LabSOCS 无源效率刻度软件验证与测量研究

周强 拓飞 姚帅墨 张京 李文红 李则书

100088 北京, 中国疾病预防控制中心辐射防护与核安全医学所 辐射防护与核应急中国疾病预防控制中心重点实验室

通信作者: 拓飞, Email: flytuo@163.com

DOI: 10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2018.04.009

【摘要】 目的 检验 LabSOCS 无源效率刻度软件在实际样品测量中的应用效果, 对样品自吸收校正和级联辐射符合相加修正进行分析。方法 利用实验室 γ 谱仪对某公司的两个标准样品进行一系列的测量。采用 LabSOCS 无源效率刻度软件生成的效率对测量结果进行计算。与证书标准值进行比较, 验证分析各核素的计算结果。**结果** LabSOCS 无源效率刻度软件可以较好地解决 γ 能谱测量分析中的样品自吸收校正问题, 宽能型高纯锗 γ 能谱仪采用 LabSOCS 分析的 ^{241}Am 和 ^{109}Cd 结果与标准值的最大偏差 $< 4\%$, 但对于级联辐射引起的符合相加修正还不能直接解决。**结论** LabSOCS 无源效率刻度软件通过对样品的成分、密度等信息的精准描述, 可以较好地解决样品自吸收校正问题。但当分析带有级联辐射的核素时, 仍需对符合相加效应加以考虑。可以利用 LabSOCS 灵活的模拟方式, 增加带有级联核素样品到探测器的距离, 完成级联核素的精准测量。

【关键词】 无源效率刻度; γ 能谱; 自吸收校正

基金项目: 科技部基础性工作专项资金 (2014FY211000)

Validation of the Laboratory Sourceless Calibration Software (LabSOCS) on measurement Zhou Qiang, Tuo Fei, Yao Shuaimo, Zhang Jing, Li Wenhong, Li Zeshu

Key Laboratory of Radiological Protection and Nuclear Emergency, China CDC, National Institute for Radiological Protection, Chinese Center for Disease Control and Prevention, Beijing 100088, China

Corresponding author: Tuo Fei, Email: flytuo@163.com

【Abstract】 Objective To validate the effect of the Laboratory Sourceless Calibration Software (LabSOCS) in the actual sample measurement, and to study the effect of sample self-absorption correction and cascade radiation coincidence correction. **Methods** Two standard samples from the analytics company were measured using the two gamma spectrometers at our laboratory. The result were calculated using the efficiency generated by LabSOCS. Calculated result of each nuclide were analyzed. Results were compared with the standard value provided in the certificate. **Results** The LabSOCS may solve the problem of sample self-absorption correction in gamma energy spectrum measurement and analysis. The maximum deviation between the values of ^{241}Am and ^{109}Cd analyzed by LabSOCS and the reference value was less than 4% for the broad-energy high-purity germanium gamma-ray spectrometers. However, the coincidence additive correction caused by cascade radiation could not be solved directly. **Conclusions** The research shows that the LabSOCS can solve the problem of sample self-absorption correction by describing the composition and density of the samples accurately. However, when analyzing the nuclides with cascade radiation, the coincidence addition effects should be considered. The flexible simulation method of the LabSOCS can be used to increase the distance from the cascade nuclide sample to the detector and to complete the accurate measurement of the cascade nuclide.

【Key words】 Sourceless calibration; γ -spectrometry; Self-absorption correction

Fund program: Support Program of Ministry of Science and Technology (2014FY211000)

随着核能、核技术的应用, 高纯锗 γ 能谱仪在环境样品的放射性测量中应用越来越广泛。 γ 能谱

仪在对样品进行定量分析时, 传统方法需要用与待测样品的几何形状相同、基质一样或类似、质量密

度相近的标准体源来进行效率刻度^[1]。工作量大,费用高。LabSOCS 是美国 Canberra 公司设计推出的实验室无源效率刻度软件,使用灵活、工作效率高。其原理首先是对探测器进行表征,形成探测器表征文件,然后根据测量的样品,将其分割成大量的小体源(视为点源),对点源相对探测器的效率进行积分计算,并考虑射线在路径上的衰减和体源自吸收等因素,计算得到该样品的探测效率曲线^[2]。探测器的表征是由厂家来完成的,在实际应用中,各实验室只需将厂家表征好的文件导入,再对所测量样品的形状、成分和密度等信息进行精准描述后,即得到样品分析所需的探测效率。该方法自推出以来深受各 γ 谱仪测量实验室的欢迎。尽管设备和软件在出厂时曾经进行过验证,但各个实验室在应用前也需要进行必要的验证。本研究采用某公司的两个标准样品,对本实验室配有 LabSOCS 无源效率刻度软件的两台高纯锗 γ 谱仪进行了验证,重点在样品自吸收校正和级联辐射符合相加修正方面进行了分析。

