

现场放射性物质鉴定用 γ 谱仪技术探讨

肖无云, 梁卫平, 李京伦, 艾宪芸, 王善强

(防化研究院, 北京 1044 信箱 201 号, 102205)

摘要: 概述了核和辐射突发事件防范与应急处置中现场放射性物质分析鉴定应用需求, 综述了国内外相关技术、产品与标准研究进展, 结合 NPS-L1 型数字化便携式 γ 谱仪研制经验, 对现场放射性物质分析鉴定中探测器选型、能谱测量分析、自动刻度与稳谱以及能量响应修正等关键技术问题进行了探讨, 总结了适于该应用的便携式 γ 谱仪技术配置方案。

关键词: 现场放射性物质分析鉴定, 溴化镭探测器, 能谱测量, 能量响应修正

1 概述

近年来, 随着国际核反恐与核军控斗争、国内核电建设与核技术应用以及自然灾害次生核与辐射灾害救援等形势的发展, 核与辐射突发事件防范与应急处置需求显著增长。在放射源探测方面需要高灵敏探测并具备无害报警免疫的监测能力; 在放射性物质鉴定、危害评估等方面需要高分辨率现场放射性物质分析鉴定能力; 在人员与环境辐射防护方面需要宽量程核辐射剂量监测能力。为了便于使用, 还同时要求尽可能实现多功能、小型化、智能化等。具有放射性搜寻定位、 γ 辐射周围剂量当量率测量和 γ 能谱测量分析能力的便携式 γ 谱仪能够较好地满足上述各方面需求, 从而成为国内外研究的热点。

在这个大背景下, 防化研究院 2000 年以来开展了现代谱仪技术研究、谱仪产品研制以及国家标准制定工作。本文结合相关工作进展探讨现场放射性物质分析鉴定中的几个重要技术问题。

2 国内外研究进展

1、技术研究进展

20 世纪 90 年代以来, 在新材料、微电子和嵌入式计算机等技术的发展推动下, 新型谱仪探测器技术、数字化能谱测量技术、能谱分析新技术都有明显进步。

碲锌镉 (CdZnTe)、氯化镭[LaCl₃(Ce)]、溴化镭[LaBr₃(Ce)] 探测器的相继问世, 为现场放射性物质分析鉴定提供了优于传统碘化钠[NaI(Tl)] 探测器的解决方案^[1]。而高效电制冷高纯锗 (HPGe) 探测器技术的出现, 满足了高端应用中对放射性物质权威鉴定的需求。

由于高性能模数转换器 and 大规模数字器件的发展, 基于高速波形采样和数字滤波成形的数字化能谱测量技术逐步取代基于模拟电路的经典能谱测量技术^[2]。数字化在提升能谱测量性能的同时, 带来了更多的灵活性和适应性。

能谱分析技术方面, 经典的谱数据预处理与峰分析技术得到进一步丰富和完善。近年来一些谱分析新方法也得到了广泛关注, 如人工神经网络、短时傅立叶分析、小波变换等。特别是直接解调^[3]、统计自举等数据处理理念的引入, 为通过算法克服硬件瓶颈, 提升谱仪系统综合性能开辟了新的道路。



图 1 NPS-L1 型数字化便携式 γ 谱仪

2、产品研制进展

国内外用于现场放射性物质鉴定的便携式核仪器型号较多。主流产品仍采用碘化钠[NaI(Tl)] 探测器,有些兼容 CdZnTe 和 LaBr₃(Ce)^[4]。典型如 SAIC 公司的 GR-135 系列, Target 公司的 IdentiFINDER 系列, CANBERRA 公司的 Inspector1000, BNC 公司的 SAM 940 等。国内清华大学、同方威视以及防化研究院等单位也推出了便携式γ谱仪产品,主要性能指标与国外同类产品相近。图 1 所示为防化研究院研制的 NPS-L1 型数字化便携式γ谱仪。它采用基于现场可编程门阵列(FPGA)的数字化能谱测量新技术,具有 4k 道的转换增益;采用Φ1.5"×1.5"LaBr₃(Ce)探测器, 662keV 处能量分辨率不大于 3.0%;内置盖革-穆勒(G-M)计数管,具有从天然本底至 1Sv/h 的周围剂量当量率测量范围;采用 4.3"宽温彩色触摸屏,便于用户使用。

