

γ 能谱法分析土壤样品中几种人工放射性核素的活度

张佳媚, 师全林, 白 涛, 金玉仁, 李冬梅

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710024)

摘要: 采用 γ 能谱法对一批放射性污染的环境土壤样品进行了定量分析。结果表明, 不同磨样条件和样品放置方式对测量结果有一定影响, 样品磨样过 40 目(0.42 mm) 筛子一般可满足均匀性要求; 但 ^{241}Am 核素在有些样品中的分布很不均匀, 平行样品间的差异较大; ^{241}Am 主要分布在表面 5 cm 的土层, 而 ^{137}Cs 、 ^{152}Eu 在 20~30 cm 深的土层仍可探测到。从不同地点所取的土样中 ^{154}Eu 与 ^{152}Eu 活度比基本一致, 约 0.07。

关键词: 土壤; 人工放射性核素; 活度; γ 能谱

中图分类号: TL817.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000 7512(2005)01 02 0102 06

Radioactivity Determination of Several Man made Radionuclides in Soil Samples by γ Spectrometry

ZHANG Jia mei, SHI Quan lin, BAI Tao, JIN Yu ren, LI Dong mei

(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract: Surface and core soil samples collected from a radioactively contaminated region are analyzed by γ spectrometry. Soil is milled and sieved then contained with cylindrical plastic boxes (φ 75 mm \times 50 mm). ^{137}Cs , ^{152}Eu and ^{60}Co are approximately homogeneous in samples of 40 mesh (0.42 mm), but ^{241}Am may not uniform even in samples of 60 mesh (0.25 mm). Peaks count are up to 10% different between box is lying up and down on the top of detector. ^{241}Am is mainly found in topsoils (0~5 cm), whereas ^{137}Cs or ^{152}Eu is to 30 cm in depth. The activity ratios of ^{152}Eu to ^{154}Eu are basically same (0.07) between different locations.

Key words: soil; man made radionuclide; radioactivity ; γ spectrometry

在使用 γ 能谱法进行环境放射性污染源项调查中, 不取样的方法有航空测量、车载扫描和就地谱仪分析。航空测量和车载扫描适合大面积普查, 以发现“热点”、“热区”, 但灵敏度和准确性都较差。就地谱仪分析不能得到土壤中核素随深度分布的信息。采集土壤样品进行 γ 能谱

分析, 不仅手段灵活, 而且样品测量精度、灵敏度也最高, 所以是必不可少的一种手段。它可结合其它方法同时进行, 也作为对其它方法的补充、支持和验证。本工作拟采用 γ 能谱法分析土壤取样样品中放射性核素的活度, 并观察核素在土壤中的分布, 以评价放射性剂量的贡献并为核素

迁移规律研究提供相关资料。

样品中除天然放射性核素外,存在的人工放射性核素主要为中、长寿命的裂变产物、活化产物和钚同位素及衰变子体。人们主要关心的是那些对辐射剂量贡献大和对人体(生物)危害大的核素。其中钚同位素一般用质谱法分析, ^{90}Sr 采用放射化学分析法。 γ 能谱无损分析的核素主要有: ^{137}Cs 、 ^{155}Eu 、 ^{152}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{60}Co 和 ^{241}Am (^{241}Pu 的子体)。

1 主要试剂及仪器

N型同轴高纯锗探测器:晶体尺寸为 $\varnothing 74.8\text{ mm} \times 84.8\text{ mm}$,相对探测效率100%,能量分辨率指标(1.33 MeV, ^{60}Co)为2.50 keV,在本工作中实际分辨率为2.8~2.9 keV。额定工作电压为-3500 V。探测器置于大屏蔽室中,屏蔽室外层为厚10 cm的铅,内衬镉、铜、铝板各1 mm,内腔尺寸为 $1\text{ m} \times 1\text{ m} \times 1.8\text{ m}$ 。

样品盒为 $\varnothing 75\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ 圆柱型聚乙烯塑料盒。探测器上端面放置中间带凹面的塑料样品托盘,可以固定样品盒的位置,样品盒底部距探测器上端面2 mm。

