

基于NaI(Tl)谱仪的3种 γ 能谱解谱方法比较

胡有华*, 王建超#

新疆维吾尔自治区辐射环境监督站, 新疆 乌鲁木齐

收稿日期: 2022年9月19日; 录用日期: 2022年10月18日; 发布日期: 2022年10月25日

摘要

目的: NaI(Tl)谱仪相对分辨率较低, 通过比较3种解谱方法并选出最优解谱方法, 提高 γ 能谱测量值的准确性和可靠性。方法: 先用相对比较、逆矩阵、最小二乘法3种分析方法对已知活度的混合标准源进行活度计算, 再比较计算活度与标准源活度的相对偏差。结果: 使用相对比较法、逆矩阵法、最小二乘法计算出3种核素相对偏差分别为: ^{226}Ra (13.62%、14.71%、9.12%)、 ^{232}Th (14.43%、20.59%、13.17%)、 ^{40}K (2.18%、4.91%、4.84%)。结论: 使用最小二乘法对 ^{226}Ra 和 ^{232}Th 2种核素的计算活度相对偏差最小, 优于相对比较法与逆矩阵法; ^{40}K 核素的活度计算采用相对比较法更合适。

关键词

γ 能谱, 相对比较, 逆矩阵, 最小二乘逆矩阵

Comparative Study of Three γ Spectrum Solution Methods Based on NaI(Tl) Spectrometer

Youhua Hu*, Jianchao Wang#

Radiation Environmental Supervising Station of Xinjiang, Urumqi Xinjiang

Received: Sep. 19th, 2022; accepted: Oct. 18th, 2022; published: Oct. 25th, 2022

Abstract

Objective: The resolution of NaI(Tl) spectrometer is relatively low. By comparing the three spectrum solution methods and selecting the best solution method, the accuracy and reliability of the

*第一作者。

#通讯作者。

measured values of the γ energy spectrum can be improved. **Methods:** First use relative comparison, inverse matrix, and least square analysis methods to calculate the activity of the mixed standard source with known activity, and then compare the relative deviation between the calculated activity and the standard source activity. **Results:** The relative deviations of the three nuclides calculated using the relative comparison method, the inverse matrix method, and the least square method: ^{226}Ra (13.62%, 14.71%, 9.12%), ^{232}Th (14.43%, 20.59%, 13.17%), ^{40}K (2.18%, 4.91%, 4.84%). **Conclusions:** Using the least square method to calculate the relative deviation of the activities of ^{226}Ra and ^{232}Th nuclides is the smallest, which is better than the relative comparison method and the inverse matrix method. The activity calculation of ^{40}K nuclides is more suitable for the relative comparison method.

Keywords

γ Spectrum, Relative Comparison, Inverse Matrix, Least Squares Inverse Matrix

Copyright © 2022 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

随着核能的广泛实践与不断发展, 环境介质中存在的放射性核素也愈发增多, 对自然环境与公众健康产生潜在的威胁。作为在辐射环境监测工作中最常见的仪器, γ 能谱仪具有灵敏度高、快速便捷等特点, 可对环境中的放射性核素进行精准的定量、定性分析[1]。但考虑到环境放射性核素种类繁多且活度浓度往往较低, 在实际测量过程中得到的 γ 能谱中包含了大量的核素信息, 其谱形较为复杂。尤其是在使用碘化钠[NaI(Tl)] γ 谱仪进行放射性核素活度浓度测量时, 由于不同类型 γ 能谱仪灵敏区材料不同, 与高纯锗(HPGe) γ 谱仪相比, NaI(Tl) γ 谱仪的能量分辨率相对较低, 入射能量相近的 γ 射线容易在能谱上出现能峰重叠的情形。重叠能峰的剥离增加了后续能谱解析的难度, 不利于放射性核素测量工作的开展。因此, 使用合适的解谱方法进行分析计算以确保 γ 能谱测量分析结果的准确可靠就显得尤为重要。

