

核素分析

实验者：余钊焕 合作者：朱 可

（中山大学理工学院，物理学专业 2006 级，学号 06324043）

2009 年 3 月 24 日

【实验目的】

1. 熟练掌握 NaI (Tl) 闪烁 γ 谱仪的使用方法。
2. 测量标准样品和自制样品的 γ 谱曲线。
3. 采用逆矩阵法分析 Th、Ra、K 等放射性核素的含量。

【实验仪器】

NaI (Tl) 闪烁探头、高压电源、多道脉冲幅度分析器、计算机、标准样品5个、刻度用放射源 ^{60}Co 或 ^{137}Cs 。

实验装置如图 1 所示。

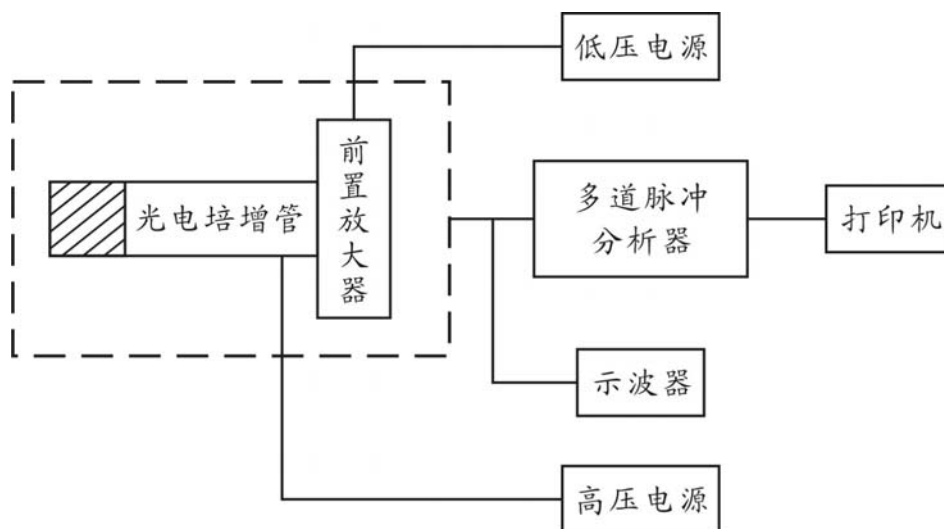


图 1 实验装置框图

【实验原理和分析方法】

NaI (Tl) 闪烁谱仪由 NaI (Tl) 闪烁体、光电倍增管、射极输出器和高压电源以及线性脉冲放大器、单道脉冲幅度分析器（或多道分析器）、定标器等电子学设备组成。这种谱仪既能对辐射强度进行测量，又可作辐射能量的分析，同时具有对 γ 射线探测效率高（比 G-M 计数器高几十倍）和分辨时间短的优点，是目前广泛使用的一种辐射探测装置。

当分析较多放射性核素的混合样品时，由于许多能量的 γ 能谱混杂在一起，由于 NaI 谱仪的分辨率限制，峰与峰之间相互重叠，甚至不能区分，因此需要对复杂能谱进行解析才能确定样品的组成核素和含量。本实验采用逆矩阵法进行解谱，其原理简述如下。

用逆矩阵法解析复杂 γ 射线能谱，对各种成分放射性含量比较相近的样品，解谱误差可达 2 % 左右，对弱成分误差显著增大。

应用逆矩阵法解谱，要得到准确的结果，必须满足下列条件：

(1) 混合样品中核素都是已知的，这样才可以选定相应的标准样品来建立标准谱；

(2) 测量标准谱和混合样品谱时，谱仪的测量条件要一致，仪器要稳定；

(3) 各单一核素放射性线性叠加情况下，探测系统的脉冲幅度不随计数率改变；

(4) 混合样品中各核素具有各自的 γ 能谱，并能够选出表征各自能量的特征峰（特征峰上对称于最高计数处的道域称为特征道域）。

测量每个核素标准谱时，不仅要测量它在本身的特征道域中的计数，而且要测出它在其它特征道域中的计数，由此确定各种核素对各个道域计数的贡献，这个贡献用响应系数 a_{ij} 来表示，其定义为

$$a_{ij} = \frac{\text{第 } j \text{ 种成分在第 } i \text{ 道域中的计数率}}{\text{第 } j \text{ 种成分的衰变率}}, \quad (1)$$

