## 精進加馬放射性核種定量分析方法

林明仁 林培火 洪明崎 行政院原子能委員會輻射偵測中心 中華民國 104 年 10 月 壹、前言

在核子事故初期,樣品檢測著重於快速篩選放射性核種以了解輻 射污染的程度,所以以定性分析為主。然事故進入中後期,也就是復 原階段,此時期必須以定性及定量分析並重。

自日本福島核電廠事故發生後,為保障國人食品輻射安全,行政 院原子能委員會與衛生福利部食品藥物管理署、財政部國庫署及漁業 署等單位合作,針對自日本進口之農漁畜牧業等食品,加強輻射檢測 分析作業。由於食品樣品種類數量極多,分析費時,原子能委員會輻 射偵測中心(以下簡稱本中心)有必要發展快速定量分析方法。然而快 速定量分析往往受限於樣品幾何形狀與校正射源配置的標準件不相 符,導致無法使用已建置之效率曲線,必需經烘乾、灰化、裝罐等複 雜的樣品前處理作業,才可能符合標準件的幾何形狀。這不僅耗時, 也可能會造成實驗室的污染,無法快速檢出樣品放射性含量。

近年來,拜電腦科技進步之賜,能以軟體模擬取代實體標準射 源,建置加馬放射性核種定量分析之效率曲線,只要輸入偵檢器之結 構參數,待測樣品之幾何形狀,包括尺寸、材質、密度、以及與偵檢 器相對位置等資料,即可得相關效率曲線,藉以快速分析樣品放射性 含量。

本文首先說明現行食品試樣快速檢測流程,檢討可能影響樣品定 量分析準確度之因素,其次敘述利用實體射源建立效率曲線可能遭遇 問題,並探討以蒙地卡羅計算模式結合 Genie2000 加馬能譜分析軟 體,如何建置偵檢器效率校正曲線,以克服上述問題。並藉由來自國 際原子能總署及日本分析中心等單位提供之已知放射性活度樣品,進 行實測作業分析,以驗證樣品活度分析準確度改善情形。

1

貳、食品樣品快速檢測流程

2011年日本發生福島核電廠事故後,為確保國人食品輻射安全, 行政院原子能委員會針對日本進口之農漁畜牧業等食品進行輻射檢 測工作,至2014年止,數量累計約6萬3千餘件。為快速提供檢測 結果給予權責單位作為管制依據,避免影響貨物通關作業,特建立食 品快速分析方法因應,其檢測流程,如圖1所示。食品快速分析方法 係採「定性快篩」及「精確定量」等階段進行檢測。首先樣品直接以 偵檢器快速篩檢,檢測是否含有 I-131、Cs-134 及 Cs-137 等人工核 種。若發現有人工核種,則需將樣品做前處理,以加馬能譜分析再進 行精確定量。依據「商品輻射限量標準」<sup>(1)</sup>第六條規定有關一般食品、 乳品及嬰兒食品放射性含量標準值,如表1所示。判定其是否為超標 之樣品,同時通報行政院原子能委員會及其相關權責單位處理放行或 退運。精確定量受限於樣品幾何形狀,必須將樣品進行前處理後才能 計測,若樣品數量眾多,將會影響貨物通關作業。



圖1 食品放射性含量快速檢測流程

項目	放射性核種	標準值(貝克/公斤)	
	I-131	300	
一般食品	Cs-134 + Cs-137	370	
乳品及嬰兒食品	I-131	55	

表1一般食品、乳品及嬰兒食品放射性含量標準值

**參、影響定量分析準確度之因素** 

樣品放射性含量加馬能譜分析方法主要是利用已知活度之混合 射源,其含有 Cr-51、Mn-54、Co-57、Fe-59、Co-60、Y-88、Cd-109、 Cs-137、Ce-139、Am-241 等放射性核種,依不同幾何形狀建立效率 曲線,再以此效率曲線確認待測樣品之放射性含量。在建立效率曲線 的過程中,射源種類與活度配製、樣品幾何形狀及偵檢器特性等因 素,會影響效率校正曲線之準確度。