材料与方 法

1. 测量设备:本研究使用了两台美国 Canberra 公司生产的 γ 能谱仪,其中一台为同轴 P-型高纯锗 γ 能谱仪(GC3018),相对于 3" $\times$ 3" NaI(Tl) 晶体的探测效率为 30%,对⁶⁰Co 1 332 keV γ 射线的能量分辨率为 1.80 keV。测量时探测器置于壁厚 10 cm、内腔 60 cm $\times$ 60 cm $\times$ 60 cm 的复合屏蔽铅室内。测量 24 h,30 ~ 2 000 keV 积分本底为 179 计数/min。

另一台为宽能型高纯锗 γ 能谱仪(BE5030),其低能端能响范围可达 3 keV,该设备相对于 3" $\times$ 3" NaI(Tl) 晶体的探测效率为 50.5%,对⁶⁰Co 1 332 keV γ 射线的能量分辨率为 1.88 keV。测量时探测器置于内腔 ϕ 230 mm $\times$ 350 mm 的圆柱型复合屏蔽超低本底铅室内,铅室外层是 15 cm 厚低本底老铅,内衬有铜、镉和塑料等材料。测量 24 h 30 ~ 2 000 keV 积分本底只有 53 计数/min。

两台 γ 能谱仪的数据获取和分析均采用美国 Canberra 公司研发的 Genie 2000 软件。两台仪器出厂前对探测器都进行了表征,并配备有 LabSOCS 无源效率刻度软件。根据 Canberra 公司对宽能型高纯锗 γ 能谱仪(BE5030)出具的出厂测试报告,采用某公司生产的直径 48 mm 的玻璃纤维滤纸标样、20 ml 圆柱型土壤标样、400 ml 圆柱型土壤标样和 2.8 L 马林杯土壤标样在探测器表面,以及将玻璃纤维滤纸标样、20 ml 圆柱型土壤标样、400 ml 圆柱型土壤标样置于距探测器表面 10.17 cm 处进行了测量验证。其所用标样所含的放射性核素包括²⁴¹Am、¹⁰⁹Cd、⁵⁷Co、¹³⁹Ce、⁵¹Cr、¹¹³Sn、⁸⁵Sr、¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁶⁵Zn、⁶⁰Co 和⁸⁸Y,其活度在 $10^2 \sim 10^3$ 范围内。出厂测试结果显示,LabSOCS 无源效率刻度软件在能量 < 150 、 $150 \sim 400$ 、 > 400 keV 3 个能量范围内的相对不确定度分别是 8.83%、9.99%、3.73%。从出厂测试报告来看,LabSOCS 无源效率刻度软件的模拟效果还是可以接受的。

2. 标准样品:本实验室所用的标准样品是某公司生产的两个 ϕ 75 mm $\times$ 70 mm 圆柱型标准样品,其

表 1 标准样品参数

Table 1 Standard sample parameters

核素	能量 (keV)	半衰期 (d)	土壤		白藜麦	
			活度 (Bq)	扩展不确定度 (%) ^a	活度 (Bq)	扩展不确定度 (%) ^a
²⁴¹ Am	59.5	1.580×10^5	3.760×10^3	3.6	3.773×10^3	3.6
¹⁰⁹ Cd	88.0	4.614×10^2	3.425×10^4	4.6	3.437×10^4	4.6
⁵⁷ Co	122.1	2.71×10^2	8.857×10^2	3.5	8.886×10^2	3.5
¹³⁹ Ce	165.9	1.376×10^2	1.194×10^3	3.6	1.198×10^3	3.6
²⁰³ Hg	279.2	4.659×10^1	2.852×10^3	3.5	2.862×10^3	3.5
¹¹³ Sn	391.7	1.151×10^2	1.899×10^3	3.5	1.905×10^3	3.5
⁸⁵ Sr	514.0	6.485×10^1	3.176×10^3	3.5	3.187×10^3	3.5
¹³⁴ Cs	604.7	7.543×10^2	4.261×10^3	3.5	4.276×10^3	3.5
¹³⁷ Cs	661.7	1.099×10^4	1.003×10^3	3.5	1.006×10^3	3.5
¹³⁴ Cs	795.9	7.543×10^2	4.261×10^3	3.5	4.276×10^3	3.5
⁵⁴ Mn	834.8	3.121×10^2	2.382×10^3	3.3	2.389×10^3	3.3
⁸⁸ Y	898.0	1.066×10^2	4.366×10^3	3.3	4.381×10^3	3.3
⁶⁵ Zn	1 115.5	2.439×10^2	6.287×10^3	3.5	6.308×10^3	3.5
⁸⁸ Y	1 836.1	1.066×10^2	4.366×10^3	3.3	4.381×10^3	3.3

