

低本底 γ 閃爍譜儀

楊基方 哈繼錄

本文描述了用于低水平 γ 放射性分析的閃爍譜儀。碘化鈉晶体尺寸为 $\phi 4 \times 3$ 厘米, 光电倍加管为 $\Phi 3Y-1C$ 型。譜儀的能量分辨率 $< 10\%$ 。在采用 15 厘米厚的鋼加 2 厘米厚的鉛作屏蔽时, 积分本底为 191 脉冲/分。文中还分析了剩余本底来源, 讨论了譜儀的长时间工作稳定性, 介绍了簡易的提高譜儀稳定性的監察方法, 并列举了譜儀在輻射防护工作中的应用实例。本譜儀在与百道脉冲振幅分析器配合使用的情况下, 可分析 10^{-10} 居里的小体积样品。

一 引 言

在原子能企业的场所監察及环境監察工作中, 不但需要了解是否有放射性污染发生和污染的程度(强度、范围等), 而且还应该知道污染是由何种同位素造成的, 这样才能全面地估价其危害大小和正确分析造成污染的原因, 并为从根本上消除造成污染的原因提供可靠依据。

由于 γ 射线的特征谱明显, 所以有可能对含有多种同位素成分的混合物进行分辨; 而且在大部分情况下不必考虑样品的自吸收, 这就使得制样簡便。因此, 利用 γ 譜儀直接鉴别同位素的方法, 目前在分析工作中得到了广泛的应用。本文叙述了一台低本底 γ 閃爍譜儀的研制以及它在輻射防护工作中一些初步应用实例。

二、实 驗 装 置

我们采用的是单晶譜儀。碘化鈉晶体直径为 4 厘米, 高为 3 厘米。光电倍加管为 $\Phi 3Y-1C$ 型, 光阴极直径也为 4 厘米。它们被装配在 4 毫米厚的鋼筒內。

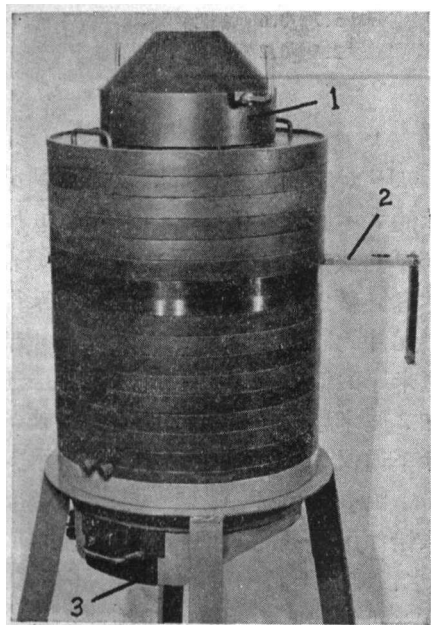


图 1 譜儀屏蔽体外貌
1—上门; 2—拉板; 3—下门。

譜儀采用厚 15 厘米的鋼为主体屏蔽, 它是用 3 厘米厚的鋼板迭起来的, 拆卸比较方便。內层放置 2 厘米鉛做內屏蔽。碘化鈉晶体上方的测量空间的大小为: 直径 9 厘米, 高 18 厘米。屏蔽体上方有可滑动的门, 供放置体积较大的样品用。小样品可通过屏蔽体中部抽屜式拉板放入。屏蔽体下方安有可抽动的门, 利用它可以在不拆卸屏蔽体的条件下方便地将整个探

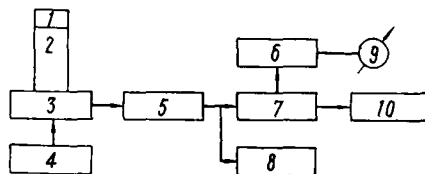


图 2 记录电路方框图

1—碘化鈉晶体; 2— $\Phi 3Y-1C$ 光电倍加管; 3—白氏跟随器; 4—500—2000 伏高压电源; 5—100 型放大器; 6—计数率仪; 7—单道分析器; 8—百道分析器; 9—指示; 10—64 进位定标器。

