

NaI(Tl) γ 能谱谱线分析技术的研究

於国兵

中图分类号: TL816⁺.2 文献标识码: B 文章编号: 1004-714X(2009)04-0476-02

【摘要】 目的 提高 NaI(Tl) γ 能谱的测量精度, 拓展其应用范围。方法 针对 NaI(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 NaI(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 HPG ϵ 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: NaI(Tl)和 HPG ϵ 。HPG ϵ 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 HPG ϵ 探头需在液氮冷却的环境下工作, 且价格比较昂贵。而 NaI(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 NaI(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 HPG ϵ 谱仪测量的结果进行了比较, 偏差小于 10%。

1 NaI(Tl) γ 能谱解谱分析

1.1 NaI(Tl) γ 能谱的主要解谱方法 NaI(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 ($i=1, 2, \dots, m$)。在第 j 道, 混合谱的计数率为 N_j ($j=1, 2, \dots, n$), 它应为各成分核素分别在该道域引起的计数率之和, 即:

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

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 。

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

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

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

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:

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

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_j 取最可几值, 即:

$$R = \sum_{j=1}^m \omega_j R_j^2 = \sum_{j=1}^m (N_j - \sum_{i=1}^n a_{ij} X_i)^2 = \min \quad (6)$$

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

式中的权重因子 ω_i 取为相应道计数 N_i 的倒数, $\omega_i = 1/N_i$ 。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_j 。上式写成矩阵形式为:

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

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

$$X_j \text{ 的方差为: } \delta_{X_j} = \frac{R}{m-n} (A^T W A)^{-1}_{jj} \quad (10)$$

式中 W 为权重因子 ω_i 组成的对角矩阵, $(A^T W A)^{-1}_{jj}$ 是矩阵 $(A^T W A)^{-1}$ 的第 j 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

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。

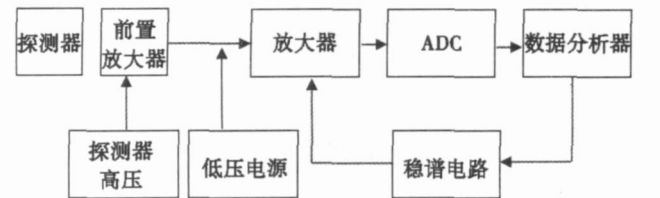


图1 NaI(Tl) γ 能谱仪结构方框图

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比值。

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($\pm 6.3\%$)	104.9($\pm 5.0\%$)	19.3
	63.5($\pm 7.1\%$)	69.2($\pm 5.2\%$)	8.3
Th-232	141.7($\pm 4.7\%$)	134($\pm 4.1\%$)	5.8
	63.3($\pm 4.4\%$)	64.9($\pm 4.3\%$)	2.5
Ra-226	50.1($\pm 4.4\%$)	65.4($\pm 4.6\%$)	7.4
	38.1($\pm 4.5\%$)	42.1($\pm 4.8\%$)	9.4
K-40	203($\pm 5.1\%$)	221($\pm 4.6\%$)	8.2
	646($\pm 4.6\%$)	716($\pm 4.3\%$)	9.8
Cs-137	22.2($\pm 4.2\%$)	20.4($\pm 3.9\%$)	8.8
	7.9($\pm 4.6\%$)	7.4($\pm 3.8\%$)	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。

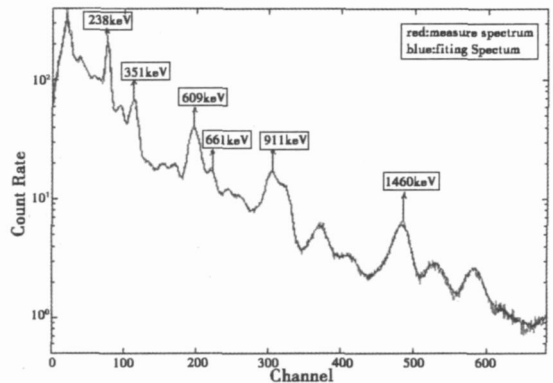


图2 样品A的测量谱线与拟合结果的比较

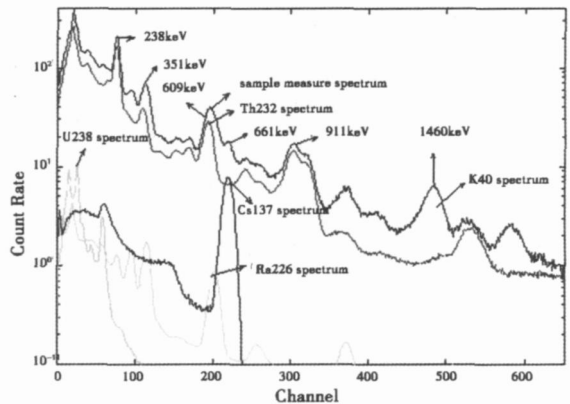


图3 样品B的谱线分解为5个单核素谱

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] CANBERRA 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)