注:活度值参考日期为 2016 年 8 月 1 日; ^a 为 $k=2$

基质分别为土壤和白藜麦,其中土壤标准样品的密度为 1.00 g/cm³,其成分组成为 O (48.3%)、Si (42.33%)、Al (1.99%)、Fe (0.73%)、K (0.43%)、Ca (0.33%)、Ti (0.15%)、Mg (0.12%)、Na (0.12%)、Mn (0.12%)、S (0.06%)、P(0.05%)、Ba(0.03%)、Sr(0.01%)、其他 (5.23%)。白藜麦标准样品的密度为 0.85 g/cm³,其成分组成为 O (48.5%)、C (43.7%)、H(6.1%)、K(0.93%)、P(0.35%)、Mg(0.25%)、Ca(0.15%)、Fe(0.02%)。标准样品中所含的放射性核素及主要参数详见表 1。

3. 实验方法:根据文献报道,将样品置于距探测器表面相对远的位置测量,可以降低或消除级联符合相加效应的影响^[3-4]。本研究利用土壤和白藜麦两个标准样品,在 γ 能谱仪 (BE5030) 探测器表面 (近距离) 和距探测器表面 5、10、15 和 20 cm 的远距离处分别进行测量。采用 LabSOCS 无源效率刻度软件模拟生成的效率值,分别计算上述 5 个位置的测量结果,分析研究与标准样品活度值 (以下简称标准值) 的偏差,得出 LabSOCS 无源效率刻度软件在样品密度自吸收校正和级联符合相加校正的解决方案。另外,本研究中还利用宽能型高纯锗 γ 能谱仪 (BE5030),在探测器表面测量土壤标准样品的谱文件,采用 LabSOCS 无源效率软件模拟生成的白藜麦基质效率,去分析计算土样标准样品的活度,分析其结果与标准值的相对偏差,从另一角度以验证 LabSOCS 无源效率刻度软件对自吸收校正的效果。

4. 相对偏差的计算公式:LabSOCS 无源效率刻度软件的分析活度与标准值的相对偏差以百分数表示,其计算如公式 (1) 所示^[5]:

$$\text{相对偏差} = \frac{\text{分析活度} - \text{标准值}}{\text{标准品活度值}} \times 100\% \quad (1)$$

结 果

1. 近距离测量结果:采用 LabSOCS 无源效率软件分析的探测器表面测量结果及其与标准值的相对偏差详见表 2,3。由表 2,3 可知,宽能型高纯锗 γ 能谱仪 (BE5030) 在低能区的测量分析结果明显好于同轴 P-型高纯锗 γ 能谱仪 (GC3018),因此对于低能区的分析将重点以 γ 能谱仪 (BE5030) 的测量分析结果为主。另外,表 2, 3 中的共性问题是 ⁸⁵Sr、¹³⁴Cs 和 ⁸⁸Y 的结果,均与标准值偏差较大,以 γ 能谱仪 (BE5030) 近距离测量结果为例,¹³⁴Cs 与标准值

偏差范围在 -12.4% ~ -7.61%,⁸⁸Y 与标准值偏差范围在 -11.7% ~ -2.51%,⁸⁵Sr 与标准值偏差范围在 -11.8% ~ -6.64%,是值得进一步分析的重点。