头从底部取出。屏蔽体总重约 850 公斤。图 1 是谱仪屏蔽体的外貌图。

图 2 是谱仪记录电路的方框图。根据分析样品强度的大小，谱仪可以配合单道或百道脉冲振幅分析器使用。对于强度不低于 10^{-7} 居里的样品，可以采用单道分析器。在不得不采用单道分析器分析放射性强度为 10^{-8} 居里甚至更弱的样品时，必须附加一个用以监察谱仪工作稳定性的计数率仪。

三、谱仪调试

1. 能量分辨率和直线性

为了获得最佳聚焦条件，光电倍增管全部分压电阻均经过实验挑选。调试后谱仪对 Cs^{137} γ 射线 ($E_\gamma = 0.662$ 兆电子伏) 的能量分辨率小于 10%。

用 Ce^{144} , Cr^{51} , Cs^{137} , $\text{Zr}^{95} + \text{Nb}^{95}$ 和 Co^{60} 等 γ 放射源检验谱仪能量-道址关系的结果表明，在上述各同位素的 γ 射线能量范围内，谱仪的非线性不大于 1%。

2. 谱仪的光电峰效率¹⁾

γ 谱仪对 Ce^{144} , Cs^{137} , $\text{Zr}^{95} + \text{Nb}^{95}$ 和 Co^{60} 的光电峰效率的实验值列于表 1。前三个同位素用 4π 计数管测量其绝对 β 蜕变数，然后根据蜕变图换算求得其 γ 光子发射率。 Co^{60} 源系采用中国科学院原子能研究所生产的二级标准源(测量精度为 8%)。除 Ce^{144} 源的测量误差较大(约 25—30%) 外，其他三个放射源的标定精确度约 10% 左右。

表 1 $\phi 4 \times 3$ 厘米碘化钠晶体的光电峰效率
点源离晶体表面约 1 厘米。

同位素	能量, 兆电子伏	光电峰效率, %
Ce^{144}	0.134	12 ± 3.6
Cs^{137}	0.662	5.4 ± 0.6
$\text{Zr}^{95} + \text{Nb}^{95}$	~ 0.75	5.7 ± 0.6
Co^{60}	1.33	2.3 ± 0.2

3. 本底

(1) 物质屏蔽降低本底 根据密勒尔 (C. E. Miller) 等^[1] 对不同厚度铁屏蔽下碘化钠晶

表 2 在不同屏蔽条件下谱仪的积分本底 (>80 千电子伏)
碘化钠晶体的尺寸为 $\phi 4 \times 3$ 厘米。

屏蔽条件	本底计数率, 脉冲/分	本底降低倍数
无	3850	—
15 厘米钢	227	17
15 厘米钢 + 2 厘米紫铜	201	19.3
15 厘米钢 + 2 厘米铅	191	20.2

体的 γ 本底谱的研究, 采用 14—20 厘米厚的铁作为主屏蔽是合适的。综合考虑屏蔽效果、重量、经济价值以及探测元件的固有本底水平, 我们采用 15 厘米厚的低碳钢作为主屏蔽, 内层还加 2 厘米厚的内屏蔽。在不同屏蔽条件下谱仪 γ 本底的情况如表 2 所示。

由表 2 可知, 用 15 厘米钢加 2 厘米铅作内屏蔽的效果最好, 可使本底

降低为无屏蔽时的二十分之一。用 10 厘米高、2 厘米厚的水银环置于晶体附近作为内屏蔽, 代替相应部分紫铜屏蔽, 结果本底反而上升了 10 脉冲/分。这可能与所采用的水银纯度不够有

