

就地 γ 谱仪峰谷比法测量 ^{137}Cs 深度分布

冯天成¹, 贾明雁¹, 冯元举¹, 苏川英¹, 吴睿¹, 陈伟¹, 龙斌¹, 程建平²

(1. 西北核技术研究所, 陕西 西安 710024; 2. 清华大学 工程物理系, 北京 100084)

摘要: 研究就地 γ 谱仪测量地表层 ^{137}Cs 深度分布的峰谷比法, 建立了就地 γ 能谱峰谷比数值计算公式和实验剥谱方法。理论计算表明, 峰谷比随 ^{137}Cs 张弛深度的变化十分灵敏, 土壤密度误差对峰谷比有一定影响, 但变化不大时, 对峰谷比法结果影响可忽略。野外验证实验显示, 峰谷比法相对于样品实验室分析结果的最大相对偏差为 31%, 表明峰谷比法是可行的, 所建立数值计算公式、实验剥谱方法是正确的。

关键词: 就地 γ 谱仪; ^{137}Cs ; 深度分布; 峰谷比法

中图分类号: TL81

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2011)06-0722-08

Peak-to-Valley Ratio Method to Determine Depth Distribution of ^{137}Cs in Soil by *In-Situ* γ Spectrometry

FENG Tian-cheng¹, JIA Ming-yan¹, FENG Yuan-ju¹, SU Chuan-ying¹,
WU Rui¹, CHEN Wei¹, LONG Bin¹, CHENG Jian-ping²

(1. Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China;

2. Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: The peak-to-valley ratio (PVR) method was approached to determine the depth distribution of ^{137}Cs in soil by *in-situ* γ spectrometry. Theoretical calculations show that the variation of PVR is much sensitive with the dissimilarity of radioactive depth distribution, and the influence of soil density uncertainty to PVR is slight and can be neglected when the variation of soil density is within 10%. Field experiments were performed to justify the theories as correctness. The results show that the maximum relative deviation of *in-situ* γ spectrometry is about 31% relative to the samples analysis in laboratory, which indicates that PVR method of *in-situ* γ spectrometry is correct for the determination of radioactive depth distribution in soil.

Key words: *in-situ* γ spectrometry; ^{137}Cs ; depth distribution; peak-to-valley ratio method

在某大面积放射性污染场广泛存在人工沉积核素 ^{137}Cs 的污染。就地 γ 谱仪测量土壤中人工沉积核素技术受对核素深度分布未知的制

约^[1], 深度分布假设是就地 γ 谱仪测量结果不确定度的首要来源^[2]。研究就地 γ 谱仪测量核素深度分布的文献较多, 其中, 多能峰法只适用

于多能 γ 核素(γ/X 射线不少于两支), ^{137}Cs 衰变伴随发射两支射线的能量为 662、32 keV,但由于 32 keV X 射线全能峰计数统计涨落大,因此限制了多能峰法在测量 ^{137}Cs 中的应用^[3]。峰谷比法^[2,4-21]可解决地面沉积单能 γ 核素深度分布测量的问题,且只需标准型就地 γ 谱仪现场测量 1 次,工作效率较高,因此,本工作以 ^{137}Cs 为研究对象,对峰谷比法进行详细理论分析和实验研究。

1 原理

1.1 有限尺寸体源

γ 射线穿越均匀介质的几率随距离呈指数衰减规律:

$$P_0(\mu, r) = e^{-\mu r} \quad (1)$$

式中: $P_0(\mu, r)$ 为非散射 γ 射线穿越几率; μ 为均匀介质对 γ 射线的线衰减系数, m^{-1} ; r 为单位体元 dV 到探测器的距离, m 。

半空间无限体源模型示于图 1。对核素随土壤深度以指数函数递减分布的体源,当 γ 射线穿透土壤和空气层后射入探测器,其注量率可表示为:

$$\varphi_0 = \int_V \frac{A_{v,0} e^{-\alpha z} P_\gamma P_0(\mu_a, \mu_s, r)}{4\pi r^2} dV \quad (2)$$

式中: $A_{v,0}$ 为体源表面单位体积放射性活度, Bq/cm^3 ; $e^{-\alpha z}$ 为核素深度分布函数, z 为深度, $z = r \cos \theta - h$, α 为核素张弛深度的倒数; P_γ 为 γ 射线发射强度, s^{-1} ; μ_s, μ_a 分别为土壤、空气对 γ 射线的线衰减系数, m^{-1} 。

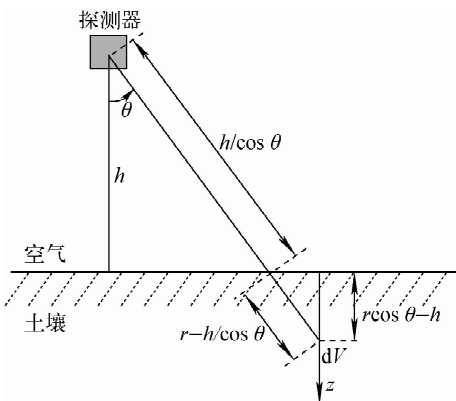


图 1 半空间无限体源模型

Fig. 1 Geometrical model for theoretical calculation of infinite radius volume source

