

井型 γ 谱仪土壤样品探测效率刻度方法研究

来永芳¹ 陈 菲¹ 孙 健¹ 秦婉云¹ 祁烨林²

1(陆军防化学院核防护系 北京 102205)

2(南部战区 昆明 650000)

摘要 井型 γ 谱仪能大幅缩短测量时间和样品用量,但在实际使用前,须对其进行效率刻度。介绍了一种采用MCNP(Monte Carlo N Particle Transport Code)通用软件包模拟计算与单能量点源实测修正相结合的井型 γ 谱仪土壤样品效率刻度方法。基于MCNP计算了 γ 射线不同能量、土壤样品不同质量的井型NaI(Tl) γ 谱仪探测效率值,拟合了效率曲线数学模型,拟合值与MC模拟值最大相对偏差 $<\pm 7\%$,并通过实测标准土壤样品源验证了所提方法的可行性,建立了基于MCNP模拟计算与体源实测修正相结合的井型 γ 谱仪效率刻度方法。

关键词 井型 γ 谱仪, 效率刻度, 蒙特卡罗模拟, MCNP软件包

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.030202

Study on efficiency calibrating method of well-type γ ray spectrometer for soil samples

LAI Yongfang¹ CHEN Fei¹ SUN Jian¹ QIN Wanyun¹ QI Yelin²

1(Institute of NBC Defense PLA Army, Beijing 102205, China)

2(Southern Theater, Kunming 650000, China)

Abstract [Background] Putting samples into the well-type γ ray spectrometer can greatly improve the activity measurement efficiency, therefore it can reduce the measurement time and the mass of samples. [Purpose] This study aims to accurately obtain detection efficiencies of well-type NaI(Tl) detector as a function of gamma ray energy and the well depth before using the well-type γ ray spectrometer. [Methods] First of all, the Monte Carlo N Particle Transport Code (MCNP) was employed to simulate energy deposition spectrum of γ ray in well-type NaI(Tl) detector according to mathematic model based on the characteristic parameters of detector and standard γ source. Based on simulating a well-type NaI(Tl) detector and soil samples, the peak efficiency of different γ ray energy and depth of soil samples were calculated by MCNP4C program and corrected by single energy point source measurement. Meanwhile the efficiency calibration functions were fitted according to detection efficiency of well type NaI(Tl) gamma spectrometer with different energy and quality of soil samples. Finally, ^{137}Cs point source was used for experimental verification for main standard soil samples of SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , FeO , MgO and CaO . [Results] The maximum relative deviation between the function fitting value and the MCNP simulation value is less than $\pm 7\%$. [Conclusions] The efficiency calibrating method of well-type is established based on the combination of MCNP simulation calculation and volume source measurement correction.

Key words Well-type gamma spectrometer, Efficiency calibration, Monte Carlo simulation, MCNP

生态环境部放射性环境样品现场检测方法研究项目资助

第一作者: 来永芳, 女, 1970年出生, 2004年军事医学科学院获博士学位, 主要研究领域为核辐射监测

通信作者: 陈菲, E-mail: chenfei_0828@163.com

收稿日期: 2020-09-16, 修回日期: 2020-11-16

Supported by the research project of Ministry of Ecological Environment on the Field Detection Method of Radioactive Environmental Samples

First author: LAI Yongfang, female, born in 1970, graduated from the Academy of Military Medical Sciences with a doctoral degree, focusing on nuclear radiation monitoring

Corresponding author: CHEN Fei, E-mail: chenfei_0828@163.com

Received date: 2020-09-16, revised date: 2020-11-16

目前,国内对土壤样品 γ 能谱分析多采用标准方法^[1],所用探测器为圆柱形NaI(Tl)闪烁体探测器或高纯锗半导体探测器,将样品盒置于探测器顶端来进行 γ 能谱的测量,国外对土壤样品 γ 能谱分析与国内方法基本相同,在此不做赘述。受探测器灵敏面积、体积、样品盒形状和几何位置关系等条件限制,该法测谱耗时较长;现地 γ 能谱测量确实能测量地表 γ 辐射水平及土壤中 γ 放射性核素的活度,但因气象和地质等条件存在较大差异,放射性物质还可能渗透至地表不同深度,难以准确测得不同深度土壤中 γ 放射性核素的活度。因此,核应急、核爆条件下,收集土壤样品、快速对其进行 γ 放射性核素分析仍是准确获得土壤、水和生物等样品中 γ 放射性核素活度信息的重要技术手段。