1) 光电峰效率定义为光电峰面积下总计数率与总 γ 光子发射率之比, 以百分数表示。

关¹⁾。图 3 是不同屏蔽条件下测得的 γ 本底谱。

(2) 剩余本底来源的分析 剩余本底主要来源于屏蔽材料、碘化钠晶体、光电倍增管以及屏蔽体内分压电阻、前置级元件等所含的放射性物质和宇宙射线硬成分。

(i) 屏蔽材料的贡献 假设屏蔽材料中含放射性物质 q 居里/克, 则当屏蔽体足够厚时, 从屏蔽体射到碘化钠晶体表面的总 γ 光子数 N 由下式决定:

$$N = \frac{q}{\mu} SB, \quad (1)$$

式中: μ 是屏蔽材料对其本身所发射的光子的质量衰减系数 (厘米²/克); S 为碘化钠晶体的表面积 (厘米²); B 是累积因子。

将 (1) 式乘以晶体的探测效率, 即可求得屏蔽体对本底的贡献。一般钢的放射性含量小于 10^{-14} 克镭/克钢, 据此估计由屏蔽材料所引起的本底计数率约 30 脉冲/分。

当然, 屏蔽材料中的放射性含量与产地、冶炼、加工、贮存及运输过程有关, 因而可能有很大起伏。

(ii) 宇宙射线的贡献 宇宙射线硬成分对我们实验室的直径为 3 厘米的半球形流气式盖革计数管的本底贡献为 6 脉

冲/分左右。换算成宇宙射线硬成分的球通量约 0.013 粒子/厘米²·秒, 这与文献[2]的数据相符。假定流气式盖革计数管与碘化钠晶体对 μ 介子具有同样的探测效率, 则宇宙射线硬成分对谱仪本底的贡献为 10 脉冲/分, 即仅占全部本底的 5% 左右。

(iii) 碘化钠晶体的贡献 碘化钠中含有钾。天然钾中含 0.0119% 的天然放射性同位素 K^{40} , 它是造成本底的来源之一。目前, 国际上用于低水平放射性测量的晶体, 其碘化钠原料往往都经过专门的去钾提纯, 使含钾量低达百万分之一、二。我们所采用的晶体原料系从英国进口的医用碘化钠粉末, 其纯度很差。在本底为 0.5 脉冲/分的流气式盖革计数管弱 β 放射性测量装置上的测量表明, 其含钾量约万分之二。对本底计数率的贡献为 50 脉冲/分。

(iv) K-8 型玻璃窗的贡献 碘化钠晶体窗口系用天津出产的 K-8 型玻璃封接, 它的放射性含量较高。通过测量玻璃片 β 放射性, 求得 K-8 型玻璃窗对 γ 谱仪的本底贡献为 70 脉冲/分左右。采用石英或有机玻璃代替 K-8 玻璃作窗, 可望显著降低本底²⁾。

(v) 光电倍增管贡献 对一个苏制 $\Phi 3V-19M$ 型光电倍增管玻璃外壳, 用弱 β 放射性测量装置测得其比放射性为 2.5×10^{-11} 居里 K^{40} /克 (其 γ 谱见图 7)。外壳总重约 80 克, 以平均效率为 4% 计算, 光电倍增管对本底的贡献为 20 脉冲/分。估计我们所采用的 $\Phi 3V-1C$ 型光电倍增管与此情况类似。

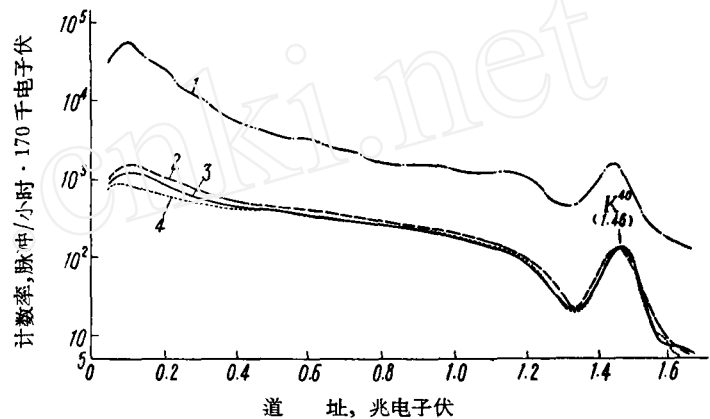


图 3 不同屏蔽条件下谱仪的 γ 本底谱

1—无屏蔽; 2—15 厘米钢; 3—15 厘米钢 + 2 厘米紫铜;
4—15 厘米钢 + 2 厘米铅。测量条件: $\phi 4 \times 3$ 厘米, NaI(Tl),
高压 1090 伏, 放大 48 倍; 测量日期: 1964 年 12 月 9 日。

