

^{60}Co 辐照装置启用前的剂量率测量

吴智力 谢雷东 林维真 李乃宁 陈新薇

(中国科学院上海原子核研究所)

摘要 在重新换装的 $4.44 \times 10^{15} \text{Bq } ^{60}\text{Co}$ γ 辐照装置启用以前, 研究了准确测量剂量率的有关问题。在实验条件下给硫酸亚铁和硫酸铈剂量计“标准化”, 并研究它们测量值的精密度。将数据处理统计学方法应用在本工作中。给出了剂量率分布曲线。

关键词 硫酸亚铁剂量计; 硫酸铈剂量计; 数理统计; 剂量率测量; 剂量率分布曲线。

引言

在我所重新换装的 $4.44 \times 10^{15} \text{Bq } ^{60}\text{Co}$ γ 辐照装置启用之前, 我们研究了如何用硫酸亚铁和硫酸铈剂量计准确测量剂量率, 其主要内容包括: (1) 在工作条件下给剂量计“标准化”, 并研究它们测量值的精密度; (2) 在剂量率测量中如何应用数理统计方法; (3) 在上述基础上给出辐照装置径向位置上剂量计的吸收剂量率数据和垂直及园周方向上剂量计吸收剂量率分布曲线。

实验方法

1. 水和试剂

水: 经过多次重蒸馏处理(末二级蒸馏器及储水瓶均用石英材料制备); 硫酸亚铁铵: AR 级试剂再经两次重结晶; 氯化钠和硫酸均为 GR 级试剂; 硫酸铈和硫酸亚铈均为 AR 级试剂。

2. 剂量计溶液配制

按本实验室常规方法配制^[1~3]

3. 仪器

岛津 UV-210 A 双光束分光光度计; 一对 1 cm 匹配的石英吸收池。

4. 样品分析

硫酸亚铁剂量计溶液辐照后, 以未辐照的溶液作参比, 在波长 303 nm 处, 恒温(25℃)测其光密度; 辐照前或辐照后的硫酸铈剂量计溶液, 用 0.4 M H_2SO_4 溶液稀释适当倍数, 在波长 320 nm 处, 以 0.4 M H_2SO_4 溶液作参比, 测其光密度。

5. 辐照装置

12 支 $\phi 20 \times 27$, 强度约为 $3.7 \times 10^{14} \text{Bq}$ 的 ^{60}Co γ 元件排列成 $\phi 100$ 的园柱笼形, 在工作状态时, 源外套有不锈钢的护源罩和水冷却套。

6. 计时设备

石英电子时间控制器和 50 周率(1 小时)定时仪。

李乃宁同志现在江苏省农科院原子能农业利用研究所

实验结果

1. 剂量计“标准化”和测量值的精密度

(1) 硫酸亚铁剂量计 ① $G(\text{Fe}^{3+})$ 值 采用 ICRU 推荐值^[4] 15.5 ± 0.2 离子/100 eV。

② $\epsilon(\text{Fe}^{3+})$ 值测定 按文献^[5]所述方法配制一系列不同浓度(其光密度值控制在 0.2~1.0 之间)的 Fe^{3+} 标准溶液, 恒温 $25 \pm 0.1^\circ\text{C}$ 测其光密度。用回归分析方法求得 $\epsilon(\text{Fe}^{3+})$ 值。十四次重复实验的结果是在 95% 置信概率下 $\epsilon(\text{Fe}^{3+})$ 平均值的置信区间为 $217 \pm 0.24 \text{ m}^2 \cdot \text{mol}^{-1}$ 。其中一次实验所得回归系数标准差(S_b)、常数项标准差(S_a)和线性相关系数(r)各自为 2.10×10^{-3} , 7.35×10^{-4} 和 1.000。其它各次实验可靠程度也基本与此相同。