其物理意义是单位衰变率的第 j 种在第 i 道域上所能引起的计数率。

对于混合样品，设其第 j 种放射性核素的活度为 x_j ，则第 j 种成分在第 i 道域中的计数率贡献是 $a_{ij}x_j$ 。因此混合样品在第 i 道域的计数率 m_i ($i = 1, 2, \dots, n$) 为各种核素分别在该道域的计数率之和，即

$$\sum_{j=1}^n a_{ij}x_j = m_i, \quad i = 1, 2, \dots, n, \quad (2)$$

这样就得到一个由 n 个方程组成的 n 元联立方程组。

将方程组 (2) 改写成矩阵形式 $AX = M$ ， A 为 a_{ij} 集合而成的矩阵，称为谱仪的响应矩阵， X 为未知量 x_j 组成的列矩阵， M 为样品在各道域的计数率组成的列矩阵。方程 (2) 的解为 $X = A^{-1}M$ ，即

$$x_j = \sum_{i=1}^n a^{-1}_{ji}m_i, \quad (3)$$

其中记号 a^{-1}_{ji} 表示矩阵 A^{-1} 的矩阵元。因此，由实验测定 A ，求得 A^{-1} ，再把测得混合样品在各特征道域上的计数 m_i 代入 (3) 式，就可以确定混合样品中各核素

的放射性活度 x_j 。

逆矩阵法对某核素的分析精度，取决于在它的特征道域中该核素计数在样品总计数中所占的份额。该核素计数在样品总计数中所占份额越大，则它的分析精度也越高。因此，各核素的特征道域应尽量选在该核素计数相对强度大、其它核素计数贡献少的全能峰上。另外， γ 能量低的核素的特征道域，如果选在 γ 能量高的核素的康普顿坪上，特征道域的宽度就不宜取得太宽。但考虑到仪器增益和阈漂移的影响，特征道域的宽度也不能取得太窄，一般取特征道域的宽度为几十 keV。

被测样品在各特征道域上的计数和谱仪本底都会有统计涨落，并通过逆矩阵计算互相传递。假如标准谱的测量精度足够高，使响应系数的误差可以忽略，根据误差理论可以推算出第 j 成分含量 x_j 的标准误差 σ_{xj} 为

$$\sigma_{xj} = \frac{1}{\sqrt{t}} \sqrt{\sum_{j'} \sigma_{jj'} x_{j'} + B_j}, \quad (4)$$

其中， $\sigma_{jj'} = \sum_i (a_{ji}^{-1})^2 a_{ij'}$ 为第 j' 成分计数统计涨落对第 j 成分的误差贡献因子，

当 $j = j'$ 时，表示第 j 成分自身统计涨落的误差贡献因子； $B_j = 2 \sum_i (a_{ji}^{-1})^2 b_i$ ，

此处 b_i 为第 i 道域的本底计数率； t 为样品测量时间。

根据 (4) 式可以确定各核素分析结果的统计误差。为了降低统计误差，可以适当延长测量时间。此外，结果误差随着混合样品中核素数目的增加而增大，因此实际应用时混合样品中的核素数目一般不超过 5 个。

【实验步骤】

1. 测量放射源的 γ 射线能谱，选择合适的工作条件。
2. 粗测样品的能谱，在给定的峰道计数统计误差内确定各能谱的测量时间。
3. 在选定的实验条件下，测量标准谱、混合样品谱和本底谱。
4. 用逆矩阵法分析。

