

K 荧光辐射场 MC 模拟与能谱测量分析

陈成¹, 李晓玲¹, 吴金杰², 陈祥磊¹, 吴荣俊¹, 徐晓辉¹, 朱国华¹

1. 武汉第二船舶设计研究所, 湖北 武汉 430064

2. 中国计量科学研究院, 北京 100013

摘要 K 荧光辐射装置可填补国内超大型测量面积核辐射探测器计量检定需求, 该装置具通量高、能量点多、单色性好、有成本低、即开即用等优势。其原理是 X 射线光机发射出的 X 射线轰击辐射体材料产生多种特征 X 射线即荧光射线, 在荧光射线出射路径上加入次级过滤器吸收掉多余的射线以提高荧光纯度, 辐射体以及次级过滤器的材料厚度值与荧光产额、纯度直接相关。通过 MC(Monte Carlo)程序计算荧光装置各项指标参数结果, 指导后期试验装置的建立和研究, MCNP5(Monte Carlo N Particle Transport Code)软件模拟 Cs₂SO₄ 辐射体数据表明: 荧光装置具有良好的屏蔽和准直的效果, 荧光以辐射体中心垂直面呈对称逐渐减小分布; 荧光产额随着辐射体厚度的增加逐渐增大, 但存在相对饱和厚度值, 即辐射体达到一定厚度值以后, 荧光产额不再随辐射体厚度的增加而增大, 而是趋于饱和状态; 为获取单一能量荧光辐射场, 在荧光出射束方向增加次级过滤器 TeO₂ 材料, 其吸收 L, K_{β} 射线会远远大于 K_{α} 射线, 以达到消除 L, K_{β} 射线保留 K_{α} 射线目的, 形成单能的参考辐射场; 在距离辐射体中心 30 cm 处, 通过多组数据表明, 次级过滤厚度为 0.035 cm 时, 荧光纯度 94.521% 为最大且荧光产额最高; 荧光纯度随着次级过滤器材料的厚度增加呈现先增加后逐渐减小的趋势; 使用 LEHGe 探测器实际测量获取 K 荧光辐射装置能谱数据, 通过 ROOT 程序对测量能谱数据处理和分析, 拟合出 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 能量点的峰位道址误差小于 0.005%, 测量分析出其能量值与理论值偏差分别为 0.19%, 0.23%, 测量结果与实际理论能量值相符。测量结果可验证 MCNP5 程序计算出的次级过滤器材料具有良好吸收效果且实现了单能荧光参考辐射场。

关键词 MCNP5; ROOT; 荧光装置; 荧光纯度; 能谱测量

中图分类号: TL99 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)11-3595-06

引言

在低能参考辐射场中, K 荧光辐射源较放射性核素通量更大、更稳定、更安全, 维护成本低; 对比经双晶体单色器布拉格衍射产生的单能光子强度大 3 个数量级, 和同步辐射源经双晶体单色器产生单能光子源比纯度更高, 成本更低。K 荧光能够实现的单能区间在 8.64~98.4 keV, 有着单色性好、剂量率高、能量点多、射线束的半径足够大等优点, 可适用不同类型的核辐射探测器的能量刻度和校准, 填补国内超大型测量面积核辐射探测器计量检定和校准需求^[1-2]。

截止到 20 世纪末, 国外都建立相应的 K 荧光辐射装置, 展开了与荧光纯度相关的研究。由于受条件的限制, 国内开展相关研究起步较晚。本文主要介绍 K 荧光辐射装置, 深入模拟辐射体以及次级过滤器的最佳厚度值, 计算出荧光最佳

纯度以及荧光分布情况, 为后续制作屏蔽箱体做指导。

1 实验部分

1.1 K 荧光辐射装置

K 荧光辐射装置由初级过滤器, 初级光阑, 辐射体, 荧光发生装置, 次级过滤器, 次级光阑, 收集器, 屏蔽箱体组成。如图 1 所示。初级过滤器去除对产生荧光没有贡献的低能部分光子; 初级光阑是保证 X 射线机射线束面积限定在辐射体面积之内, 同时减小辐射体支撑物和荧光器件壁外部散射光子, 可将其安装在 X 射线机出射口。辐射体是产生荧光的核部件, 不同材料被激发出相应的特征 X 射线即荧光; 荧光发生装置将初级射线束和荧光射线束分开相互垂直, 互不干扰, 保证了荧光光路最短, 促使荧光的产额最大化; 次级过滤器消除 L 线并减小 K_{β} 相对于 K_{α} 线的强度; 次级光