表 2 γ 能谱仪 (BE5030) 近距离的样品测量

Table 2 Close distance measurement of samples using

核素	能量 (keV)	γ -spectrometry (BE5030)			
		土壤		白藜麦	
		分析活度 (Bq, A $\pm$ U)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 (Bq, A $\pm$ U)	与标准值相对偏差 (%)
²⁴¹ Am	59.5	(3.91 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	3.99	(3.63 $\pm$ 0.29) $\times 10^3$	-3.72
¹⁰⁹ Cd	88.0	(3.52 $\pm$ 0.28) $\times 10^4$	2.85	(3.30 $\pm$ 0.27) $\times 10^4$	-3.94
⁵⁷ Co	122.1	(9.19 $\pm$ 0.74) $\times 10^2$	3.74	(8.62 $\pm$ 0.70) $\times 10^2$	-3.04
¹³⁹ Ce	165.9	(1.20 $\pm$ 0.09) $\times 10^3$	0.64	(1.08 $\pm$ 0.09) $\times 10^3$	-9.52
²⁰³ Hg	279.2	(3.02 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	5.72	(2.83 $\pm$ 0.23) $\times 10^3$	-1.29
¹¹³ Sn	391.7	(2.04 $\pm$ 0.17) $\times 10^3$	7.64	(1.91 $\pm$ 0.15) $\times 10^3$	0.43
⁸⁵ Sr	514.0	(2.97 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	-6.64	(2.81 $\pm$ 0.23) $\times 10^3$	-11.80
¹³⁴ Cs	604.7	(3.91 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	-8.22	(3.75 $\pm$ 0.30) $\times 10^3$	-12.40
¹³⁷ Cs	661.7	(1.06 $\pm$ 0.08) $\times 10^3$	5.64	(1.01 $\pm$ 0.07) $\times 10^3$	0.44
¹³⁴ Cs	795.9	(3.94 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	-7.61	(3.77 $\pm$ 0.30) $\times 10^3$	-11.80
⁵⁴ Mn	834.8	(2.53 $\pm$ 0.20) $\times 10^3$	6.14	(2.38 $\pm$ 0.19) $\times 10^3$	-0.37
⁸⁸ Y	898.0	(4.26 $\pm$ 0.34) $\times 10^3$	-2.51	(3.98 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	-9.13
⁶⁵ Zn	1 115.5	(6.86 $\pm$ 0.55) $\times 10^3$	9.12	(6.43 $\pm$ 0.52) $\times 10^3$	1.89
⁸⁸ Y	1 836.1	(4.11 $\pm$ 0.33) $\times 10^3$	-5.81	(3.87 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-11.70

表 3 γ 能谱仪 (GC3018) 近距离的样品测量

Table 3 Close distance measurement of samples using

核素	能量 (keV)	γ -spectrometry (GC3018)			
		土壤		白藜麦	
		分析活度 (Bq, A $\pm$ U)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 (Bq, A $\pm$ U)	与标准值相对偏差 (%)
²⁴¹ Am	59.5	(3.45 $\pm$ 0.28) $\times 10^3$	-8.16	(3.25 $\pm$ 0.26) $\times 10^3$	-13.74
¹⁰⁹ Cd	88.0	(3.30 $\pm$ 0.27) $\times 10^4$	-3.53	(3.04 $\pm$ 0.25) $\times 10^4$	-11.53
⁵⁷ Co	122.1	(8.76 $\pm$ 0.71) $\times 10^2$	-1.04	(8.19 $\pm$ 0.66) $\times 10^2$	-7.80
¹³⁹ Ce	165.9	(1.21 $\pm$ 0.10) $\times 10^3$	1.50	(1.12 $\pm$ 0.09) $\times 10^3$	-6.58
²⁰³ Hg	279.2	(2.92 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	2.32	(2.69 $\pm$ 0.22) $\times 10^3$	-5.98
¹¹³ Sn	391.7	(1.95 $\pm$ 0.16) $\times 10^3$	2.66	(1.84 $\pm$ 0.15) $\times 10^3$	-3.52
⁸⁵ Sr	514.0	(2.99 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	-5.90	(2.75 $\pm$ 0.22) $\times 10^3$	-13.84
¹³⁴ Cs	604.7	(3.81 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-10.68	(3.63 $\pm$ 0.29) $\times 10^3$	-15.21
¹³⁷ Cs	661.7	(1.02 $\pm$ 0.07) $\times 10^3$	1.35	(9.65 $\pm$ 0.70) $\times 10^2$	-4.12
¹³⁴ Cs	795.9	(3.80 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-10.89	(3.63 $\pm$ 0.29) $\times 10^3$	-15.09
⁵⁴ Mn	834.8	(2.41 $\pm$ 0.20) $\times 10^3$	1.36	(2.27 $\pm$ 0.18) $\times 10^3$	-5.10
⁸⁸ Y	898.0	(4.11 $\pm$ 0.33) $\times 10^3$	-5.92	(3.86 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-11.85
⁶⁵ Zn	1 115.5	(6.59 $\pm$ 0.53) $\times 10^3$	4.77	(6.16 $\pm$ 0.50) $\times 10^3$	-2.31
⁸⁸ Y	1 836.1	(3.89 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-10.96	(3.67 $\pm$ 0.30) $\times 10^3$	-16.23

2. 远距离测量结果:采用无源效率分析的远距离测量结果及其与标准值的相对偏差分别列于表 4,5。表中还同时列出了 ⁸⁵Sr 在相应位置的测量结

表 4 γ 能谱仪 (BE5030) 远距离土壤样品测量

Table 4 Long distance measurement of soil samples using γ -spectrometry (BE5030)

