

# $\gamma$ 譜法分析鈾、鐳、釷含量的研究

夏 明

鈾、鐳、釷在岩石、矿物和各种地質建造中的丰度的測定和分布規律的研究是元素地球化学課題之一,是鈾、鐳、釷地球化学的主要內容,是研究放射性元素矿床的成因及其分布規律的基础,是測定地質建造絕对年齡的組成部分,是探討天然核轉变及其生成热在地質历史中作用的对象之一。

放射性元素的物理測量是建立在核衰变过程中某些特殊属性的基础之上的。总括起来,可以归結为:(1)利用各种射綫的放射性总強度;(2)采用某一种射綫不同能量区間的強度;(3)前两种类型的相互配合。根据測量对象的特点和要求,随着現代技术的进展,目前,放射性物理測量已发展为数种方法。 $\gamma$  譜法就是应用閃爍技术的方法之一。

$\gamma$  譜法是利用鈾、鐳、釷  $\gamma$  射綫強度在不同能量区間的差异,通过閃爍譜儀的微分或积分測量,并与标准相比,确定相应元素含量的一种方法。

自 1956 年以来,各国学者相繼完成了各种各样的測量鈾、釷元素的  $\gamma$  譜法(見表 1)。

就表 1 列举的鈾、鐳、釷的測定而言,可以分为下列两种情况:

(1) 鈾鐳平衡,  $K^{40}$  的影响不大,样品中主要放射体是鈾(或鐳)和釷。在这种情况下,仅需要两个独立的方程式即可确定鈾和釷的含量。假若釷系平衡遭到严重的破坏,只需 50 年就能恢复,故自然界中的釷系通常是处于平衡状态的。

(2) 鈾鐳不平衡,  $K^{40}$  的含量可以忽略不計,則鈾、鐳、釷可做为三組分的样品。为此,需要三个相应的方程式才能測出其含量。自然界中,由于氦的迁移;母体和子体达成平衡的地質年代不够;母体或子体的部分淋滤和局部集聚以及矿床表生带的某些地球化学作用,鈾、鐳之間的平衡常常遭到不同程度的破坏。平衡系数在 1—1000% 范围之内变化。因此,分別測定鈾、鐳和釷的含量是十分必要的。

就  $\gamma$  譜的測量方法而言,可分別測定鈾、鐳、釷、鉀。其灵敏度根据样品重量不同(20—200 克)可达  $10^{-3}$ — $10^{-6}$  克/克。精确度在  $\pm 10\%$  以內。能量区間的选择有多种途径:用 0—400 千电子伏低能范围的鈾、鐳、釷微分計数<sup>[2,3,5,6]</sup>;用高、低能的鈾、鐳、釷微分和积分計数<sup>[4,6]</sup>等等。此外,还有与其它种类射綫組合的綜合方法,例如: $\beta$ - $\gamma$  法<sup>[7]</sup>、 $\beta$ - $\gamma$ - $\gamma$  法<sup>[8-11]</sup>、 $\alpha$ - $\beta$ - $\gamma$ - $\gamma$  法<sup>[12]</sup>。

$\beta$ - $\gamma$  法只适用于測量鈾鐳平衡的含釷矿样(第一种情况)。运用  $\alpha$ ,  $\beta$  測量时,物质成分、样品厚度和自吸收、几何条件等因素影响甚大。同时,分析程序也較为复杂。运用  $\gamma$  譜測量,不仅可以排出和減弱这些影响,而且能簡化分析过程,提高工作效率。因此,本文在分析鈾、鐳、釷含量时,采用了  $\gamma$  譜方法。

$\gamma$  譜儀的性能及其选用条件是測試工作的先决条件,是提高灵敏度和精确度的重要措施之一。但已有的文献中,大部分沒有做过任何論述,只有文献[1]做了点滴的說明。因此,本文的重点是討論能譜儀的性能对測量  $\gamma$  譜的影响和最佳条件的选择。