本文利用 NaI(Tl)闪烁体 γ 谱仪[2]对多个已知活度的标准放射源进行测量, 使用相对比较法、逆矩阵法与最小二乘法分别对 γ 能谱进行解谱分析, 比较 3 种不同解谱方法的活度计算结果, 探讨 3 种解谱方法的适用性, 旨在提高辐射环境监测工作的效率, 增加 γ 能谱在环境介质放射性核素活度浓度测量工作中的可靠性与准确性。

2. 材料与方法

2.1. γ 能谱仪选择

本文所使用的探测系统是由北京核仪器厂设计制造的低本底环境 γ 能谱。该套 γ 能谱探测系统主要由 BH1324F 型探测器、BH1324 型一体化多道分析器、NG401-261 型铅室、Ums 38 γ 能谱采集软件、谱分析软件等部分组成。能谱仪探头是尺寸为 $\phi 75 \text{ mm} \times H 75 \text{ mm}$ 的 NaI(Tl) 低钾闪烁晶体, 对于 ^{137}Cs 标准源在 661.65 keV 处的特征峰能量分辨率小于 8.5%。

2.2. 分析方法

首先选用由中国计量科学研究所校准的 ^{60}Co 与 ^{137}Cs 标准源对能谱仪进行能量刻度, 其活度分别为

3.82 μCi 与 2.31 μCi 。其中, ^{60}Co 选用能量为 1173.20 keV 与 1332.50 keV 的特征峰, 而 ^{137}Cs 选用能量为 661.65 keV 的特征峰[3]。其次, 将中国计量科学研究院提供并校准的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 单核素标准体源用于后续解谱分析[4], 其校准核素活度分别为 286.30 Bq、184.00 Bq、1053.90 Bq。接下来将中国计量科学研究院提供的混合标准源视为被测样品, 混合标准源中包含放射性核素 ^{226}Ra (74.50 Bq)、 ^{232}Th (33.60 Bq) 与 ^{40}K (569.80 Bq)。

在对标准源进行测量前, 先对完成能量刻度的 γ 能谱仪进行时长为 43,200 s (12 h) 的环境本底测量, 以排除环境本底干扰。本底测量结束后, 对 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 单核素标准源与混合标准源进行时长为 21 600 s (6 h) 的测量, 使用谱分析软件对得到的能谱进行谱数据分析。

2.2.1. 相对比较法

相对比较法适用于现有且可用的标准源中已包含全部目标放射性核素的条件下对目标放射性核素的活度浓度进行分析, 主要计算分析过程如下:

$$C_{ji} = \frac{A_j}{Net_{ji}} \quad (1)$$

其中, C_{ji} 为标准源中第 j 种放射性核素的第 i 个特征峰的系数; A_j 为标准源中第 j 种放射性核素的活度 (Bq); Net_{ji} 为标准源中第 j 种放射性核素的第 i 个特征峰的净计数率 (计数/每秒)。

$$Q_j = \frac{C_{ji}(A_{ji} - A_{jib})}{WD_j} \quad (2)$$

式中, 混合标准源中第 j 种放射性核素的活度浓度为 Q_j (Bq/kg); A_{ji} 为混合标准源中第 j 种放射性核素的第 i 个特征峰的净计数率 (计数/每秒); A_{jib} 为对应 A_{ji} 的特征峰本底计数率 (计数/每秒); W 为被测标准源的重量 (kg); D_j 为放射性核素衰变修正系数, 但考虑到在本研究中所测量的放射性核素半衰期均较长 (^{226}Ra 的半衰期为 1600 a, ^{232}Th 的半衰期为 1.40×10^{10} a, ^{40}K 的半衰期为 1.27×10^9 a), 所以此项可以被忽略[5]。

