分析低含量铀、钍的γ譜法研究

夏　明　宗普和　吳书本

γ譜法是測定放射性元素含量的物理方法之一。它是依据欲測对象的特征γ譜，选用譜线强度差异大的能量区间，组合出对应方程式，用标准源預先測定出方程组的系数，通过γ能譜仪的微分測量，得出欲求对象在相应能量区间譜线强度，进而计算其含量。

本文根据天然鈾系和钍系γ譜的特征能量区间，组成了7个方案，做了比较，着重地研究了样品中有效原子序数和钍鈾比值对选用方案分析结果的影响。

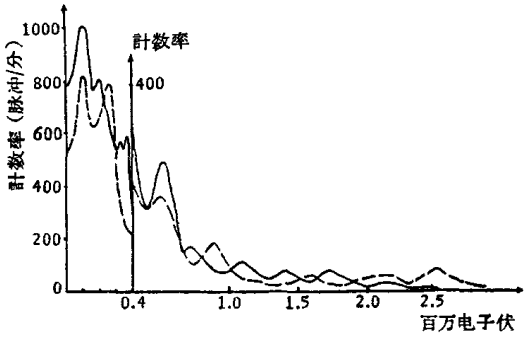


图1　鈾系和钍系的γ譜

——— 鈾镭平衡系的γ譜

------ 钍系的γ譜

高能、低能γ譜7个方案的比较

选择鈾、钍γ譜的特征能量区间是γ譜法的最根本的一环，是提高方法灵敏度和精确度的主要关键。

鈾系和钍系的γ譜（图1）是由装有NaJ(Tl)晶体的SGXA-2型单道闪烁能譜仪測绘的。就其譜线的特点而言，高能范围內(大于400千电子伏)可以组成3个实验方案，而低能范围內可以组成4个方案（表1）。每个方案中鈾、钍含量分别通过方程组(1)计算得出：

$$\left.\begin{aligned} a_{11}U + a_{12}Th &= g_1 \\ a_{21}U + a_{22}Th &= g_2 \end{aligned}\right\} \text{或者} \left.\begin{aligned} U + \frac{a_{12}}{a_{11}}Th &= \frac{g_1}{a_{11}} \\ U + \frac{a_{12}}{a_{11}}KTh &= \frac{g_2}{a_{21}} \end{aligned}\right\} \quad (1)$$

式中U、Th分别为相应元素的含量(%)；a_{11},a_{12}和

表1　γ譜7个方案的比较

方案		能量区间(百万电子伏)				系数（脉冲/分/10^{-4}%U和Th）				区分系数	本底（脉冲/分）		精确度为±10%所需测量时间(分)	
		U		Th										
范围	编号	上限	下限	上限	下限	a_{11}	a_{12}	a_{21}	a_{22}	K	U	Th	U 5×10^{-4}%	Th 10^{-3}%
高能	1	0.56	0.77	2.3	3.0	3.69	1.39	0.0273	0.247	24.02	76.0	26.2	660	980
	2	1.05	1.40	2.3	3.0	1.78	1.01	0.0273	0.247	15.94	64.6	26.2	1480	1040
	3	1.68	2.03	2.3	3.0	0.66	0.28	0.0273	0.247	21.33	14.6	26.2	960	990
低能	1	0.064	0.095	0.207	0.256	5.42	2.38	5.76	3.70	1.46	29.6	54.4	255	225
	2	0.122	0.201	0.207	0.256	11.54	4.77	5.76	3.70	1.56	107.0	54.4	114	144
	3	0.274	0.366	0.207	0.256	9.76	2.60	5.76	3.70	2.41	70.0	54.4	44	52
	4	0.330	0.373	0.207	0.256	4.41	1.04	5.76	3.70	2.72	28.6	54.4	51	60

a_{21}，a_{22} 分别为单位含量鈾、釷在鈾能量区间和釷能量区间的计数率；g_1 和 g_2 为鈾和釷能量区间的谱线强度；$K=\frac{a_{22}/a_{21}}{a_{12}/a_{11}}$ 为区分系数。