有限体积体源模型示于图 2。令体源厚度为 t 、体源半径为 l , 则有:

$$\varphi_0 = \iint \frac{A_{v,0} e^{-\alpha(r \cos \theta - h)} P_\gamma e^{-(\mu_s h / \cos \theta + \mu_a (r - h / \cos \theta))}}{4\pi r^2} \cdot 2\pi r^2 \sin \theta dr d\theta = \frac{A_{v,0} P_\gamma}{2} \left(\int_0^{\theta_1} \frac{\sin \theta}{\mu_s + \alpha \cos \theta} e^{-\mu_a h / \cos \theta} (1 - e^{-(\mu_s + \alpha) t / \cos \theta}) d\theta + \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sin \theta}{\mu_s + \alpha \cos \theta} e^{-\mu_a h / \cos \theta} (1 - e^{-(\alpha \cos \theta + \mu_s) l / \sin \theta - (\alpha + \mu_s) h / \cos \theta}) d\theta \right) \quad (3)$$

加入探测器对 γ 射线的有效前面积 S_0 、角响应函数 $\epsilon(\theta)$, 得 γ 能峰净计数率 n :

$$n = \varphi_0 S_0 \epsilon(\theta) \quad (4)$$

$$n = \frac{A_{v,0} P_\gamma S_0}{2} \left(\int_0^{\theta_1} \frac{\sin \theta \cdot \epsilon(\theta)}{\mu_s + \alpha \cos \theta} e^{-\mu_a h / \cos \theta} (1 - e^{-(\mu_s + \alpha) t / \cos \theta}) d\theta + \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sin \theta \cdot \epsilon(\theta)}{\mu_s + \alpha \cos \theta} e^{-\mu_a h / \cos \theta} (1 - e^{-(\alpha \cos \theta + \mu_s) l / \sin \theta - (\alpha + \mu_s) h / \cos \theta}) d\theta \right) \quad (5)$$

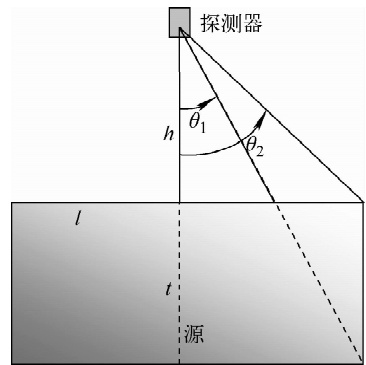


图 2 有限体积体源模型

Fig. 2 Geometrical model for theoretical calculation of limited-scale source

多次散射对探测器的贡献很小^[22-23], 只考虑单次散射。在均匀空气介质中, 单次散射射线发射几率 $P_1(\mu_a, r)$ ^[5] 为:

$$P_1(\mu_a, r) = \int_0^r k' \mu_a e^{-\mu_a x} dx e^{-\mu_a (r-x)} = k' \mu_a r e^{-\mu_a r} \quad (6)$$

式中: k' 为比例因子, 它与线衰减系数的乘积为 γ 射线穿越单位长度路径过程中散射到谷区的几率; x 为源到散射作用点的距离。

由于所选取散射 γ 射线能区(谷区)能量与初始 γ 射线的能量十分接近, 因此, 初始 γ 射线与散射 γ 射线的线衰减系数、有效前面积、角响应函数等参数分别近似相等, 所以, 在推导中均

用初始 γ 射线参数代替散射 γ 射线参数。

由地面土壤体源发射 γ 射线的前散射(小角度散射)到谷区的注量率为:

$$\varphi_1 = \int_V \frac{A_{v,0} e^{-\alpha z}}{4\pi r^2} P_1(\mu_a, \mu_s, r) dV \quad (7)$$

由于土壤和空气两种介质的散射,散射 γ 射线的发射几率为:

$$P_1 = \int_0^{r-h/\cos\theta} k' \mu_s e^{-\mu_s x} dx \cdot e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta-x)} e^{-\mu_a h/\cos\theta} + \int_{r-h/\cos\theta}^r k' \mu_a e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta)} e^{-\mu_a(x-r+h/\cos\theta)} e^{-\mu_a(r-x)} dx = k' e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta)-\mu_a h/\cos\theta} \cdot$$

$$(\mu_s(r-h/\cos\theta) + \mu_a h/\cos\theta) \quad (8)$$

式(8)中,前一部分为土壤散射,后一部分为空气散射。仅考虑土壤散射,有:

$$P_1 = \int_0^{r-h/\cos\theta} k' \mu_s e^{-\mu_s x} dx \cdot e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta-x)} \cdot e^{-\mu_a h/\cos\theta} = k' \mu_s (r-h/\cos\theta) e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta)-\mu_a h/\cos\theta} \quad (9)$$