表1 用于铀、镭、钍测量的γ谱法的概览表

作者 年代	分析元素及测量条件		相应方程式系数或 灵敏度	样品重量 测量时间	方法的灵敏度	相对误差及本底	仪器设备及其性能	文献 来源	备注
	U-Ra	Th							
赫累(P. M. Hurley) 1956	U-Ra 平衡 (Ra <sup>226</sup> ): 188千电子伏 道宽25千电 子伏	(Pb <sup>214</sup> ): 238千电 子伏 道宽25 千电子伏	(K <sup>40</sup> ) 1.46兆 电子伏 道宽134 千电子伏	0.5克 20分	U > 0.01% Th > 0.01% 铀当量	U: 2-7% Th: 2-8% 本底 9 计数/分	双道-多道闪烁能谱仪 凹型晶体, NaI (TI), 1.3/4×2吋, 5819型光电 倍增管 铝套为圆柱形, 直径15 毫米, 中心称样孔直径3毫 米, 柱高38.1毫米	[1]	作者测量U, Th, K时, 应用了一般 晶体, 样品重200 毫克, 总测量时间2 小时, 作者还做了 Th 家的实验
约赫尔逊 (C. B. Иохельсон)	U (Th <sup>232</sup> ): 93千电子伏	(Pb <sup>212</sup> ) 238千电 子伏		100克 含量 < 0.3%, 100秒; 含量 > 0.3%, 10-20秒	U: 0.01% Ra: 2×10 <sup>-11</sup> 克/克 Th: 0.001%	U, Ra, Th: 8-12% (最大20%)	多道能谱仪, 示波 器, NaI(Tl)晶体, 32× 16毫米, 光电倍增管Ф3Y- 19, 照象器 M-2, 罐罩 0.05毫米, 能量分辨率13 -14%, 在0.06-2.62 兆电子伏内, 线性良好, 在 1.5-2小时内稳定性5- 7%	[2]	作者采用了照象 记录法, 精确度低
迈罗(J. L. Merlo) 1960	U-Ra: 190千电子伏, 240千电子伏 C <sub>130</sub> /C <sub>240</sub> Ra: 350千电子伏 C <sub>280</sub> /C <sub>350</sub>	75千电 子伏 238千电 子伏 C <sub>75</sub> /C <sub>238</sub>		20克	U <sub>2</sub> O <sub>8</sub> > 0.1% ThO <sub>2</sub> > 0.1%	—	闪烁能谱仪, 晶体 NaI(Tl) 1 1/2×1吋, 光 电倍增管 Do-Mont 6292 型 铝盘直径为5厘米	[3]	作者以75, 190, 240, 350千电子伏 能量的计数率比讨 论和刻划了高纯、 富钍、富铀、富钷、 钷等类型矿石
朗兹(P. W. de Lange) 1960	U + Ra + Th: 140(或100)千电子伏的积分 计数(I <sup>0</sup> ) Ra + Th: 2.62兆电子伏以上的微分计 数(I <sup>0</sup> ) U + Ra + Th: 89千电子伏的微分计数总数 (I <sup>0</sup> ) 道宽55千电子伏			18克 (重量校正) U, Ra: 5分 Th: 20分	U, Ra, Th: 0.1-0.01%	0.1-7% 本底: r <sub>U</sub> <sup>0</sup> = 500 计数/分 r <sub>Ra</sub> <sup>0</sup> = 2.7 计数/分 r <sub>Th</sub> <sup>0</sup> = 8.5 计数/分	闪烁谱仪, NaI(Tl) 晶体, 1.3/4×2吋, 6655型 光电倍增管, 稳定性良好 (对于2.6兆电子伏在一 星期内不大于0.5%) 室温为21±5°C	[4]	作者做了β-γ, γ-γ, β-γ-γ, γ-γ-γ 及化学分析和质谱 分析所得数据的对 比, γ-γ-γ法测得 结果很好
亚库鲍维奇 (A. JI. Яку- бович)	U(Th <sup>232</sup> ): 100千电子伏, 道宽10千电子伏 Ra(Pb <sup>214</sup> ): 350千电子伏, 道宽50千电子伏	(Pb <sup>212</sup> ): 240千电 子伏, 道宽40 千电子伏	(K <sup>40</sup> ): 1.45千 电子伏, 道宽100 千电子伏	180克 30分	U, Ra, Th, K: n×10 <sup>-4</sup> %	U: ±1-2×10 <sup>-4</sup> % 本底=13 计数/分 Ra: ±1×10 <sup>-4</sup> % 本底=28 计数/分 Th: ±25 计数/分 K: ±0.5% 本底=9 计数/分	闪烁谱仪, NaI(Tl) 晶体, 44×50毫米, 光电 倍增管 Ф3Y-29 样品置于晶体周围, 厚 8毫米	[5]	作者分别做了衰 变、原子序数的实 验, 进行了β和γ 的同时测量

## 二、

铀、镭、钍  $\gamma$  谱的强度差异是测量工作的物理基础。

铀和钍经过一系列衰变之后，最终转为铅的稳定同位素。在铀、钍系中， $\alpha$ 、 $\beta$  衰变经常伴随着放出  $\gamma$  射线。铀组、镭组和钍系的  $\gamma$  射线能量有明显的差异（见表 2）。

从表 2 列举的铀组、镭组和钍系的  $\gamma$  放射体来看，其能量变化极大，由 0.007 兆电子伏到 2.62 兆电子伏。在这样大的能量范围内，作为选择铀、镭、钍能量区间的主要条件是：

(1) 谱线相对强度（每个衰变相应的  $\gamma$  量子数或比值）和谱线的微分强度（某一能量区间的总强度）。晶体闪烁探测器所测得的铀、镭、钍的  $\gamma$  射线强度，其 80—90% 是集中于 0—400 千电子伏之内的。