③ 测量值的精密度 在辐照场四个固定位置上, 多次重复照射硫酸亚铁剂量计, 所得测量值的变异系数分别为 0.34%, 0.34%, 0.33%, 0.22% (相应的平均吸收剂量依次等于 67 Gy, 152 Gy, 257 Gy, 361 Gy; 自由度各自为 15, 14, 15, 14; 用 Grubbs 方法判别异常数据)。

④ 吸收剂量测量值总不确定度估算 按文献^[6]所述方法估算, 本工作中使用的硫酸亚铁剂量计吸收剂量测量值总不确定度为 1.67%。

(2) 硫酸铈剂量计 ① 校准曲线及其回归方程 在已用硫酸亚铁剂量计准确标定过剂量率

的位置上照射硫酸铈剂量计溶液, 测其辐照前后光密度差值 ΔA 。将 ΔA 对吸收剂量 D (Fricke 剂量计体系, Gy) 作图得一直线(见图 1)。用回归分析方法求得该直线方程为

$$D = 7.09 \times 10^2 \Delta A - 24.7 \quad (1)$$

它的线性相关系数 $r = 0.9997$ 。在 95% 置信概率下, ΔA_1 等于 1.60 和 16.0 相对应 D_1 的估量值 $\hat{D}$ 的置信界限 (95%, $f = 21$) 分别为 $1.110 \times 10^3 \pm 57.6$ (Gy) 和 $1.132 \times 10^4 \pm 83$ (Gy)。

② 测量值的精密度 在辐照场四个固定位置上, 多次重复照射组成各自为 $6 \times 10^{-4} \text{ M Ce}^{4+} \sim 4 \times 10^{-3} \text{ M Ce}^{3+}$, $3 \times 10^{-3} \text{ M Ce}^{4+} \sim 4 \times 10^{-3} \text{ M Ce}^{3+}$, $6 \times 10^{-3} \text{ M Ce}^{4+} \sim 4 \times 10^{-3} \text{ M Ce}^{3+}$ 的硫酸铈 ($0.4 \text{ M H}_2\text{SO}_4$) 溶液剂量计, 所得测量值的变异系数分别为 0.90%, 0.81%, 1.18%, 0.86% (相应的平均吸收剂量依次等于 1.67×10^3 Gy, 4.31×10^3 Gy, 5.75×10^3 Gy, 1.21×10^4 Gy; 自由度各自为 8, 9, 15, 15; 用 Grubbs 方法判别异常数据)。