一、射源種類與活度配製

配製標準校正射源必須要由受過訓練的專業人員來製作。首先射源的活度值必須經過標準確認,其介質的選擇、配置均勻性、幾何形 狀等,皆會影響校正射源之品質。

另外,標準校正射源通常含有多個能峰核種,其能量會相互干擾,造成活度分析結果失真,此稱為串級加總效應(cascade summing effect)。這種效應會導致效率曲線在高能量區發生往下偏移現象, 誤差最高約15%,影響放射性含量分析的準確度極大,如圖2所示, 因此必須加以修正效率曲線才能符合標準。綜上可知實體射源本身之 特性或人為配製之誤差均會增加量測上的不確定度。

3



圖 2 射源校正效率曲線及經串級加總修正計算後之效率曲線<sup>(2)</sup>

二、樣品幾何形狀

實際上偵檢器的絕對效率與樣品的幾何形狀有很大的關係。例 如:截面積大而高度低的樣品,會比截面小而高度高的偵檢效率高; 樣品量較多時,使用馬林計測杯會比計測皿的效率好;另低能量的核 種,則要考慮樣品本身的自吸收效應;對於密度較大的樣品,樣品量 多反而會降低其計測效率<sup>(3)</sup>。

樣品幾何形狀對放射性含量分析的影響因素包括:樣品相對於偵 檢器的位置、核種在樣品中分布均勻度、容器的形狀、厚度、材質、 樣品的密度、材質等因素,均會影響分析結果<sup>(4)</sup>。

三、偵檢器特性

每一個純鍺偵檢器對光子的反應現象都不相同,此稱為偵檢器的 特性。依據 CANBERRA 公司「Technical Advantages of ISOCS/LabSOCS」 技術報告<sup>(5)</sup>顯示, 偵檢器特性能接受到其方圓 1000 公尺內,光子能 量由 45 至 7000 keV 之間所影響。另偵檢器本身之不確定度在中高能 量區約±8 %~±10 %,在100 keV 低能量區更高,不確定度約±15 %, 如圖3所示。這些誤差還不包含純緒晶體的直徑、長度及角度等造成 之影響。



圖 3 偵檢器相對於光子能量之效率不確定度<sup>(5)</sup>

肆、建立效率校正曲線之流程

一般放射性定量方法,係利用數種已知活度之放射性核種,混合 製作成標準校正射源,以實驗方式建立特定幾何形狀之效率曲線,這 是目前實驗室通用的做法。然而,利用實體射源建立效率曲線的方 式,在遇到新的幾何形狀或複雜幾何形狀的樣品時更困難。首先必須 依樣品形狀,配置不同的標準射源,建立效率曲線,然後再做分析確 認。如分析結果與標準差異太大,則必須找出原因。利用射源建立效 率曲線流程,如圖4所示。整個曲線建置過程可能非常耗時。而且某 些複雜幾何形狀的樣品就不易製作。另外,因標準校正射源含短半化 期放射性核種,必須定期更新才能使用。然而標準校正射源價格昂 貴,配製耗時,無法使用之標準射源須依規定處理。除此之外,針對 體 積 較 大 之 樣 品 (volumn sources) 必 須 考 量 材 質 自 吸 收 (self-absorption)的效應,因此要先得知樣品之密度及組成成分, 然而某些情況要知道樣品的密度和組成是很困難的<sup>(6)(7)</sup>。