【测量数据和数据处理】

各样品的标称值如下。

标准样 ^{40}K ：

盒重 70.1 g，总重 365.6 g，净重 295.5 g，活度 423.2 Bq，3.5 %， $k = 2$ 。

标准样 ^{226}Ra ：

盒重 71.9 g，总重 310.5 g，净重 238.6 g，活度 133.1 Bq，3.5 %， $k = 2$ 。

标准样 ^{232}Th :

盒重 71.8 g, 总重 330.5 g, 净重 258.7 g, 活度 80.7 Bq, 3.5 %, $k = 2$ 。

混合样:

盒重 70.2 g, 总重 320.0 g, 净重 249.8 g, 其所含各核素活度如下,

^{238}U	51.2 Bq	5 %	$k = 1$,
^{232}Th	78.2 Bq	3.5%	$k = 2$,
^{226}Ra	112.6 Bq	3.5%	$k = 2$,
^{40}K	367.4 Bq	3.5%	$k = 2$ 。

设置测量时间为 3600 s, 道数为 1024, 测量 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 标准样、混合样及本底的 γ 谱。根据 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 标准样 γ 谱的特征, 选取 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 的特征峰分别位于第 77 道、第 123 道和第 526 道, 特征道域均取为 9 道。测量得到的 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 标准样、混合样及本底在各特征道域的计数如表 1 所示。

表 1 各特征道域的计数

样 品	^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K	混合样	本底
72-80 道的计数	13236	7942	2193	18495	1670
119-127 道的计数	2957	10707	1327	12310	1125
522-530 的计数	596	790	1481	1745	473

将上表中 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 标准样和混合样的各道域计数扣去本底计数, 再除以测量时间 3600 s, 得到各个样品在各特征道域的计数率, 如表 2 所示。

表 2 扣除本底后各特征道域的计数率

样 品	^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K	混合样	本底
72-80 道的计数/ s^{-1}	3.213	1.742	0.145	4.674	0.464
119-127 道的计数/ s^{-1}	0.509	2.662	0.056	3.107	0.312
522-530 的计数/ s^{-1}	0.034	0.088	0.280	0.353	0.131

利用上表数据、各标准样的标称活度, 代入式 (1), 求得响应矩阵

$$A = \begin{pmatrix} 3.98 \times 10^{-2} & 1.31 \times 10^{-2} & 3.43 \times 10^{-4} \\ 6.31 \times 10^{-3} & 2.00 \times 10^{-2} & 1.33 \times 10^{-4} \\ 4.23 \times 10^{-4} & 6.62 \times 10^{-4} & 6.62 \times 10^{-4} \end{pmatrix} \text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1},$$

其逆矩阵为

$$A^{-1} = \begin{pmatrix} 28.1 & -18.0 & -11.0 \\ -8.80 & 56.0 & -6.65 \\ -9.18 & -44.4 & 1.52 \times 10^3 \end{pmatrix} \text{s} \cdot \text{Bq},$$

混合样品在各道域的计数率 m_i 组成的列矩阵

$$M = \begin{pmatrix} 4.674 \\ 3.107 \\ 0.353 \end{pmatrix} \text{s}^{-1},$$

从而，可求得各种放射性核素的活度 x_j 组成的列矩阵

$$X = A^{-1}M = \begin{pmatrix} 28.1 & -18.0 & -11.0 \\ -8.80 & 56.0 & -6.65 \\ -9.18 & -44.4 & 1.52 \times 10^3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 4.674 \\ 3.107 \\ 0.353 \end{pmatrix} \text{Bq} = \begin{pmatrix} 71.41 \\ 130.48 \\ 357.88 \end{pmatrix} \text{Bq},$$