1) 我们用的水银是未经蒸馏提纯的二级分析纯试剂。

2) 在本文定稿时, 获得一块用有机玻璃代替 K-8 型玻璃封装的碘化钠晶体 (晶体的尺寸及生产条件与我们原用的相同), 放在谱仪上使用时其积分本底为 130 脉冲/分, 本底降低 61 脉冲/分。看来本文的估计基本符合实际。

(vi) 其他 碘化钠晶体一般用铝壳包装,而铝中通常含有少量镭。但用低水平 α, β 放射性测量装置测量铝外罩,发现其放射性水平很低。用纯度为99.9%的紫铜代替铝包封晶体,结果也没有发现本底有明显变化。

在挑选晶体时,除要求有良好的分辨率外,还应考虑晶体的本底情况。对于在相同条件下生产的四块 $\phi 4 \times 3$ 厘米晶体进行选择,发现其本底计数率有10—20%的起伏。

综合上述测量结果及分析,屏蔽后 γ 谱仪剩余本底来源大体可作表3所示的估计。

4. 稳定性

低水平测量装置主要用于测量弱放射性样品。为了保证必需的精确度,就需要较长的测量时间。对于我们的谱仪来说,在配合单道分析器工作时,分析一个强度为 10^{-8} 居里的样品就需数小时之久。在采用多道分析器时,分析强度为 10^{-10} 居里的样品也需4—5小时。因此,

用于分析微弱放射性样品的谱仪必须有良好的长时间工作稳定性。

(i) 影响谱仪工作稳定性的主要因素 影响谱仪工作稳定性的主要因素有:光电倍增管增益的漂移,电子学记录设备的不稳定和环境温度、湿度、电磁场的干扰等。

(i) 光电倍增管增益的漂移 光电倍增管增益因高压漂移及工作条件变化而可能发生漂移。假定联极的二次

表3 γ 谱仪剩余本底来源分析

本底来源	主要成分	百分比, %
宇宙线	μ 介子	5
屏蔽材料	Ka, Th及其子体	16
光电倍增管	K^{40}	10
K-8玻璃窗	K^{40}	37
碘化钠晶体	K^{40}	26
其他	—	6
总计		100

次发射系数与入射电子能量之间有简单正比关系,则光电倍增管增益 G 的相对漂移为高压 U 的相对漂移的 m 倍,即

$$\frac{\Delta G}{G} = m \frac{\Delta U}{U}$$

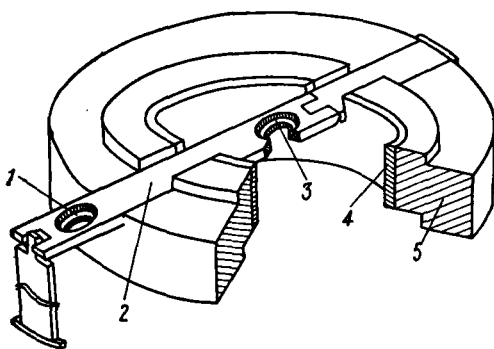


图4 检验谱仪稳定性用拉板装置示意图

1—检验源孔; 2—拉板; 3—测量样品孔;
4—内屏蔽, 2厘米铅; 5—主屏蔽, 15厘米钢。

过程中应避免谱仪周围温度有较大起伏,如避免阳光的直接照射等。将谱仪放在温度变化较小的房间或地下室,对谱仪工作的稳定性是有好处的。

由于具有很厚的钢屏蔽,外界电磁场干扰的影响是不重要的。

(iii) 电子学设备的稳定性 我们采用了稳定性能良好的100型放大器。单道和百道的

脉冲振幅分析器甄别水平与道宽的稳定性也在1—2%左右。保持全部电子学设备的良好通风,也有利于设备工作的稳定性。

用自动记录仪实际考验的结果,在室温变化不大的情况下,谱仪增益在八小时内的漂移约2%左右。

(2) **用监察方法提高谱仪的稳定性** 为了提高谱仪工作的稳定性,通常采用负反馈方法。这类方法能自动连续调节,24小时内的漂移可控制在1%以内^[7,8]。但设备比较复杂,用于低水平分析也有许多实际困难。