受技术和价格的限制,便携式 HPGe 谱仪产品应用还不普遍。国内目前尚无便携式 HPGe 谱仪产品。

3、技术标准制定进展

1997 年 9 月到 2000 年 9 月,国际原子能机构(IAEA)开展了非法贩运辐射评估计划(ITRAP),提出了对手持式放射性核素识别仪(RID)的最低性能指标要求^[5]。该要求被后续其它技术标准广为引用并发展,至今仍被不少生产商用作产品性能检验依据。

2006 年 IAEA 制定并发布了核安保(NSS)1 号技术导则^[6]。导则对 RID 提出了更广泛的功能和性能要求。比如对放射性核素识别,不仅对单一核素识别提出了要求,也对混合核素识别提出了要求。

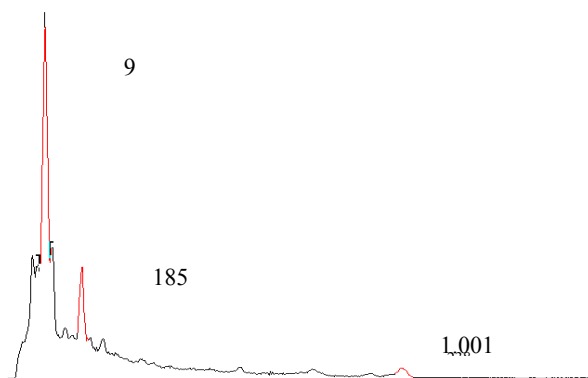
2006 年 2 月,国际电工委员会(IEC)正式发布了 IEC 62327-2006^[7],为业界广泛接受。它对 RID 的一般特性、放射性核素识别、周围剂量当量率指示、中子探测、电子学与环境性能等指标及其测试方法进行了详细规定。

2007 年 1 月,美国发布国家标准 ANSI 42.34-2006^[8]。在辐射特性方面进一步提出了对高天然γ辐射本底影响、β干扰电离辐射影响、误识别、周围材料干扰、入射角对识别的影响、识别的过载特性、全能峰效率的确定、半高宽的确定等要求。

2011 年 10 月,美国国土安全部国内核探测办公室发布了最新的 RID 性能标准^[9]。该标准对放射性核素探测与识别的性能试验方法、程序以及测试用放射源做出了更为详细的规定,特别是对多种干扰放射源伪装的特殊核材料(SNM)识别也提出了更为明确的要求。

总体来看,国外对用于现场放射性物质鉴定的手持式放射性核素探测与识别仪器的要求越来越高,性能检验方法的规定越来越细。考虑到我国当前谱仪技术研究和计量检定技术水平的实际情况,国内正在制定中的国家标准《用于探测、报警与识别放射性材料非法活动的手持式辐射监测仪》修改采用 IEC 62327-2006。主要技术差别体现在删除了中子探测要求,明确了 10 mSv·h⁻¹ 的周围剂量当量率测量上限,以及将电池连续工作时间提高到 8 h 等。

3 关键技术探讨



1、探测器选型

通过国内外大量开展的探测器与谱仪性能比对研究,得出的结论是 NaI(Tl)探测器能量分辨率差,不满足核和辐射突发事件防范与应急处置的现场放射性核素识别要求,特别是难以识别受干扰放射源影响的特

殊核材料 (SNM)。CdZnTe 探测器体积小, 对 1 MeV 以上的 γ 射线的探测效率低, 满足不了测量时间的要求。在当前经济技术条件下, LaBr₃(Ce)是解决现场放射性核素鉴定的最佳选择。图 2 是采用溴化镧探测器实测的铀材料 γ 能谱, 其中 ²³⁵U 的 185keV 和 ²³⁸U 的 1MeV 特征峰