收稿日期: 2021-10-20, 修订日期: 2022-04-17

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0307800)资助

作者简介: 陈成, 1990 年生, 武汉第二船舶设计研究所中级工程师

e-mail: 474770802@qq.com

限定荧光辐射束的发射角,使出射的荧光呈锥形,可减少来自环境的散射。收集器用来收集 X 射线光子高能段的光子。

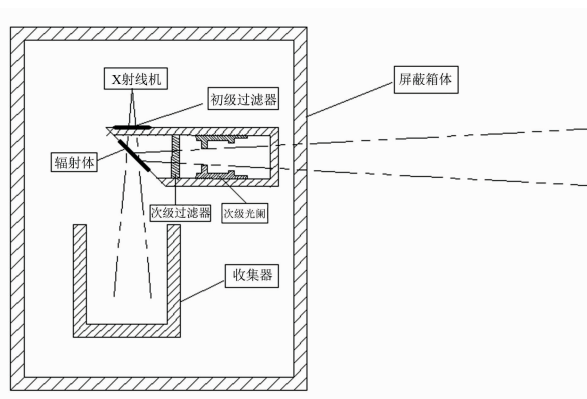


图 1 K 荧光 X 射线辐射装置

Fig. 1 K fluorescent X-ray radiation device

1.2 辐射体厚度

利用 MCNP5 模拟软件,建立荧光发生装置模型如图 2:设计整个装置呈梯形结构, Cs_2SO_4 荧光辐射体材料填充在 45° 的斜边,实现初级辐射光束路径与荧光光束路径相互垂直,互不干扰;初级过滤器采用 1 mm 铝材料设置在梯形上端面;源设置在出口正上方 0.5 cm 处,半径为 2 cm 的面源垂直照射辐射体(源未在图中表示出),保证初级辐射源全部照射在辐射体上;辐射体上方半径为 2.5 cm 的圆柱体通道用于源的照射,辐射体右边半径为 2.5 cm 的圆柱体通道用以反射荧光光束;在荧光出射束 1.1 cm 处建立外径为 8.3 cm 的次级过滤器:内部间隔设置三个环用以限制荧光发射角度,环间距为 12 cm,前 2 个环厚度为 1 cm,最后一个环厚为 0.3 cm,环面之间的连线与水平面的夹角为 6° ,荧光发生装置采用铜材料填充,次级过滤器采用铅材料填充。

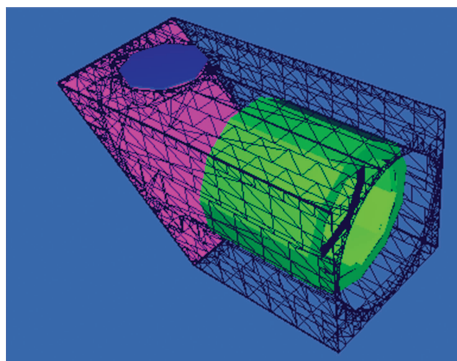


图 2 K 荧光发生装置 MC 模型

Fig. 2 K fluorescence generator MC model

模拟程序中源选用 100 kV 未过滤的韧致辐射谱作为模拟入射谱(PTB 官网下载可得)。在荧光距离荧光辐射体中心 1 m 处,建立 $2\text{ cm} \times 2\text{ cm} \times 2\text{ cm}$ 体栅元作为探测栅元,使用 F1 记录通过栅元的通量如图 3 所示;改变辐射体的厚度值,将模拟结果绘制出 K_α 荧光随辐射体厚度值变化曲线如图 4。