为了改善谱仪工作的长期稳定性,我们采用了较为简便有效的监察方法。其简单原理如下:单能 γ 射线的光电峰位置的变化可以作为检验谱仪增益漂移的标志。谱仪增益不大的漂移可以引起光电峰两侧各道计数率很明显的变化。利用这一点可以监察谱仪的工作情况。

检验谱仪稳定性的拉板装置如图4所示。通过晶体上方,穿过屏蔽体安装一拉板。拉板上开有二个孔,分别用以放置测量样品和检验源。实际操作时,先将检验源放入屏蔽体外孔中,然后将其推入测量位置(此时测量样品自动移至屏蔽体外)。若谱仪工作状态没有发生变化,则监察道计数率为一固定值,此值可通过计数率仪电流表指示读得。而谱仪增益任何不大的漂移,都将引起计数率仪读数的明显的变化。微调高压,改变光电倍增管放大倍数,使计数率仪指示回到原来值,即可使谱仪恢复到原有工作状态。拉板的两端装有弧形挡板,以保证几何位置的可重复性。

上述检验方法是相当灵敏的。例如,当 Cs^{137} 检验源的光电峰位于67伏时,将单道甄别阈放在光电峰高能侧半高度处(70伏)。此时计数率仪电流指示为40微安。若光电峰位置漂移 ± 0.5 伏,电流指示变化约 ± 14 微安。对于我们的谱仪来说,采用上述方法,在每小时监察与校正一次的情况下,可将谱仪长时间稳定度控制在1%以内。总的监察效果还与谱仪的固有稳定性、分辨率、二次监察间相隔时间的长短等有关。

在不引起光电倍增管疲劳效应的前提下,原则上应选取较强的检验源,这样可以提高计数率和减少每次监察校正所需的时间。当监察道计数率为100脉冲/秒,计数率仪的积分时间常数为9秒时,在技术较熟练的情况下,监察校正一次平均只需一、二分钟。用上述方法,曾采用单道分析器分析过强度约 10^{-9} 居里的样品,连续测量时间长达70余小时。

上述提高谱仪稳定性的方法,只适用于谱仪增益是慢漂移的情况,而不能应用于提高增益具有大幅度或跳跃式变化的谱仪的工作稳定性。

四、分析方法

各种同位素的 γ 射线的能量和谱形都可以从有关文献(例如文献[9])查得。但是由于不同谱仪的探头结构、晶体尺寸、空间大小等的不同,屏蔽体反散射贡献、光电峰部分比例、晶体边缘效应等都可能有很大的差别。因此,最好在所用谱仪上具体测试尽可能多的 γ 同位素谱,并注意考察不同能量、不同几何位置对谱形的影响。如果掌握了足够多同位素的 γ 谱,则对于单个同位素 γ 谱的分析就比较有把握了。

分析含二种以上同位素的样品的复杂谱时,通常采用从高能成分逐步往下扣除的图解法^[3]。这也要求熟练地掌握单个同位素的 γ 谱,此时单个同位素的 γ 谱应在与样品尽可能相同的条件下测得,以减少扣除过程中的误差。

样品中含有半衰期较短的同位素(例如新裂片)时,利用 γ 光电峰计数率随时间的变化来鉴别同位素是一种有效的辅助方法。

γ 放射性同位素一般也是 β 放射性同位素。同时将样品进行 β 能量分析,并与 γ 谱的测

量结果进行核对,可大大提高分析结果的可信度。 β 分析方法对分辨 γ 谱很相近,而 β 射线能量相差较远的同位素更为重要,例如 Ru^{103} 和 Ru^{106} , Fe^{59} 和 Co^{60} 等。在分析 γ 射线能量低于100千电子伏的同位素时,由于晶体外罩吸收增大,闪烁谱仪能量分辨率变坏;此时采用正比计数管效果更好。

