

基于蒙特卡罗模拟的 α 能谱拖尾分析

孙荣忠,康 玺*,王邴彬,许艳婷

(南华大学 核科学技术学院,湖南 衡阳 421001)

摘 要: α 能谱测量是通过对放射性核素释放 α 粒子能量的测量来实现核素识别和定量分析的技术。 α 能谱易受测量样品形态的影响,存在着向低能拖尾的现象,这降低了 α 能谱测量的准确性。为了分析 α 能谱谱形特点,采用蒙特卡罗程序 Geant4 模拟了 ^{241}Am 源的 α 能谱,并对可能造成 ^{241}Am α 能谱峰拖尾的因素进行了模拟分析。结果表明, ^{241}Am 源上沉积的灰尘是其 α 能谱峰拖尾的主要原因;采用最小二乘法拟合可以对沉积灰尘的粒径分布进行估计。这项工作也表明基于蒙特卡罗模拟的 α 能谱分析可获得测量样品更多特性(如形状),有助于提高 α 能谱的分析能力。

关键词: α 能谱;蒙特卡罗; ^{241}Am

中图分类号: TL817+.2 **文献标志码:** A

The Analysis of Alpha Spectrum Peak Tailing Based on Monte Carlo Simulation

SUN Rong-zhong, KANG Xi*, WANG Li-bin, XIU Yan-ting

(School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: Alpha spectrum measurement is an identification and quantitative analysis method of alpha radionuclide, which measures the alpha particle energy releasing from the radionuclide. Alpha spectrum in vacuum is very sensitive to the characteristics of alpha samples. The alpha spectrum peak always tails to the low energy, which lower the accuracy of the alpha spectrum analysis. For finding the reason of the tailing, the ^{241}Am alpha spectrum is simulated with different parameters using Monte Carlo program Geant4, and compared with the ^{241}Am measurement spectrum. The result shows the dust depositing on the ^{241}Am source is the main reason for the spectrum tailing, and the diameter distribution of the dust may be evaluated by the least square method. This work also shows that the Monte

收稿日期:2017-09-11

基金项目:湖南省大学生创新性学习与创新性实验项目(2016302)

作者简介:孙荣忠(1993-),男,本科生,主要从事于辐射防护与核安全方面的研究.E-mail:1209464029@qq.com. * 通讯作者:康玺, E-mail:kangcy2011@qq.com

Carlo simulation will be helpful to improve the ability of the alpha spectrum analysis for finding the alpha sample property.

key words: alpha spectrum; monte carlo simulation; ^{241}Am

0 引言

α 能谱测量是通过对放射性核素释放 α 粒子能量的测量来实现核素识别和定量分析的技术,其在放射性气溶胶测量、环境和核查领域的放射性微粒分析中都得到了广泛的应用^[1]。 α 能谱易受测量样品形态的影响,存在着向低能拖尾的现象,降低了 α 能谱测量的准确性。

蒙特卡罗模拟能较好的反映样品形态对 α 能谱谱形的影响,如国外 T.Siiskonen 等^[2]人发展的蒙特卡罗 α 能谱模拟程序 AASI,可较好地模拟不同样品的 α 能谱,并能通过 α 能谱谱形的变化反解出样品的形态信息。因此,本文尝试采用蒙特卡罗模拟 α 能谱的方法分析造成 ^{241}Am 放射源 α 能谱峰拖尾的原因,探索利用蒙特卡罗模拟 α 能谱来求解样品特性的可行性。

1 α 能谱测量和模拟条件

α 能谱谱形受到样品特性(样品自吸收)、测量条件(真空/非真空)的影响。为简化 α 能谱拖尾影响因素的分析,选择了 ^{241}Am 标准源在真空中测量的 α 能谱进行分析。

1.1 α 能谱测量条件

测量使用的电沉积 ^{241}Am 标准源活度为 $41.4 \text{ Bq}/(2\pi\text{Sr})$,不确定度 1.8% ($K=2$),源直径 10 mm 。测量在 Ortec 8 通道 α 谱仪上进行,测量使用的离子注入硅导体探测器 (PIPS) 面积为 900 mm^2 (直径 33.851 mm)^[3]。

1.2 α 能谱模拟条件

PIPS 探测器和 ^{241}Am 标准源的特性参数对 α 能谱模拟有着重要影响。在 PIPS 探测器方面,影响 α 能谱模拟的参数包括 PIPS 探测器结构和探测系统的噪声。PIPS 探测器的结构包括探测器前端死层(对探测不起作用)和探测灵敏层。Ortec PIPS 探测器的死层厚度约为 50 nm ,灵敏层厚度约为 $60\sim 200 \mu\text{m}$ 。探测系统的噪声主要来源于探测器噪声和电子学系统噪声。通过 Ortec 8 通道 α 谱仪的内部精密脉冲发生器测得探测器和电子学噪声的半高宽 (FWHM) 约为 33 keV (36°C)。