(2) 在所选用能量区间内，各元素的  $\gamma$  贡献应有所区别。欲测元素的贡献应最大，即有较高的分辨系数。

我们用 SGXA-2 型单道闪烁能谱仪分别记录了铀、铀-镭平衡和钍的  $\gamma$  谱（见图 1）。60—

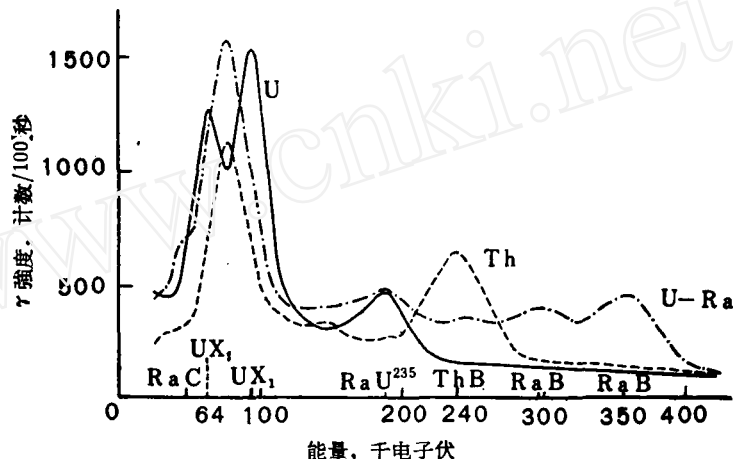


图 1 铀、铀-镭平衡和钍的  $\gamma$  谱  
道宽 16 千电子伏。

90 千电子伏的  $\gamma$  谱较为复杂。铀组的  $UX_1$  ( $E = 64$  和  $E = 93$  千电子伏)，镭组的内转换电子 ( $E_T = 75$  千电子伏)<sup>1)</sup> 以及钍系的内转换电子 ( $E_T = 75$  千电子伏)<sup>2)</sup> 组成这个能峰。  $UX_1$  (93 千电子伏) 峰是铀组中微分强度最大的峰。虽然镭和钍峰值也较大，但选用最佳的测量条件和控制仪器的稳定状态，可以得到较好的分辨系数。 240 千电子伏的  $\gamma$  峰是钍  $ThB$  ( $E = 238$  千电子伏) 引起的。在这个能量区间内，没有铀、镭的特征谱线。 350 千电子伏的峰几乎完全是由镭  $RaB$  ( $E = 350$  千电子伏) 所引起的。

根据上述各种因素的分析 and 实验结果，铀、镭和钍的  $\gamma$  射线能量可分别采用 93 千电子伏， 350 千电子伏和 238 千电子伏。

$\gamma$  闪烁谱仪测量低能  $\gamma$  射线是通过  $\gamma$  射线与晶体作用所产生的各种效应：光电效应、多次散射、康普顿效应、反散射和边界效应。其中，光电效应是测量的基础。根据峰出现的位置确定  $\gamma$  射线的能量，用峰的面积推算出  $\gamma$  射线强度。

- 1) B. H. 格佐诺夫<sup>[2]</sup>认为该峰值是由  $RaB$  ( $E = 74.9$  千电子伏)，  $RaC$  ( $E = 77.1$  千电子伏) 和  $Ra$  ( $E = 88.4$  千电子伏) 引起的。
- 2)  $RdTh$  ( $E = 88.4$  千电子伏) 的贡献不大<sup>[2]</sup>。