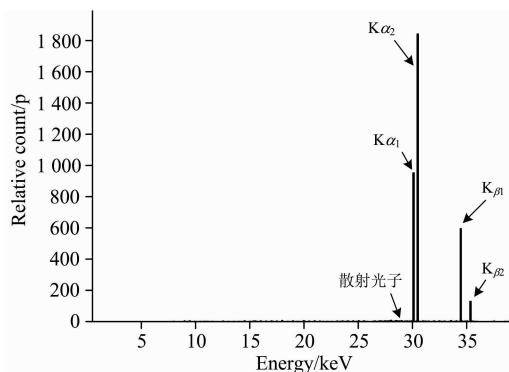


图 3 Cs_2SO_4 辐射体荧光注量谱

Fig. 3 Fluorescence fluence spectrum of Cs_2SO_4 radiator

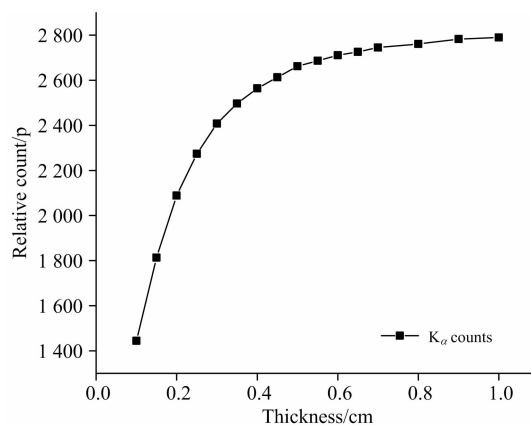


图 4 K_α 荧光强度随厚度变化曲线

Fig. 4 K_α Fluorescence and total photon intensity versus thickness

从图 3 和图 4 可见, Cs_2SO_4 辐射体 K_α 和 K_β 荧光射线能量分别是 31 和 35 keV,由于 K 电子层附近存在亚层电子层,MCNP5 模拟结果显示有 $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$, $K_{\beta 1}$ 和 $K_{\beta 2}$ 四个吸收限的能量点, $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 分别是 30.62 和 30.97 keV^[3-5] 荧光材料的相对饱和厚度值为 0.6 cm。辐射体做到相对饱和厚度,荧光的产额就可以得到保证,辐射体制作得足够厚时,散射并不随之增大,对荧光纯度没有影响。

1.3 荧光分布

为了实验安全和最大化得到荧光的产额,需要了解 X 射线光机照射在辐射体上产生的荧光分布情况。在上述建立的模型当中,以辐射体中心为圆心、15 cm 为半径、5 cm \times 5 cm 栅格圆周上设定半径 1 cm 探测点,使用 F5 计数卡记录荧光通过环探测栅元的通量,分别记录有荧光装置和无荧光装置两种模型光子分布情况,源设置成 X 射线光机电压为 100 kV 平面源,如图 5 所示,对应测量结果如图 6 和图 7 所示。

从图 6 中可知,在荧光装置的出射口和垂直荧光辐射体材料面下方荧光通量最大,其中 1 号点的荧光通量大于其他点。从图 7 中可知,垂直于辐射体中心方向上,荧光呈对称逐渐减少趋势,且在辐射体照射面上荧光量大于反面。通过对比数据,荧光发生装置有很好地屏蔽和准直的效果,限制

了从其他角度发散出来的荧光造成干扰。虽然 3, 4 和 5 号点荧光通量也很大, 但都是从源进口位置发出, 垂直于荧光出射口, 对 1 号点的荧光干扰较小; 故而可证明在 1 号点获取荧光是最佳的选择位置, 在辐射体下方设置收集器也是非常必要的。模拟数据可得出, 荧光是以辐射体为中心呈对称减小分布, 且在垂直于荧光辐射体材料面方向最大, 从环境保护和实验安全的角度考虑, 需要对荧光装置进行屏蔽。