2.2.2. 逆矩阵法

逆矩阵法又被称作解线性方程组法, 主要适用于被测样品中的放射性核素成分已知, 但测量得到的 γ 能谱出现了能峰重叠的情况下进行被测样品放射性核素活度浓度分析。在扣除环境本底的贡献后, 混合源的 γ 能谱在某一特征峰能道区内的计数率由该特征峰本身所对应的放射性核素、特征峰能量相近的放射性核素以及 γ 能量较高的放射性核素的康普顿散射等的叠加贡献[6]。计算方法如下:

$$c_i = \sum_{j=1}^m a_{ij} x_j \quad (3)$$

式中: j 为混合源中第 j 种核素, m 为混合源中全部的核素种类, i 为混合源 γ 能谱在第 i 个特征峰道区内的计数率 (计数/秒), x_j 为混合样品中第 j 种核素未知活度, a_{ij} 为第 i 个特征峰道区对第 j 种核素的响应系数, 如公式 4) 所示[7]。

$$a_{ij} = \frac{Net_{ji}}{A_j} \quad (4)$$

式中, Net_{ji} 为第 j 种核素的标准谱在第 i 特征峰道区内的计数率; A_j 为第 j 种核素的活度[7]。

其矩阵方程为:

$$A_{m \times m} \cdot X_{m \times m} = C_{m \times m} \quad (5)$$

$$A_{m \times m} = (X_{m \times m}^{-1} \cdot C_{m \times m})^T \quad (6)$$

式中: $A_{m \times m}$ 为全部响应系数 a_{ij} 组合而成的响应矩阵。

混合源中第 j 种核素的活度 x_j 的计算如下:

$$X_{m \times 1} = A_{m \times m}^{-1} \cdot C_{m \times 1} \quad (7)$$

$$x_j = \sum_{i=1}^m a_{ji}^{-1} c_i \quad (8)$$

2.2.3. 最小二乘逆矩阵法

最小二乘逆矩阵法是逆矩阵法的延伸[8]。逆矩阵法仅利用了每种放射性核素的一个特征峰道区的计数率对混合源中对应的核素活度进行计算, 容易受到道址漂移的影响, 并且未对 γ 能谱数据信息进行充分利用。而结合了最小二乘法统计学原理的最小二乘逆矩阵法对核素所具有的各个能量的 γ 射线都给予考虑, 通过选择核素的多个主要的 γ 射线的能峰参与计算, 即被选择的能峰道区数量 n 大于混合样品中的核素种类 m 。

$$C_i = \sum_{j=1}^m a_{ij} X_j, \quad i=1, 2, \dots, n \quad (9)$$

根据最小二乘法的理论, 其矩阵方程为:

$$X_{m \times m} \cdot A_{m \times n}^T = C_{m \times n} \quad (10)$$

$$A_{n \times m} = (X_{m \times m}^{-1} \cdot C_{m \times n})^T \quad (11)$$

混合样品中核素的活度的计算公式为:

$$X_{m \times 1} = (A^T \cdot A)^{-1} \cdot A^T \cdot C \quad (12)$$

3. 结果

3.1. 3种方法计算结果

3.1.1. 相对比较法计算核素活度

在利用相对比较法对混合源中放射性核素活度进行计算时, 先选择合适的核素特征峰, 后在对应核素 γ 能谱中定位所选特征峰的道区, 并计算出特征道区内的净计数率[9]。特征峰与道区选取见表 1。

Table 1. Nuclide characteristic peaks and corresponding channel selected by relative comparison method

表 1. 相对比较法选取的核素特征峰与其对应的道址

放射性核素	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
特征峰能量/keV	609.32	911.32	1461.22
特征峰道址	305	447	730

放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 在混合标准源中的活度通过公式(1)与(2)计算得到, 结果见表 2 [10]。混合标准源中的放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的活度分别为 64.35 Bq、38.45 Bq、557.36 Bq。

Table 2. Nuclide activity calculated by relative comparison method

表 2. 相对比较法计算的核素活度

放射性核素	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
计算活度/Bq	64.35	38.45	557.36

