

NaK(Tl)γ能谱谱线分析技术的研究

於国兵

中图分类号: T1816+.2 文献标识码: B 文章编号: 1004-714X(2009)04-0476-02

【摘要】 目的 提高 NaK(Tl)γ能谱的测量精度, 拓展其应用范围。方法 针对 NaK(Tl)γ能谱的谱型特征, 利用权重最小二乘法进行解谱。结果 介绍了低本底 NaK(Tl)γ能谱仪的常用解谱方法, 着重介绍了权重最小二乘法(WLSQ)的原理和算法, 并在 Matlab平台下编程。结论 同一样品谱利用 WLSQ求解的结果与 HPGe谱仪测量的结果的偏差小于 10%。

【关键词】 γ能谱; 解谱; 权重最小二乘法

γ能谱仪是核辐射测量中最常用的仪器, γ谱仪通过对 γ射线能量的测量可以识别发射 γ射线的核素, 进行强度测量能够获得发射 γ射线核素的含量或活度。γ能谱测量广泛应用与辐射环境监测、地质勘探、建筑材料产品检验、食品卫生检验等领域。目前普遍使用的 γ能谱仪主要有两种: NaK(Tl)和 HPGe^[1]。HPGe谱仪能量分辨率高(对于⁶⁰Co的 1332 keV能峰可以达到 2.0 keV左右), 因此解谱方法较简单, 可以测量具有复杂核素构成的样品, 但 HPGe探头需在液氮冷却的环境下工作, 且价格比较昂贵。而 NaK(Tl)谱仪虽然能量分辨率低(对于¹³⁷Cs的 661 keV一般为 7%), 但使用维护简单, 效率高, 价格便宜。由于能量分辨率低, 对于测量多种核素混合的样品, 它的能谱存在重峰的现象, 因此需要比较复杂的解谱算法才能获得较高精度的测量结果^[1]。笔者针对 NaK(Tl)γ能谱的谱型特征, 利用权重最小二乘法(WLSQ)解谱, 并在 MATLAB平台上编制解谱程序求解样品谱, 与 HPGe谱仪测量的结果进行了比较, 偏差小于 10%。

1 NaK(Tl)γ能谱解谱分析

1.1 NaK(Tl)γ能谱的主要解谱方法 NaK(Tl)的解谱方法主要有剥谱法、函数拟合峰面积法、逆矩阵法、最小二乘逆矩阵法和权重最小二乘法等, 其中逆矩阵法和权重最小二乘法应用最广泛^[1,2]。

逆矩阵法又称解线性方程组法, 其根据标准谱和样品谱中各核素能峰道区计数的相对比较值, 求出样品中各核素的含量, 正确选择谱中各核素特征道区是逆矩阵法解谱的基础。这种方法比较简单, 其要求任何两种核素特征峰不能重叠^[2], 各特征峰道区之间的距离大于仪器的分辨率, 而且, 各核素的特征峰最好选择 γ射线分支比最大的全能峰。权重最小二乘法的基本思想是对每一道的计数进行考虑, 在解谱时, 扣除多道甄别器的探测下限及高能端的谱型畸变外, 几乎全谱数据都参与运算, 其包含了各核素全部能段的所有信息。克服了逆矩阵法 γ谱数据没有充分利用的缺点。权重最小二乘法对混合样品中成分已知的 γ能谱解析是极为有利的手段, 即使有重叠的干扰峰亦能获得良好的效果。

1.2 权重最小二乘法解谱算法 权重最小二乘法实质是逆矩阵法的引伸, 它把谱的每一道的计数作为一个特征道区, 每道的计数由所有核素在此道中影响的迭加, 它的计算方法如下^[1]。

假设样品所含的全部核素的个数为 n 选择的能峰道区总

数为 m 定义响应系数 a_{ij}的物理意义为单位活度的第 i 种成份在第 j 道上所能引起的计数率。a_{ij}一般用标准源直接测量得到。对混合谱, 设每种核素的含量为 X_i (i = 1, 2, ..., m), 在第 j 道, 混合谱的计数率为 N_j (j = 1, 2, ..., n), 它应为各成分核素分别在该道域引起的计数率之和, 即:

$$N_j = \sum_{i=1}^m a_{ij} X_i \quad (i = 1, 2, \dots, m) \quad (1)$$

所有道域的计数满足, (1)式, 这样就可以列出 m 个方程, 方程的个数 m 大于待求的未知数个数 n

$$\begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} & \dots & a_{1n} \\ a_{21} & a_{22} & \dots & a_{2n} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ a_{m1} & a_{m2} & \dots & a_{mn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X_1 \\ X_2 \\ \dots \\ X_m \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} N_1 \\ N_2 \\ \dots \\ N_m \end{bmatrix} \quad (2)$$