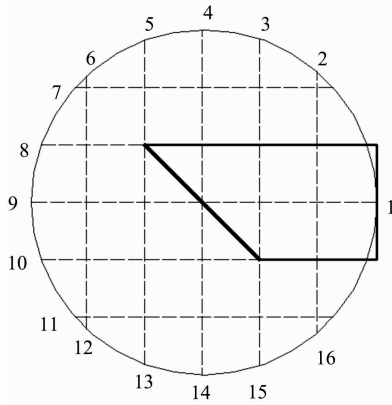


图 5 环探测点分布示意图

Fig. 5 Schematic diagram of ring detection points distribution

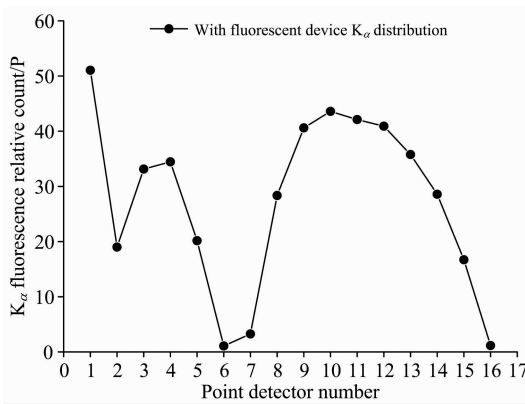


图 6 有荧光装置 K_{α} 荧光强度分布

Fig. 6 Fluorescent device K_{α} fluorescence intensity distribution

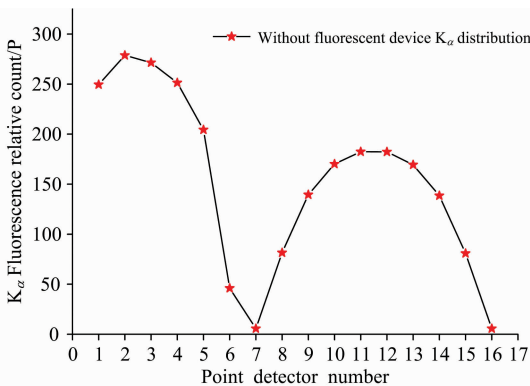


图 7 无荧光装置 K_{α} 荧光强度分布

Fig. 7 No fluorescence device K_{α} fluorescence intensity distribution

1.4 屏蔽箱体设计

以辐射体为中心, 建立长宽高分别为 50 cm×46 cm×68 cm 的长方体屏蔽箱。箱体为三层分别是铝、铅、铁材料, 三层设计可以很好地克服了铅质软的属性, 保证了屏蔽效果和美观。内层为 0.2 cm 铝, 中层为 0.08 cm 铅, 外层为 0.1 cm 铁。在荧光的出射口位置开一个半径 4.5 cm 圆孔用于荧光的测量。如图 8 所示。