3.1.2. 逆矩阵法计算核素活度

在使用逆矩阵法对放射性核素活度进行计算时[11], 每种放射性核素选取 1 个特征峰能量, 在 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 标准源谱、混合源谱与环境本底谱中标定 3 种核素对应特征峰的道区与计数率。在本研究中, 逆矩阵法所选取的核素特征峰与相对比较法相同, 见表 1。由 3 个特征峰道区在全部能谱中的净计数率结合公式(3)~(6)计算得到的响应矩阵 $A_{3 \times 3}$ 为:

$$A = \begin{bmatrix} 0.004272 & 0.003597 & 0.0000916 \\ 0.0008 & 0.002415 & 0.000101 \\ 0.0005 & 0.000281 & 0.000295 \end{bmatrix}$$

通过公式(7)、(8)的计算, 得到了混合标准源中放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的活度, 其计算活度值见表 3。

Table 3. Nuclide activity calculated by inverse matrix method

表 3. 逆矩阵法计算的核素活度

放射性核素	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
计算活度/Bq	85.45	26.68	541.80

3.1.3. 最小二乘法计算核素活度

为了更加充分的利用 γ 能谱中的数据, 在利用最小二乘法进行活度计算时, 对 3 种放射性核素选取 4 个不同特征峰, 特征峰能量及其道区见表 4。

Table 4. Nuclide characteristic peaks and their corresponding channel elected by least square method

表 4. 最小二乘法选取的核素特征峰与其对应的道址

放射性核素	^{226}Ra		^{232}Th	^{40}K
特征峰能量/keV	351.99	609.32	911.32	1461.22
特征峰道址	187	305	447	730

通过对 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 标准源、混合标准源与环境本底进行测量后, 其相应的响应矩阵 $A_{4 \times 3}$ 为:

$$A = \begin{bmatrix} 0.005175 & 0.00403 & 0.000141 \\ 0.004272 & 0.003597 & 0.0000916 \\ 0.0008 & 0.002415 & 0.000101 \\ 0.0005 & 0.000281 & 0.000295 \end{bmatrix}$$

通过公式(12)计算得到了混合标准源中放射性核素的活度, 见表 5。

Table 5. Nuclide activity calculated by least square method

表 5. 最小二乘法计算的核素活度

放射性核素	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
计算活度/Bq	81.29	29.17	542.24

3.2. 3 种方法结果比较

使用相对比较法、逆矩阵法、最小二乘法 3 种解谱方法对混合标准源中的 3 种放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的活度计算结果见表 6 [12]。根据表 6 计算得到 3 种解谱方法的放射性核素活度与活度标定值之间的

相对偏差见表 7。

Table 6. Calculation of nuclide activity by different spectral analysis methods
表 6. 不同解谱方法的计算核素活度

放射性核素	活度标定值/Bq	3 种解谱方法计算活度(Bq)		
		相对比较法	逆矩阵法	最小二乘法
²²⁶ Ra	74.5	64.35	85.45	81.29
²³² Th	33.6	38.45	26.68	29.17
⁴⁰ K	569.8	557.36	541.80	542.24

Table 7. Calculate the relative deviation between nuclide activity and calibration activity
表 7. 计算核素活度与标定活度之间的相对偏差

放射性核素	3 种计算方法的相对偏差(%)		
	相对比较法	逆矩阵法	最小二乘法
²²⁶ Ra	13.62	14.71	9.12
²³² Th	14.43	20.59	13.17
⁴⁰ K	2.18	4.91	4.84

4. 讨论

本研究结果显示: 相对偏差最大的是逆矩阵法对 ²³²Th 放射性核素活度的计算为 20.59%; 相对偏差最小的是相对比较法对 ⁴⁰K 放射性核素活度计算为 2.18%; 针对 ²²⁶Ra、²³²Th 的计算活度相对偏差最小的是最小二乘法分别为 9.12%、13.17%; 3 种解谱方法对放射性核素 ⁴⁰K 的计算活度相对偏差均低于 5%; 其中 3 种解谱方法对于核素 ²³²Th 的活度计算结果相对偏差均较大, 这可能是由于 ²³²Th 所选择的特征峰能量主要集中在低能段, γ 能谱低能段存在康普顿散射、韧致辐射等额外计数的干扰, 且 NaI(Tl) 谱仪的能量分辨率较低所致。

