Sn}$	复杂	13.49	3.0	LMRI
$^{198}\text{Au}$	复杂	18.76	2.5	自制
$^{50}\text{Fe}$	复杂	38.87	2.5	LMRI
$^{133}\text{Ba}$	复杂	26.29	3.5	RCC
$^{75}\text{Se}$	复杂	28.00	3.0	LMRI
$^{160}\text{Yb}$	复杂	38.49	4.6	自制
$^{131}\text{I}$	复杂	18.46	1.2	自制
$^{152}\text{Eu}$	复杂	46.89	4.5	RCC
$^{134}\text{Cs}$	复杂	59.65	2.0	RCC
$^{228}\text{Ra}$	复杂	59.81	2.0	RCC

1. 几点假定和说明 我们在进行了一些计算和附加实验的基础上作出下列几点规定:

a) 据射程计算, 2 mm 厚的铝井壁可阻挡住能量直到 1 MeV 的电子, 因此认为核素衰变放出的  $\beta$  粒子的最大能量和内转换电子的能量不超过 1 MeV 者, 将不会对电离电流产生贡献, 当然  $\alpha$  粒子更进不了电离室。

b) 据衰减计算, 能量低于 20 keV 的光子射到 2 mm 厚的铝壁时, 透射率小于 1%, 再加 1 mm 厚的青霉素源瓶和有机玻璃定位支架等的吸收作用, 因此认为能量低于 20 keV 的光子对电离电流也不产生贡献。

c) 对于能量超过 20 keV 的光子, 不管其产生机制, 对电离电流均产生贡献。因此除核素发出的  $\gamma$  射线外, 还要考虑其特征 X 射线的贡献。

d) 对于能量比较接近的两条或几条  $\gamma$  射线, 或特征 X 射线, 按它们的分支比加权, 求出平均能量。

e) 在我们的实验条件下, 电子首先遇到的介质是玻璃源瓶和有机玻璃定位支架, 然后是铝质内高压极, 它们都是低原子序数材料, 1 MeV 的电子在其中的韧致辐射几率大

表 2 电离电流(1~5000pA)测量的不确定度

Table 2 Uncertainty for measuring ion current between 1 and 5000 pA

不确定度来源		不确定度/%	得到方法
A类	重复性	0.22	10次以上测量的平均值的标准偏差
B类	电容值	0.02	$\Delta C/C$
	补偿电压值	0.03	$\Delta V/V$
	时间测量	0.001	$\Delta t/t$
	温度修正	0.03	$\Delta T/T$
	气压修正	0.04	$\Delta P/P$
	溶液量不一致	0.08	$\Delta f_{\text{容}}/f_{\text{容}}$
	瓶壁厚不一致	0.15	实验确定
	本底	0.15	公式计算
	几何位置	0.02	实验估算
	饱和损失	0.1	实验确定
合成不确定度 $\sigma$		0.34	方和根
总不确定度 $3\sigma$		1.02	$3\sigma$

大小于 1%，另外轫致辐射是从零能量到电子能量的连续光子谱，很大部分在 20 keV 以下。对于我们刻度的 26 个核素，不存在超过 1 MeV 的  $\beta$  粒子和内转换电子发射，因此认为它们发射的轫致辐射光子对电离电流不产生贡献。

**2. 效率曲线的导出** 在上述 5 点规定的基础上，对表 1 中的单能光子源 ( $^{125}\text{I}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ) 的刻度值 ( $C$ ) 作分支比 ( $\eta$ ) 修正，就可求得  $4\pi\gamma$  电

离室对该能量光子的探测效率  $\varepsilon = C/\eta$ ，即每秒  $3.7 \times 10^7$  个光子发射所产生的电离电流。据此可画出电离室的效率  $\varepsilon$  随光子能量  $E$  的变化曲线，见图(2)中的十号，图中的  $\Delta$  点是对表 1 中一些具有两个发射光子能量的核素，按照电离电流相加原理（即：核素产生的电离电流是该核素发出的各个不同能量的光子射线所产生的电离电流之和）画上去的。这样做的目的，一是使效率曲线（尤其在低能部）的实验点子适当加密，二是使效率曲线得以扩展延伸，从而使整条效率曲线能覆盖常用的  $\gamma$  核素的能量范围 (20 keV~2 MeV)，并具有较高的精度。我们利用多项式对上述曲线分二段进行拟合，分别得到二个方程：

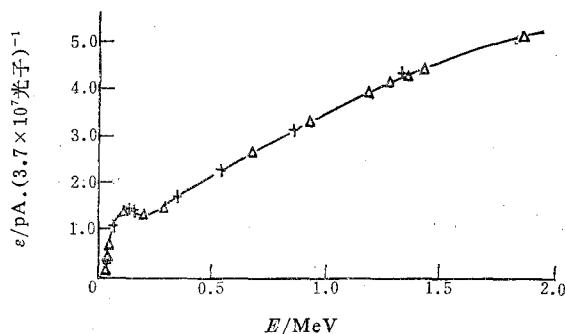


图 2  $4\pi\gamma$  电离室效率曲线  
Fig. 2 The efficiency curve of the  $4\pi\gamma$  chamber

在 0.020~0.320 MeV:

$$\varepsilon(E) = -11.533 + 638.29 E - 5114.6 E^2 + 14530 E^3 - 5229.7 E^4 - 21961 E^5 \quad (3)$$