2. 径向剂量率分布

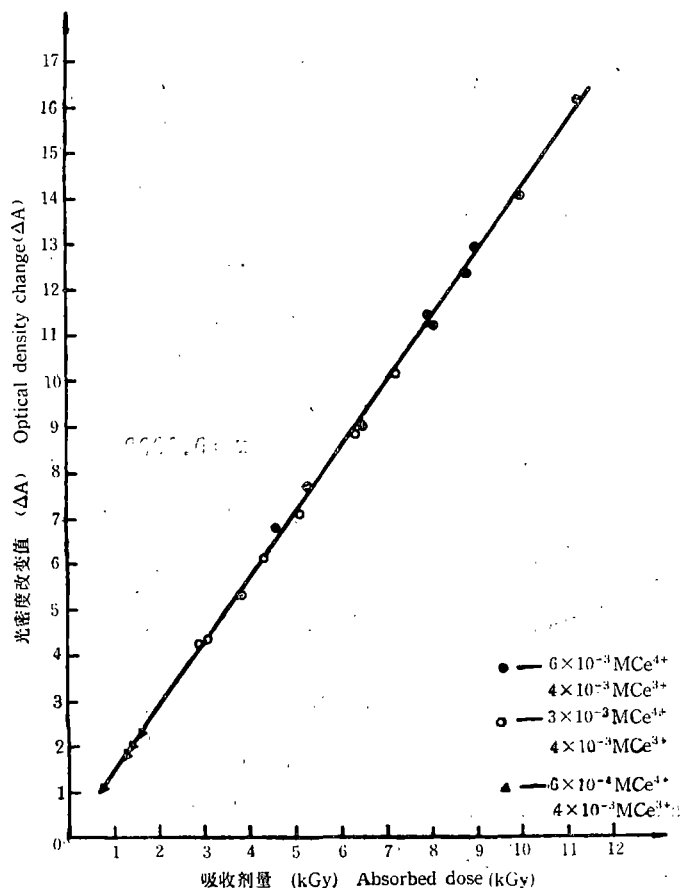


图 1 硫酸铈剂量计校准曲线

Fig. 1 Dose Calibration curve for ceric sulphate dosimeter

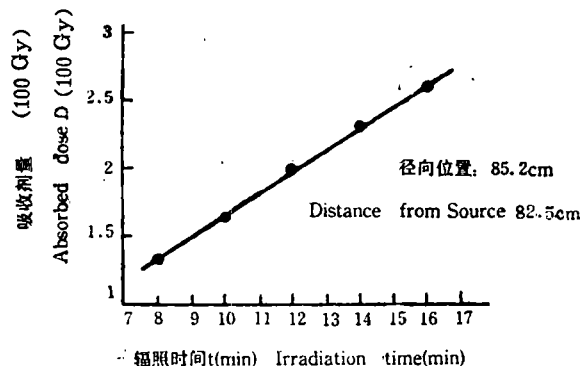


图2 硫酸亚铁剂量计吸收剂量随辐照时间变化曲线
Fig. 2 Absorbed dose—irradiation time curve for ferrous sulphate dosimeter

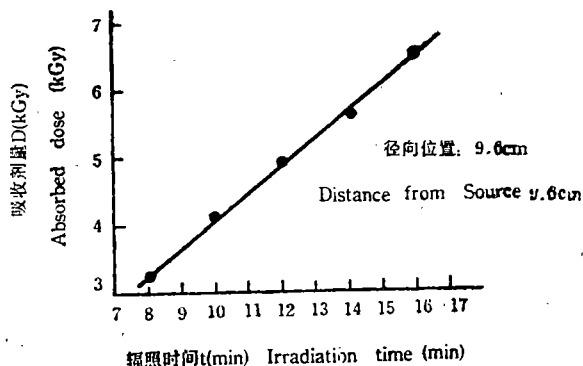


图3 硫酸铈剂量计吸收剂量随辐照时间变化曲线
Fig. 3 Absorbed dose—irradiation time curve for ceric Sulphate dosimeter

硫酸亚铁剂量计和硫酸铈剂量计（在标定辐照场径向位置离源套外壁为 85.2 cm 和 9.6 cm 处时）的吸收剂量——辐照时间曲线分别给在图 2 和图 3。它们的斜率为该位置上剂量计体系的吸收剂量率。求得二直线的回归方程和线性相关系数各自为：

$$D_{85.2} = 16.1t + 5.10 (\text{Gy}) \quad (2)$$

$$r = 0.9999$$

$$D_{9.6} = 4.00 \times 10^2 t + 80 (\text{Gy}) \quad (3)$$

$$r = 0.9998$$

在 95% 置信概率下，剂量率测量值的置信界限(95%， $f = 3$)分别为 $16.1 \pm 0.39 (\text{Gy/min})$ 和 $4.00 \times 10^2 \pm 16.4 (\text{Gy/min})$ 。