综上, 在计算 ²³²Th 放射性核素活度时不适合选取逆矩阵法, 其相对偏差已经超出一一般质控偏差要求的 15%; 在计算混合源中 ²²⁶Ra 和 ²³²Th 的放射性活度时最小二乘法为最优解谱方法; 在计算混合源中 ⁴⁰K 的放射性活度时相对比较法为最优解谱方法, 但是相对比较法使用的前提是标准物质核素必须含有 ⁴⁰K, 因此在无标准物质不含有 ⁴⁰K 时, 也可选用其他 2 种解谱方法。本文给出了三种常见核素在使用 NaI(Tl) 谱仪进行核素分析时, 能针对不同的目标核素更快地选出使分析结果更加准确和可靠的最优解谱方法。

参考文献

- [1] 杜金秋, 高会, 王震, 等. 土壤样品中放射性核素活度 γ 谱分析比对[J]. 分析实验室, 2016, 35(9): 1041-1045. <https://doi.org/10.13595/j.cnki.issn1000-0720.2016.0237>
- [2] 方登富, 韦应靖, 崔伟, 等. 基于 NaI(Tl) γ 能谱温漂修正方法研究[J]. 中国辐射卫生, 2021, 30(1): 19-23+33. <https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2021.01.005>
- [3] 杨秀玉, 李庆光, 葛琴. 特征峰干扰判据 K 值法解析 γ 能谱[J]. 核电子学与探测技术, 2021, 41(1): 87-91.
- [4] 李奇, 王世联, 樊元庆, 等. 环境比对样品中 ²²⁶Ra, ²³²Th 和 ⁴⁰K γ 谱测量分析[J]. 核电子学与探测技术, 2011, 31(11): 1234-1236+1283.
- [5] 卿云花, 刘盼, 郑琪珊, 等. 放射性核素 γ 谱分析方法探讨[J]. 核技术, 2017, 40(9): 57-62.
- [6] 杨奎. 碘化钠能谱仪在测量核事故放射性物质活度中的应用[D]: [硕士学位论文]. 南昌: 东华理工大学, 2015.
- [7] 赖忠俊, 宣志强, 俞顺飞, 等. 有源-无源 γ 能谱分析方法在分析环境样品中放射性核素的应用[J]. 中国辐射卫生,

-
- 2020, 29(4): 378-381+386. <https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2020.04.014>
- [8] 房宗良, 曹剑锋, 王季红. 最小二乘逆矩阵法在建材 γ 谱分析中的应用[J]. 核电子学与探测技术, 2006, 26(6): 717-720.
- [9] 张京, 周强, 拓飞, 等. 用标准样品刻度 γ 能谱仪效率值的变化比较[J]. 中国辐射卫生, 2016, 25(3): 361-363. <https://doi.org/10.13491/j.cnki.issn.1004-714x.2016.03.037>
- [10] 姚杰, 钱爱君, 高林峰. 2018年参加全国放射性核素 γ 能谱分析比对结果[J]. 中国辐射卫生, 2019, 28(3): 321-324. <https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714x.2019.03.028>
- [11] 王硕, 杨宝路, 周强, 等. 无源效率刻度在马林杯状气体源活度测量中的应用[J]. 中国辐射卫生, 2022, 31(1): 6-12. <https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2022.01.002>
- [12] 许家昂, 宋钢, 苏静, 等. 某氯化稀土 γ 能谱测量结果分析[J]. 中国辐射卫生, 2021, 30(6): 693-696+700. <https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2021.06.007>