表2 铀平衡系和钍系的γ放射性同位素

核的名称	衰变种类	原子核	半衰期	γ 射线			衰变图
				能量, 兆电子伏	衰变的百分比	每个衰变中γ强度比	
<b>铀-镭系 铀组</b>							
UI	α, γ	<sup>238</sup> U	4.5×10 <sup>9</sup> 年	0.048	22%		
UX <sub>1</sub>	β <sup>-</sup> , γ	<sup>234</sup> Th	24.1天	γ <sub>1</sub> =0.029, γ <sub>2</sub> =0.064, γ <sub>3</sub> =0.093	γ <sub>1</sub> : 79%, γ <sub>2</sub> +γ <sub>3</sub> : 21%	γ <sub>1</sub> :γ <sub>2</sub> :γ <sub>3</sub> = 1:2:2.8	
UX <sub>2</sub>	β <sup>-</sup> , γ	<sup>234</sup> Pa	1.18分	0.394, 0.782, 0.806, 0.820			
UII	α, γ	<sup>234</sup> U	2.6×10 <sup>5</sup> 年	0.053, 0.093, 0.118		1:~0.2:0.4	
Po	α, γ	<sup>230</sup> Th	8.3×10 <sup>4</sup> 年	0.068 (0.150, 0.210, 0.254)	28% (<<3%)		
<b>镭组</b>							
Ra	α, γ	<sup>226</sup> Ra	1590年	0.188	5.7%		
Rn	α	<sup>222</sup> Rn	3.825天				
RaA	α, β <sup>-</sup>	<sup>218</sup> Po	3.05分				
RaB	β <sup>-</sup> , γ	<sup>214</sup> Pb	28.8分	γ <sub>1</sub> =0.053, γ <sub>2</sub> =0.241, γ <sub>3</sub> =0.259, γ <sub>4</sub> =0.295, γ <sub>5</sub> =0.350	γ <sub>2</sub> : 50%, γ <sub>4</sub> : 40%	γ <sub>2</sub> :γ <sub>4</sub> :γ <sub>5</sub> = 0.2:0.55:1.0	
RaC	β <sup>-</sup> , γ	<sup>214</sup> Bi	19.7分	(0.063) 0.609, 0.760, 0.933, 1.12, 1.238, 1.379, 1.520, 1.761, 1.820, 2.25, 2.42		γ <sub>1</sub> : 3:1.1:0.9:0.7:3.2:0.2:1:0.5	
RaC'	α	<sup>214</sup> Po	1.64×10 <sup>-4</sup> 秒				
RaD	β <sup>-</sup> , γ	<sup>210</sup> Pb	22年	0.007, 0.023, 0.037, 0.043, 0.047, 0.065			
RaE	β <sup>-</sup>	<sup>210</sup> Bi	5天				
RaF	α, γ	<sup>210</sup> Po	138.4天	(0.084) 0.804			
RaG		<sup>208</sup> Pb	稳定				
<b>钍系</b>							
Th	α, γ	<sup>232</sup> Th	1.4×10 <sup>10</sup> 年	0.055 (0.075)	24%		
MtTh <sub>1</sub>	β <sup>-</sup> , γ	<sup>232</sup> Ra	6.7年	0.030			
MtTh <sub>2</sub>	β <sup>-</sup> , γ	<sup>232</sup> Ac	6.13年	0.060, 0.135, 0.184, 0.338, 0.462, 0.553, 0.590, 0.913, 0.969			
RdTh	α, γ	<sup>228</sup> Th	1.9年	0.087			
ThX	α, γ	<sup>228</sup> Ra	3.64年	0.241			
Tn	α	<sup>220</sup> Rn	54.5秒				
ThA	α	<sup>216</sup> Po	0.16秒				
ThB	α	<sup>212</sup> Pb	10.6时	γ <sub>1</sub> =0.115, γ <sub>2</sub> =0.176, γ <sub>3</sub> =0.238, γ <sub>4</sub> =0.249, γ <sub>5</sub> =0.299	γ <sub>2</sub> : 74%	γ <sub>2</sub> :γ <sub>5</sub> =10:1	
ThC	α, β <sup>-</sup> , γ	<sup>212</sup> Bi	1.09时	α-0.04, 0.144, 0.164, 0.288, 0.328, 0.438, 0.452, 0.472 β-0.72, 0.83, 1.03, 1.34, 1.61, 1.81, 2.20	~19%, ~19%, 6%, 5%, 7%, 7%		
ThC'	α	<sup>212</sup> Po	0.3×10 <sup>-8</sup> 秒				
ThC''	β <sup>-</sup> , γ	<sup>208</sup> Tl	3.1分	0.277, 0.510, 0.582, 0.859, 2.62	10%, ~23%, 52%, 15%, 1.5%	0.4:1:3.6:0.68:4.5	
ThD		<sup>208</sup> Pb	稳定				

$\gamma$  射线引起晶体发光, 光电倍增管将这些光转化为电讯号。然后, 通过放大器、甄别器记录一条按脉冲幅度分布的曲线。曲线的高度代表了  $\gamma$  射线的强度, 也反映了欲测对象的含量。脉冲幅度取决于入射能量的大小。假若入射  $\gamma$  量子的能量是单一的 ( $E_1$ ), 那么按脉冲幅度分布的曲线可用下列函数式表示:

$$g(E) = af(E, E_1), \quad (1)$$

式中:  $a$  为元素的含量;  $E$  为脉冲幅度, 以甄别水平的能量刻度表示。

显而易见, 当入射  $\gamma$  量子的能量为  $E_1, E_2, E_3, \dots, E_n$  时, 则公式(1)为

$$g(E) = \sum_{i=1}^n a_i f(E, E_i). \quad (2)$$

如果欲测的某一元素的脉冲幅度为  $E_k$ , 则峰值(或曲线的高度)为

$$g(E_k) = \sum_{i=1}^n a_i f(E_k, E_i). \quad (3)$$

公式(3)表明: 在某一能量区间内, 强度的大小不仅取决于欲测对象的强度和含量, 而且也取决于其它  $\gamma$  放射体的强度和含量。  $g(E_k)$  可直接测出, 用单位时间的计数表示。  $f(E_k, E_i)$  均可用标准源确定。这样, (3)式中的  $a_i$  便可计算出来。

在分析铀、镭、钍三组分样品时, 公式(3)展开为:

$$\left. \begin{aligned} g_U/p &= a_{11}U + a_{12}Ra + a_{13}Th, \\ g_{Ra}/p &= a_{21}U + a_{22}Ra + a_{23}Th, \\ g_{Th}/p &= a_{31}U + a_{32}Ra + a_{33}Th, \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

式中:  $U, Ra, Th$  为相应元素的含量, 以百分比表示;  $a_{11}, a_{12}, a_{13}$  为铀峰的铀、镭、钍的系数, 以单位重量单位铀含量的计数率表示;  $a_{21}, a_{22}, a_{23}$  和  $a_{31}, a_{32}, a_{33}$  分别为镭和钍峰的铀、镭、钍的系数, 单位同上;  $p$  为样品重量。

方程组(4)的解为

$$U = \frac{\Delta_U}{\Delta}; \quad Ra = \frac{\Delta_{Ra}}{\Delta}; \quad Th = \frac{\Delta_{Th}}{\Delta}$$

