

热释光测定年代中测量 β 剂量的 超薄型 TLD 系统

王 维 达

(上海博物馆实验室)

热释光测定年代的成功关键是尽可能准确地测量标本所受的自然辐照历史^[1]。我们研究 TLD 系统测量标本内部的 β 吸收剂量,不仅因为它比测量放射性核素浓度方便,更主要原因是采用直接法测量样品受照历史,比任何间接法测量准确可靠。因铀的扩散和交换,使小于一百万年的沉积粘土中长寿 ^{234}U 和 ^{230}Th 的平衡遭到破坏,当用这种粘土测定小于一万年的考古年龄时,由于不能假定长寿放射性核已达平衡,因此一般同位素微量分析方法就不适用。

本文介绍了用超薄型热释光剂量元件 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ (上海市工业卫生研究所制) 测量 β 剂量的 TLD 系统的实验。实验的基本点是以标准样品的已知剂量率标定超薄型元件的内照射吸收剂量灵敏度,用该刻度 ^{90}Sr 辐照源,于是被测样品的内照射吸收剂量就能从 ^{90}Sr 源直接定出。

一、超薄型元件 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 的性能

超薄型剂量元件是将 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 制成直径 1—8 μm 的颗粒,通过悬浮沉淀把它沉积在铝箔上,再用硅油将其固定^[2]。铝箔厚度约十几微米, $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 的厚度为 1—2 mg/cm^2 ,它对 β 粒子的反散射和阻止作用均可忽略,能近似地看作无限薄元件。元件的随机分散性为 4—10%,为了保证实验的最佳重复性,元件制成后必须经过筛选,筛选的标准为分散性小于 2%。

由于元件所受的辐射剂量仅限于天然本底范围,故其剂量响应不存在超线性问题,至于元件的灵敏度只要测试仪器合适^[3],对大于 10 mrad 吸收剂量的误差可小于 5%。

为了使元件的灵敏度保持不变,元件每次测量后需在 400 $^{\circ}\text{C}$ 中退火 5 分钟。

元件的尺寸可根据需要裁成各种不同的形状和大小。

二、标准样品的制备

为了标定元件的吸收剂量灵敏度,我们在实验室中制备了模拟粘土的标准样品。它是由独居石、铀矿、 K_2CO_3 和非放射性的 CaSO_4 均匀混和而成。独居石中 ThO_2 的含量为 5.34%, U_3O_8 的含量为 0.5%。混合后样品的分散性小于 4%。标准样品的配比成份和 Th、U、K 的浓度以及 β 剂量率分别列于表 1 和表 2。因为标准样品中的 β 剂量率是根据平衡系中的核素浓度来计算的^[3],所以标准样品中 Th 和 U 是保证平衡的。

标准样品中 Th 和 U 的浓度不可靠性估计小于 5%,但换算成剂量率时则很难估计,因为某些核素的衰变系数误差常大于 10%,不过 Th、U 在标准样品中比率很小,即使 Th、U 剂量率的不可靠性为 10%,K 为 2%,则总剂量率的不可靠性也只有 4% 左右。

采用 CaSO_4 作为标准样品的本底物质,因为它的阻止本领和相对衰减因子与粘土相似。

本文 1982 年 1 月 29 日收到。

表1 标准样品的组成

组 成	数量 (g)
独居石 (Th 4.77% + U 0.43%)	0.10
稀释铀矿粉 (U 10ppm)	100.00
K ₂ CO ₃ (K 56.5%)	15.90
CaSO ₄ (非放射性)	129.00
总 计	245.00

表2 标准样品的核素浓度和 β 剂量率

核 素	浓 度	β 剂量率 (mrad/yr)	相对比率 (%)
Th	19.47ppm	56.0	12.6
U	5.84ppm	85.6	19.3
K	3.67%	301.6	68.1
总 计		443	100.0

三、测量实验

实验时将被测陶片或粘土研磨成粒径小于 $30\mu\text{m}$ 粉末, 装在 $\phi 40 \times H40$ 的有机玻璃容器内, 将 7 片 $\phi 8\text{mm}$ 的超薄型元件用 $8\text{mg}/\text{cm}^2$ 的聚乙烯薄膜封住, 夹在容器内粉末样品中间, 以 4π 几何条件受照. 样品上下厚度应大于 β 射线在粘土介质中的最大射程 (大约 8mm). 容器密封后置于避光处一个月以上, 待样品中 ^{222}Rn 达到平衡. 另外二只容器分别盛装标准样品和 CaSO_4 , 中间也夹 7 片由聚乙烯薄膜封住的剂量元件. 前者用来标定元件的灵敏度, 后者用以测量 γ 辐射本底, 因为 CaSO_4 的 γ 吸收系数在整个能区与干燥土壤精确地匹配.

经过标准样品标定的元件灵敏度, 即单位热释光的内照射吸收剂量, 就是本实验的剂量标准, 用这个标准刻度 ^{90}Sr 源. 刻度时将元件置于有机玻璃板上受 β 源辐照, 因为有机玻璃对 β 粒子的反散射剂量可忽略不计. 剂量元件在接受样品辐照时不进行任何屏蔽, 故 γ 辐射本底较高, 总 TL 讯号约为本底讯号 3 倍, 但结果相差不大, 因为本底辐射可以测得很精确.