则由于土壤散射的 γ 射线注量率为:

$$\varphi_1 = \iint \frac{A_{v,0} P_\gamma k' \mu_s}{4\pi r^2} (r-h/\cos\theta) e^{-\alpha(r-h/\cos\theta)} \cdot e^{-\mu_s(r-h/\cos\theta)+\mu_a h/\cos\theta} 2\pi r^2 \sin\theta dr d\theta = \frac{A_{v,0} P_\gamma k' \mu_s}{2} \left(\int_0^{\theta_1} \frac{\sin\theta}{(\mu_s + \alpha \cos\theta)^2} e^{-\mu_a h/\cos\theta} \cdot (1 - (1 + \alpha t + \frac{\mu_s t}{\cos\theta}) e^{-(\alpha + \mu_s/\cos\theta)t}) d\theta + \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sin\theta}{(\mu_s + \alpha \cos\theta)^2} e^{-\mu_a h/\cos\theta} (1 - (1 + \frac{\mu_s l}{\sin\theta} + \frac{\alpha l \cos\theta}{\sin\theta} - \frac{\mu_s h}{\cos\theta} - \alpha h) e^{-(\frac{\mu_s l}{\sin\theta} + \frac{\alpha l \cos\theta}{\sin\theta} - \frac{\mu_s h}{\cos\theta} - \alpha h)} d\theta \right) \quad (10)$$

推导得探测器对土壤散射 γ 射线的净计数率 C :

$$C = \varphi_1 S_0 \epsilon(\theta) \quad (11)$$

$$C = \frac{A_{v,0} P_\gamma S_0 k' \mu_s}{2} \left(\int_0^{\theta_1} \frac{\sin\theta \cdot \epsilon(\theta)}{(\mu_s + \alpha \cos\theta)^2} e^{-\mu_a h/\cos\theta} \cdot (1 - (1 + \alpha t + \frac{\mu_s t}{\cos\theta}) e^{-(\alpha + \mu_s/\cos\theta)t}) d\theta + \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sin\theta \cdot \epsilon(\theta)}{(\mu_s + \alpha \cos\theta)^2} e^{-\mu_a h/\cos\theta} (1 - (1 + \frac{\mu_s l}{\sin\theta} + \frac{\alpha l \cos\theta}{\sin\theta} - \frac{\mu_s h}{\cos\theta} - \alpha h) e^{-(\frac{\mu_s l}{\sin\theta} + \frac{\alpha l \cos\theta}{\sin\theta} - \frac{\mu_s h}{\cos\theta} - \alpha h)} d\theta \right) \quad (12)$$

1.2 有限厚度无限半径体源

对有限厚度无限半径体源,设体源厚度为 t ($t \approx 4.61/\alpha$),体源半径 l 为无限,则由式(5)、

(12)可得由土壤散射造成的峰谷比 R :

$$R = \frac{n}{C} = \frac{1}{k' \mu_s} \cdot$$

$$\frac{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{\sin\theta \cdot \epsilon(\theta)}{\mu_s + \alpha \cos\theta} e^{-\mu_s h/\cos\theta} (1 - e^{-(\mu_s + \alpha t/\cos\theta)\theta}) d\theta}{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{\sin\theta \cdot \epsilon(\theta)}{(\mu_s + \alpha \cos\theta)^2} e^{-\mu_s h/\cos\theta} (1 - (1 + \alpha t + \frac{\mu_s t}{\cos\theta}) e^{-(\alpha + \mu_s/\cos\theta)t}) d\theta} \quad (13)$$

分析发现,在体源厚度 t 及土壤密度 ρ 不变的情况下,当张弛深度的倒数 α 增大时,峰谷比随之增大。

1.3 多次散射影响的分析

考虑二次散射对探测器的贡献。此处,二次散射要求单次小角度散射 γ 射线,被二次小角度散射后,能量依然落在关心的谷区能量范围。由于全能峰、单次散射及二次散射后射线的能量接近,因此,理论推导时 γ 射线与介质的作用参数采用相同的值。

假设探测器置于地面,探测器与地面间不存在空气介质,则由式(6)可得在均匀土壤介质中单次散射的几率 $P_1(\mu_s, r)$ 。二次散射计算原理如图3所示,其中 x 、 y 分别为单次、二次散射作用点;二次散射 $P_2(\mu_s, r)$ 为:

$$P_2(\mu_s, r) = \int_0^r k' \mu_s e^{-\mu_s x} dx \cdot \left(\int_x^r k' \mu_s e^{-\mu_s(y-x)} dy \cdot e^{-\mu_s(r-y)} \right) = \frac{1}{2} k'^2 \mu_s^2 r^2 e^{-\mu_s r} \quad (14)$$

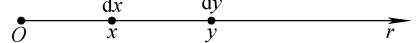


图3 $P_2(\mu_s, r)$ 计算原理

Fig. 3 Calculation principle of $P_2(\mu_s, r)$

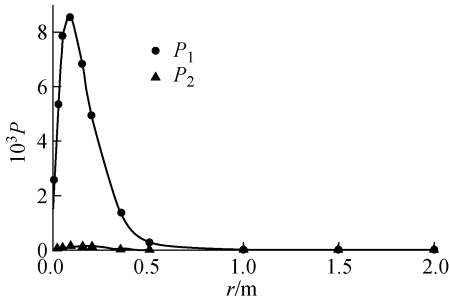
同理,可推导获得第 m 次散射的几率:

$$P_m(\mu_s, r) = \frac{1}{m!} k'^m \mu_s^m r^m e^{-\mu_s r} \quad (m = 0, 1, 2, \dots) \quad (15)$$