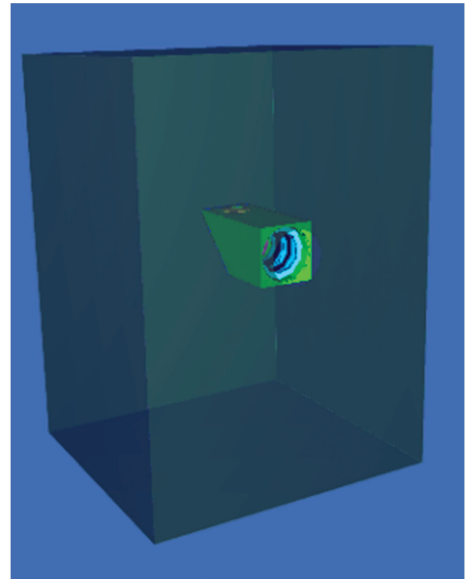


图 8 屏蔽箱体三维视 MC 模型图

Fig. 8 3D view of shielding box MC model

在除出射束面外的其他面设置多个 2 cm×2 cm×2 cm 体栅元作为监测栅元, 其测量得到的光子数都为 0, 故该种屏蔽箱体起到了很好的屏蔽效果。

2 结果与讨论

2.1 荧光纯度模拟

从上面的模拟 Cs_2SO_4 注量能谱可以看出, 产生的荧光主要包括 L, K_{α}, K_{β} , 对应的能量分别为: 5.7, 30.1 和 35.0 keV, 其中 K_{α} 和 K_{β} 占到总荧光大于 95%。为了得到单一能量的标准参考辐射场, 需要去除其中两种射线 L 和 K_{β} 。需要找到一种物质, 其某层电子层的激发态能量恰好是 35.0 keV 时, 该种物质吸收 35.0 keV 光子的概率就会大大增加, 这样情况在实际中很难发现, 但是可以找出一种物质, 其与 K_{β} 相互作用概率大于 K_{α} 光子。理想元素 Te 的质能吸收系数曲线如图 9。从图 9 中可以看出, 能量点 35.0keV 质能吸收系数明显大于 30.1 keV, 即 Te 物质吸收 K_{β} 射线会远远大于 K_{α} 射线。故而 Cs_2SO_4 辐射体理想的次级过滤为 Te 元素。

在上述建立的模拟中, 在荧光出射束通道加入 Te 的次级过滤材料, 由于 Te 是活泼金属, 其稳态化合物为 TeO_2 , 故而在荧光发生装置建立 TeO_2 次级过滤器, 如图 10 所示(紫色部分)。在距离辐射体中心 30 cm 处建立 2 cm×2 cm 作为探测栅元, 使用 F1 卡测量穿过体栅元的光子

积分流量, 如图 11 所示。

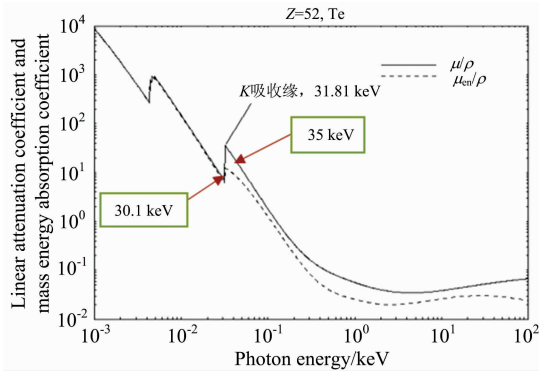


图 9 Te 元素的质能吸收系数曲线

Fig. 9 Mass energy absorption coefficient curve of Te element

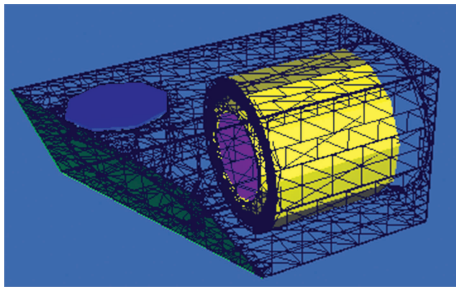


图 10 添加次级过滤器的荧光发生装置 MC 模型

Fig. 10 Fluorescence generator with secondary filter MC model

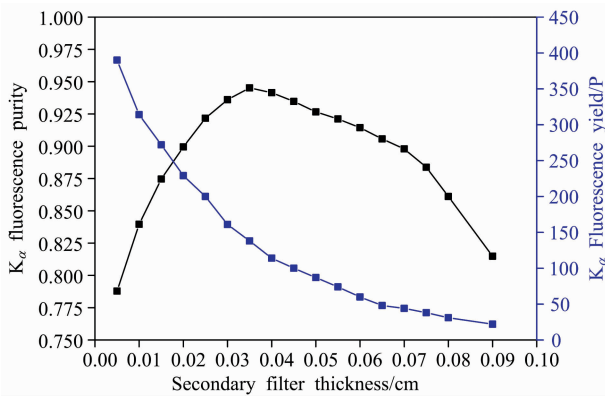


图 11 K_{α} 荧光纯度及荧光产额随 TeO_2 次级过滤厚度的变化曲线

Fig. 11 K_{α} Variation curve of fluorescence purity and fluorescence yield with TeO_2 secondary filtration thickness

K_{α} 荧光纯度随次级过滤 TeO_2 厚度的增加先增加后减小, K_{α} 荧光产额随之一直减小; 主要原因是次级过滤材料在前期主要吸收 K_{β} 射线和相对少量的 K_{α} 射线, 当 K_{β} 射线相对吸收量达到最高时, K_{α} 荧光射线的纯度达到最大值 94.521%。由于存在瑞利散射和康普顿散射以及 X 射线光机高能段的光子, 随次级过滤厚度增加 K_{α} 射线占比也随之减小, 故而 K_{α} 纯度随之减小。为了得到纯度更高、产额最大的