表3 实验测量结果

	考 古 样 品			空 白 样 品	标 准 样 品	^{90}Sr 源辐照 (2min)
样品号	SB15a	SB15b	SB15c		SB813	
R_β (mrad/yr)	319	278	336	143	443	133
平均 TL ($\times 10^3$)	372	339	385	115	471	107
σ (%)	5.3	3.2	4.6	4.1	4.7	1.6

实验结果列于表 3. 表中 SB15a—c 分别为同一块古代陶片中不同三处所取的样品. 设 TL_{AS} 、 TL_{B} 和 TL_{β} 分别为考古样品、空白样品和 ^{90}Sr 源辐照的 β 剂量的热释光, 那么被测的考古样品的 β 每年吸收剂量 R_β 就为

$$R_\beta = \frac{(\text{TL}_{\text{AS}} - \text{TL}_{\text{B}})}{\text{TL}_{\beta}} \beta_{\text{Sr}}, \quad (1)$$

其中 β_{Sr} 为 ^{90}Sr 源与内照射吸收剂量等效的辐照剂量. 表 3 中 σ 各为 7 片超薄型 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 元件的标准偏差, 范围从 1.6—5.3%, β 吸收剂量误差约为 5%.

上述实验测得的剂量率都是对干燥样品而言, 实际上测定年代所用的石英颗粒, 不论是存在出土陶片内还是粘土里面, 常有地下水渗透其中. 水能引起二种效应, 一是稀释放射性核素浓度, 二是由于水的阻止本领相对地较大而使平均阻止本领增高. 当这二个效应同时考虑时, 湿样品中 $R_{\beta\text{w}}$ 与干样品中 $R_{\beta\text{d}}$ 的关系就可以从 Zimmerman 公式得到^[4]

$$R_{\beta\text{w}} = \frac{R_{\beta\text{d}}}{1 + \left(\frac{W_{\text{w}}}{W_{\text{d}}} - 1 \right) \frac{S/\rho(W)}{S/\rho(S)}}, \quad (2)$$

其中

$$\frac{S/\rho(W)}{S/\rho(S)} = 1.25, \quad (3)$$

式(2)中 W_w 和 W_d 分别为样品在湿时和干时的重量, $S/\rho(W)$ 和 $S/\rho(S)$ 分别为水和粘土对 β 粒子的阻止本领。这二个阻止本领的比率为 1.25。但我们用超薄型元件进行实测,发现 $R_{\beta w}$ 的测量值比计算值低,大约相差 3—6%,见表 4。主要原因可能是阻止本领引起的,因为公式(2)是假定土壤的阻止本领和铝是相同的。

表 4

样 品 号	W_w/W_d	$R_{\beta w}/R_{\beta d}$		
		计 算	测 量	$(1 - \frac{\text{测量}}{\text{计算}}) \times 100$
SB10d	1.135	0.856	0.815	4.79
SB13e	1.201	0.799	0.751	6.01
SB15c	1.085	0.904	0.863	4.54
SB15b	1.076	0.913	0.881	3.50
SB23b	1.183	0.814	0.786	3.44
SB8a	1.121	0.867	0.821	5.31
SB14c	1.224	0.781	0.740	5.25

四、讨 论

本实验特点是用超薄型剂量元件将外照射剂量过渡到内吸收剂量,这有三个优点:(1)不需要标定 ^{90}Sr 源的辐照剂量率^[5];(2)可以测定 β 剂量绝对值而不需要与标准样品比较;(3)解决了测定样品内部吸收剂量问题。

关于误差问题,如上所述,假定标准样品的不可靠性小于 4%, ^{90}Sr 源与标准样品对比的不可靠性约 2%, ^{90}Sr 源标定考古样品的不可靠性小于 5%,因石英颗粒大小和水的衰减作用引起的不可靠性,由于我们的实验结果与公式(2)计算结果相差较大,约为 2—4%。另外,我们测量样品时都假定无氦逃逸,事实上某些标本可能有少量氦逃逸,如果氦逃逸 20%,由此引起的不可靠性为 2%^[6]。那么嵌在陶片或粘土中的石英颗粒所受 β 年剂量最终误差不大于 7%,这个误差在粗粒石英测定年代中^[7]是可以接受的。

但必须强调,这个误差是我们现在测量的结果,如果标本在历史上曾与周围土壤和水之间有较大的放射性核交换,这个误差就无法表示。

致谢:感谢上海市工业卫生研究所剂量室主任周智新同志、中国科学院地球化学研究所涂光炽所长、欧阳自远副所长以及刘顺生和刘京法同志对本工作的指导和帮助。

参 考 文 献

- [1] 王维达,上海博物馆馆刊,1(1981),123—138.
- [2] 周智新等,核技术,5(1980),43—46.
- [3] Aitken, M. J., *PACT J.*, 2(1978), 19—30.
- [4] Zimmerman, D. W., *Archaeometry*, 13(1971), 29—52.
- [5] Smith, B. W. et al., *Ancient TL*, 14(1981), 2—4.
- [6] Mejdahl, V., *PACT J.*, 2(1978), 35—47.
- [7] 王维达等,自然杂志,11(1980),3: 844—847.