采用GBW08304 河泥沉积物环境放射性标准物质(含 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 等)^[1],国防科工委放射性计量一级站制备的3个模拟土壤放射源(分别为 ^{241}Am 、 ^{152}Eu 和 $^{154+155}\text{Eu}$)刻度探测系统效率。标准源核素的活度不确定度由证书给出,1 σ (标准不确定度)均约为3%。

2 实验方法

2.1 样品采集

被调查地区总面积约10万平方公里,计划地面采样几千个。根据航测结果和需要确定取样区域,按照一定的分布方式确定采样点,去除表面石块后用专门的采样器采样。本工作中分析的样品多数取自表层5 cm之内的土壤,有些取样点按0~2 cm和2~5 cm分两层取样,有些取样点分5~6层,深度至30 cm。

2.2 样品处理

由于被调查地区地面介质中沙石含量较高,介质粒径大,为保证(平行样)分样均匀性,样品

经烘箱干燥后用矿石振动磨样机磨碎、过筛(粒度大、通不过的部分要反复磨),装满盒子,称重、密封。

2.3 测量

根据样品中某核素 γ 能峰的净计数率和标准样品得到的刻度系数并校正自吸收因子的差异后即可得到该核素的活度和比活度。

自吸收因子的测量方法参考文献[1]。为了方便大量样品的计算,假定样品的基质基本相同(质量吸收系数相等),用若干个不同质量(密度)的代表性土壤样品,测量自吸收因子。对特定射线能量,拟合得到自吸收因子与样品质量(密度)的关系曲线(对某一特定质量样品,也可以拟合得到自吸收因子与射线能量的关系)。实际样品的自吸收因子根据曲线内插计算。对低能射线自吸收因子不确定度稍差,如60 keV约6%。对662 keV不确定度小于2%。

视样品核素强弱不同,1个样品至少测量半天,多至2天。

2.4 谱线分析

解 γ 谱,得到感兴趣核素能峰的净计数率等结果。活度较强核素的峰计数不确定度可达到1%~2%。除 ^{60}Co 外,标准刻度源活度较强,其它核素的峰计数不确定度一般小于1%。

由于放射性核素之间的重峰干扰(对探测器分辨率较差的系统,问题更显突出),对于多 γ 射线核素,选择合适的 γ 射线全能峰是准确定量的一个重要因素。样品中所需测量的核素主要参数^[2]和干扰分析列于表1。

由于 ^{239}Pu 的 γ 射线绝对强度(分支比)很低,很难分析出样品中的 ^{239}Pu ,对某些 ^{239}Pu 含量很高的样品,测量时间达1周以上;需要采用探测效率高、分辨率好的N型铍窗(或碳窗)平板型高纯锗探测器; ^{239}Pu 没有标准源,不能直接标定它的探测效率。但 ^{239}Pu 51.62 keV射线全能峰位于 ^{241}Am 的26.34 keV和59.54 keV两个全能峰之间,可根据 ^{241}Am 的探测效率内插得到 ^{239}Pu 的51.62 keV射线探测效率。 γ 谱中这段能区常有 ^{152}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{155}Eu 的多条X射线干扰。由于探测器的限制,本工作未分析 ^{239}Pu 的活度。

表 1 核素主要参数^[2]和干扰分析

核素	半衰期	能量 /keV	绝对强度 /%	可能存在的干扰射线和影响	备注
²⁴¹ Am	432.2 a	26.344 8	2.4	26.51 keV(¹⁵⁵ Eu)	
		59.541 2	35.9	60.01 keV(¹⁵⁵ Eu), 一般小于 1%	选用
¹³⁷ Cs	30.07 a	661.657	85.1	可以忽略	选用
⁶⁰ Co	192.5 d	1 173.237	99.973 6	1 170.93 keV(¹⁵² Eu), 影响很小	可选用
		1 332.501	99.985 6	可以忽略	选用
¹⁵² Eu	4 94 4.3 d	121.781 7	28.58	123.07 keV(¹⁵⁴ Eu)	
		344.278 5	26.5	可以忽略	选用
		1 408.006	21.01	1 408.40 keV(¹⁵⁴ Eu), 影响很小	可选用
¹⁵⁴ Eu	8.593 a	123.071	40.6	121.78 keV(¹⁵² Eu), 影响严重	
		723.305	20.11	723.40 keV(²¹⁴ Bi), 影响较小	可选用
		1 274.436	35.0	可以忽略	选用
¹⁵⁵ Eu	4.761 0 a	86.545	30.7	Pb X 射线、天然核素	
		105.305	21.2	²⁴¹ Am、天然核素, 影响很小	选用
²³⁹ Pu	2 411 0 a	51.624 0	0.027 1	²³⁵ U 及子体	选用