K_{α} 荧光射线, 次级过滤材料厚度应该取 0.035 cm。

2.2 荧光能谱测量

将 LEGe 探测器放置在前面实验激光定位装置找到的射线束中心位置, 调整导轨系统使探测器探头距离辐射体中心 1 m 处。由于荧光的通量过大直接测量会造成 LEGe 探测器堵塞, 在探头前面加一个直径为 1 mm 限束光阑, 如图 12 所示。X 射线光机电压 100 keV, 电流为 10 mA。

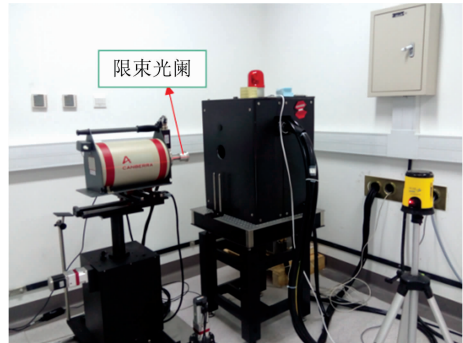


图 12 LEGe 探测器测量荧光能谱

Fig. 12 Fluorescence spectrum measured by lege detector

在加入次级过滤前后测量的脉冲高度能谱如图 13 和图 14 所示; TeO_2 次级过滤器很好地消除了 L 射线, 减小了 K_{β}

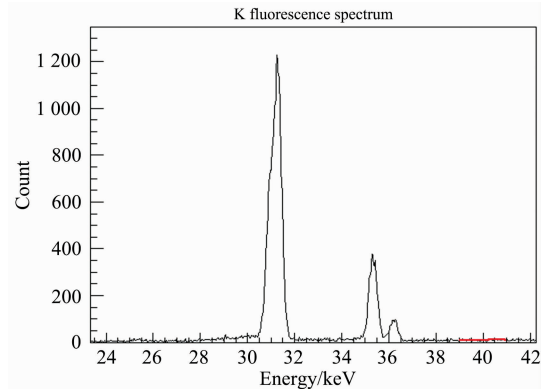


图 13 LEGe 测量无次级过滤器能谱

Fig. 13 Energy spectrum without secondary filter measured by lege

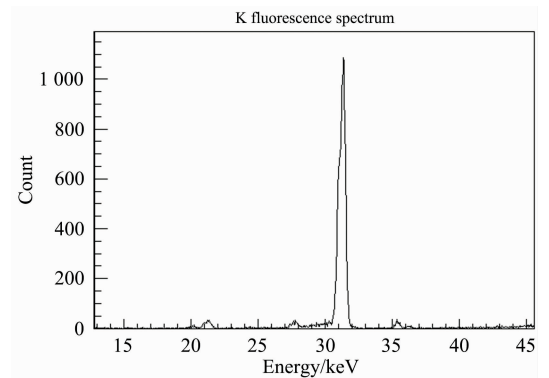


图 14 LEGe 测量有次级过滤器能谱

Fig. 14 Energy spectrum with secondary filter measured by lege

相对于 K_{α} 射线的强度, 抑制了一部分 X 射线光机中高能段的光子数, 也减小了峰位附近的散射, 显著提高了 K_{α} 光子的纯度从而实现单能, 试验测量与计算机模拟结果相符。

2.3 ROOT 双高斯拟合能谱

ROOT 是一个模块化的面向对象的数据分析处理系统, 适用于采集大量数据的分析处理。ROOT 以 C++ 写成, 包括了高效的面向对象数据库、C++ 解释器、先进的统计分析(多维统计图、拟合及求最小值法则)和可视化工具。ROOT 具有数据分析速度快、提供全面的图形、统计和分析类的库、面向对象的设计方法, 利于数据交换、分析过程和分析结果界面的设计等特点。目前国内该软件的使用尚处于起步阶段。