5



圖 4 (a)利用實體射源(b)利用蒙地卡羅計算程式等,進行建置效率 曲線之流程

為了克服上述問題,我們採用由 CANBERRA 公司所開發的實驗室 無射源效率校正軟體 LabSOCS (Laboratory Sourceless Calibration Software)。其係以蒙地卡羅模擬計算程式為核心,結合 Genie 2000 加馬能譜分析軟體,進行效率曲線建置作業。在使用蒙地卡羅模擬計 算程式之前,純鍺偵檢器必須先在原廠進行特性化 (Characterisation)處理。其特性化主要目的為要取得偵檢器方圓 1000 公尺半徑內,光子能量從 45 至 7000 keV 之間,對偵檢器反應 特性之參數。然其優點為讓使用者無須再考慮偵檢器本身的影響,僅 需專注於建立量測的條件參數,例如:樣品及容器的特性、幾何形狀、 樣品與偵檢器的距離等因素。LabSOCS 軟體內建 12 種國際通用的幾 何形狀樣本可供使用,包括常用之馬林計測皿、柱狀計測皿、環、球、 圓盤、點…等。





圖 5 利用 LabSOCS 軟體程式建置馬林計測杯樣本之模擬幾何形狀



圖 6 利用 LabSOCS 軟體程式建置複雜樣本之模擬幾何形狀

這些內建樣本對一般實驗室執行例行作業而言已足夠,例如馬林 杯等,如圖 5。其也可建立各種複雜幾何形狀之樣品,只要幾何形狀 為環形對稱狀之樣品,皆可用程式建立並模擬計算,如圖 6。 伍: 精進串級加總效應之效率曲線

使用標準混合射源校正時,會發生某些能量之計數增加或減少的 現象,稱之為串級加總效應(cascade summing effect)。該效應僅與 樣品幾何形狀有關,與核種活度大小無關。面積較大的偵檢器、或樣 品量愈小,離偵檢器愈近,則愈容易發生此效應。

為解決此效應,我們採用 LabSOCS 能峰對總效率(peak to total calibration)校正功能。選用 6 個單一能量標準射源,即 Co-57(122.1 keV)、Cd-109(88 keV)、Mn-54(834.8 keV)、Cs-137(661.6 keV)、Sn-113(391.7 keV)、Zn-65(1115.5 keV)等,並將偵檢器、容器及樣品之幾何形狀等參數植入 LabSOCS,可得各射源之能峰效率值及能峰對總效率比值(P/T)。P/T 對能量之關係,如圖 7 所示。將標準混合射源校正效率曲線方程式植入 LabSOCS,並利用 P/T 對能量之關係,可修正此校正效率曲線,如圖 8 所示。由圖中可知,修正後之曲線在高能區有較原曲線高。



圖7 能峰對總效率曲線(peak to total curve)



圖8經串級加總效應修正之曲線

陸、結果與討論

本文為探討純鍺偵檢器加馬能譜分析效率校正時以射源效率曲 線串級加總效應之修正,射源與無射源校正分析法之比較及與國際原 子能總署等比較試驗樣品分析結果做比對,並探討其準確性。

一、準確性之探討

為確認無射源效率曲線放射性活度分析之準確性,以國際原子能總署(IAEA)之水樣、乾草及日本化學分析中心(JCAC)之土壤共1件樣品,作為準確性比對依據。

(一) 水樣

水樣分析結果顯示,Cs-137 核種,射源校正與無射源校正測值 相近,分別與公告值約低0.7%及約高1.2%。另Am-241 核種,射源 校正測值約低於公告值 26%,無射源校正測值與公告值較接近,約 高8.1%,顯然無射源校正較準確。此係因射源校正效率曲線在88 keV 以下採外插方式建立,故測值偏差較大。如表2所示。

(二)乾草樣

乾草樣分析結果顯示,Cs-134 核種,射源校正與無射源校正測 值分別與公告值約低5%及1%。此係Cs-134 有串級加總效應,以射 源校正測值通常會有低估之情形。另Cs-137 核種,射源校正與無射 源校正測值相近,分別與公告值約高2.4%及1.7%,如表3所示。 (三)土壤樣