能够清楚地分辨出来。为了满足在 0.5 μ Sv/h

剂量率下 1 分钟内识别放射性核素的速度要求, 通常选择 $\Phi 1.5'' \times 1.5''$ 或更大的闪烁体。试验表明, 这种闪烁体在高剂量率下计数率很大, 其适宜的剂量率测量上限约为 100 μ Sv/h。然而实际应用中剂量率测量上限一般要求达到 10 mSv/h 以上。因此, 还需要配置一只能量补偿型 G-M 计数管以拓展量程。由于制定中的国家标准对中子探测不作强制性要求, 中子探测器可作为选配件。

2、数字化能谱测量与分析技术

现场放射性核素核素识别对能谱测量性能有着苛刻的要求, 主要体现在: 放射性核素识别对能量分辨率的要求高, 剂量率测量对脉冲通过率的要求高, 苛刻的环境适应性对测量系统的抗干扰要求高。数字化能谱测量技术^[10]有效克服了脉冲幅度分辨率与脉冲通过率的矛盾, 通过减少模拟元器件也降低了温漂等不利影响。试验表明, 采用梯形滤波成形技术, 在前置放大器时常数低至 1 μ s 以内, 仍能保持良好的能量分辨率。在低温试验中, 闪烁体、光电倍增管和其它电子元器件的温度效应导致核脉冲波形发生明显畸变。采用数字核脉冲波形甄别方法有效地克服基线涨落和波形变化的影响, 确保脉冲判触发性能不变。梯形平顶有效降低了波形畸变对幅度分辨率的不利影响。这些都很好地验证了数字化能谱测量技术的优越性能。

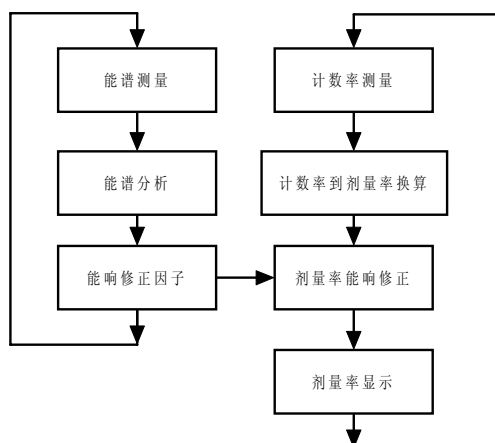
现场放射性核素核素识别对能谱分析技术的要求同样苛刻。研究表明, 单纯的基于峰位的定性识别不能满足 IEC 62327-2006 提出的核素鉴别的要求, 尤其是对于核材料等级鉴别、多峰核素识别和存在干扰核素等复杂情况。有效的核素识别需要峰面积计算和峰面积相关性的判据。

3、自动刻度与稳谱技术

准确的能量刻度是实现放射性核素识别的前提。有些谱仪产品本身不带刻度源, 刻度时需要额外使用刻度源。也有的谱仪产品将刻度源放置在充电基座内, 刻度时将谱仪放置在基座上。这两种方式都需要用户干预。考虑到应急监测的实际情况, 一方面便携式 γ 谱仪在经常变化的环境中使用, 能量刻度较为频繁; 另一方面, 实际操作人员未必是专业技术人员, 用户参与刻度有一定不便。因此, 适宜的方案是将刻度源安装在谱仪内, 仪器通过运行自动刻度程序无需用户干预地完成能量刻度。这既很好地保证了能量刻度的准确性, 同时也减少了用户使用和维护的工作量。NPS-L1 谱仪中就内置了一枚极微弱的 ¹³⁷Cs 源, 开机时自动进行能量刻度。

IEC 62327-2006 要求的谱仪工作温度范围为-20 $^{\circ}$ C~50 $^{\circ}$ C。在这样宽的温度范围内闪烁体尽管可以工作, 但其光输出性能却有很大的变化。因此, 如果不采取稳谱设计将不能保证能量刻度的稳定和正确性的放射性核素识别。为此, NPS-L1 谱仪中充分利用内置 ¹³⁷Cs 源, 仪器工作过程中实时监测 ¹³⁷Cs 发出的 662keV 特征峰的漂移情况, 并反馈控制系统增益, 实现了稳谱设计。试验表明, 该谱仪能够很好地满足-20 $^{\circ}$ C~50 $^{\circ}$ C 的工作温度范围要求。