NaI(Tl)井型 γ 谱仪在圆柱形闪烁探测器内同轴位置处开出一圆柱形空腔(使探测器呈井型),相比圆柱形NaI(Tl)闪烁体探测器,井型谱仪将待测样品置于空腔内,能大幅增加探测器灵敏区面积、提高探测效率^[2-4],从而能有效缩短 γ 谱测量时间。井型 γ 谱仪效率刻度是实现其对土壤样品 γ 能谱分析的基本前提,本文提出MCNP模拟计算与标准单能体源实测修正相结合的井型 γ 谱仪土壤样品效率刻度方法,旨在通过单能体源实验刻度与模拟计算结合,得出土壤样品的探测效率随样品质量、能量变化函数关系,在实际测量时可快速得到土壤样品探测效率,从而缩短 γ 谱监测分析时间,为核应急辐射防护决策的制定提供及时、可靠的数据支持。

1 γ 谱仪效率刻度方法

现常用的 γ 谱仪效率刻度方法有实验室法、数值计算法、模拟计算法和无源刻度法等。

1.1 实验室法

实验室法是 γ 谱分析中常用的效率刻度方法。需预先制备与测量样品的性质(大小、包装材料、基质和测量核素等)基本相同的标准体源,在与样品测量条件相同的情况下,用待刻度谱仪测量该标准体源,得到该条件下谱仪对标准体源不同能量 γ 射线的全能峰探测效率值^[5],实现谱仪效率刻度。

1.2 数值计算法

数值计算法的效率刻度方式主要有两种。第一种是在完成部分实验室刻度基础上,通过数学建模和公式拟合等,得到谱仪探测效率值;第二种则是通过建立符合实际测量条件的数学模型,基于 γ 射线与物质作用机理,对待测样品进行分区、得到探测效率公式^[6],进而算出 γ 谱仪的探测效率值。

1.3 模拟计算法

模拟计算法基于蒙特卡罗(Monte Carlo, MC)方法,又称随机抽样方法。 γ 谱仪效率刻度时,首先提取探测器和标准源特征参数、建立数学模型;然后根据源分布特征生成随机数,进行抽样;之后基于 γ 射线与物质作用机理模拟计算出 γ 射线在探测器中的能量沉积谱,即可得到谱仪探测效率值^[7]。

1.4 无源刻度法

无源刻度法是一种基于MC模拟软件与点源刻度结合的效率刻度方法。该法基于MC模拟软件计算得到谱仪探测效率值,再通过实测值修正来保证效率刻度的准确度。目前在核辐射探测领域,常用的MC模拟软件主要有EGS(Electron-Gamma Shower)、MORSE(Multigroup Oak Ridge Stochastic Experiment Code)和MCNP(Monte Carlo N-Particle Transport Code System)等,其中利用MCNP来模拟NaI(Tl)闪烁探测器 γ 能谱已较成熟^[8]。

比较上述4种效率刻度方法,无源刻度法具有快速、无需标准物质和适于大尺寸或不规则探测器效率刻度等优势,国外在NaI(Tl)井型 γ 谱仪无源刻度方面也开展了一些研究^[9]。但需预先得到探测器材料和几何尺寸等本征参数,其次需通过测量多组 γ 点源在探测器不同位置的效率值来修正模拟计算值,才能保证效率刻度的准确度要求,技术要求较高,并延长了刻度时间。

2 MC模拟计算

2.1 探测器及样品盒模型

图1是土壤样品体源与探测器位置示意图,井型探测器为NaI(Tl)晶体,外径152.4 mm、高152.4 mm,内径50.8 mm、高101.6 mm,外裹厚0.787 mm的铝箔。样品盒材料为聚乙烯,壁厚2 mm、内径42 mm、高99.6 mm。样品盒内盛不同质量土壤样品,核素均匀分布于土壤中。标准土壤样品主要成分为SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、FeO、MgO和CaO,放射性粒子¹³⁷Cs各向同性、均匀分布在样品中。