$$(2) \text{式的矩阵方程表达式为: } A^T A X = A^T N \quad (3)$$

$$X = (A^T A)^{-1} A^T N \quad (4)$$

式中 A 为响应系数 a_{ij}组成的矩阵, A^T 为其转置矩阵; X 为 n 种未知核素含量组成的列矩阵; N 为 m 个特征道中的净计数率组成的列矩阵。这个方程的个数大于未知数的个数, 是一个超定方程, 解这类方程要利用最小二乘的原理。考虑到每个能峰道上的计数率并非理想的观测值, 而是服从原子核衰变的统计涨落, 由误差理论每个能峰道上的计数率的残差可表示为积分计数的残差:

$$R_i = N_i - \sum_{j=1}^m a_{ij} X_j \quad (i = 1, 2, \dots, m) \quad (5)$$

由于每道统计误差不同, 故引入权重因子 ω_i, 根据最小二乘法原理要求 R_i 的平方和最小时 X_i 取最可几值, 即:

$$R = \sum_{i=1}^m \omega_i R_i^2 = \sum_{i=1}^m (N_i - \sum_{j=1}^m a_{ij} X_j)^2 = \min \quad (6)$$

$$\frac{\partial R}{\partial X_j} = \frac{\partial}{\partial X_j} [\omega_i \sum_{i=1}^m (N_i - \sum_{j=1}^m a_{ij} X_j)^2] = 0 \quad (7)$$

式中的权重因子 ω_i 取为相应道计数 Y_i 的倒数, ω_i = 1/Y_i。若需要多次拟合, 第二次拟合的 ω_i 可以取上次拟合结果 N_i 的倒数^[2]。上述方程组是一个包括了 n 个未知量 m 个方程式组成的方程组, 解此方程组可以求出 n 个核素的成分 X_i 上式写成矩阵形式为:

$$A^T W A X = A^T W N \quad (8)$$

$$X = (A^T W A)^{-1} A^T W N \quad (9)$$

$$X_i \text{ 的方差为: } \sigma_{X_i}^2 = \frac{R}{m-n} (A^T W A)^{-1}_{ii} \quad (10)$$

式中 W 为权重因子 ω_i 组成的对角矩阵, (A^TWA)⁻¹_{ij} 是矩阵 (A^TWA)⁻¹ 的第 i 行第 j 列的元素。

权重最小二乘法解谱中要注意对能谱的漂移的修正, 作最

作者单位: 安徽省辐射环境监督站, 安徽 合肥 230061
作者简介: 於国兵 (1974~), 男, 安徽肥东人, 工程师, 从事辐射环境监测与管理工作。

小二乘拟合之前还需进行能谱的数据光滑^[3]。由于低能部分的干扰较多,不必把全谱计数都用来拟合,在拟合时可以剔除低能道区的计数。

2 实验仪器

典型的单晶 NaI(Tl) γ 能谱仪的基本结构,主要包括 NaI(Tl)探测器、光电倍增管、模数转换器(ADC)以及多道脉冲分析器(MCA)组成(见图1)。本次研究工作使用的 NaI(Tl) γ 能谱仪为 ORTEC公司生产的 Micro-Nomad型,它使用 7.62 cm \times 7.62 cm的 NaI(Tl)晶体,2048道的 MCA和自制铅室,铅室在 30~2 000 keV的积分本底为 220 cpm。

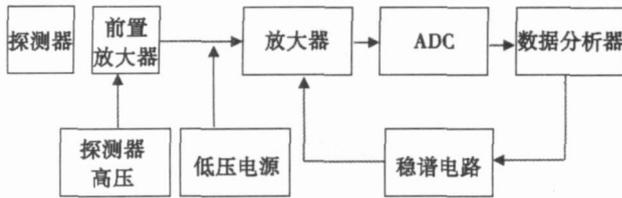


图 1 NaI(Tl) γ 能谱仪结构方框图

3 解谱程序与样品分析结果

由于 ²³²Th的 583 keV, ²²⁶Ra的 609 keV和 ¹³⁷Cs的 661 keV这 3个峰同时出现在 NaI(Tl)谱仪会产生重峰现象,使得解谱变得相当复杂,为了验证权重最小二乘法程序,选取了 2个混有 ¹³⁷Cs人工核素,且含量高低不同的土壤样品 A和 B样品采用直径 70 mm,高 65 mm的聚乙烯圆柱型杯封装,分别利用 CANBERRA公司的 HPG γ 能谱仪^[4]和 ORTEC公司的 NaI(Tl) γ 能谱仪进行测量,并利用 WLSQ算法编制的 Matlab⁵⁾程序对 NaI(Tl)谱仪的测量结果解谱。测量前首先分别制作 5个标准模拟土壤基质单核素体源(密度与几何形状与待测样品一致),核素类型为 ¹³⁷Cs, ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K和 ²³⁸U分别用 NaI(Tl)谱仪测量,并通过测量的标准谱求得系数响应矩阵,然后根据样品谱的各道计数建立方程。为了减少采集数据的涨落误差,测量时间均在 30 000 s以上,测量结果列于表 1 拟合结果见图 2和图 3 表 1中的标准偏差以 HPG γ 能谱仪分析结果为标准,NaI(Tl) γ 能谱仪权重最小二乘法解谱算法分析结果与之相比。