核素	能量 (keV)	距探头表面 5 cm		距探头表面 10 cm		距探头表面 15 cm		距探头表面 20 cm	
		分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)
^{85}Sr	514.0	2.32 $\pm$ 0.20	-26.90	1.99 $\pm$ 0.19	-37.20	1.91 $\pm$ 0.17	-40.00	1.69 $\pm$ 0.16	-46.70
^{134}Cs	604.7	4.36 $\pm$ 0.32	2.32	4.42 $\pm$ 0.32	3.66	4.47 $\pm$ 0.33	4.99	4.41 $\pm$ 0.32	3.48
^{134}Cs	795.9	4.39 $\pm$ 0.32	3.01	4.41 $\pm$ 0.32	3.41	4.48 $\pm$ 0.33	5.13	4.44 $\pm$ 0.32	4.21
^{88}Y	898.0	4.37 $\pm$ 0.32	0.09	4.36 $\pm$ 0.32	-0.06	4.40 $\pm$ 0.32	0.82	4.39 $\pm$ 0.32	0.47
^{88}Y	1 836.1	4.16 $\pm$ 0.31	-4.78	4.15 $\pm$ 0.31	-5.03	4.20 $\pm$ 0.31	-3.89	4.20 $\pm$ 0.31	-3.92

表 5 γ 能谱仪 (BE5030) 远距离白藜麦样品测量

Table 5 Long distance measurement of white quinoa samples using γ -spectrometry (BE5030)

核素	能量 (keV)	距探头表面 5 cm		距探头表面 10 cm		距探头表面 15 cm		距探头表面 20 cm	
		分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 ($\times 10^3$ Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)
^{85}Sr	514.0	2.23 $\pm$ 0.20	-30.20	2.12 $\pm$ 0.20	-33.55	1.92 $\pm$ 0.17	-39.90	1.55 $\pm$ 0.14	-51.50
^{134}Cs	604.7	4.36 $\pm$ 0.32	1.87	4.36 $\pm$ 0.32	1.92	4.42 $\pm$ 0.32	3.28	4.32 $\pm$ 0.32	1.11
^{134}Cs	795.9	4.37 $\pm$ 0.32	2.29	4.43 $\pm$ 0.32	3.53	4.43 $\pm$ 0.32	3.49	4.36 $\pm$ 0.32	1.95
^{88}Y	898.0	4.48 $\pm$ 0.33	2.33	4.47 $\pm$ 0.33	2.14	4.48 $\pm$ 0.33	2.32	4.34 $\pm$ 0.32	-0.99
^{88}Y	1 836.1	4.26 $\pm$ 0.32	-2.76	4.36 $\pm$ 0.32	-0.56	4.26 $\pm$ 0.31	-2.76	4.21 $\pm$ 0.31	-3.84

果。由表 4,5 可知,加大测量样品与探测器间的距离后, ^{134}Cs 和 ^{88}Y 的分析结果与标准值相对偏差明显缩小,最大偏差仅为 5.13%。但从 ^{85}Sr 的分析结果可以看出,随着样品与探测表面的距离增加,其与标准值相对偏差也逐渐增大。

3. 近距离和远距离测量结果比较:通过表 2 与表 4,5 的结果比较可知, ^{134}Cs 和 ^{88}Y 在探测器表面测量和距探测器表面 5、10、15 和 20 cm 处的测量分析结果与标准值偏差相比,探测器表面测量分析结果的偏差明显大于远距离测量分析结果的偏差。土壤和白藜麦标准样品中 ^{134}Cs 与标准值偏差的最大值从 12.4% 下降到 5.13%。土壤和白藜麦标准样品中 ^{88}Y 与标准值偏差的最大值从 11.7% 下降到 5.03%。 ^{85}Sr 在探测器表面测量和距探测器表面 5、10、15 和 20 cm 处测量分析结果与标准值相对偏差随着与探测器表面距离的增加而不断增大。土壤样品中 ^{85}Sr 与标准值的偏差从近距离的 -6.64% 增大到了 -26.9%、-37.2%、-40.0%、-46.7%;白藜麦样品中 ^{85}Sr 与标准值的偏差从近距离的 -11.8% 增大到了 -30.2%、-33.55%、-39.9%、-51.5%。

4. 不同基质的无源效率分析结果:计算结果详见表 6。由表 6 可知,利用 LabSOCS 模拟生成不同基质效率计算的核素活度,与相同基质模拟效率计算的相比,低能区核素 (^{241}Am 和 ^{109}Cd) 与标准值相

表 6 LabSOCS 模拟生物基质效率对土壤样品的分析结果

Table 6 Analytical results of soil samples using LabSOCS-simulated biomaterial efficiency