2.2 全能峰MC模拟

本文采用MCNP4C的F8电子脉冲计数卡计算 γ 射线点源在井型NaI(Tl)晶体中的能量沉积谱,图2所示模拟计算所得¹³⁷Cs点源 γ 射线能量为662 keV的 γ 能谱图(取NaI(Tl)探测器对662 keV的 γ 射线能量分辨率为7.2%),半峰全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM)约为49 keV,对图2所得全能峰

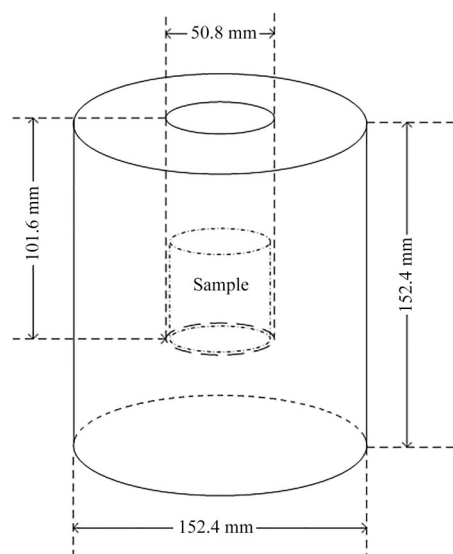
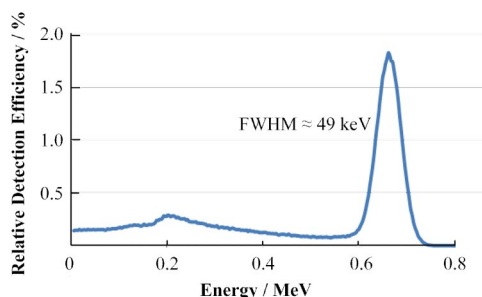


图1 土壤样品与井型探测器位置

Fig.1 Schematic diagram of the location of soil samples and well detectors

图2 MCNP计算所得¹³⁷Cs点源γ能谱图Fig.2 ¹³⁷Cs point source gamma spectrum calculated by MCNP

区进行积分,可得到全能峰探测效率约为38.8%,与未经高斯能谱展宽的探测效率计算值(37.6%)基本吻合。

2.3 全能峰探测效率值计算

根据实验室效率刻度方法^[1],选取不同γ射线能量值(表1中列出),也为了更精确得到探测效率曲线峰值,在能量200 keV附近,适当增加能量刻度点,以准确表征效率刻度曲线变化规律。计算得到不同质量土壤样品、不同能量γ射线的全能峰探测效率值,所得效率刻度曲线如图3所示。

表1 γ射线效率刻度能量值
Table 1 γ-ray efficiency scale energy value

γ 能量 γ-ray energy / keV			
44.768	236.8	662.0	1 377.8
59.5	236.8	834.8	1 460.8
86.5	295.2	911.0	1 764.5
140.51	351.9	1 120.3	2 204.2
165.8	510.6	1 238.2	2 614.2

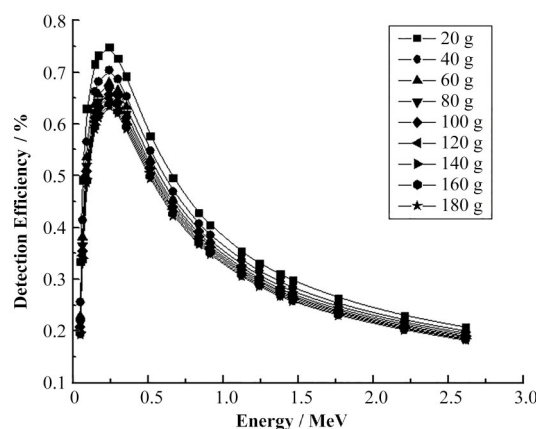


图3 不同质量土壤样品全能峰探测效率曲线

Fig.3 All-energy peak detection efficiency curve of different quality of soil samples