五、在辐射防护工作中的应用实例

近年来低本底 γ 谱仪在辐射防护工作中得到了广泛的应用^[4,5]。下面是用 γ 谱仪分析环境本底样品和场所污染样品的几个实例:

1. 大气气溶胶的 γ 本底谱(图5)

用真空泵抽气,使大量空气通过 $\Phi\Pi\Pi-15$ 滤纸,气溶胶被吸附在滤纸上形成待测样品。图5中不同曲线相应于停止抽气后不同时间测量的结果。取样后十分钟测得的主要是氡子体的 γ 谱。一小时后,由于氡子体很快衰变,钍射气的子体开始显示出来。 RaD 以前的氡子体中, RaB 的半衰期最长,为27分;而钍射气子体中 ThB 的半衰期最长,为10.6小时。因此,取样后4小时进行测量时,大部分氡子体已衰变完了,剩下的只是 ThB (0.238兆电子伏)和 ThC'' (0.582兆电子伏)。

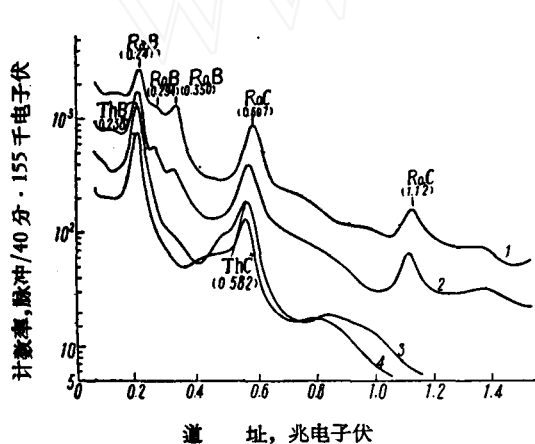


图5 大气气溶胶的本底 γ 谱

取样日期:1964年11月20日。

- 1——取样后10分钟测量; 2——取样后1小时测量;
3——取样后4小时测量; 4——取样后14小时测量。

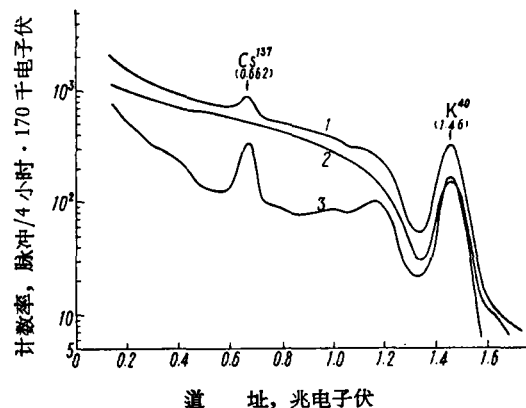


图6 红薯样品的 γ 谱

取样日期:1963年10月; 取样地点:北京; 样品重量:14克; 测量日期:1964年12月22日; 分析结果: Cs^{137} , K^{40} 。

- 1——样品+本底; 2——本底; 3——样品。

2. 红薯样品的 γ 谱(图6)

由于核试验沉降物的逐年累积,土壤及植物中放射性必然有逐步上升的趋势。在我们的植物常规监察工作中却没有觉察到明显的 β 放射性上升,从而怀疑大部分放射性裂变片是否在样品高温灰化过程中挥发掉了。用本 γ 谱仪对1963年在北京西南地区收集灰化后的红薯样品进行了测试,结果表明,除 K^{40} 以外,至少还有 Cs^{137} 存在。遗憾的是,危险性最大的 Sr^{90} 是纯 β 放射性同位素,无法从 γ 谱上鉴别出来。

3. 光电倍增管玻璃外壳样品的 γ 谱(图7)

取破的 $\Phi\Pi\Pi-19\text{M}$ 型光电倍增管的玻璃外壳约40克,砸碎后用纸包住,直接放在晶体上测

量其 γ 谱。从扣除本底后所得谱形上,可以明显看到 K^{40} 的 1.46 兆电子伏的 γ 光电峰。此时样品的积分计数率约 30 脉冲/分,即为本底计数率的六分之一左右。