核素	能量 (keV)	LabSOCS 模拟生成白藜麦基质效率分析土壤样品		LabSOCS 模拟生成土壤基质效率分析土壤样品	
		分析活度 (Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)	分析活度 (Bq, $A \pm U$)	与标准值相对偏差 (%)
^{241}Am	59.5	(3.29 $\pm$ 0.27) $\times 10^3$	-12.50	(3.91 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	3.99
^{109}Cd	88.0	(3.28 $\pm$ 0.27) $\times 10^4$	-4.14	(3.52 $\pm$ 0.28) $\times 10^4$	2.85
^{57}Co	122.1	(8.80 $\pm$ 0.71) $\times 10^2$	-0.61	(9.19 $\pm$ 0.74) $\times 10^2$	3.74
^{139}Ce	165.9	(1.16 $\pm$ 0.09) $\times 10^3$	-2.53	(1.20 $\pm$ 0.09) $\times 10^3$	0.64
^{203}Hg	279.2	(2.95 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	3.32	(3.02 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	5.72
^{113}Sn	391.7	(2.00 $\pm$ 0.16) $\times 10^3$	5.50	(2.04 $\pm$ 0.17) $\times 10^3$	7.64
^{85}Sr	514.0	(2.91 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	-8.31	(2.97 $\pm$ 0.24) $\times 10^3$	-6.64
^{134}Cs	604.7	(3.85 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-9.76	(3.91 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	-8.22
^{137}Cs	661.7	(1.04 $\pm$ 0.08) $\times 10^3$	3.93	(1.06 $\pm$ 0.08) $\times 10^3$	5.64
^{134}Cs	795.9	(3.88 $\pm$ 0.31) $\times 10^3$	-8.99	(3.94 $\pm$ 0.32) $\times 10^3$	-7.61
^{54}Mn	834.8	(2.49 $\pm$ 0.20) $\times 10^3$	4.58	(2.53 $\pm$ 0.20) $\times 10^3$	6.14
^{88}Y	898.0	(4.20 $\pm$ 0.34) $\times 10^3$	-3.89	(4.26 $\pm$ 0.34) $\times 10^3$	-2.51
^{65}Zn	1 115.5	(6.77 $\pm$ 0.55) $\times 10^3$	7.72	(6.86 $\pm$ 0.55) $\times 10^3$	9.12
^{88}Y	1 836.1	(4.07 $\pm$ 0.33) $\times 10^3$	-6.80	(4.11 $\pm$ 0.33) $\times 10^3$	-5.81

对偏差增大,特别是 ^{241}Am 与标准值的相对偏差增大明显。

讨 论

本研究中所用两台 γ 谱仪,一台为同轴 P-型高纯锗 γ 能谱仪 (GC3018),另一台为宽能型高纯锗 γ 能谱仪 (BE5030)。两台设备相比较,宽能型高纯锗

探测器在低能区域比同轴 P 型相同效率探测器具有更高的探测效率,且宽能型高纯锗探测器低能区域本底低于同样效率的同轴 P 型高纯锗探测器^[6],这些都说明 BE5030 型高纯锗 γ 能谱仪低能端性能更优,因此,本研究在低能区自吸收效应的活度分析中,主要采用了宽能型高纯锗 γ 能谱仪(BE5030)的数据。从 γ 能谱仪(BE5030)探测器表面的样品测量结果来看,LabSOCS 无源效率刻度模拟计算的土壤和白藜麦两个标准样品中低能核素²⁴¹Am 和¹⁰⁹Cd 的最大相对偏差 <4%,其结果是令人满意的。说明 LabSOCS 无源效率刻度软件通过对样品的成分、密度等信息的精准输入,能够灵活的针对不同成分、密度的样品给出较为精准的效率,可以较好地解决有源刻度中样品的自吸收校正问题。

GB/T 16145-1995《生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法》^[4]中建议,当分析样品的基质组成和刻度用的 γ 源基质组成不一样,造成装样质量密度与刻度源的质量密度差别很大时,它们之间的 γ 射线自吸收差别不能忽视。本研究中所用的土壤和白藜麦两个标准样品的样品基质不同,且装样的质量密度存在一定差别,分别为 1.00 和 0.85 g/cm³。这两个样品的 γ 射线自吸收存在一定差别。在实际样品测量过程中,任何能量的 γ 射线都会存在自吸收效应,但低能部分的自吸收要远大于高能部分^[7],即 γ 射线能量越低,其受自吸收效应的影响越严重。本研究中采用 LabSOCS 无源效率刻度软件模拟生成的白藜麦基质效率,去分析计算土壤基质标准样品的结果也正说明了这一点,特别是低能区²⁴¹Am 的结果,其与标准值的相对偏差比相同基质模拟结果的相对偏差增大了 3 倍以上。