式中:

$$\Delta = \begin{vmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{vmatrix}, \quad \Delta_U = \begin{vmatrix} g_U/p & a_{12} & a_{13} \\ g_{Ra}/p & a_{22} & a_{23} \\ g_{Th}/p & a_{32} & a_{33} \end{vmatrix}, \quad \Delta_{Ra} = \begin{vmatrix} a_{11} & g_U/p & a_{13} \\ a_{21} & g_{Ra}/p & a_{23} \\ a_{31} & g_{Th}/p & a_{33} \end{vmatrix}, \quad \Delta_{Th} = \begin{vmatrix} a_{11} & a_{12} & g_U/p \\ a_{21} & a_{22} & g_{Ra}/p \\ a_{31} & a_{32} & g_{Th}/p \end{vmatrix}.$$

当  $a_{11}:a_{12}:a_{13} \neq a_{21}:a_{22}:a_{23} \neq a_{31}:a_{32}:a_{33}$  时, 方程组(4)才有独立的解。为了获得稳定的解, 需增大  $a_{11}/a_{11} + a_{12} + a_{13}$ ,  $a_{22}/a_{21} + a_{22} + a_{23}$ ,  $a_{33}/a_{31} + a_{32} + a_{33}$  的比值, 即在某能量区间内, 分辨系数愈大愈好。这与方法的测量条件有密切关系。

### 三、

$\gamma$  谱仪的线性关系、甄别水平的漂移、道宽的稳定性、道宽与甄别水平的关系均是测试过程中的重要参量和影响因素。

SGXA-2 型单道谱仪的探测部分是由  $\phi 44 \times 51$  毫米的 NaI(Tl) 晶体和 VMP-11/44 型光电倍增管组成的。ALA100/50 型线性振幅高度分析器包括放大和甄别两部分, 放大倍数为 10—10000 倍, 用分贝表示。甄别水平和道宽分别可由 0—100 伏和 1—50 伏连续调节。谱仪的能量测量范围为 0—5 兆电子伏, 能量分辨率为 8% ( $Cs^{137}$ )。

实验表明：在一定的工作电压和放大倍数的条件下，各种能量之间保持着良好的线性关系（图2）。对于不同放大倍数而言，总的线性关系可表示为

$$Y = NX, \tag{5}$$

式中：Y为能量；X为该能量在甄别水平出现的位置； $N = \frac{a}{[1.291]^n}$ 为斜率，表示每单位甄别水平所代表的能量。从-40分贝算起， $a = 61.5$ 千电子伏， $n = 0, 1, 2, \dots$  相应于-40分贝，-38分贝，-36分贝，……。输出讯号为100伏时，线性偏离在 $\pm 1\%$ 以内。放大的稳定度在电压变化 $\pm 10\%$ 时为0.1%。

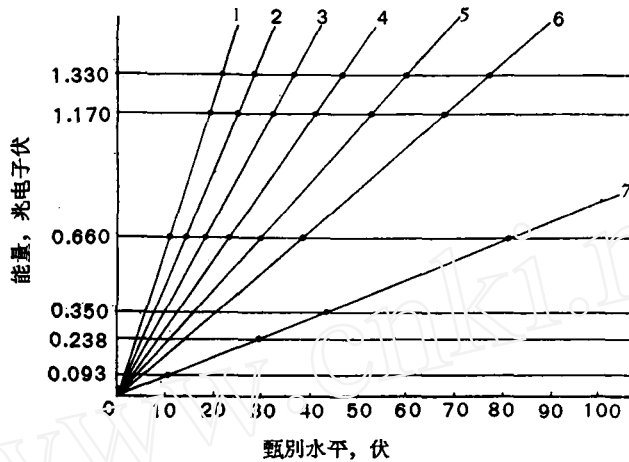


图2 能量和放大的线性关系

室温 22°C；放射源：Co<sup>60</sup>，Cs<sup>137</sup>。铀，铀-镭平衡和钍粉末标准源。  
 1——-40分贝； 2——-38分贝； 3——-36分贝； 4——-34分贝；  
 5——-32分贝； 6——-30分贝； 7——-24分贝。

图2中，-24分贝的能量刻度曲线表明：SGXA-2型谱仪在低能量区（小于400千电子伏）也保持着严格的线性关系。

甄别水平的漂移不仅与分析器放大系数的稳定性和光电倍增管放大漂移有关，而且也与输入脉冲的频率、宽度和幅度有关。实验表明，仪器工作时，周围温度的变化是引起漂移现象的主要因素。外界温度的变化能改变阴极的脱出功，引起阴极电流的变化，产生放大漂移。因此，控制一定的环境温度，充分使阴极与周围达到热平衡，以减弱和防止漂移现象。经长期实验观察，在8小时内甄别水平的漂移为0.25伏。

道宽的稳定性是确定测量精确度的上限，它主要取决于甄别器的接触电位差。实验指出：道宽的稳定性是良好的，近似于统计误差（见表3）。

表3 道宽稳定性实验

道宽, 千电子伏	12	16	24	26
误差				
相对统计误差 $\sigma = \sqrt{1 + \frac{2Z_p}{Z}} \times 100\%$	0.82	0.66	0.50	0.475
相对误差, %	1.20	0.57	0.76	0.20