4. 反应堆烟囱废气的 γ 谱

1965 年 1 月发现环境气溶胶的 β 放射性有异常现象。为了查清原因,对反应堆烟囱排出口滤纸进行了测量,其 γ 谱(图 8)表明主要为 I^{131} 。这与厂房现场调查的情况是一致的。

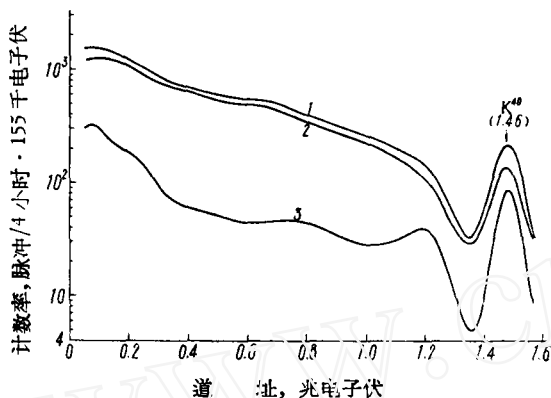


图 7 $\Phi 3V-19M$ 型光电倍增管玻璃外壳的 γ 谱
 取样日期: 1964 年 4 月 21 日; 样品重量: 40.3 克;
 测量日期: 1964 年 11 月 24 日; 分析结果: K^{40} 。
 1——样品本底; 2——本底; 3——样品。

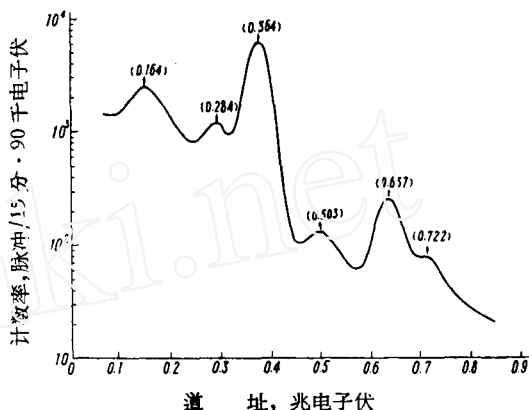


图 8 反应堆烟囱气溶胶样品的 γ 谱
 取样日期: 1965 年 1 月 21 日; 取样地点: 反应堆烟囱;
 测量日期: 1965 年 1 月 22 日; 分析结果: I^{131} 。

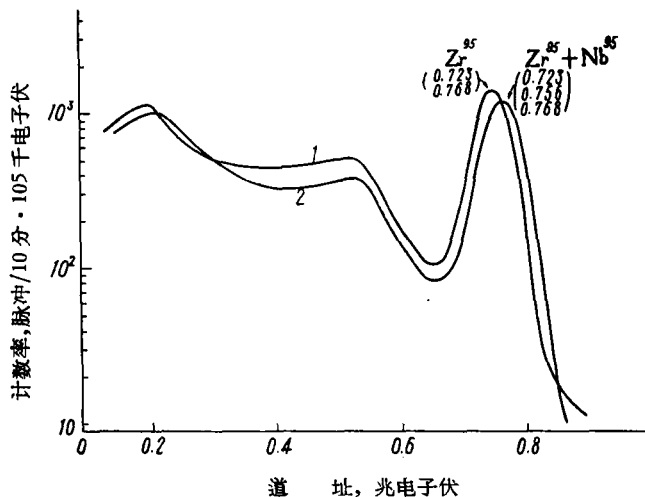


图 9 热室工作人员鼻孔擦拭样品的 γ 谱
 取样日期: 1965 年 1 月 28 日; 测量日期: 1965 年 1 月 28 日; 分析结果: Zr^{95} 。
 1——样品; 2—— $Zr^{95} + Nb^{95}$ 源。