土壤樣分析結果顯示,K-40 核種,射源校正測值約高於公告值 2.5%,無射源校正測值約低於公告值0.3%。此係K-40 能量1460.8 keV 在高能量區,以射源校正易因校正射源核種Co-60、Y-88 等之串 級加總效應影響而高估,而無射源校正之測值則較準確。另Cs-137 核種,無射源校正測值較準確,約低於公告值1%。另T1-208 核種, 射源校正與無射源校正測值相近,與公告值約低 2.8%。另 Ac-228 核種,射源校正與無射源校正測值亦差異不大,分別與公告值約低 1.6%及 0.2%。如表 4 所示。綜觀以上分析結果顯示,無射源效率校 正之準確性佳,測值與公告值相當接近,其中低能量相對偏差最大也 在 10%以內,證實此方法可用於加馬能譜分析效率校正。

表2 國際原子能總署(IAEA)添加放射性物質之水樣分析結果比較

核種名稱	Cs-137	Am-241
IAEA 公告值(Bq/kg)	102.5	120.9
射源校正測值(Bq/kg)	101.8(0.7 %)	89.5(26 %)
無射源校正測值(Bq/kg)	103.7(1.2 %)	130.7(8.1 %)

表3 國際原子能總署(IAEA)添加放射性物質之乾草樣品分析結果

核種名稱	Cs-134	Cs-137	
IAEA 公告值(Bq/kg)	306	785	
射源校正測值(Bq/kg)	290.6(5.0 %)	803.9(2.4 %)	
無射源校正測值(Bq/kg)	302.9(1.0 %)	798.6(1.7 %)	

表4 日本化學分析中心(JCAC)之環境土壤樣品分析結果

核種名稱	K-40	Cs-137	T1-208	Ac-228	
JCAC 公告值(Bq/kg)	485.0	29.4	14.4	43.1	
射源校正測值(Bq/kg)	497(2.5 %)	27.1(7.8%)	14.0(2.8 %)	42.4(1.6%)	
無射源校正測值(Bq/kg)	486.6(0.3%)	29.1(1 %)	14.8(2.8 %)	43.0(0.2%)	

二、實體射源效率曲線串級加總效應之修正

我們採用已知放射性含量之標準校正混合射源,進行加馬能譜分 析實測作業,並觀察串級加總效應修正前後測值,結果陳列於表5及 圖9,混合射源能量由表中可知,串級加總修正前Co-60及Y-88之 測值為3.81 Bq/kg及7.54 Bq/kg,偏差為8.44%及7.29%。修正 後Co-60及Y-88之測值為4.23 Bq/kg及8.35 Bq/kg,偏差降為1.66 %及2.67%。顯然串級加總修正後Co-60及Y-88皆獲得較佳結果。 串級加總效率造成量測偏差,隨能量增加而增加,經無射源技術修正 後,將大幅改善偏差值變動,提高準確度,如圖10所示。

標準校正混合射源核種及活度值									
核種	Cr-51	Mn-54	Co-57	Fe-59	Co-60	Y-88	Cd-109	Cs-137	Ce-139
能量(keV)	320.1	834.8	122.1	1099.3	1332.5	1836.1	88.0	661.6	165.9
標定值(Bq/g)	43.10	8.61	8.50	20.89	4.16	8.13	81.34	4.14	4.23
		E	串級加約	息效應修	正前之	測值			
測值(Bq/g)	43.9	8.85	8.37	22.00	3.81	7.54	84.30	4.13	4.18
偏差(%)	1.86	2.82	-1.56	5.31	-8.44	-7.29	3.64	-0.15	-1.14
串級加總效應修正後之測值									
測值(Bq/g)	43.70	8.69	8.31	21.30	4.23	8.35	84.30	4.13	4.18
偏差(%)	1, 39	0, 96	-2.27	1.96	1.66	2.67	3, 64	-0.15	-1.14