3 结果与讨论

3.1 样品处理对测量结果的影响

样品虽然经过磨碎但仍可能不均匀,为观察样品颗粒大小对测量结果的影响,对 3 个取样点的样品进行了处理,结果列于表 2。由表 2 可以看出,1 号点不磨样过 40 目(0.42 mm)筛的样品,相对标准偏差 s 为 6%~13%,样品平行性较差;磨样过筛的 3 种不同粒度样品, s 为 2%~4%,说明测量结果的平行性较好,不同粒度样品间平行性差异不太显著。2 号取样点 35 目(0.50 mm)和 60 目(0.25 mm)样品,除 ²⁴¹Am 外, s 均为 2%~5%,两种粒度的样品差异也不明显。每种粒度的 5 个平行样品中都有 1 个样品的 ²⁴¹Am 异常高出其它 4 个样品 2.5~3 倍,4 个样品间差异也较大, s 达到 62%和 53%。说明 ²⁴¹Am 在样品中分布不均匀。可能是 ²⁴¹Am 这种 α 放射性的超铀元素(俗称“热粒子”)性质

比较特殊。3 号取样点由于核素的活度较低,²⁴¹Am 的计数统计涨落就有 6%,所以, s 相应较大,60 目样品比 35 目样品略好。因此,环境调查土壤取样样品磨样应过 35 目以上筛子,可以基本保证分样的代表性(实际选用 40 目作为磨样要求)。但不排除 ²⁴¹Am 核素(由于钷的行为和 ²⁴¹Am 近似,所以还应该包括钷)可能出现异常。

3.2 样品放置方式对测量结果的影响

通常样品测量时是正放的(盖子朝上),为了考察样品放置的方式对测量结果的影响,把其中 7 个样品倒放(盖朝下)再测量一次,比较同一个样品不同放置方向(与探测器距离、位置相同)的测量结果(计数率)差异。反放与正放计数率之比定义为 a ,相对不确定度定义为 u ,结果列于表 3。

表 2 样品处理情况与平行样测量结果差异

取样点编号	处理情况	平行样的相对标准偏差 s /%($n=5$)			
		²⁴¹ Am	¹⁵² Eu	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
1	不磨,过 40 目筛,大颗粒弃用	9	6	8	13
1	全磨,过 35 目筛	3	2	2	3
1	全磨,过 60 目筛	4	4	3	3
1	全磨,过 100 目筛	3	4	3	2
2	全磨,过 35 目筛	62	3	4	3
2	全磨,过 60 目筛	53	3	5	2
3	全磨,过 35 目筛	13	3	7	3
3	全磨,过 60 目筛	9	2	4	4

表 3 样品放置方式对测量结果的影响

样品编号	对 ^{241}Am (59.54 keV)		对 ^{137}Cs (662 keV)		对 ^{60}Co (1 333 keV)		对 ^{152}Eu (344 keV)		对 ^{155}Eu (155 keV)		对 ^{154}Eu (1 274 keV)	
	<i>a</i>	<i>u</i> /%	<i>a</i>	<i>u</i> /%	<i>a</i>	<i>u</i> /%	<i>a</i>	<i>u</i> /%	<i>a</i>	<i>u</i> /%	<i>a</i>	<i>u</i> /%
	A	0.86	9.7	0.98	0.40	1.00	1.2	0.98	0.35	1.09	19	0.97
B	1.00	4.1	0.97	0.26	0.98	0.65	0.95	0.18	0.97	13	0.97	1.5
C	0.94	1.0	0.95	1.2	0.94	4.8	0.91	2.5	0.93	14	0.99	21
D	0.94	0.90	0.95	1.3	0.93	6.1	1.00	3.3	0.88	12		
E	1.01	1.3	0.95	1.4	0.99	7.0	0.93	2.7	1.23	31		
F	0.88	1.7	0.97	0.89	0.99	5.3	0.96	2.9	1.00	13	0.89	31
G	0.89	3.2	0.97	1.5	0.98	2.2	0.97	0.6	0.84	20	0.92	4.0