5. 热室工作人员鼻孔擦拭样品的 γ 谱

工作人员在热室操作某放化工艺过程时,发现口罩被严重污染。用棉花擦拭鼻孔,取样分析,发现主要为 Zr^{95} (图 9)。此实验室地面落尘累积样品的 γ 谱上,却有 I^{131} 和 Zr^{95} 二个明显的光电峰(图 10)。因此,估计工作人员实际吸入的是 I^{131} 和 Zr^{95} ,但因 I^{131} 不易粘附于鼻孔中,故未能从擦拭样品中测得。一个月后重新测量落尘累积样品,除了 I^{131} γ 光电峰因衰变而明显

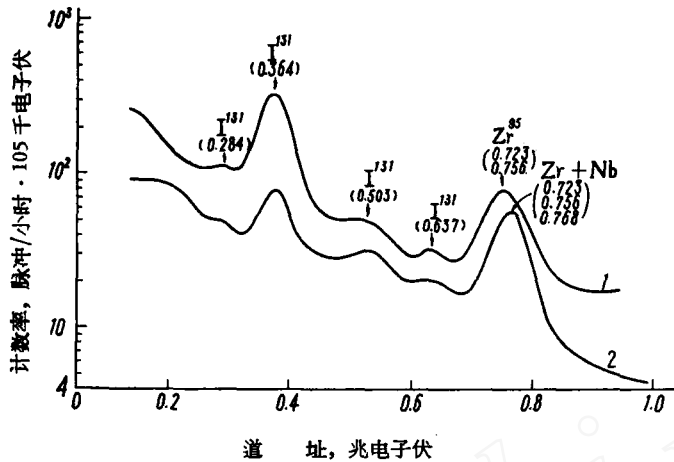


图 10 热室地面落尘累积样品的 γ 谱

取样日期: 1965年1月28日; 分析结果: ^{131}I , Zr^{95} .

1—1965年1月28日测量结果; 2—1965年2月23日测量结果。

降低外, Zr^{95} 的 γ 光电峰略往高能侧移动。这可以解释为第一次取样后立即测量时主要为 Zr^{95} ($E_\gamma = 0.723: 0.756$ 兆电子伏), 而一月后 Zr^{95} 的子体—— Nb^{95} 开始增长, Nb^{95} 有略高于 Zr^{95} 的 γ 能量($E_\gamma = 0.768$ 兆电子伏)。因此第二次测得的实际上是 $\text{Zr}^{95} + \text{Nb}^{95}$ 的混合峰。

六、结 束 语

实践表明, 谱仪在与百道脉冲振幅分析器配合使用及测量时间为 4—5 小时的情况下, 能用于分析计数率仅为本底计数率的三分之一到五分之一的样品。对于紧贴晶体表面的小样品, 这相当于 10^{-10} 居里的放射性强度。采用体积更大的晶体和通过改换封接玻璃窗以及将碘化钠原料进行去钾提纯等途径进一步降低本底, 还可以提高分析灵敏度。与 β 分析配合使用, 将使分析结果更可靠。

*

*

*

碘化钠晶体由毛裕芳等同志提供。在测量工作中吕松生同志在百道分析器运行维修方面给予了热情的帮助。本文定稿时承谢滋、何宪同志提出宝贵意见。作者在此一并表示谢意。

参 考 文 献

- [1] C. E. Miller et al., *Nucleonics*, **14**, No. 4, 40(1956).
- [2] Hanson, Blatz, *Radiation Hygiene Handbook*, p. 4—5, McGraw-Hill Book Company, New York, 1959.
- [3] James Hardin et al., *原子能快报*, 第 7 期, 13 (1965).
- [4] D. H. Peirson, *Health Physics in Nuclear Installations*, p. 147—156, OEEC, 1959.
- [5] J. R. Keane et al., *Health Physics*, **9**, 485 (1963).
- [6] М. Н. Назарова, Н. К. Переяслова, *Приборы и техника эксперимента*, № 6, 49(1962).
- [7] Д. К. Каипов и др., *Приборы и техника эксперимента*, № 5, 151 (1962).
- [8] H. J. Rijks, *Nuclear Instrument and Methods*, **14**, 76(1961).
- [9] C. E. Crouthamel, *Applied Gamma-Ray Spectrometry*, Pergamon Press, 1960.

(编辑部收稿日期 1965年9月9日)