由式(6)、(15)得 $P_2(\mu_s, r)$ 、 $P_1(\mu_s, r)$ 随介质厚度的变化(图4)。二者比值随介质厚度变化为:

$$\frac{P_2(\mu_s, r)}{P_1(\mu_s, r)} = \frac{\frac{1}{2} k'^2 \mu_s^2 r^2 e^{-\mu_s r}}{k' \mu_s r e^{-\mu_s r}} = \frac{k' \mu_s r}{2} \quad (16)$$

计算 $P_2(\mu_s, r)$ 、 $P_1(\mu_s, r)$ 时, k' 取 0.019

图4 P_1 、 P_2 计算结果Fig. 4 Calculating results of P_1 and P_2

(具体数值不影响相对变化);土壤密度为 1.6 g/cm^3 时,对 662 keV γ 射线的线衰减系数 μ_s 为 12.4 m^{-1} 。

从图4可看出,对 662 keV γ 射线,散射几率随介质厚度的变化有一极大值,此时,一次散射的介质深度约为 10 cm (介质为密度 1.6 g/cm^3 的土壤),二次散射的介质深度约为 15 cm ;之后随土壤厚度增加,出射土壤的散射射线几率迅速减小。散射总贡献集中于约 0.5 m 厚度之上的土壤,此时,二次散射贡献占一次散射计数率贡献的份额约为 2% ;对三次散射,其贡献更小,约为 0.03% 。说明谷区计数率贡献主要来源于单次散射。

1.4 k' 的理论确定

k' 为比例因子,它与线衰减系数的乘积为 γ 射线穿越单位长度路径过程中散射到谷区的几率(只考虑单次散射)。

1) 数值理论

依据 Klein-Nishina 公式,康普顿散射微分截面为 $d\sigma_{e,c}/d\Omega$,它是指 γ 射线垂直入射到单位面积包含 1 个电子的介质上,散射 γ 射线落在 θ 方向单位弧度立体角 $d\Omega$ 内的概率:

$$\frac{d\sigma_{e,c}}{d\Omega} = r_0^2 \left(\frac{1}{1+a(1-\cos\theta)} \right)^2 \frac{1+\cos^2\theta}{2} \cdot \left(1 + \frac{a^2(1-\cos\theta)^2}{(1+\cos^2\theta)(1+a(1-\cos\theta))} \right) \quad (17)$$

式中: $a \equiv E/m_0 c^2$; r_0 为经典电子半径, $r_0 = e^2/m_0 c^2 = 2.8 \times 10^{-13} \text{ cm}$ 。

按概率论规则,将 $d\sigma_{e,c}/d\Omega$ 对全部 θ 取值积分,得到代表康普顿效应发生概率的总截面 $\sigma_{e,c}$:

$$\sigma_{e,c} = 2\pi \int_0^{180^\circ} \frac{d\sigma_{e,c}}{d\Omega} \sin\theta d\theta = 2\pi \int_{-1}^1 \frac{d\sigma_{e,c}}{d\Omega} d\cos\theta \quad (18)$$

式中: θ 可积分范围为 $0^\circ \sim 180^\circ$;以 $\cos\theta$ 为积分变量,积分范围为 $-1 \sim 1$ 。

散射 γ 射线能量 E' 随散射角 θ 的关系为:

$$E' = \frac{E}{1 + \frac{E}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)} = \frac{E}{1 + a(1 - \cos\theta)} \quad (19)$$

依据式(18)、(19)可得:

$$\sigma_{e,c} = 2\pi \int_{E'_{\min}}^{E'_{\max}} \frac{d\sigma_{e,c}}{d\Omega} \cdot \frac{1}{a} \cdot \frac{E}{E'^2} dE' \quad (20)$$

令电子静止能量 $E_0 = m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$, $E = aE_0$, 则有:

$$\sigma_{e,c} = \pi r_0^2 \frac{1}{a^2} \cdot \frac{1}{E_0} \int_{E'_{\min}}^{E'_{\max}} \left(\frac{2}{a} + \frac{1}{a^2} + \left(a - \frac{2}{a} - 2 \right) \frac{E_0}{E'} + \frac{E_0^2}{E'^2} + \frac{1}{a} \cdot \frac{E'}{E_0} \right) dE' \quad (21)$$

则散射 γ 射线能量落在 $E' \sim E' + \Delta E$ 间的截面为:

$$\sigma_{e,c}(E' \sim E' + \Delta E) = \frac{\pi r_0^2}{a^2 E_0} \left(\left(\frac{2}{a} + \frac{1}{a^2} \right) E' + \left(a - \frac{2}{a} - 2 \right) E_0 \ln E' - \frac{E_0^2}{E'} + \frac{1}{2aE_0} E'^2 \right) \Big|_{E'}^{E'+\Delta E} \quad (22)$$