图 4 为用上述方法测得的 $4.44 \times 10^{15} \text{Bq}$ ^{60}Co γ 辐照装置径向位置剂量率分布曲线。

3. 垂直方向剂量率分布

图 5 是用硫酸亚铁剂量计测

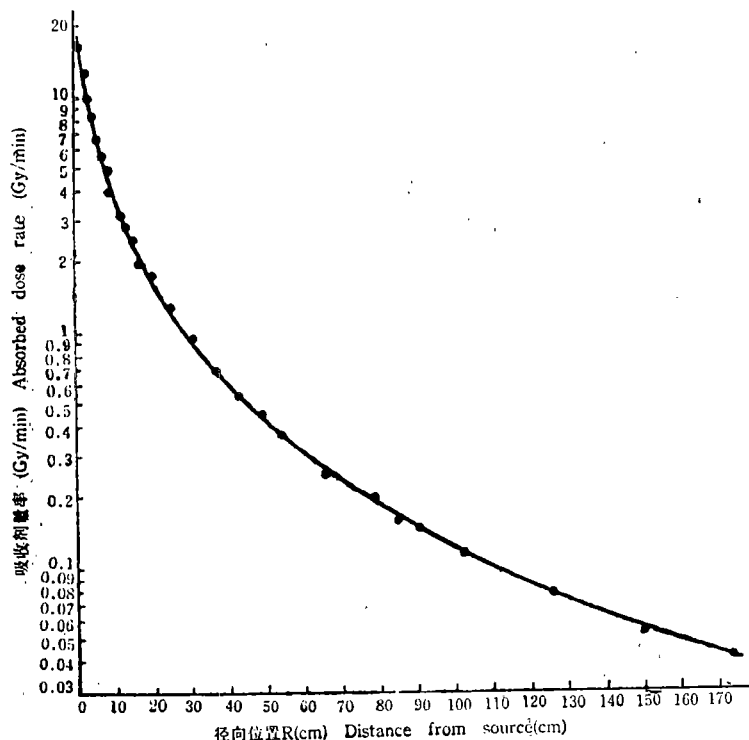


图4 径向剂量率分布曲线
Fig. 4 Dose rate distribution curve along horizontal axis

得的辐照场中不同径向位置处的吸收剂量率随剂量计位置高度(距地面)变化的曲线图。

4. 圆周剂量率分布

图 6 是用硫酸亚铁剂量计测得的径向位置为 48 cm 的圆周上的剂量率分布曲线。

讨 论

1. 关于剂量计“标准化”

本文所述剂量计“标准化”系指在我们的工作条件下严格控制硫酸亚铁剂量计的实验条件使 $G(Fe^{3+})$ 值尽可能与 ICRU 的推荐值一致和完成 $e(Fe^{3+})$ 值的准确测定及用标准(空气饱和的 $0.4 M H_2SO_4$ 中含 $1 \times 10^{-3} M$ 硫酸亚铁铵和 $1 \times 10^{-3} M$ 氯化钠的)硫酸亚铁剂量计校准硫酸铈剂量计和改进的硫酸亚铁剂量计。

(1) 随着温度升高, $G(Fe^{3+})$ 值略有增加。早期文献^[8]报道的温度系数在 $0-0.1\%/^{\circ}C$ 之间。近期研究结果^[9]表明, $20^{\circ}C$ 温度增量可使 $G(Fe^{3+})$ 增大 3.3% 。是否考虑温度的影响, 主要取决于所要求的准确度和辐照时的温度。本工作基本上是在 $20^{\circ}C$ 至 $27^{\circ}C$ 的环境温度下完成辐照的, 所以没有对 $G(Fe^{3+})$ 值作温度修正。

(2) 配制 Fe^{3+} 标准溶液, 按文献^[6]所述方法 I, 必须采用沸腾回流程序去除残留的 H_2O_2 ; 方法 II 则应该对三氧化二铁作“烘干”处理。我们进一步研究表明, 方法 I 优于方法 II。在一般情况下, 还是按前者配制比较好。

(3) 目前国内难以买到较优级的铈(III)盐, 而进口的铈(III)盐比铈(IV)盐贵得多。采用预辐照方法从硫酸铈剂量计中直接得到所需的 Ce^{3+} , 既可以解决铈(III)盐的来源, 又可以消除一些杂质, 达到改善剂量计而提高测量值精密度的目的。