甄别水平与道宽的关系是针对不同脉冲形状而言的。用同一道宽记录“短尖”峰形的脉冲时,由于该脉冲的持续时间极短,它在低甄别范围内的放大系数大于高甄别范围,故在高甄别水平(90—100 伏)工作时,如果没有相应整形脉冲的设备,将减弱欲测强度的精确度。

上述种种是运用、调节谱仪必需解决的问题,也是着手测量,选择最佳条件的前提。

#### 四、

放大倍数和道宽是应用单道  $\gamma$  闪烁谱仪测定铀、镭、钍含量的主要条件。它们的选择是以计数率、分辨系数、漂移的影响、脉冲形状以及被分析对象的  $\gamma$  谱的特征为基础的。

从测定能量来看,调节放大系数是标志甄别水平能量刻度的改变。正如图 2 所示,随放大倍数的增大,甄别水平每伏代表的能量减低。从 -40 分贝算起,每增大 2 分贝时,能量刻度相应下降 1.291 倍。由于甄别水平和道宽的一致性,故变动放大倍数,实际上相当于改变了每伏道宽所代表的能量。在测量微分谱时,道宽为增量,增量愈小,微分曲线愈趋于真实,区别曲线连续峰的可能性愈大。例如,纯铀中  $UX_1$  的  $\gamma$  谱有两个峰( $E = 93, E = 64$  千电子伏),如果用大于 30 千电子伏的增量(放大倍数调到甄别水平每伏为 30 千电子伏),那么  $\gamma$  谱的这两个峰就难以区分了。

从确定峰位来看,调节放大倍数可控制能量在甄别水平出现的位置。例如:660 千电子伏( $Cs^{137}$ )的  $\gamma$  峰在放大倍数为 -40 分贝时出现在甄别水平 10.5 伏之上;而在 -24 分贝时,则位于 82 伏左右。由于高、低甄别范围内,尖峰形脉冲的放大不一致,因此,不适于在高甄别水平范围内(80—100 伏)进行测量工作。

依据上述分析,确定测量铀、镭、钍的放大倍数为 630 倍,即 -24 分贝。此时,每伏甄别水平相当于 8 千电子伏。这样的放大倍数不仅能够真实地划出铀、镭和钍的  $\gamma$  谱,而且也使它们在合适的甄别水平上出现。

道宽是微分测量的增量,改变道宽可控制计数率的大小、峰形的变化、漂移的影响程度、分辨系数和本底的作用。钍峰的道宽实验指出:当道宽增大时(见图 3),峰(1)和谷(2)的计数

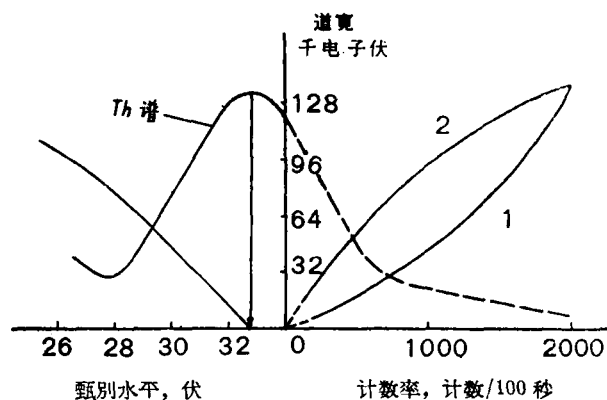


图 3 道宽和计数率、峰位的关系

放大 -24 分贝, 室温 23°C.

Th 谱, 其纵坐标为任意单位(计数/100 秒).

率值按曲线上升。很明显,假若峰形为严格的等边三角形,则计数率值将按线性规律上升。道宽达到某一相当大的值(130 千电子伏)之后,峰和谷均已包括在道宽之内,其计数率值就难以分辨。实际上,这就变成了某一能量区间内(等于该道宽值)的积分测量。这一事实表明,虽然

道宽加大,提高了计数率(提高仪器灵敏度),但峰和谷值的差别却愈来愈小。因此,对单一的峰,应选择计数率既较高而峰谷值之差也较大的道宽,即应选在40—100千电子伏之间。

峰位随道宽的变化而移动。如图3所示,道宽在70千电子伏范围内,峰位按直线关系变化。其角系数为 $45^\circ$ 。可见,道宽应选择在70千电子伏以内。

峰的形状也随着道宽的增大而加宽。用峰顶部相应于3%峰高(计数率值)处的宽度( $D$ )与峰所在的甄别水平值( $V$ )的比做参量表示峰形的变化,示于图4之上。峰形愈宽,其顶部计数率值愈接近,因漂移引起的误差愈小(见图5)。图5表明:当漂移一定( $\pm 0.25$ 伏,或 $\pm 1$ 伏)时,道宽愈大,计数率的相对误差愈小。对于0.25伏的漂移,只要道宽大于8千电子伏,计数率的相对误差均小于3%。