α 标准源常采用电沉积法制备,制作时会尽

量保证电沉积的均匀性,但也可能存在电沉积厚度不均匀的现象。在长期使用过程中, α 标准源的表面也可能会玷污一定灰尘。这些都会造成实测的 α 标准源能谱出现能谱展宽现象。

α 能谱的蒙特卡罗模拟采用了 Geant4 程序^[4]。 ^{241}Am 标准源和 PIPS 探测器模拟的几何条件与实际测量条件相同, α 能谱的展宽主要考虑了探测器和电子学噪声对 α 能谱展宽的影响,同时配用了高斯抽样展宽。

2 测量与模拟结果对比

2.1 测量与模拟的对比

^{241}Am 标准源的探测效率实测值与 Geant4 模拟值的对比如表 1 所示。从表 1 可知,在探测器与 ^{241}Am 源的不同距离下,实测探测效率^[5]与模拟结果符合的较好 (5% 以内);在探测器与 α 源之间距离能准确确定时,蒙特卡罗模拟能较好的估算探测效率。

表 1 ^{241}Am 标准源的探测效率实测值与 Geant4 模拟值的对比

Table 1 The detector efficiency comparisons between measurement and simulation

探测器与源的距离/mm	实测探测效率	模拟探测效率	模拟相对实测的误差/%
7.7	0.284 4	0.288 9	1.58
11.7	0.211 2	0.213 3	0.99
15.7	0.153 6	0.155 3	1.10
19.7	0.115 9	0.119 7	3.27

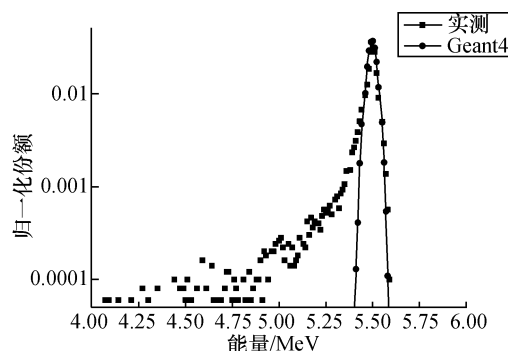


图 1 ^{241}Am 的 α 能谱的实测与模拟对比

Fig.1 The ^{241}Am alpha spectrum comparison between measurement and simulation

图 1 给出了由 Geant4 模拟得到的 ^{241}Am α 标准源的理想能谱与实测 ^{241}Am α 标准源能谱,测量道数为 1 024 道,探测器与 ^{241}Am 源相距 11.7 mm,实测 α 能谱和模拟 α 能谱计数分别以各自的全谱计数进行了归一化.从图 1 可知,由 Geant4 模拟得到的 α 能谱与实测 ^{241}Am α 能谱在 α 能谱峰的高能部分符合的很好,而在低能部分存在着一定的差异.模拟的理想化 ^{241}Am α 能谱不能解释 α 能谱峰的低能拖尾现象.

2.2 α 能谱拖尾的模拟

α 能谱峰低能拖尾的原因可能来自于 ^{241}Am 标准源电沉积的不均匀或长期使用过程中沾污的灰尘.以下分别对这两种可能性进行了模拟估算.

1) ^{241}Am 灰尘沾污估算

空气中灰尘包括泥土、有机物等多种细小微粒,粒径可能从几纳米一直到十几微米.镅标准源在长期使用过程中,空气中这些细小微粒可能会沉降到 ^{241}Am 源表面.由于静电吸附作用这些细小微粒会长期滞留在 ^{241}Am 源表面,从而造成 ^{241}Am 源的沾污.

现假定造成 ^{241}Am 标准源沾污的微粒为泥土,主要成份二氧化硅 SiO_2 [6],密度约为 0.921 g/cm^3 .为简化模拟过程,模拟认为灰尘微粒均匀沉降在 ^{241}Am 源表面,形成一层具有微粒粒径厚度的薄膜覆盖在 ^{241}Am 源表面.图 2 和图 3 分别给出了 Geant4 模拟计算的 ^{241}Am 标准源沾污二氧化硅微粒直径在 $10\sim 1\,000\text{ nm}$ 和直径在 $1\sim 15\text{ }\mu\text{m}$ 的 α 能谱.从中可知,若二氧化硅微粒直径在 $10\sim 1\,000\text{ nm}$,其不会对 α 能谱峰的峰形产生明显的影响,即微粒直径 $< 1\text{ }\mu\text{m}$ 时,其对 α 能谱谱形变化不大;若二氧化硅微粒直径在 $1\sim 15\text{ }\mu\text{m}$,则其会对 α 能谱峰的峰形产生明显影响.实测 ^{241}Am 标准源能谱峰的低能拖尾可能为 ^{241}Am 标准源上沾污二氧化硅灰尘造成的.对这些沾污二氧化硅灰尘粒径分布估计可按如下估算:

先模拟沾污不同粒径灰尘的 ^{241}Am α 能谱,再对沾污不同粒径灰尘的 ^{241}Am α 能谱进行权重加和,并在加和 α 能谱与实测 ^{241}Am α 能谱误差最小的限制下,利用最小二乘法 [7] 求得沾污不同粒径灰尘的 ^{241}Am α 能谱的权重,也即沾污二氧化硅灰尘粒径分布.图 4 给出了经 Geant4 模拟的 α 能谱分析算法计算得到的拟合谱与实测谱的对比图.

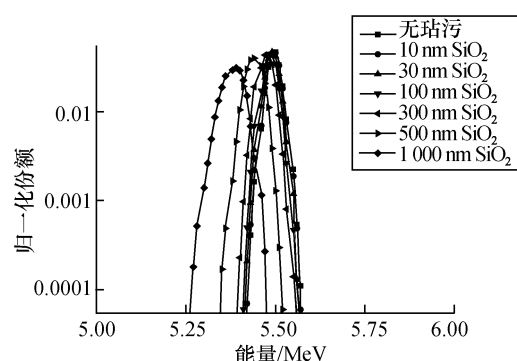


图 2 ^{241}Am 标准源沾污二氧化硅微粒直径在 $10\sim 1\,000\text{ nm}$ 的 α 能谱

Fig.2. The simulated alpha spectrum of ^{241}Am contaminated by the dust (diameters ranged from $10\sim 1\,000\text{ nm}$)

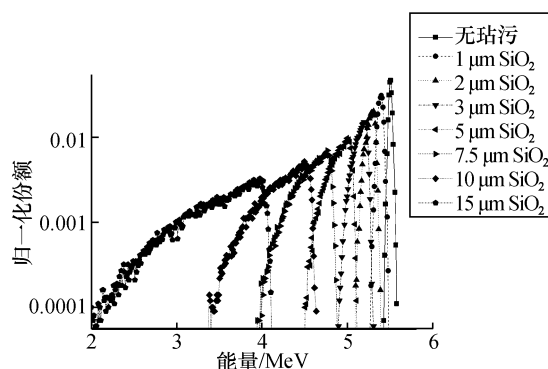


图 3 ^{241}Am 标准源沾污二氧化硅微粒直径在 $1\sim 15\text{ }\mu\text{m}$ 的 α 能谱

Fig.3 The simulated alpha spectrum of ^{241}Am contaminated by the dust (diameters ranged from $1\sim 15\text{ }\mu\text{m}$)

从图 4 可知,由 Geant4 模拟获得的不同厚度沾污物的 α 标准谱经最小二乘法拟合后与实测 ^{241}Am 标准源 α 能谱一致性较好:1)两谱的峰位完全重合;2)经 α 能谱实测值和拟合能谱误差的 Neyman 判据 [8] 计算得两谱总误差 $\chi^2 = 692$,而未拟合前的 Geant4 能谱与实测谱的 $\chi^2 = 10\,320$.这表明经最小二乘法拟合后的拟合谱与实测谱的能谱峰基本一致.

由最小二乘法求出的 ^{241}Am 源活度随沾污灰尘厚度的分布如表 2 所示.从表 2 可知,未沾污的 ^{241}Am 源表面积约占到整个源面积的 79%,随沾污厚度的增加沾污面积逐渐减小, $15\text{ }\mu\text{m}$ 的沾污仅占到整个源面积的 0.3%.此外,所有未沾污和沾污相加的总活度为 38.07 Bq ,占总额 92%.这表明还有 10%左右的沾污面积未计估算到,该面积可能源自更大粒径的灰尘沾污.

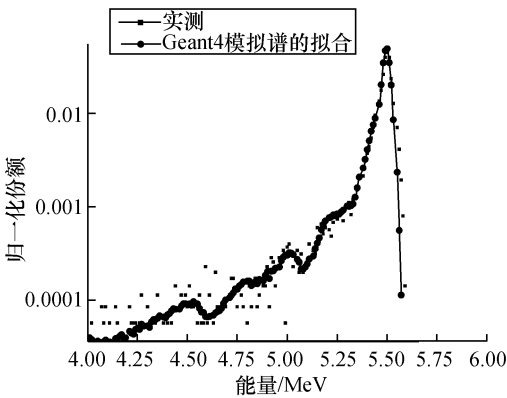


图 4 不同玷污厚度的拟合 α 能谱与实测 α 能谱
Fig 4. The alpha spectrum comparison between measurement and fitting