(4) 在标准化工作中, 用于校准或辐照的剂量计样品应该放在 $4.7 mm$ 厚的聚苯乙烯套

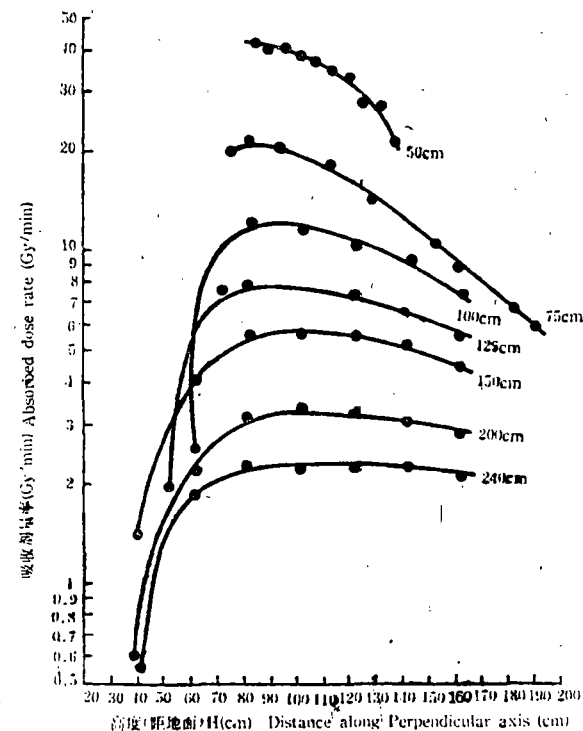


图 5 吸收剂量率随高度变化的曲线
Fig 5 Dose rate distribution curve along perpendicular axis

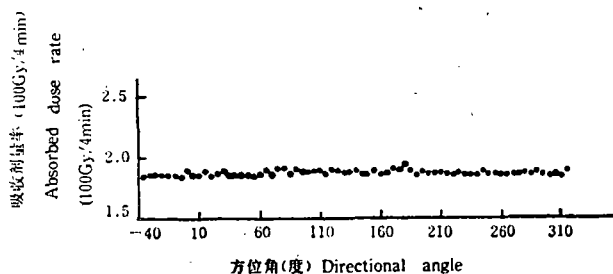


图 6 圆周剂量率分布曲线
Fig 6 Dose rate distribution curve along circle

中^[10](或在 $5 cm$ 深的水层中校准), 使其达到电子平衡; 对剂量计的尺寸也有一定要求; 校准硫酸铈剂量计还应该考虑水中不同深度射线降解谱对不同浓度铈溶液的贡献^{[11][2]}。

(5) 我们曾在研究铈(III)对硫酸铈剂量计中杂质抑制作用的基础上, 给出该体系的 $G(Ce^{3+})$ 值^[3], 并用它计算吸收剂量。而本工作直接采用在实际工作条件下用硫酸亚铁剂量计校准得到的线性回归方程计算吸收剂量。这种做法除了可以消除由于校准条件与使用条件差别和由于 $e(Ce^{4+})$ 值给定不正确, 以及由于对剂量计体系吸收特性差别的修正因子考虑不周等, 而引入的剂量测量偏差外, 还可以避免测定 $e(Ce^{4+})$ 值时大量麻烦的化学操作。

2. 关于剂量率测量

在辐射场同一位置上照射硫酸亚铁或硫酸铈剂量计, 体系各自的吸收剂量 D 与照射时间 t 有

着如下的线性关系:

$$D = bt + a \quad (4)$$

式中直线斜率 b 为剂量计体系的吸收剂量率, 而截距 a 是辐射源升降过程中引入剂量计体系的额外吸收剂量, 即所谓“附加剂量”。

用回归分析方法确定上式中的 b 、 a 值可以减少诸如计时误差、剂量计溶液偶然的杂质或光效应、测量或辐照时温度波动、辐射源/剂量计几何位置变化、原始溶液稀释误差等等一系列随机或系统因素的影响而提高测量值的准确度。但是, 由于这些因素的影响, 往往使 b 和 a 值, 特别是 a 值波动较大。所以应该(1) 在剂量计量程允许范围内, 尽可能使照射时间分散; (2) 增加不同(和相同)照射时间的次数。