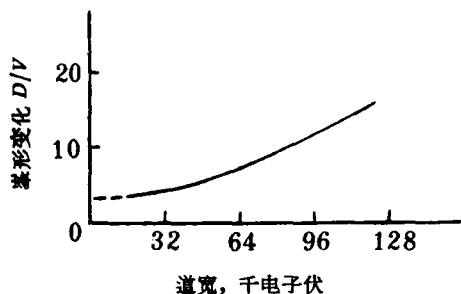


图4 道宽与峰形变化关系  
实验条件同图3。

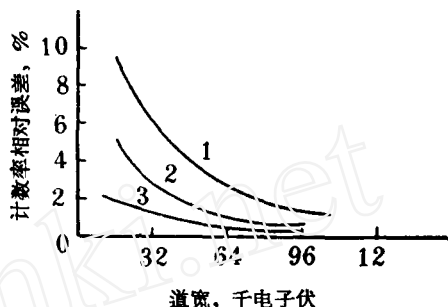


图5 道宽和漂移的关系  
实验条件同图3。

1—— $\pm 1$ 伏; 2—— $\pm 0.5$ 伏; 3—— $\pm 0.25$ 伏。

观察漂移的实验表明:在一定的放大倍数情况下,同一道宽测量各能量所产生漂移的百分数相同。能量小者,漂移也小。能量大者,漂移也大。为此,测量大能量时道宽也应该大,以减弱漂移的影响程度。

在连续峰的 $\gamma$ 谱和多种相同能量的 $\gamma$ 谱的测量中,道宽愈大,相邻谱线和其它有相同能量的谱线的作用就愈大。为了减小相邻谱线的影响和增大分辨率,在 $\gamma$ 射线的复合能量测定中,道宽不宜选的过大。

增大道宽能引起本底的增高,不利于低计数的测量。

综上所述,测量单一能量的光电峰时道宽应大些,而测定复合能量的 $\gamma$ 谱时,道宽小些有利。基于上述种种分析,测量铀、镭、钍含量所采用的道宽为:铀——12千电子伏,镭——31.5千电子伏和钍——25.6千电子伏。

## 五、

### 1. 方程式与系数

在用方程组(4)计算铀、镭、钍含量之前,应先求出相应的系数。由于使用仪器不同、测量的几何条件的差别以及标准源的大小等等原因,这些系数也不同。借助于纯铀、铀镭平衡和纯钍的标准源,经多次反复测量,各系数值如下[以单位含量铀(1%)、镭( $3.4 \times 10^{-9}$ 克/克)和钍(1%)在100秒内的计数表示]:

$$\begin{array}{lll} a_{11} = 194; & a_{12} = 306.7; & a_{13} = 225; \\ a_{21} = 26; & a_{22} = 768; & a_{23} = 178; \\ a_{31} = 37; & a_{32} = 462; & a_{33} = 575. \end{array}$$



其分辨系数如下:

$$\frac{a_{11}}{a_{11} + a_{12} + a_{13}} = 0.268; \quad \frac{a_{22}}{a_{21} + a_{22} + a_{23}} = 0.79; \quad \frac{a_{33}}{a_{31} + a_{32} + a_{33}} = 0.535.$$

铀、镭和钍的含量公式为

$$\left. \begin{aligned} U &= 0.5663g_U/p - 0.115g_{Ra}/p - 0.186g_{Th}/p, \\ Ra &= 0.164g_{Ra}/p - 0.0133g_U/p - 0.0456g_{Th}/p, \\ Th &= 0.2225g_{Th}/p - 0.1243g_{Ra}/p - 0.0258g_U/p. \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

### 2. 样品的测量步骤及其结果

样品(标准源亦同)重量 5 克, 放置于塑料制的测量盘之中, 样品的厚度 5 毫米, 距离晶体 10 毫米. 样品是在铅室内测量的.

测量条件如下: 光电倍增管的工作电压 935 伏; 放大倍数 -24 分贝; 测量时间 30—50 分钟.

铀 (UX<sub>1</sub>: 93 千电子伏, 道宽 12 千电子伏) 的甄别水平放在 13.8 伏, 道宽 1.5 伏, 本底为 13.5 计数/100 秒.

镭 (RaB: 350 千电子伏, 道宽 31.5 千电子伏) 的甄别水平放在 45.2 伏, 道宽 4 伏, 本底为 31.5 计数/100 秒.

钍 (ThB: 238 千电子伏, 道宽 25.6 千电子伏) 甄别水平放在 31.2 伏, 道宽 3.25 伏, 本底为 41 计数/100 秒.

在上述条件下, 所测得的  $g_U, g_{Ra}, g_{Th}$  (每 100 秒的计数) 用本底和重量校正<sup>1)</sup>后, 代入公式 (6), 可分别求出样品中铀、镭、钍的含量. 表 4 中样品编号 1, 2, 3 是人工混合矿样.  $g_U, g_{Ra}, g_{Th}$  是 10 次结果的平均值, 每次计数时间 50 分.