样品是圆柱体, 上下形状并无差别。测量结果如有差异, 说明核素在样品中的分布和高度有关或土壤密度分布不均匀。表 3 结果表明, 除 ^{155}Eu 核素样品 A 和 E 的 *a* 值明显大于 1 (不确定度也很大) 外, 其余 7 个样品的其它核素 *a* 值都小于 1 或接近 1。说明样品倒置时的结果偏低具有普遍性。对 ^{241}Am , 7 个样品正反差别最大超过 10%; 对 ^{137}Cs , 差别小于 5%; 对 ^{60}Co , 小于 7%; 对 ^{152}Eu , 小于 9%; 对 ^{154}Eu , 因活度较低, 7 个样品中只测到 5 个样品的数据, 最大差别约 10%。

因为样品平常是正放的(盖子朝上), 样品盒在运输过程中经过振动, 粒径不同的粒子可能产生了分层。粒径大的颗粒在上层分布的几率大, 而放射性核素的分布和土壤粒度有关系(通常细

颗粒土壤中的含量较高), 盒子底部的核素含量比顶部高。同时上下密度也会有一些差异。样品盒反放时立刻测量, 相对于盒子的粒子分布基本没有改变, 而相对于探测器的上下方向发生了改变, 导致正反测量探测效率不同。

3.3 核素随土壤深度的分布

文献[3, 4] 报道土壤中的人工放射性核素主要分布在表层几厘米。为准确估计更深土壤中的放射性对辐射剂量的贡献并考察放射性核素随土壤深度分布的规律, 本工作同时对某些取样点进行了不同采样深度样品中放射性核素活度的测量。