根据土壤和白藜麦两个标准样品置于 γ 能谱仪(BE5030)探测器表面测量结果,采用 LabSOCS 无源效率分析的活度与标准值相对偏差 >10% 的核素是白藜麦样品中的⁸⁵Sr、¹³⁴Cs 和⁸⁸Y,土壤样品中这 3 个核素的相对偏差虽未超过 10%,但其偏差也在 6%~9% 之间。

根据两个标准样品置于 γ 能谱仪(GC3018)探测器表面测量结果,采用 LabSOCS 无源效率分析的活度与标准值相对偏差 >10% 的核素是白藜麦样品中的²⁴¹Am、¹⁰⁹Cd、⁸⁵Sr、¹³⁴Cs、⁸⁸Y,和土壤样品中的¹³⁴Cs、⁸⁸Y。排除 P-型高纯锗 γ 能谱仪(GC3018)在低能区的测量分析效果不佳的原因,从测量结果的分析可以看出,两台 γ 能谱仪探测器表面测量

中,较为共性问题,是采用 LabSOCS 无源效率分析的活度在⁸⁵Sr、¹³⁴Cs 和⁸⁸Y 3 个核素的分析上相对偏差较大。分析其原因主要是由于¹³⁴Cs 和⁸⁸Y 受级联符合相加效应影响严重,LabSOCS 无源效率刻度方法无法直接解决受级联符合相加效应对核素分析结果的影响。⁸⁵Sr 相对偏差较大的原因主要是由于其特征峰能量在 514 keV,与谱中已有的 511 keV 正电子湮灭峰相邻,二者的在峰面积计数上有一定影响。

为了进一步研究 LabSOCS 无源效率刻度在级联符合相加效应方面的应用,本研究中将样品又分别置于距探测器表面 5、10、15 和 20 cm 处进行测量,并将⁸⁵Sr、¹³⁴Cs 和⁸⁸Y 在远近距离上的测量分析结果进行了比较。从中可以看出,两个样品中¹³⁴Cs 和⁸⁸Y 在探测器表面测量分析结果与标准值的相对偏差,明显大于距探测器表面 5、10、15 和 20 cm 处测量分析结果与标准值的相对偏差。实验结果表明,置于距探测器表面 5 cm 处就可以降低符合相加效应的影响。但从⁸⁵Sr 的测量结果可以看出,测量位置距探测器表面越远,⁸⁵Sr 分析结果与标准值的相对偏差越大。其原因主要是⁸⁵Sr 分析的特征峰计数受 511 keV 正电子湮灭峰的干扰,⁸⁵Sr 计数越少影响越明显。在标准样品中⁸⁵Sr 的活度(2016 年 8 月 1 日)在 10³Bq 量级,但由于其半衰期较短(64.85 d),到开展远距离测量实验时,已经是 4 个半衰期以后了,其活度已经衰减至 200 Bq 以下。在此量级的活度情况下,将样品置于探测器的远距离测量,等于人为的降低了样品中⁸⁵Sr 的计数,使得 511 keV 正电子湮灭峰的干扰效果变大。这就从另一个角度提示,当采用置于距探测器远的位置上测量样品时,应综合考虑样品中核素的活度水平,特别是对于原本可能存在干扰的特征峰进行分析时,就更要慎重。可以采用同一样品,远近距离测量结果相结合的方式,对不同的核素,选择不同位置的测量谱进行分析,但这实际上给效率刻度的灵活性提出了更高的要求。

本研究表明,LabSOCS 无源效率刻度软件通过对样品的精准描述,可以较好的解决有源刻度中,样品的自吸收校正问题。但当分析带有级联辐射的核素时,仍需对符合相加效应加以考虑。可以利用 LabSOCS 灵活的软件模拟方式,增加带有级联核素样品到探测器的距离,完成级联核素的精准测量。