表5 串級加總效應修正前後之測值及偏差





圖 10 串級加總效應修正前後偏差絕對值與能量關係

另以能力比較試驗之已知含量樣品進行驗證,包括國際原子能總 署(IAEA)之水樣及財團法人全國認證基金會(TAF)之植物樣,分析結 果陳列於表6及表7。水樣之Cs-134修正前測值為6.3 Bq/kg,修正 後為7Bq/kg,誤差從18%降為9%。Eu-152修正前測值為12.8 Bq/kg, 修正後為13.3 Bq/kg,誤差從17%降為14%。另植物樣之Cs-134 修正前測值為29.8 Bq/kg,修正後為33 Bq/kg,誤差從10%降至 0.3%。另檢視K-40值從646.5 Bq/kg修正至567.8 Bq/kg,修正幅 度達12%。顯然效率曲線高能量區已往上調整,測值則往下降。而 有串級加總效應之Co-60、Cs-134、Eu-152等核種均獲得改善。

核種	Со-60	Cs-134	Cs-137	Eu-152
公告值(Bq/kg)	14.5	7.7	6.2	15.4
修正前	14.7(1.4)	6.3(18)	6.3(1.6)	12.8(17)
修正後	14.5(0)	7.0(9)	6.3(1.6)	13.3(14)

表6 國際原子能總署(IAEA)之水樣

核種	Cs-134	Cs-137	K-40	Со-60
公告值(Bq/kg)	33.1	46.4		38.5
修正前	29.8(10)	49.5(6.7)	646.5	38.5(0)
修正後	33.0(0.3)	49.4(6.7)	567.8	37.6(2.3)

表7 財團法人全國認證基金會(TAF)之植物樣

柒、結論

自日本福島事故後,國際間對災區食品的輻射安全愈來愈重視。 輻射檢測除了快速定性檢測外,必要時也需具備快速定量分析之能 力。無射源效率校正技術具有彈性、省時、減少費用及降低分析不確 定度等優點,特別針對一些幾何形狀複雜、無法前處理以傳統分析之 樣品,確實是一大利器。惟 LabSOCS 無射源校正系統受限於需有特性 化之偵檢器,特性化之偵檢器本身價格昂貴,且使用日久難免老化或 故障,而偵檢器則必須再送回原廠重新調校,其不便及費用昂貴是其 缺點之一。因此,無射源效率校正系統仍需定期針對效率曲線進行驗 證等品質管制工作,以確保分析資料之正確性及可用性。

本文以國際原子能總署(IAEA)、日本化學分析中心(JCAC)及財團 法人全國認證基金會(TAF)比較試驗樣品進行無射源效率校正之計測 驗證,並針對射源校正效率曲線進行串級加總效應修正,歸納以下5 點結論:

- 一、無射源效率校正技術從建立幾何模型、輸入參數、到產出效率 曲線,約只需60分鐘。如已有幾何模型或選用內建範本,平均 完成效率校正只需5~10分鐘。相較於射源效率校正程序約需 數天至數月之久,大幅縮短作業時間。
- 二、 以無射源效率曲線進行放射性含量分析,測值之相對偏差均在 10%以內,準確度高。
- 三、無射源效率校正不受在高能量區有串級加總效應影響,在低能量區可克服多個能量干擾因素,測值相對於實體射源校正準確。
- 四、無射源效率校正技術可解決實體射源校正效率曲線之串級加總效應,高能量區偏移現象可獲得改善。
- 五、 本中心已建立放射性核種快速分析方法,且證實無射源效率校

正技術可用於例行計測作業,對食品檢測、核子事故或輻射意 外事故等緊急應變場合均能快速因應。 捌、參考文獻

- 1. 原子能委員會, 2002, 商品輻射限量標準, 台北: 原子能委員會。
- 2. Canberra, Model S573/S574 LabSOCS Calibration Software V4.2.
- 3. Canberra, Model S573/S574 ISOCS/LabSOCS Validation & Verification Manual V4.0.
- 4. Canberra, Genie2000 operations Manual V3.1.
- 5. Canberra, Technical advantages of ISOCS/LabSOCS.
- 6. K. Abbas, F. D' Alberti, 2002, Reliability of two calculation codes for efficiency calibrations of HPGe detectors, Applied Radiation and Isotopes 56, 703-709.
- 7. Robert C. Mcfarland, 1991, Coincidence summing considerations when using marinelli geometry in Germanium gamma-ray spectroscopy, From the counting room.