20 号取样点和 33 号取样点 ^{137}Cs 与 ^{152}Eu 相对含量随深度的变化示于图 1。

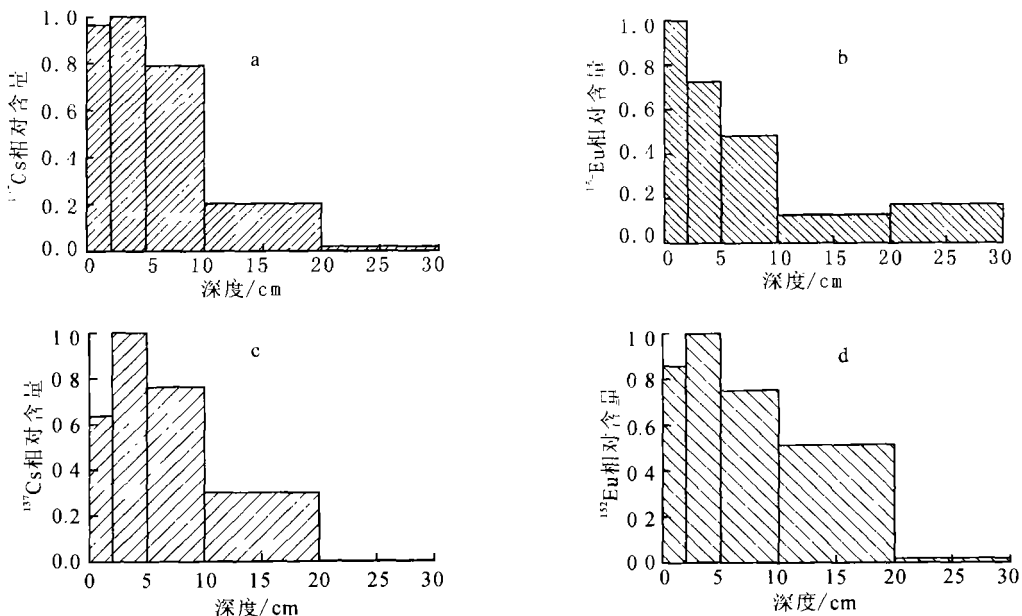


图 1 样品相对含量随深度的分布

a—20 号点 ^{137}Cs ; b—20 号点 ^{152}Eu ; c—33 号点 ^{137}Cs ; d—33 号点 ^{152}Eu

图 1 显示 ^{137}Cs 与 ^{152}Eu 主要分布在深度为 0~10 cm 的土壤中, 但 10~20 cm 还有相当多的量, 至 20~30 cm 仍可能存在。只有 ^{241}Am 基本分布在表面 0~5 cm 的土层, 一般第一层(0~2 cm)的比活度远高于第二层(2~5 cm), 10 cm 以下还可能有 20%~50% 的总放射性, 20 cm 以下所占的份额就非常少。所以采样深度应大于 20 cm。

3.4 探测限与不确定度对测量结果的影响

不同取样位置样品中人工放射性核素的比活度差异很大, 有的核素达 2 到 3 个量级。核素间只有 ^{154}Eu 与 ^{152}Eu 有较好的相关性, ^{154}Eu 与 ^{152}Eu 活度比约为 0.07(测量结果相对标准偏差 14%), 说明来源基本相同。 ^{60}Co 与 ^{152}Eu 活度比变化也不大(相差约 3 倍), ^{60}Co 通常比 ^{152}Eu 低 1 个量级。样品中比活度最大的一般为 ^{137}Cs (有些是 ^{152}Eu), ^{241}Am 和 ^{155}Eu 较弱。

一般 1 个样品测量 12~24 h, 计数率大于探

测下限⁵时, 给出放射性核素的比活度分析结果; 计数率小于探测下限时, 给出相应的最小可探测比活度 MDA (风险几率 $\alpha=0.05$)。为了尽可能测到样品中更弱的核素, 就要提高灵敏度、降低探测下限。探测限不仅与探测器的性能有关, 还和样品本身有关。如有的样品中 ^{152}Eu 活度很强, 将会严重影响发射低能 γ 射线核素的探测限。采用本工作所用测量系统(D_100)和反康普顿谱仪⁹(D_cs)对 22 号取样点几个不同深度样品分析时, ^{241}Am 、 ^{155}Eu 的最低可探测活度(测量时间都为 24 h)列于表 4。由表 4 可知, 随着 ^{152}Eu 强度的减弱, ^{241}Am 、 ^{155}Eu 的最低可探测活度也不断降低。采用 D_cs 是为了降低 ^{241}Am 、 ^{155}Eu 的最低可探测活度。由表 4 可知, 使用 D_cs 测量最低可探测活度降低了约一半。因此, 对一些射线强度较弱的核素, 可以采用 D_cs 或其他最低可探测活度更小的探测仪。

表 4 几个样品中 ^{241}Am 、 ^{155}Eu 的最低可探测活度

样品编号	^{241}Am 的 MDA /Bq·kg ⁻¹			^{155}Eu 的 MDA /Bq·kg ⁻¹			^{152}Eu 相对比活度
	D_100	D_cs	D_cs/D_100	D_100	D_cs	D_cs/D_100	
22 2	8.2	4.1	0.50	15	8.9	0.59	1
22 3	6.2	2.8	0.45	12	6.4	0.52	0.61
22 4	5.1	2.4	0.47	9.4	5.1	0.54	0.36
22 5	3.8	1.8	0.47	6.9	3.5	0.51	0.19
22 6	2.5	1.3	0.52	4.5	2.2	0.49	0.068

对于基本没有人工放射性的天然本底样品, 最小可探测比活度差异不大。表 5 为测量时间归一到 24 h 时, 一些天然本底样品的最小可探测比活度, 这些比活度代表了本工作所使用的探测系统的分析灵敏度。

表 5 天然本底中核素最小可探测比活度 (测量时间 24 h)