表 1 NaI(Tl)权重最小二乘法解谱结果与 HPG γ 能谱仪分析结果比较(单位: Bq/kg)

核素	WLSQ	HPGe	相对偏差(%)
U-238	84.6(±6.3%)	104.9(±5.0%)	19.3
	63.5(±7.1%)	69.2(±5.2%)	8.3
Th-232	141.7(±4.7%)	134(±4.1%)	5.8
	63.3(±4.4%)	64.9(±4.3%)	2.5
Ra-226	50.1(±4.4%)	65.4(±4.6%)	7.4
	38.1(±4.5%)	42.1(±4.8%)	9.4
K-40	203(±5.1%)	221(±4.6%)	8.2
	646(±4.6%)	716(±4.3%)	9.8
Cs-137	22.2(±4.2%)	20.4(±3.9%)	8.8
	7.9(±4.6%)	7.4(±3.8%)	6.9

注:括号内为 2 σ 不确定度。

由表 1可知,样品中 ¹³⁷Cs的含量高值为 20.4 Bq/kg,低值为 7.4 Bq/kg,相应的土壤中 ²³²Th含量分别为 134.0和 64.9 Bq/kg, ²²⁶Ra的含量对应为 65.4和 42.1 Bq/kg,权重最小二乘法解

谱算法结果与 HPG γ 能谱仪分析结果相对偏差小于 10%(除 ²³⁸U外)。这说明在测量样品谱线没有漂移的情况下,通过数学方法将样品实际测量谱线(复合谱)分解为单个(或系列)核素谱,进而求取样品的比活度,以此为理论基础编制的程序计算结果准确可靠。

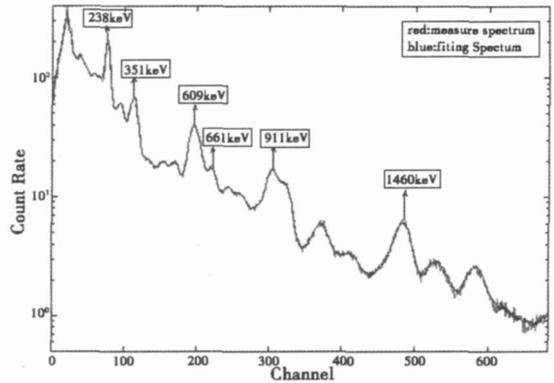


图 2 样品 A 的测量谱线与拟合结果的比较

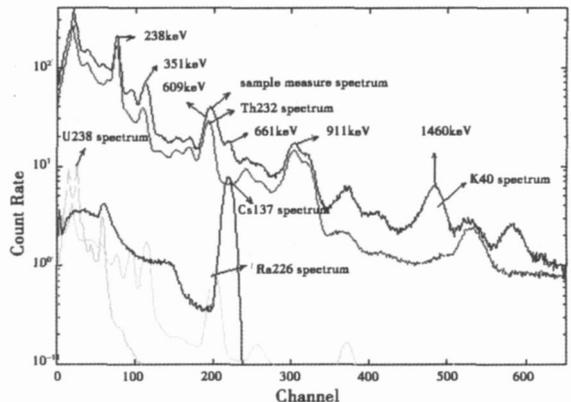


图 3 样品 B 的谱线分解为 5 个单核素谱

4 结论

通过以上计算以及实验的验证,可以看出:

(1)利用权重最小二乘法对 NaI(Tl)谱仪解谱可以达到与 HPG γ 谱仪相当的结果,偏差小于 10%。

(2)利用权重最小二乘法可以实现对混合谱中的重叠峰的分解。

(3)由于目前大部分的 NaI(Tl)谱仪配备的软件,只有采集数据、寻峰和峰面积计算等基本功能,不能精确求解具有多种核素组成的复杂样品谱型。可以利用大型科学计算软件 Matlab 编制解谱程序,实现对较复杂样品谱的求解,充分开发现有仪器的使用价值。

参考文献:

[1] 吴治华, 赵国庆, 陆福全, 等. 原子核物理实验方法 [M]. 3 版. 北京: 原子能出版社, 1997: 287-295
 [2] 庞巨丰. γ 能谱数据分析 [M]. 太原: 陕西科学技术出版社, 1990: 463-480
 [3] 庞巨丰, 陈军, 袁蕾. 岩心自然伽马射线 NaI(Tl)谱的解析 [J]. 测井技术, 1996 (20): 397-405
 [4] CANBEERRA Industries, Inc Genie 2000 Customization Tools Manual [Z].
 [5] 张志涌. 精通和掌握 matlab 6.5 版 [M]. 北京: 北京航空航天大学出版社, 2003

(收稿日期: 2007-04-30)