表 2 ^{241}Am 源玷污灰尘的厚度分布
Table 2 The thickness distribution of the dust contaminating ^{241}Am

玷污灰尘厚度/ μm	相应活度/ $\text{Bq}/(2\pi\text{Srs})$	归一化份额
0	32.7	0.789 9
1	2.10	0.050 7
2	1.21	0.029 2
3	0.68	0.016 5
5	0.70	0.016 9
7.5	0.21	0.005 0
10	0.34	0.008 2
15	0.12	0.003 1
总计	38.07	0.919 5

2) ^{241}Am 源电沉积不均匀估算

^{241}Am 标准源可能在电沉积过程中出现沉积厚度不均匀现象.根据有关资料得知 ^{241}Am 的密度约为 $11.7\text{ g}/\text{cm}^3$.通过 Geant4 模拟可得到的不同厚度 ^{241}Am 源(自吸收)产生的 α 能谱,再由最小二乘法求出的 ^{241}Am 源活度随 ^{241}Am 沉积厚度的分布如表 3 所示.表 3 数据表明:理想 ^{241}Am 源(即 ^{241}Am 的厚度基本不对 α 能谱展宽有影响)表面积约占到整个源面积的 79%,厚度较厚的电镀 ^{241}Am 面积较小,1.6 μm 厚的 ^{241}Am 的仅占到整个源面积的 0.4%.所有厚度 ^{241}Am 相加的总活度为 40.3 Bq,占总份额 97%.

文献[9]给出的电镀 ^{241}Am 源厚度为 0.6 ~ 0.9 mg/cm^2 ,以 $11.7\text{g}/\text{cm}^3$ 的 ^{241}Am 密度换算得到 ^{241}Am 源厚度为 5~8 nm.这与表 2 计算得到的 ^{241}Am 源厚度分布(0~1.6 μm)有着显著不同,因而 ^{241}Am 的 α 能谱峰拖尾不太可能由 ^{241}Am 源厚度的分布不均造成.

表 3 ^{241}Am 源厚度的分布

Table 3 The thickness distribution of ^{241}Am

^{241}Am 源厚度/ μm	相应活度/ $\text{Bq}/(2\pi\text{Srs})$	归一化份额
0	32.8	0.792 9
0.1	4.2	0.102 5
0.2	0.79	0.019 1
0.3	0.97	0.023 4
0.5	0.69	0.016 7
0.8	0.19	0.004 6
1.1	0.39	0.009 5
1.6	0.19	0.004 6
总计	40.3	0.973 4

3 结 论

由以上分析可知, ^{241}Am 源 α 能谱峰拖尾主要由 ^{241}Am 源上玷污的灰尘造成,且在蒙特卡罗模拟的基础上采用最小二乘法拟合可对玷污灰尘的粒径分布进行估计.这项工作表明了利用蒙特卡罗模拟 α 能谱求解样品特性的可行性,下一步将尝试利用该方法分析放射性气溶胶的 α 能谱,并获取放射性气溶胶微粒的一些特征参数.

参考文献:

[1] MONTERO M P R,MARTÍ A,LOURTAU A M C.Isotopic uranium and plutonium analysis by alpha-particle spectrometry [J], Nuclear Instruments and methods in physics research section B:beam interactions with Materials and Atoms,2004, 213:429-433.

[2] SIISKONEN T,PÖLLÄNEN,R,Simulation of alpha particle spectra from aerosol samples[J].Applied radiation and isotopes,2004,60 (6):947-954.

[3] 吴喜军,李志强,单健,等,基于半导体探测法 Rn 测量仪的准确刻度[J],南华大学学报(自然科学版), 2015,29(3):6-8.

[4] COLLABORATLON G.Geant4 user's guide for application developers manual [J].Accessible from the GENNT4 web page[1] Version geant4,10.3,2016,12.

[5] 肖德涛,许艳婷,康玺,等, α 谱仪探测效率的理论计算与实验测定 [J].南华大学学报(自然科学版), 2012,26(4):1-6.

[6] 孙富国.广义最小二乘法的研究与计算机实现[J].长沙铁道学院学报,1999,17(3):102-107.

[7] MYNARD A D.Respirable dust sampler characterization: efficiency curve reproducibility[J].Aerosol Sci,1993,24 (1):457-460.

[8] GARCIA-TORANO E.A comparative study of minimization methods in the fitting of alpha particle spectra[J].Nuclear instruments and methods in physics research section A:accelerators,spectrometers,detectors and associated equipment,1996,369(2-3),608-612.

[9] 秦芝,郭俊盛,甘再国.分子镀法制备厚钨靶[J].同位素,2000,13(4):209-214.