应用式(21)、(22),可计算 γ 射线被电子单次散射后,散射概率随散射 γ 射线能量的变化。应用式(23),计算获得 k' 为:

$$k'(E' \sim E' + \Delta E) = \frac{\sigma_{e,c}(E' \sim E' + \Delta E)}{\sigma_{e,c}} \quad (23)$$

2) Monte-Carlo 模拟

为检验数值推导与数值计算结果的正确性,利用 Monte-Carlo 方法模拟计算 k' ,与数值计算结果进行比较。Monte-Carlo 计算采用 MCNP-4C 软件包,设计如图5所示的计算模型。图5中,点源位于坐标原点,外包半径为 R_1 的土壤球,土壤球外包半径为 R_2 的球面探测器;土壤球与探测面间的空间设置为真空。

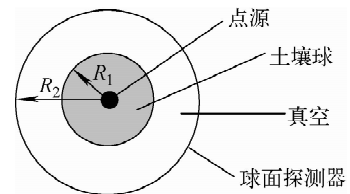


图5 Monte-Carlo 计算模型

Fig. 5 Geometrical model of Monte-Carlo simulation

γ 射线从点源各向同性发射,出射土壤球或被土壤球介质散射后全部被探测器记录。选择 R_1 的厚度,可控制 γ 射线到达探测器前的平均散射次数。

依据式(16),计算二次散射与单次散射几率之比:

$$\frac{P_2(\mu_s, R_1)}{P_1(\mu_s, R_1)} = \frac{1}{2} k \mu_s R_1^2 \quad (24)$$

通过式(24)选择土壤球半径 R_1 ,使得被探测器记录的散射 γ 射线以单次散射为主。令二次散射几率是单次散射几率的0.1%,计算全部散射,此时 k' 取1,则有:

$$0.001 = \frac{1}{2} \mu_s R_1^2 \quad (25)$$

令土壤密度为 1.6 g/cm^3 ,则 ^{137}Cs 662 keV γ 射线的线衰减系数约为 0.124 cm^{-1} ,此时求得 $R_1 = 0.13 \text{ cm}$ 。Monte-Carlo方法计算时,取 $R_1 = 0.1 \text{ cm}$,此时二次散射几率与单次散射几率之比小于0.1%,单次散射占主导作用,二次以上散射影响可忽略。

Monte-Carlo计算获得散射全能谱,进而计算得到特定能区散射计数与总散射能区的比值,即为该能区的散射比例因子 k' 。

3) 结果

以 ^{137}Cs 662 keV γ 射线为例进行计算分析。选择 $E' = 646 \text{ keV}$, $E' + \Delta E = 654.5 \text{ keV}$,依据式(23),计算得到 $k' = 0.0191$ 。

取 $R_1 = 0.1 \text{ cm}$ 时(土壤密度 1.6 g/cm^3 ,此时二次散射几率与单次散射几率之比小于0.1%), Monte-Carlo方法计算得到 $k' = 0.0189$ 。

数值计算与 Monte-Carlo 模拟计算结果趋于一致,佐证了数值计算方法与 Monte-Carlo 模拟方法的合理性。

2 剥谱原理

如图6所示,就地 γ 能谱谷区内计数主要由土壤散射、空气散射、探测器非全能吸收和本底4方面计数组成。峰谷比法需通过剥谱处理,从谷区剥去空气散射、探测器非全能吸收和本底3方面计数贡献,得到仅由土壤散射的计数。通过实验设计可将空气散射、探测器非全能吸收两种响应一并剔除。

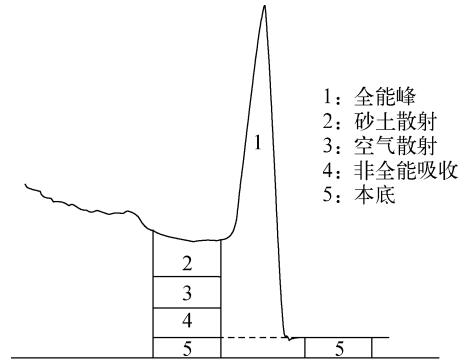


图6 能谱组成

Fig. 6 Spectrum elements

现场获取能谱后,剥去本底计数贡献,再依据实验获得的空气散射、探测器非全能吸收计数与全能峰的比值关系剥去它们二者的计数贡献,获得仅由土壤散射作用带来的土壤散射贡献。将全能峰计数除以土壤散射计数,获得峰谷比。

为减小计数统计涨落和缩短实验时间,采用实验室现有的活度较高的 ^{137}Cs 面源进行实验。面源为正六边形,对角线长 1 m 。探测器架设在 1 m 高度,首先测量获得本底能谱;之后,如图7所示,将面源架设在地面进行测量,第0次测量面源中心位于探测器对称轴线与地面的交点,之后的第1、2、3、4、5、6次测量,面源逐次排列,相邻面源中心间距离均为 1 m 。