在 0.279~2.0 MeV:

$$e(E) = 7.1013 + 30.687 E - 3.437 E^2 \quad (4)$$

3. 由效率曲线计算核素刻度值并与实验值比较 据上述效率函数, 我们计算了<sup>131</sup>I, <sup>133</sup>Ba, <sup>152</sup>Eu 等 10 个具有复杂光子谱发射的核素的刻度值, 所用的光子能量和分支比数据取自文献[10]和[11]。所得结果与实验值一起示于表 3。

表 3 一些核素刻度值的计算值与实验值比较

Table 3 Check the calculated values against the experimental values of the calibration factors for some nuclides

核素	光子能量/MeV, (分支比)	刻度值/pA·(3.7×10 <sup>7</sup> Bq) <sup>-1</sup>		偏差/% [(C <sub>计</sub> -C <sub>实</sub> )/C <sub>实</sub> ]
		计算值 C <sub>计</sub>	实验值 C <sub>实</sub>	
<sup>113</sup> Sn	0.392 (64.9%), 0.255 (1.85%), 0.0247(96.7%)	13.61	13.49	+0.89
<sup>134</sup> Cs	0.569 (15.43%), 0.605 (97.6%), 0.795 (85.4%)等10条	59.71	59.65	+0.10
<sup>75</sup> Se	0.136 (60.6%), 0.265 (59.4%), 0.279 (25.2%)等9条	26.91	28.0	-3.9
<sup>133</sup> Ba	0.081 (33.5%), 0.356 (62.1%), 0.0316(120%)等10条	26.89	26.29	+2.3
<sup>188</sup> Au	0.072 ( 2.8%), 0.412 (95.5%), 0.676 (1.06%)等4条	19.03	18.77	+1.4
<sup>131</sup> I	0.284 ( 6.1%), 0.365 (81.2%), 0.637 (7.3%)等10条	18.48	18.46	+0.11
<sup>113m</sup> In	0.392 (64.9%), 0.0247(24%)	12.39	12.62	-1.9
<sup>169</sup> Yb	0.052(185.8%), 0.177(22.3%), 0.198(35.9%)等13条	37.32	38.49	-3.0
<sup>152</sup> Eu	0.041( 74.8%), 0.344(26.6%), 1.408(20.9%)等41条	47.52	46.89	+1.3
<sup>59</sup> Fe	0.192( 3%), 1.099(56.1%), 1.29(43.6%)等5条	39.01	38.87	+0.37

由表 3 可见, 计算值与实验值的偏差除一个为 3.9%外, 其它均在 3%以内(绝大部分在 2%以内), 这跟文献[6]给出的偏差大体相当, 而比文献[9]给出的偏差要小。根据这些结果可以确信: 所得到的效率曲线方程能用来预言尚未作过刻度的核素的刻度值, 一般情况下偏差在 3%以内, 产生偏差的原因, 主要是由于效率曲线还不够精确, 尤其在低能段 (20~320 keV), 效率曲线变化较大, 而数据点相对较少, 因此当所计算的核素的低能光子的分支比较大时, 就可能产生较大的误差。另外对有些核素也不排除跟衰变数据不够精确有关。

李玫、黄庆玲、卓申嘉、唐瑞珠、李燕飞、陈永寿、张建强等先后参加过部分工作, 中国原子能科学研究院杜鸿善、丁负吾为本工作特制了<sup>241</sup>Am, <sup>141</sup>Ce 标准源和高纯度<sup>198</sup>Au 溶液, 特此致谢。

### 参 考 文 献

[1] Rytz, A., *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*, **34**, 1047(1983).  
 [2] 中国计量科学研究院编译, 放射性核素计量学, 256(1976).  
 [3] 顾继青等, 上海计量测试技术, **2**, 10(1981).  
 [4] Woods, M. J. et al., *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*, **26**, 488(1975).  
 [5] BIPM, INC-1(1980).  
 [6] Schrader, H. and Weib. H. M., *Int. J. Nucl. Med. and Biol*, **10**, 121(1983).  
 [7] Weiss, H. M., *Nucl. Instrum. Methods*, **112**, 291(1973).  
 [8] NCRP Report, **58**, 262(1978).  
 [9] Dale, J. W. G., *Int. J. Appl. Radiat. and Isotopes*, **10**, 72(1961).  
 [10] NCRP Report, **58**, 322(1978).  
 [11] Lederer, C. M. and Shirley, V. S., *Table of Isotopes*, 7th Edition, 1978.

(编辑部收到日期: 1988年4月22日)

## A $4\pi\gamma$ IONIZATION CHAMBER SUBSTANDARD FOR ACTIVITY MEASUREMENTS

CHEN BAOLIN ZHOU WEIZHONG TAN YONGKANG

ZHU LIMING TANG FANGDONG

(Shanghai Institute of Metrology)

### ABSTRACT

The structure and performance of the  $4\pi\gamma$  ionization chamber substandard established are described. The necessity of selecting source vials in accordance with wall absorption fractions using a  $^{125}\text{I}$  needle source which is used as a sensitive probe is stated. The chamber is calibrated with 26 radionuclides. The overall uncertainties ( $3\sigma$ ) of calibration factors are in range of 1.2—4.6%. A efficiency curve of the chamber is derived and it can be used to predict the calibration factors of those radionuclides for which the chamber isn't calibrated.

**Key words**  $4\pi\gamma$  ionization chamber, Substandard, Performance and calibration, Efficiency curve,  $\gamma$ -Ray emitting nuclides.