由图3可见,在土壤样品质量保持不变条件下,当γ射线能量小于约215 keV时,井型γ谱仪的探测效率随γ射线能量的增加而增加,且随着能量增加,增加趋势由陡渐缓;当能量大于约215 keV时,井型γ谱仪的探测效率则随能量的增加而减小,且随能量增加,减小趋势由陡变缓、趋于平衡。射线能量相同时,γ射线探测效率随土壤样品质量增加而减小,主要原因在于随土壤样品质量增加,土壤样品自吸收增加,同时随土壤样品质量增加,γ射线与探测器作用的份额也随之减少。

2.4 效率曲线函数拟合

2.4.1 低能段刻度函数拟合

用取对数-多项式拟合法,得到井型γ谱仪低能段(≤ 215 keV)的探测效率曲线刻度函数为:

$$\ln \varepsilon = - [l_3 (\ln E_\gamma)^3 + l_2 (\ln E_\gamma)^2 + l_1 \ln E_\gamma + l_0] \quad (1)$$

式中: ε 为全能峰探测效率; E_γ 为射线能量,MeV; l_0 、 l_1 、 l_2 、 l_3 为与土壤样品质量相关的函数。对于不同质量的土壤样品, l_0 、 l_1 、 l_2 、 l_3 与土壤样品质量的关系式分别为:

$$l_0 = 2.299 1 \times 10^{-10} m^5 - 1.270 2 \times 10^{-7} m^4 + 2.643 5 \times 10^{-5} m^3 - 2.563 6 \times 10^{-3} m^2 + 0.114 3 m - 0.076 683 \quad (2)$$

$$l_1 = 3.507 2 \times 10^{-10} m^5 + 1.950 8 \times 10^{-7} m^4 + 4.102 5 \times 10^{-5} m^3 - 4.049 4 \times 10^{-3} m^2 + 0.187 34 m + 0.328 18 \quad (3)$$

$$l_2 = 1.714 5 \times 10^{-10} m^5 - 9.584 \times 10^{-8} m^4 + 2.029 9 \times 10^{-5} m^3 - 2.025 5 \times 10^{-3} m^2 + 0.095 48 m + 0.277 4 \quad (4)$$

$$l_3 = 2.774 4 \times 10^{-11} m^5 - 1.561 8 \times 10^{-8} m^4 + 3.341 1 \times 10^{-6} m^3 - 3.385 8 \times 10^{-4} m^2 + 0.016 404 m + 0.070 9 \quad (5)$$

式中: m 为土壤样品质量,g。在低能量段,函数拟合值与MCNP探测效率计算值间的最大偏差 $\leq 1.6\%$ 。

2.4.2 高能段刻度函数拟合

与低能段类似,得到高能量段(≥ 215 keV)井型探测器的探测效率曲线刻度函数为:

$$\ln \varepsilon = -l_5 \ln E_\gamma - l_4 \quad (6)$$

式中: E_γ 为射线能量,MeV; l_4 、 l_5 为与土壤样品高度相关的函数。对不同高度的土壤样品,式(5)中 l_4 、 l_5 与土壤样品高度的关系式为:

$$l_4 = 5.616 \times 10^{-8} \text{ m}^3 - 2.220 \times 10^{-5} \text{ m}^2 + 3.323 \times 10^{-3} \text{ m} + 0.925 \quad (7)$$

$$l_5 = 1.070 \times 10^{-10} \text{ m}^4 - 5.695 \times 10^{-8} \text{ m}^3 + 1.140 \times 10^{-5} \text{ m}^2 - 9.974 \times 10^{-4} \text{ m} + 0.610 \quad (8)$$

在高能量段,函数拟合值与MCNP探测效率计算值间的最大偏差 $< \pm 7\%$ 。

3 实验验证

3.1 能谱验证

图4为实验用井型NaI探测器,外径152.4 mm、高152.4 mm,内径50.8 mm、深101.6 mm,探测器外裹铝层厚0.787 mm。通过数字多道接PC机,用GammaVision软件采集能谱。实验测量所用点源为 ^{137}Cs ,表面25 cm处的空气吸收剂量率约为 $0.25 \mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$ 。