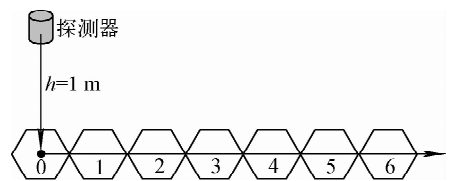


图7 实验方法

Fig. 7 Experimental design of stripping-parameter determination

在 ^{137}Cs 面源实验中,令剥除本底谱后的全能峰净计数率为 n_p 、谷区净计数率为 n_v ,得到各次面源实验的峰谷比 $R(i) = n_p/n_v$ ($i = 0, 1, 2, \dots$),实验编号也正是各次实验面源中心距探测器对称轴线与地面的交点的距离。拟合获得由空气散射、探测器非全能吸收贡献带来的峰谷比随距离 l 的变化曲线 $R_a(l)$ 。通过权重平均计算获得相应的无限大面源峰谷比 R_a :

$$R_a \approx \frac{\int_0^{l_{\max}} 2\pi l \frac{e^{-\mu_a(l^2+1)^{1/2}}}{l^2+1} R_a(l) dl}{\int_0^{l_{\max}} 2\pi l \frac{e^{-\mu_a(l^2+1)^{1/2}}}{l^2+1} dl} = \frac{\int_0^{l_{\max}} l \frac{e^{-\mu_a(l^2+1)^{1/2}}}{l^2+1} R_a(l) dl}{\int_0^{l_{\max}} \frac{l e^{-\mu_a(l^2+1)^{1/2}}}{l^2+1} dl} \quad (26)$$

式中: $2\pi l dl \cdot e^{-\mu_a(l^2+1)^{1/2}} / (l^2+1)$ 为权重因子; l_{\max} 为 l 的最大取值, 对 662 keV γ 射线, 计算得到在注量率贡献大于 99% 时的 l 约为 50 m, 即 $l_{\max} = 50$ m; 空气对 662 keV γ 射线的线衰减系数 $\mu_a = 0.01 \text{ m}^{-1}$ 。

实验研究中, ¹³⁷Cs 感兴趣能区选择为: 全能峰, 662 keV; 谷区, 646 ~ 654.5 keV; 本底区, 665 ~ 673.5 keV。

现场测量获得 ¹³⁷Cs 662 keV γ 能谱, 令本底区(图 6 中的 5)计数率为 B , 谷区总净计数率为 V , 全能峰净计数率为 n , 则可计算得仅由土壤散射带来的 R :

$$R = \frac{n}{V - B - n/R_a} \quad (27)$$

3 实验与分析

3.1 数值计算

依据式(13)计算获得 R 随 ¹³⁷Cs 张弛深度倒数 α 的关系, 结果示于图 8。拟合关系式为: $\alpha = 0.009 896R^2 - 0.698 647R + 10.418 040$ (28)

式(28)的拟合相关系数为 0.999 9。此式可用于内插计算。

计算时, 土壤密度设置为 1.88 g/cm³ (为 5 个现场验证实验点的平均值), 不确定度为 0.10 g/cm³, 相应的土壤对 662 keV γ 射线的线衰减系数为 0.145 cm⁻¹, k' 取 0.019。

为评价土壤密度不确定度对计算结果的影响, 设置 $\alpha = 0.2 \text{ cm}^{-1}$ (较常见数值) 计算得到 R 随土壤密度 ρ 的变化(图 9), 拟合关系式为:

$$R = 76.932\rho^{-0.270 1} \quad (29)$$

式(29)的拟合相关系数为 0.996 7。

通过式(29)计算发现, $\alpha = 0.2 \text{ cm}^{-1}$ 时, 实验中土壤密度误差 ((1.88 ± 0.10) g/cm³) 带来的结果不确定度约为 2%。

计算结果表明, 在张弛深度不变时, 峰谷比

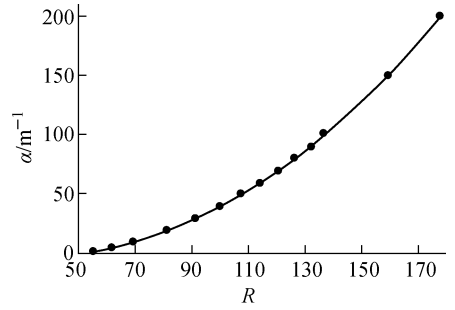


图 8 R 与 α 的关系

Fig. 8 Relationship of R and α

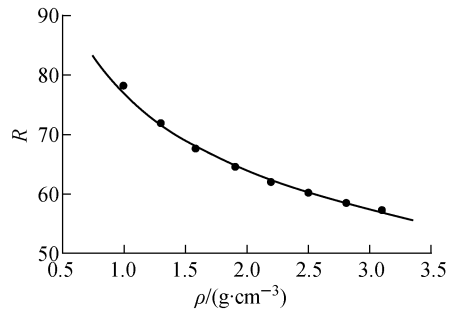


图 9 R 与 ρ 的关系

Fig. 9 Relationship of R and ρ

将随着土壤密度的增大而减小, 当密度变化 1 倍时, 峰谷比的变化约在 20% 之内, 说明峰谷比法对土壤密度的准确测量具有一定依赖性; 但当土壤密度变化不大时, 如变化 10%, 对峰谷比法结果影响约在 4% 之内, 可忽略。