核素	采用的能量 /keV	最小可探测比活度 /Bq·kg ⁻¹
^{241}Am	59.54	1.20
^{137}Cs	661.66	0.45
^{60}Co	1332.49	0.45
^{152}Eu	344.28	1.60
^{155}Eu	105.31	1.80
^{154}Eu	1274.43	1.50

通过探测效率刻度、样品测量、自吸收校正、样品均匀性检验等分析, 得到对最终测量结果的各种影响因素的估计。样品分析结果总的不确定度(各分量平方和开方)主要由以下几个分量合成: ①效率刻度标准源活度的不确定度, 1σ (标准不确定度)时都约为 3%; ②测量标准源时峰计数的不确定度, 一般小于 1%; ③样品相对于标准源的自吸收因子不确定度主要和能量有关, 在低能区(60~110 keV)约 5%, 中高能为 1%~3%; ④样品质量(200~400 g)不确定度 < 0.1%, 与其它项相比可忽略; ⑤样品峰计数的不确定度与核素的强弱及测量时间有关, 差异很大, 1%~30%; ⑥样品中核素分布不均匀造成的探测效率和标准样品的差异最大可达 10%, 如果每个样品都正、反放置各测一次取平均, 可以降低此项不确定度。

多数样品 ^{137}Cs (活度大于 5 Bq/kg) 不确定度小于 10% , 满足分析需要。

4 小 结

用 γ 能谱法取样分析土壤样品中的放射性核素时, 样品的颗粒大小对测量结果有较大影响, 一般采用研磨样品过 40 目筛子, 测量结果可以反映取样点的核素水平; ^{241}Am 在土壤中的分布很不均匀, 平行样品间差异显著, 且主要分布于地层表面 5 cm 内, 而 ^{137}Cs 和 ^{152}Eu 在 $20\sim 30\text{ cm}$ 的土层仍可探测到; 不同取样点的 ^{137}Cs 和 ^{152}Eu 活度比基本一致, 约 0.07 。

参考文献:

[1] 张佳嫻, 王中录, 夏兵, 等. HPGc γ 谱仪分析环境水平放射性比对样品[J]. 核电子学与探测技术, 2002, 22(1): 92 ~ 95.

[2] 于敏主编. 中国军用放射性核素衰变纲图[M]. 北京: 原子能出版社, 2001.

[3] Al Hamarneh I, Wreikat A, Toukan K. Radioactivity Concentrations of ^{40}K , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ Radionuclides in Jordanian Soil Samples[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2003, (67): 53 ~ 67.

[4] Carbol P, Solatie D, Erdmann N, et al. Deposition and Distribution of Chernobyl Fallout Fission Products Actinides in a Russian Soil Profile[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2003, (68): 27 ~ 46.

[5] GB 11743 89, 土壤中放射性核素的 γ 谱分析方法[S].

[6] 张佳嫻, 常永福, 师全林, 等. 一台反康普顿 HPGc γ 谱仪的性能改造和应用[J]. 核电子学与探测技术, 2004, 24(2): 172 ~ 176.

^{60}Co 动态复眼螺旋断层放射治疗系统

【公开日】2005. 01. 19 【分类号】A61N5/10 【公开号】1565670 【申请号】03135188. 3 【申请日】2003. 06. 13 【申请人】王乔生

【文摘】本发明公开了一种治疗恶性肿瘤和颅脑疾病的钴 - 60 动态复眼螺旋断层放射治疗系统。旋转体结构筒为单层套筒形式, 结构筒上安装有多个条形射线准直器, 每个条形射线准直器中各自都装有多个射线准直器, 子射线准直器上装有出源开关, 出源开关由独立开关受控器分别控制。本发明能使用多个钴 - 60 放射源体对同一病灶点照射, 肿瘤的辐射剂量为单源辐射量的数倍, 更有利于提高临床肿瘤致死剂量治疗的需要; 而多个以不同平面且等中心安装的钴 - 60 射线源, 形成了一点或直线形的辐射锥剂量面。

(摘自《核科技信息》2005 年第 1 期)