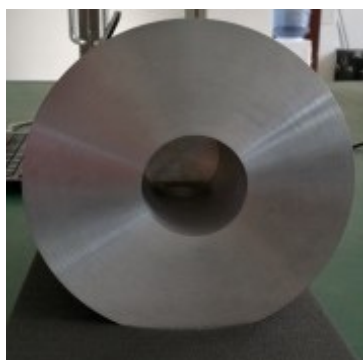


图4 井型NaI(Tl)探测器
Fig.4 Well type NaI(Tl) detector

图5为 ^{137}Cs 实测谱与MCNP模拟谱对比,除低能量段,因康普顿坪与活度测量基本无关而未作高斯展宽、以及电子学系统噪声影响使模拟谱与实测谱出现偏差外,实测谱全能峰与模拟谱全能峰区吻合良好。模拟谱中康普顿坪比实验谱低,峰康比也更高。相比圆柱形探测器,井型探测器将待测样品置于空腔内,使得发生康普顿散射的光子不易逃逸出探测器,继续与NaI晶体发生相互作用,从而提高探测效率、增加了全能峰计数。

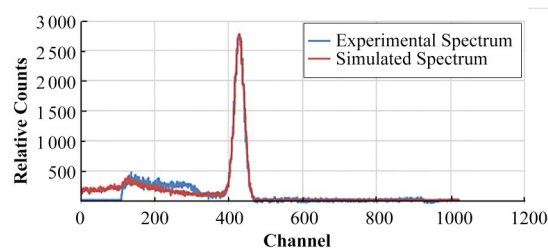


图5 ^{137}Cs 实测谱与模拟谱
Fig.5 Measured spectrum and simulated spectrum of ^{137}Cs

3.2 效率验证

实验采用标准土壤样品如图6所示,标准数据见表2。用精密天平称量100.05 g标准土壤样品,放入样品盒内、压实,置于井型NaI探测器中央凹槽内,探测器接数字多道(DJBASE),Gamma Vision软件采集数据。天平型号为德安特ES500,最大称重500 g,分度值0.001 g。样品盒为圆柱状,材质为聚乙烯,壁厚0.8 mm,内径47.6 mm,高100.6 mm(如图7所示)。

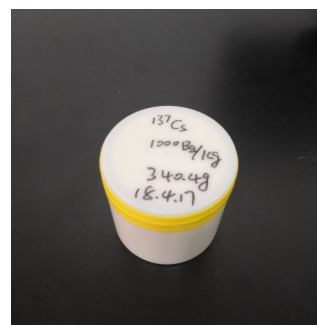


图6 标准土壤样品
Fig.6 Standard soil sample

表2 土壤样品校准数据
Table 2 Calibration data of soil samples

项目 Items	数据 Data
核素 Nuclide	^{137}Cs
能量 Energy / keV	661.66
净峰面积 Net peak area	35 623
活时间 Live time / s	12 000
本底面积 Background area	0
不确定度 Uncertainty / %	0
比活度 Specific activity / $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$	962

已知土壤样品活度为96.2 Bq,测量时间为3 042 s。图8为所测能谱经扣除本底和平滑后的能谱图。

将实测谱全能峰区进行高斯拟合。

所得拟合函数 $f(x)$ 为:

$$f(x) = 2883e^{-\left(\frac{x-427.8}{21.82}\right)^2} \quad (9)$$



图7 样品盒
Fig.7 Sample box

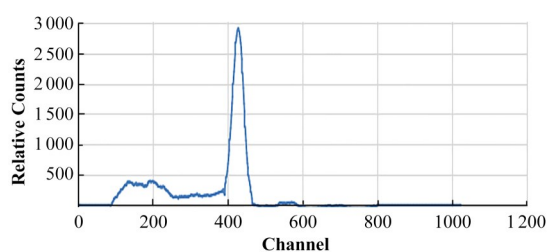


图8 土壤样品实测谱处理后谱图
Fig.8 Spectrum of soil sample after processing of measured spectrum