再由式（4）第 j 成分含量 x_j 的标准误差 σ_{x_j} 为

$$(\sigma_{x_j}) = \begin{pmatrix} 1.3 \\ 1.9 \\ 20.1 \end{pmatrix} \text{Bq}。$$

综上，用逆矩阵法进行解谱，得到混合样品中各种放射性核素的活度分别为：

$$^{232}\text{Th} \text{ 的活度 } x_{^{232}\text{Th}} = 71.4 \pm 1.3 \text{ Bq}$$

$$^{226}\text{Ra} \text{ 的活度 } x_{^{226}\text{Ra}} = 130.5 \pm 1.9 \text{ Bq}$$

$$^{40}\text{K} \text{ 的活度 } x_{^{40}\text{K}} = 357.9 \pm 20.1 \text{ Bq}$$

与混合样品各核素活度的标称值比较， ^{40}K 的活度相符， ^{232}Th 和 ^{226}Ra 的活度有微小偏离。

此外，利用计算机软件 WinNaI，对混合样品的 γ 能谱进行最小二乘法分析，得到的结果如表 3 所示。

表 3 WinNaI 对混合样品各核素比活度的分析

核 素	核素所计数	比活度 (Bq / kg)	不确定度
^{232}Th	103327	309.61	4.56%
^{226}Ra	136729	511.69	4.33%
^{40}K	12764	1336.31	6.20%

再由混合样的净重 249.8 g，求得混合样品各核素的活度分别为：

$$^{232}\text{Th} \text{ 的活度 } x'_{^{232}\text{Th}} = 77.3 \pm 3.6 \text{ Bq}$$

$$^{226}\text{Ra} \text{ 的活度 } x'_{^{226}\text{Ra}} = 127.8 \pm 5.6 \text{ Bq}$$

$$^{40}\text{K} \text{ 的活度 } x'_{^{40}\text{K}} = 333.8 \pm 20.7 \text{ Bq}$$

与混合样品各核素活度的标称值比较， ^{232}Th 的活度相符， ^{226}Ra 和 ^{40}K 的活度有微小偏离。

【讨论】

上面分别用逆矩阵法和 WinNaI 的最小二乘法进行解谱，两种方面给出的结果有所不同，并且都与标称值有微小偏离。由此可见，不同的解谱方法一般会得出略有不同的结果，因此我们要注意在各种具体的实验条件下采取适当的解谱方法，才能得到比较精确的测量结果。

由于放射性计数的统计性，在相同的条件下，每次测量的结果也并不完全相同，而是围绕其平均值上下涨落，有时甚至有很大的差别。本实验的测量时间为 3600 s，而所用各个样品的各种放射性核素的活度均比较低，因此测量精度不可能很高，得到的结果与标称值有所偏离是不足为奇的。对于同样这些样品，若要提高测量的精度，可以通过延长测量时间来达到目的，比如将测量时间延长为 7200 s 等。

【思考题】

1. 逆矩阵法解谱的条件是什么？这些条件在实验中应如何保证？

答：逆矩阵法解谱的条件有：（1）混合样品中核素都是已知的，这样才可以选定相应的标准样品来建立标准谱；（2）测量标准谱和混合样品谱时，谱仪的测量条件要一致，仪器要稳定；（3）在各单一核素放射性线性叠加的情况下，探测系统的脉冲幅度不会随着计数率的改变而改变；（4）混合样品中各核素具有各自的 γ 能谱，能够从中选出表征各自能量的特征峰。

为了保证逆矩阵解谱法能够适用，在本实验中，在测量 5 个样品的过程中实验条件都是固定的，选取的各个核素具有比较明显的特征峰。

2. 各特征道域应如何选取？道域取得太宽或太窄对分析结果有什么影响？

答：各核素的特征道域应尽量选在该核素计数相对强度大、其它核素计数贡献少的全能峰上。

假如道域取得太宽，容易导致对 γ 能量低的核素的测量精确度下降；假如道域取得太窄，由于仪器增益和阈漂移的影响，标准样 γ 谱的特征峰位置与混合样 γ 谱的对应峰位置可能会对不上，从而导致测量不精确。