4、能量响应修正技术



目前常见的各种谱仪探测器都不适宜作为剂量探测器件使用, 因为其材料不满足组织等效要求。另外, 在便携式 γ 谱仪中为了确保能谱测量性能, 也不可能为了能量响应采用特殊的探测器设计或能量响应补偿层。尽管目前各种版本手持式核素识别仪技术标准都没有明确提出 γ 剂量率测量的能量响应误差要求, 但是从辐射防护的角度考虑, 不能忽略能量响应问题。

在 NPS-L1 谱仪中采用了基于 γ 能谱测量的能量响应修正技术。其基本流程如图 3 所示。在剂量率测量过程中, 始终并行运行一个能谱测量分析线程, 它每隔一定周期计算并更新一次能量响应修正因子, 用于剂量率的能量响应修正。试验表明, 对 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 而言, 相同周围剂量当量率下的计数率相差约 2 倍。因此, 若直接采用计数率计算周围剂量当量率而不作能量响应修正是完全不可行的。可见, 能量响应修正十分必要。

4 结论

当前, 解决现场放射性物质鉴定问题的主要技术手段是 γ 能谱测量与分析。在应用需求牵引下, 谱仪探测器技术、能谱测量技术和能谱分析技术都在不断发展和提高, 便携式 γ 谱仪产品不断推陈出新, 相关技术标准也在不断提高对这一类仪器的性能要求。

根据核和辐射突发事件防范与应急处置中放射性物质鉴定的实际需求, 并充分考虑到当前的经济技术水平, 结合防化研究院 NPS-L1 型数字化便携式 γ 谱仪的研制、试验和使用经验, 认为如下谱仪技术配置方案有助于更好地解决复杂环境下现场监测问题: 采用 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器配合数字化能谱测量技术实现高性能的放射性核素识别, 采用 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器和基于能谱测量的能量响应修正技术实现准确的低剂量率测量, 采用能量补偿型 G-M 计数管实现剂量率量程上限的拓展, 采用内置放射源实现自动能量刻度与稳谱。

参考文献:

- [1] B. D. Milbrath, B. J. Choate, J. E. Fast, et. al, Comparison of $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ and $\text{NaI}(\text{Tl})$ Scintillators for Radio-Isotope Identification Devices, PNNL-15831, April 2006
- [2] J. Basílio Simões, Carlos M.B.A. Correia, Pulse processing architectures, Nucl Instr and Meth in Phys Research, A422 (1999)
- [3] 艾宪芸, 魏义祥, 肖无云, 直接解调法在碲锌镉探测器 γ 谱分析中的应用, 《清华大学学报(自然科学版)》, 2006 年第 46 卷第 6 期
- [4] 肖无云, 毛用泽, 艾宪芸等, 手持式 γ 谱仪用核辐射探测器综述, 《核电子学与探测技术》, 2008 年第 5 期(9 月), Vol.28 No.5
- [5] Peter Beck, Final Report ITRAP, Illicit Trafficking Radiation Detection Assessment Program, Austrian Reserch Center, <http://tsasys-tems.com/library/reports/itrapfinreport.pdf>
- [6] IAEA Pub 1240 Nuclear Security Series No.1, Technical and Functional Specifications for Border Monitoring Equipment, IAEA VIENNA, 2006
- [7] IEC 62327-2006, Hand-held instruments for the detection and identification of radionuclides and for the indication of ambient dose equivalent rate from photon radiation for preventing and disposing nuclear and radiological terrorist events
- [8] ANSI N42.34-2006: Performance Criteria for Hand-Held Instruments for the Detection and Identification of Radio-nuclides
- [9] Domestic Nuclear Detection Office (DNDO), Technical Capability Standard for Handheld Instruments Used for the Detection and Identification of Radionuclides, October 2011
- [10] 肖无云, 魏义祥, 艾宪芸, 敖奇, 数字化多道脉冲幅度分析技术研究, 《核技术》, 2005, Vol.28, No.10