式中: x 为多道的道址计数,对全能峰区计数进行积分,得出全能峰净面积 N 为110 027。

由已知土壤样品活度,可算得全能峰效率为:

$$\varepsilon = \frac{N}{TAPK} \quad (10)$$

式中: A 为土壤样品活度; N 为全能峰净面积; T 为活度测量时间; P 为核素发出特定能量 γ 射线的几率; K 为核素活度的衰变修正因子。

将数据代入式(10)得到,NaI(Tl)井型 γ 谱仪对土壤样品源的全能峰效率为37.598%。

如前MCNP效率模拟计算方法,计算得到NaI(Tl)井型 γ 谱仪对土壤样品中 γ 射线(能量为662 keV)的全能峰探测效率为37.543%(与实验结果相差约0.055%),表明通过MCNP计算所得井型 γ 谱仪对土壤样品的探测效率与实测结果基本吻合,验证了利用MCNP得到全能峰探测效率刻度值对NaI(Tl)井型 γ 谱仪进行效率刻度的方法基本可行。在实际应用中,因探测器通常存在一定死层,单能量点体源实测值往往会小于理论计算值,因此有必要利用实测值对理论值修正,以保证样品测量结果满足谱仪监测的准确度要求。

4 结语

本文利用MCNP计算 γ 射线探测效率值结合土

壤样品单能量点体源实测修正,实现井型 γ 谱仪探测效率刻度的方法,不仅能大幅缩短单能量点体源的实测时间,将MCNP效率计算与单能量点体源实测修正相结合,也能避免实验刻度法与无源刻度法需多种标准体源、点源及多点实测修正耗时长的问题。将该刻度方法应用于核与辐射突发事件中早期环境样品放射性检测,为核应急防护决策的制定提供关键性的数据支持。下一步我们将进一步验证此方法可靠性,以及将此方法用于生物等环境样品的效率刻度。

参考文献

- 1 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局,中国国家标准化管理委员会. 中华人民共和国推荐性国家标准: 土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法[S]. GB/T 11743—2013. 北京: 中国标准出版社, 2014.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. National Standard (Recommended) of the People's Republic of China: Determination of radionuclides in soil by gamma spectrometry[S]. GB/T 11743—2013. Beijing: Standards Press of China, 2014.
- 2 Blaauw M. Calibration of the well-type germanium gamma-ray detector employing two gamma-ray spectra [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1998, **419**(1): 146 - 153. DOI: 10.1016/s0168-9002(98)01158-9.
- 3 苏川英. 车载NaI(Tl) γ 谱仪系统效率刻度技术研究 [D]. 兰州: 兰州大学, 2013.
SU Chuanying. Study on efficiency calibration technology of carborne NaI(Tl) γ spectrometry system [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2013.
- 4 El-Sabagh H A, Aydia M I, Amin A M, et al. Radiolabeling of lacosamide using highly purified rhenium-188 as a prospective brain theranostic agent[J]. Nuclear Science and Techniques, 2020, **31**: 104. DOI: 10.1007/s41365-020-00809-3.
- 5 李君利. 实验室 γ 能谱测量与分析[M]. 北京: 人民交通出版社, 2014.
LI Junli. Laboratory gamma spectrum measurement and analysis[M]. Beijing: China Communications Press, 2014.
- 6 吴治华. 原子核物理实验方法[M]. 第3版. 北京: 原子能出版社, 1997: 165 - 166, 143 - 144.
WU Zhihua. Experimental methods of nuclear physics

- [M]. 3rd Ed. Beijing: Atomic Press, 1997: 165 - 166, 143 - 144.
- 7 许淑艳. 蒙特卡罗方法在实验核物理中的应用[M]. 2版. 北京: 原子能出版社, 2006.
- XU Shuyan. Application of Monte Carlo method in experimental nuclear physics[M]. 2nd Ed. Beijing: Atomic Press, 2006.
- 8 Siciliano E R, Ely J H, Kouzes R T, *et al.* Comparison of PVT and NaI(Tl) scintillators for vehicle portal monitor applications[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2005, **550**(3): 647 - 674. DOI: 10.1016/j.nima.2005.05.056.
- 9 Hansman J, Mrdja D, Slivka J, *et al.* Efficiency study of a big volume well type NaI(Tl) detector by point and voluminous sources and Monte-Carlo simulation[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2015, **99**: 150 - 154. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.03.003.