表 4 γ 谱法分析结果

样品编号	已知含量			γ 谱法分析结果			备 注
	U, %	Ra, ×10 <sup>-9</sup> 克/克	Th, %	U, %	Ra, ×10 <sup>-9</sup> 克/克	Th, %	
1	0.389	0.644	0.0544	0.372	0.625	0.051	人工混合样品比例如下: 1) U + Ra + Th = 2 + 2 + 1, 2) U + Ra + Th = 1 + 2 + 2, 3) U + Ra + Th = 2 + 1 + 2. 样品重量均为 5 克
2	0.287	0.644	0.1088	0.273	0.643	0.093	
3	0.311	0.322	0.1088	0.285	0.329	0.095	
4	0.440	1.67	—	0.444	1.56	0.014	
5	0.452	1.64	—	0.458	1.66	—	
6	0.570	—	—	0.576	—	—	

从测量结果和已知含量的对比看出, 相对误差在含量大于 0.01 %, 样品重量为 5 克时, 不超过 ±10%.

### 3. 误差

γ 谱法中产生误差的来源很多, 除了不合规格的标准源能造成测量结果的系统误差和统计涨落等一般性的误差以外, 这里主要讨论 γ 谱仪本身在测量过程中所带来的几种误差.

脉冲放大漂移能造成光电峰位的偏离. 实验表明, 0.2 伏的漂移在 8—36 千电子伏道宽

1) 样品和标准源重量相同时, 不需要进行重量校正. 本工作中在进行样品和标准源的测量时, 取用了相同的重量.

内所产生的计数率的相对误差为1—2%。为了确定漂移大小,测量前后必需标定甄别水平的能量刻度。

道宽稳定度的大小可造成光电峰值(计数率值)的改变。实验表明:上述因素所引起的误差在统计误差范围之内。对于含量为  $n \times 10^{-3}$ — $n \times 10^{-4}$  克/克的样品,50分钟测量可使统计误差降至  $\pm 2.5\%$  以下。

光电倍增管由于地磁的作用能产生严重的偏差,不仅峰位可以浮动,而且计数率值也跟着变化。因此,在长期的测量过程中,光电倍增管的方位不宜移动。

#### 4. 有待研究的因素

样品中平均原子序数和密度对测量低能  $\gamma$  射线的影响程度是值得进一步探讨的。雅库鲍维奇<sup>[5]</sup>认为,原子序数的大小和密度的变化实际上不影响测量结果。也有作者持相反意见。这一因素究竟能产生多大误差有待查明和确定。

样品的几何形状、厚度和自吸收,重量校正的范围等都有待研究和改进。

样品中铀镭钍比值的变化范围也是影响精确度的原因之一。 $\gamma$  谱法适用多大铀镭钍比值是需要进一步阐明的。

提高方法的灵敏度是急待解决的问题。这里,增大立体角度(用凹型晶体),降低本底,改进电子学线路等等都是进一步完善  $\gamma$  谱法的重要措施。

#### 结 语

我们应用  $\gamma$  谱法通过低能  $\gamma$  谱的微分计数分别测定了铀、镭、钍的含量。铀、镭、钍的光电峰和道宽分别取为:  $UX_1$ —93千电子伏,道宽12千电子伏;  $RaB$ —350千电子伏,道宽31.5千电子伏和  $ThB$ —238千电子伏,道宽25.6千电子伏。在上述条件下,对重量为5克,待测元素含量大于  $10^{-4}$  克/克的样品进行测定时,方法的精确度在  $\pm 10\%$  以内。

研究能谱仪的性能、讨论仪器各变量在具体测量过程中的作用和确定最佳测试条件是分析工作的重要步骤,是提高  $\gamma$  谱法灵敏度和精确度的重要途径之一。

用  $\gamma$  谱法测定放射性元素的含量,一方面向电子学仪器提出了严格的要求,另一方面应取得更简宜的流程、更经济的方法和更可靠的数据。为此,从方法的理论到实际的测量,该法都还有待进一步的完善化。

#### 参 考 文 献

- [1] P. M. Hurey, *Bull. G. S. A.*, **67**, No. 6 (1956).
- [2] С. В. Иохельсон, Е. В. Шитов, *Изв. АН СССР сер. геофизич.*, № 1, 98 (1959).
- [3] L. M. John, *Geophysics*, **25**, No. 5, 1054 (1960).
- [4] P. W. Lange, *Analytical Chemistry*, **32**, No. 8, 1013 (1960).
- [5] А. Л. Якубович, Е. И. Зайцев, *Разведка и охрана недр.*, № 2, 33 (1961).
- [6] В. Л. Шашкин, *Методы анализа естественных радиоактивных элементов*, Госатомиздат, 1961.
- [7] Х. Б. Межиборская и др., *Анализ радиометрическая руд  $\beta$ - $\gamma$  методов*, Атомиздат, 1960.
- [8] P. W. Lange, *Analytical Chemistry*, **31**, No. 5, 812 (1959).
- [9] Е. И. Железнова, *Бюл. научно-технич. инф.*, № 7 (1957).
- [10] Е. И. Зайцев, *Бюл. научно-технич. инф.*, № 2 (1958).
- [11] И. Н. Шумилин, *Радиометрические анализы руд и пород по  $\beta$  и  $\gamma$ -луам с разной степенью фильтраций*, Вопросы рудной радиометрии, Госатомиздат, 1962.
- [12] А. С. Сердюкова, Ю. Т. Капитанов, *Журнал аналитическая химия*, № 1, 88 (1958).
- [13] Б. И. Хазанов, *Атомная энергия*, **14**, № 5, 499 (1963).