3. 关于剂量率分布曲线和辐照样品的吸收剂量的确定

辐射源中心点距离地面约 93 cm。据此, 垂直方向剂量率分布曲线(见图 5)应以平行于地面且距地面 93 cm 的线为对称轴。可实际上该组曲线(在不同水平距离上)均在 80 cm 高度位置以下急剧下滑。这是由于存在(1000×500×10, 距地面 810)不锈钢照射台的缘故。

随着径向距离增加, 垂直方向剂量率极差在 2% 以内的区间逐渐扩大(见图 5)。在 240 cm 处, 该类区间可达 60 cm 高。

从实测的数据考察(见图 6), 在径向位置为 48 cm 的圆周上, 包含散射因素的影响, 剂量率极差小于 5%。其最大值在东南方向位置上。连同其它径向距离的圆周上剂量计的吸收剂量率数据, 可以看出本辐射场圆周位置剂量率分布均匀性比较好。

对于体积小而形状规则的辐照样品, 当该样品和剂量计二者在同一位置上辐照, 而且都与它们的环境处于电子平衡时, 可以通过质量能量吸收系数将剂量计的吸收剂量换算为辐照样品的吸收剂量^[1]。对于体积大或形状特殊的辐照样品, 本文给出的剂量率数据和剂量率分布曲线, 目的在于为选择该类样品辐照工艺过程时提供参考; 而对实际启用的辐照工艺过程, 我们仍然要做产品箱(或堆积密度与其近似的模体)中的吸收剂量、剂量分布和吸收剂量均匀度等启用剂量的实际测量。

小 结

本工作采用硫酸亚铁和硫酸铈水溶液化学剂量计测量本所最近重新换装的 $4.44 \times 10^{15} \text{Bq}$ ^{60}Co γ 辐照装置照射场(径向、垂直和园周三方向)各个位置上剂量计的吸收剂量率, 为该装置启用提供较为可靠的剂量学方面的数据。为提高测量值的准确度, 我们还在工作条件下给该二种剂量计“标准化”, 并研究它们测量值的精密度。实践表明, 用硫酸亚铁和硫酸铈剂量计测量 ^{60}Co γ 辐照装置照射场上剂量计的吸收剂量率, 如果按照本工作的照射方法和测量程序, 其结果具有较高的准确度。

本工作得到本所钴源组全体同志协助, 特此致谢。

参 考 文 献

- [1] 吴智力, 《原子能农业应用》2, 60(1980).
- [2] 吴智力, 张加山, 董莲卿, 《原子能农业应用》1, 59(1981).
- [3] 吴智力, 董莲卿, 陈新薇《辐射防护》3, 202, (1982).
- [4] ICRU Report, 14(1969).
- [5] 吴智力, 陈新薇, 《核技术》1, 60(1984).
- [6] ICRU Report, 12 (1968).

- [7] ICRU, Report, 21(1972).
[8] A. B. Edward, Report, No. AD-429156.
[9] R. W. Matthews, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 33, 1159 (1982).
[10] W. L. McLaughlin, "High-Dose Measurements in Industrial Radiation Processing", P. 17, (Technical Reports Series No 205), IAEA, Vienna. 1981.
[11] A. Miller and W. L. McLaughlin, *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, 33, 1299~1310(1982).

(1984年9月12日收到)

DOSE RATE MEASUREMENT BEFORE COMMISSIONING OF ^{60}Co γ IRRADIATION PLANT

Wu Zhili Xie Leidog Lin Weizhen Li Naining Chen Xinwei

(Institute of Nuclear Research, Academia Sinica)

ABSTRACT In this work We have investigated the question with relation to dose rate measurement before commissioning of 4.44×10^{15} Bq ^{60}Co γ irradiation plant. Under the experiment conditions we made the ferrous sulphate and the ceric sulphate dosimeter standardization, and the precision of measured values are studied, and statistical method of data processing is applied in the work. Then, the distribution curves of dose rate are given.

KEY WORDS Ferrous sulphate dosimeter; Ceric sulphate dosimeter; Statistical method of data processing; Dose rate measurement; Dose rate distribution curves.