方程组(1)中，4个系数可用区分系数来概括，区分系数的大小取决于选用的能量区间和仪器的参量，K 值愈大，方程式组的解愈稳定。方程式自由项是表示某一能量区间的谱线强度，g 愈稳定、愈大，测量结果愈精确、分析效率愈高。这两条构成了考查方案适用性的依据。

实验表明，这两个因素是相互制约的：以高能方案为例，区分系数大者，谱线强度极小，给实际测量带来了困难。相反，低能方案中谱线强度虽高，但区分系数则低，鈾、釷的分析结果必将严重地相互干扰。为此，比较方案的任务是选择出有较高谱线强度和较大区分系数的实验方案。

从表1可以看出，高能3个方案的共同点是区分系数很大，界于 16—24 之间，谱线强度低，本底高。为了保証测量精确度在 ±10% 以内，测鈾含量为 5×10^{-4}% 的时间需 12—24 小时；而测釷（10^{-3}%）将近 15 小时。这样长时间的测量，要求测试仪器有良好的稳定性和十分固定的测量条件。低能四个方案中谱线强度较高，大大缩短了测量时间，不仅减低了对仪器稳定性的要求，而且也提高了分析效率。但区分系数略低。从上述考虑出发，低能第三、四方案较适宜分析工作。

4个样品的分析(表2)进一步表明，第三、四方案所测得数值是十分接近的，其测量均方誤差在 ±5% 以内，而第一、二方案的结果普遍偏高，其均方誤差一般大于 ±10%。

表2　4个样品分析结果

样品号 / 方案编号	17058		17065		17077		17083-1	
	U 10^{-4}%	Th 10^{-3}%	U 10^{-4}%	Th 10^{-3}%	U 10^{-4}%	Th 10^{-3}%	U 10^{-4}%	Th 10^{-3}%
1	7.40	2.81	5.60	3.18	7.85	2.80	7.62	2.16
2	7.80	2.84	6.15	3.13	8.60	2.63	7.85	2.18
3	7.44	2.85	5.67	3.21	7.30	2.94	6.73	2.23
4	7.37	2.85	5.56	3·23	7.15	3.04	6.41	2.18

综上所述，低能第三、四方案对于分析低含量鈾、釷是适合的。

样品有效原子序数和釷鈾比值对分析结果的影响

样品的有效原子序数和釷鈾比值是 γ 谱法主要影响因素，是考查方法适用范围和精确度的主要环节。

天然放射性系列的 γ 射线（最大能量小于 3 个百万电子伏）与岩石物质作用（平均有效原子序数近于 14）以康普頓散射和光电吸收为主，这些效应发生规模的大小与样品的成分有紧密关系。因此，有效原子序数势必给分析结果带来影响。另一方面，核衰变是具有统计规律的，测试的方式和条件受一定的限制。因而在有限测量时间内和尽可能固定测量条件之下，分析本身必会产生一定的誤差。重量为 500 克的样品，其有效原子序数对低能四个方案究竟产生多大影响，是十分值得研究，并得出对

表3　不同有效原子序数对低能 γ 谱方案分析结果的影响

方案编号	配制U含量 10^{-2}%	$\bar{Z}_{有效}=9.6$		$\bar{Z}_{有效}=13.4$		$\bar{Z}_{有效}=18.1$	
		实测U10^{-2}%	相对误差%	实测U10^{-2}%	相对误差%	实测U10^{-2}%	相对误差%
1	5.75	5.85	+1.74	5.62	−8.51	3.27	−43.10
2	5.75	5.30	−7.83	5.60	−2.61	6.66	+15.80
3	5.75	5.73	−0.35	5.75	0.00	5.91	+ 2.78
4	5.75	5.48	−4.70	5.57	−3.13	5.62	− 2.26