利益冲突 本文由署名作者按以下贡献声明独立开展,不涉及各相关方的利益冲突

作者贡献声明 周强负责测量结果的计算和分析、论文撰写和修改;拓飞负责论文审阅;姚书墨、张京负责样品测量;李文红、李则书负责数据处理

参 考 文 献

- [1] 国家质量监督检验检疫总局. GB/T 11713-2015 高纯锗 γ 能谱分析通用方法[S]. 北京:中国标准出版社,2015.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. GB/T 11713-2015 General analytical methods of high-purity germanium gamma spectrometer[S]. Beijing: Standards Press of China,2015.
- [2] 李奇,王世联,樊元庆,等. 无源效率刻度在活度测量中的应用研究[J]. 核电子学与探测技术,2013,33(5):568-571. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2013.05.011.
Li Q, Wang SL, Fan YQ, et al. Application of sourceless efficiency calibration in activity measurement [J]. Nucl Elect Detect Technol, 2013, 33(5):568-571. DOI:10.3969/j.issn.0258-0934.2013.05.011.
- [3] Ródenas J, Gallardo S, Ortiz J. Comparison of a laboratory spectrum of Eu-152 with results of simulation using the MCNP code [J]. Nucl Instruments Methods Phys Res, 2007, 580(1):303-

305. DOI: 10.1016/j.nima.2007.05.162.
- [4] 中华人民共和国卫生部. GB/T 16145-1995 生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法[S]. 北京:中国标准出版社,1996.
Ministry of Health, P. R. China. GB/T 16145-1995 Gamma spectrometry method of analysing radionuclides in biological samples[S]. Beijing: Standards Press of China,1996.
- [5] Tuo F, Zhang Q, Zhang J, et al. Inter-comparison exercise for determination of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soil and building material [J]. Appl Radiat Isot, 2010, 68(12):2335-2338. DOI: 10.1016/j.apradiso.2010.04.023.
- [6] 钱大可,徐向军. 高纯锗谱仪的发展动态与测量应用[C]. 第11届全国核电子学与核探测技术学术年会,厦门,2002.
Qian DK, Xu XJ. The latest advances in HPGc spectrometer and its applications[C]. Proceedings of the 11th National Conference on Nuclear Electronics & Nuclear Detection Technology, Xiamen, 2002.
- [7] 王瑞俊,段媛媛. 样品自吸收对 γ 谱测量结果的影响[J]. 核电子学与探测技术,2012,32(4):446-448. DOI:10.3969/j.issn.0258-0934.2012.04.017.
Wang RJ, Duan YY. Sample self-absorption effect in γ spectrum measurement[J]. Nucl Electron Detect Technol, 2012, 32(4):446-448. DOI:10.3969/j.issn.0258-0934.2012.04.017.

(收稿日期:2017-10-23)

· 读者 · 作者 · 编者 ·

本刊关于正文的有关规范

1. 临床试验研究应说明试验程序是否经所在单位或地区伦理学相关机构的批准,研究对象或其亲属是否知情同意并签署知情同意书。前瞻性临床试验必须提供临床试验注册号。

2. 观察对象为患者时,需注明病例和对照者来源、选择标准及一般情况等,必要时还应说明剔除标准。临床随机对照研究应交待干预方法的设计(随机方法)和所采用的盲法。研究对象为实验动物时,需注明动物的名称、种系、等级、数量、来源、性别、年龄、体重、饲养条件和健康状况等,并说明是否经过所在科研机构实验动物伦理委员会批准。

3. 药品及化学试剂必须使用通用名称,并注明剂量、单位、纯度、批号、生产单位和生产时间。确需使用商品名时,例如新药的临床试验研究,应在其通用名称后的括号内注明商品名及生产厂家。以药材研究为主题的论文,应注明药材的拉丁学名、鉴定人姓名及其工作单位。仪器、设备应注明名称、型号、规格、生产单位、精密度或误差范围,无需描述工作原理。

4. 应明确描述研究设计的名称和主要做法。调查设计应阐明是前瞻性、回顾性还是横断面调查研究;实验设计应描述具体的设计类型,如属于自身配对设计、成组设计、交叉设计、析因设计或正交设计等;临床试验设计应说明属于第几期临床试验、采用了何种盲法措施、受试对象的纳入和剔除标准等。应阐明如何控制重要的非试验因素的干扰和影响。描述统计学方法及其选择依据,并说明所使用的统计学软件。

5. 结果:结果的叙述不应与讨论内容相混淆。若文稿有图表,正文不需复述全部数据,只需简述主要发现或数据。一般应对所得数据进行统计学处理,并给出具体的统计值。例如: $t=2.85, P<0.01$ 。

6. 讨论:着重讨论研究结果创新及从中得出的结论,包括理论意义、实际应用价值、局限性及其对进一步研究的启示。如果不能得出结论,也可通过讨论提出建议、设想、改进意见或待解决的问题等。应将本研究结果与其他有关的研究相比较,并将本研究结论与目的联系起来讨论。不必重述已在前言和结果部分叙述过的数据或资料,不要过多罗列文献,避免做不成熟的主观推断,讨论部分一般不应列图表。

7. 文末须给出利益冲突和作者贡献声明。

(本刊编辑部)