3.2 剥谱参数实验确定

通过式(1)、(6)可获得由于空气散射, 自点源位置发射的平行束, 其初始射线与空气散射射线穿透空气层概率的比值随探测距离的变化符合幂函数规律:

$$\frac{P_0(\mu_a, r)}{P_1(\mu_a, r)} = \frac{e^{-\mu_a r}}{k' \mu_a r e^{-\mu_a r}} = \frac{1}{k' \mu_a} \cdot \frac{1}{r} \quad (30)$$

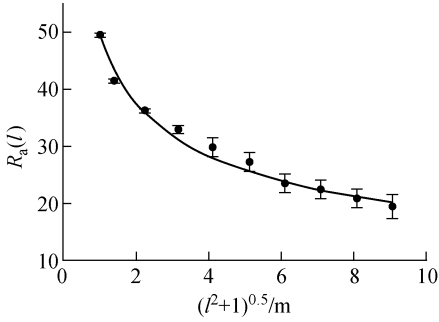
式中: r 为空气层厚度; k' 、 μ_a 均为常数。

因此, 用幂函数拟合 $R_a(l)$ 随 l 的变化是合理的, 便于数据外推。利用 ¹³⁷Cs 面源进行了 $R_a(l)$ 测量实验, 拟合获得关系曲线示于图 10, 拟合关系式为:

$$R_a(l) = 50.082(l^2 + 1)^{-0.206 7} \quad (31)$$

式(31)的相关系数为 0.982 2。

将式(31)代入式(26), 算得 ¹³⁷Cs 662 keV γ 射线在本实验所用探测器中的就地 γ 能谱的

图 10 $R_a(l)$ 与 l 的关系Fig. 10 Relationship of $R_a(l)$ and l

R_a 为 $26 \pm 3(1\sigma)$ (638~655 keV 能区); 为减小环境干扰, 野外实验数据处理时谷区选为 646~654.5 keV, 能区减小一半, 则 R_a 增大 1 倍, 为 $52 \pm 6(1\sigma)$ 。

3.3 野外实验验证

现场选择 5 处地势平坦开阔区域进行实验, 实验点编号分别为 1#~5#。采用 HPGe 探测器在 1 m 高度就地测量。为减小谷区计数统计涨落, 每个点的测量时间约为 1 h, 并在测量点正下方用套筒采集分层样品, 实验室 γ 谱仪测量分析核素深度分布参数, 以与峰谷比法结果进行比较。

就地 γ 谱仪测量结果与实验室样品分析结果比较示于图 11。从图 11 可看出, 就地 γ 谱仪测量结果与实验室样品分析结果在误差范围内基本一致(最大相对偏差约为 31%), 这说明就地 γ 谱仪峰谷比法测量 ^{137}Cs 深度分布参数是可行的。

两种方法偏差主要源自以下原因: 1) 谷区

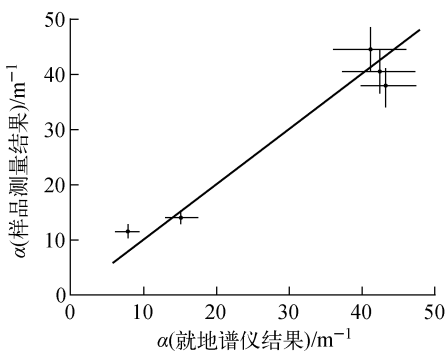


图 11 就地谱仪与样品分析结果比较

Fig. 11 Comparison of field measurement and sample analysis

剥谱误差; 2) 采样-测量结果对场地的代表性; 3) 核素指数函数分布模型与实际存在差异。

4 小结

研究了就地 γ 谱仪测量地表层 ^{137}Cs 深度分布的峰谷比, 建立了就地 γ 能谱峰谷比数值计算公式和实验剥谱方法, 并进行了实验验证, 结果表明:

1) 峰谷比随 ^{137}Cs 张弛深度的变化灵敏;

2) 在张弛深度不变时, 峰谷比将随着土壤密度的增大而减小, 当密度变化 1 倍时, 峰谷比的变化约在 20% 之内, 这说明峰谷比法对土壤密度的准确测量具有一定依赖性, 但当土壤密度变化不大时, 如变化 10%, 对峰谷比法结果影响约在 4% 之内, 可忽略;

3) 野外验证实验表明, 峰谷比法相对于样品实验室分析结果的最大相对偏差为 31%, 说明就地 γ 谱仪测量地表层 ^{137}Cs 深度分布的峰谷比法是可行的, 所建立数值计算公式、实验剥谱方法是正确的;

4) 所建立数值计算公式、实验剥谱方法弥补了以往峰谷比法的不足。

参考文献:

- [1] BECK H L, DECAMPO J, GOGOLAK C. *In situ* Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, HASL-258[R]. USA: HASL, 1972.
- [2] LIKAR A, OMAHEN G, VIDMAR T, et al. Method to determine the depth of Cs-137 in soil from *in-situ* gamma-ray spectrometry[J]. J Phys D: Appl Phys, 2000, 33: 2 825-2 830.
- [3] RYBACEK K, JACOB P, MECKBACH R. *In-situ* determination of deposited radionuclide activities: Improved method using derived depth distributions from the measurement photon spectra [J]. Health Physics, 1992, 62(6): 519-528.
- [4] KARLBERG O. *In situ* gamma spectrometry of the Chernobyl fallout on urban and rural surfaces; Evaluation of different methods to estimate the deposited activity on surfaces with rough structures, NP-89/108 [R]. Sweden: Studsvik Nuclear, 1990.
- [5] ZOMBORI P, ANDRASI A, NKMETH I. A new method for the determination of radionuclide distribution in the soil by *in-situ* gamma-ray

- spectrometry, 1992-20/K [R]. Budapest: Central Research Institute for Physics, Hungarian Academy of Sciences, 1992.
- [6] TYLER A N, SANDERSON D C W, SCOTT E M. Estimating and accounting for ^{137}Cs source burial through *in situ* gamma spectrometry in salt marsh environments[J]. J Environ Radioactivity, 1996, 33(3): 195-212.
- [7] CHESNOKOV A V, FEDIN V I, GOVORUN A P, et al. Collimated detector technique for measuring a ^{137}Cs deposit in soil under a clean protected layer[J]. Applied Radiation and Isotopes, 1997, 48(9): 1 265-1 272.
- [8] GERING F, HILLMANN U, JACOB P, et al. *In situ* gamma-spectrometry several years after deposition of radiocesium II: Peak-to-valley method[J]. Radiat Environ Biophys, 1998, 37: 283-291.
- [9] HILLMANN U, SCHIMMACK W, JACOB P, et al. *In situ* γ -spectrometry several years after deposition of radiocesium, Part I: Approximation of depth distributions by Lorentz function [J]. Radiat Environ Biophys, 1996, 35: 279-303.
- [10] ANDJELOV M, BRAJNIK D. Improvements in the evaluation of ^{137}Cs deposit from spectra obtained by field *in situ* NaI-spectrometry, SL-1000 [R]. Slovenia: Geological Survey of Ljubljana, 1998.
- [11] HE Q, WALLING D E. Calibration of a field-portable gamma detector to obtain *in situ* measurements of the ^{137}Cs inventories of cultivated soils and floodplain sediments[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2000, 52: 865-872.
- [12] FOGH C L, ANDERSSON K G, ROED J. *In situ* performance of the CORAD device measuring contamination levels and penetration ratio of ^{137}Cs [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2000, 160: 408-414.
- [13] GOLOSOV V N, WALLING D E, KVASNIKOVA E V, et al. Application of a field-portable scintillation detector for studying the distribution of ^{137}Cs inventories in a small basin in Central Russia[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2000, 48: 79-94.
- [14] JACOB P, PARETZKE H G. Gamma-ray exposure from contaminated soil[J]. Nucl Sci Eng, 1986, 93: 248-261.
- [15] LIKARA A, VIDMAR T, LIPOGLAV E K M, et al. Monte Carlo calculation of entire *in situ* gamma ray spectra[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2004, 72: 163-168.
- [16] KASTLANDER J, BARGHOLTZ C. Efficient *in situ* method to determine radionuclide concentration in soil [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2005, 547: 400-410.
- [17] 赵军,朱金辉,牛胜利,等. 蒙特卡罗研究中的一种几何变换方法[M]//蒙特卡罗方法及其应用. 太原:山西科学出版社,2004:17-20.
- [18] TYLER A N, DAVIDSON D A, GRIEVE I C. *In situ* radiometric mapping of soil erosion and field-moist bulk density on cultivated fields[J]. Soil Use and Management, 2001, 17: 88-96.
- [19] TYLER A N. High accuracy *in situ* radiometric mapping[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2004, 72: 195-202.
- [20] GUTIERREZ-VILLANUEVA J L, MARTÍN-MARTÍN A, PEÑA V, et al. Monte Carlo calibration of a portable HPGe detector to determine ^{137}Cs inventories in soils[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2006, 64: 1 333-1 341.
- [21] HJERPE T, SAMUELSSON C. Accounting for the depth distribution of ^{137}Cs in on-line mobile gamma spectrometry through primary and forward-scattered photons[J]. Radiat Environ Biophys, 2002, 41: 225-230.
- [22] 李立涛,丛鹏. 一种工业 CT 散射校正的新模型 [J]. 核电子学与探测技术,2007,27(1):27-29.
LI Litao, CONG Peng. A method of scatter correction for industrial CT[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2007, 27(1): 27-29(in Chinese).
- [23] 刘慎业,蒋小华,滕浩,等. $0.351\ \mu\text{m}$ 激光辐射靶角度和时间分辨的侧向散射研究[J]. 强激光与离子束,1999,11(5):591-595.
LIU Shenye, JIANG Xiaohua, TENG Hao, et al. Investigation of angularly and temporally resolved scattered lights from $0.351\ \mu\text{m}$ laser-produced plasmas[J]. High Power Laser and Particle Beams, 1999, 11(5): 591-595(in Chinese).