应的结论。

样品是人工方法配制的。实验结果列入表 3。

从分析结果看出，80 千电子伏区间內（第一方案），原子序数大者，实测鈾含量比配制的低43%，相反，原子序数小者，结果则偏高；180 千电子伏区间內的情况与80千电子伏的情况相反；大于 200 千电子伏的范围內（第三、四方案），实测鈾含量与配制量近似，其相对誤差在 ±5% 以內。

为了解释上述实验现象，测绘了 3 个不同原子序数样品的γ谱（图 2）。十分明显，在 80 千电子

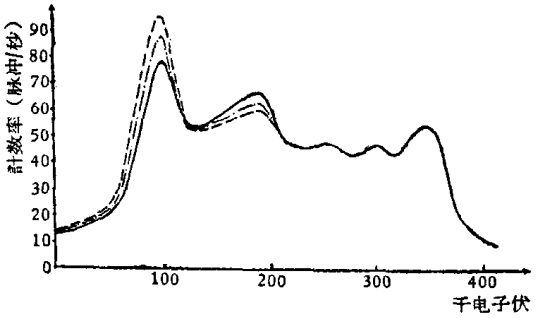


图 2　鈾镭系在不同有效原子序数的样品中的低能γ谱
------ 有效原子序数 $\bar{Z}_{有效}=9.6$
-·-·- 有效原子序数 $\bar{Z}_{有效}=13.4$
——— 有效原子序数 $\bar{Z}_{有效}=18.1$

伏区间內，光电吸收起主导作用，与原子序数 4 次方成正比。因此，随着原子序数的增大，谱线强度下降；在 180 千电子伏区间內，反散射效应起主要作用，并随原子序数的增大而加强，故谱线强度升高；不同原子序数的样品在大于 200 千电子伏的γ谱十分吻合，测量结果也十分相近。

鈰鈾比值大小是反映样品中两组份变化范围，与区分系数有直接关系。它不仅限定了方法的应用范围，同时也检验了方法的精确度。

样品中鈰鈾比值是人工方法配制的，由 1 调配至 10。先后用第三、四方案进行了测定（图 3）。从图中看出，第三方案测得结果在 Th/U 大于 4 时，2 与配制值有较大偏差。在 Th/U 为 10 时，其相对

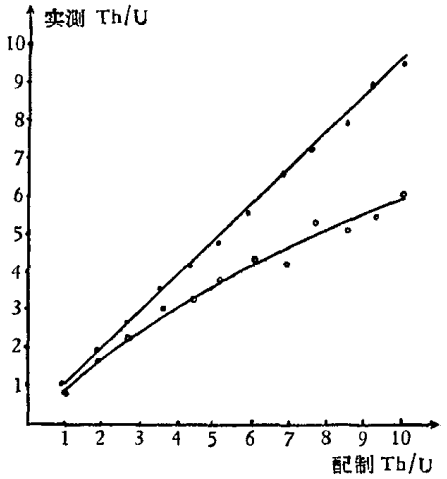


图 3　Th/U 比值对测量结果的影响
——— 第 4 方案测量的数据
-·-·- 第 3 方案测量的数据

誤差可达53%。实测鈾含量偏高是由于所选用的鈾能量区间过大引起的。第四方案测得数据在 Th/U 由 1 至 10 之间，与配制值的相对誤差仅在 ±5% 以內。

結　果

在配备适用的仪器和固定测量条件的情况下，选用γ谱的高能范围来分析低含量的鈾和鈰将大有前途。目前，低能γ谱仍是测定低含量鈾和鈰的主要能量范围。

在重量为 500 克的样品中，样品中有效原子序数对低能γ谱第三、四方案无实际影响。鈰鈾比自 1 至 10 对第四方案所分析结果的影响可以忽略。

由此可见，低能γ谱第四方案是较为理想的方案，对于重量为500 克，鈾鈰含量均大于 $n\times10^{-4}$%，鈰鈾比值界于 1 和 10 之间的样品，60 分钟的测量时间，可以控制精确度在 ±10% 以內。此外，这种方法效率高，成本底（不经预先化学处理），是测定各种岩石粉末低含量鈾和鈰较适合的方法，是值得推荐的一种方法。