由于每一个电子层附近会存在亚电子层, 所以导致 Cs_2SO_4 辐射体激发产生的荧光经过次级过滤器后剩余的 K_{α} 主要是由 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 组成, LEGe 自带能谱分析软件无法准确确定其峰位。使用 ROOT 编写 C++ 程序读出 LEGe 测量能谱的矩阵直方图, 单高斯拟合出 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 高斯参数, 将其参数传入到双高斯函数中再次对原始能谱数据进行拟合。

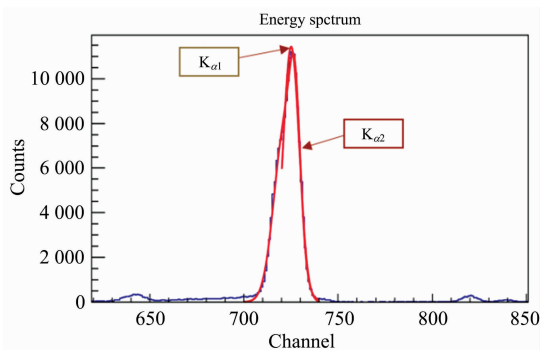


图 15 ROOT 双高斯拟合 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 能谱

Fig. 15 Root double Gaussian fitting $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$ energy spectrum

将双高斯拟合得出的 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 峰位道址值(Mean)代入到使用标准放射源刻度 LEHGe 的能量道址函数中

$$Energy = (8.001 \times 10^{-2})keV + (4.239 \times 10^{-2})ch \quad (1)$$

式(1)中: Energy 为 LEHGe 测量能量值, ch 为拟合得到峰位道址值。可计算出 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 测量的能量数值。拟合出的 Sigma 与能谱半高宽(FWHM)关系为

References

[1] Zhou Xu, Li Xinqiao, Li Yanning, et al. Experimental Astronomy, 2014; 38(3): 433.
 [2] Min Sujung, Kim Youngsu, Ko KwangHoon, et al. Chemosensors, 2021, 9(9): 239.
 [3] Liu Hefan, Tian Hong, Zhou Laidong, et al. MATEC Web of Conferences, 2016, 61: 01008.
 [4] CHEN Cheng, WU Jin-jie, Thursday Chun, et al(陈 成, 吴金杰, 周四春, 等). Nuclear Electronics and Detection Technology(核电子学与探测技术), 2015, 35(3): 299.
 [5] HE Peng, WU Xiao-chuan, AN Kang, et al(何 鹏, 吴晓川, 安 康, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2018, 38(12): 3929.

$$FWHM = \frac{\sqrt{2} \text{Sigma}}{2\sqrt{\ln 2}} \approx 2.355 \text{Sigma} \quad (2)$$

FWHM 通过能量道址函数计算出能量值除以理论能量值就得到该能量点的能量分辨率。双高斯拟合能谱处理结果如表 1 所示。

表 1 双高斯拟合能谱处理结果
Table 1 Processing results of double Gaussian fitting energy spectrum

项目	数值	拟合误差 / %	理论能量值	实测计算能量值	能量分辨率 / %	
$K_{\alpha 1}$	Constant	7.88×10^3	0.81			
	Mean	7.22×10^2	0.005	30.623	30.68	2.16
	Sigma	5.87	0.29			
$K_{\alpha 2}$	Constant	5.42×10^3	1.43			
	Mean	7.27×10^2	0.005	30.970	30.90	1.15
	Sigma	2.77	1.26			

拟合出来的峰位道址误差小于 0.005%, 计算出来的 $K_{\alpha 1}$ 能量值相对理论能量值偏差分别为 0.19%, 0.23%, 说明编写的双高斯拟合能够很好地区分出能量点相近的 $K_{\alpha 1}$ 重峰。能量分辨率 0.665 keV @ 30.623 keV, 0.355 keV @ 30.97 keV, 说明 LEHGe 可很好地分辨出 $K_{\alpha 1}$, 也跟探测器能量分辨率与入射光子能量的平方根成反比结论相符。

3 结 论

在设计荧光发生装置加上次级光阑, 可以减少环境带来的干扰。通过模拟 Cs_2SO_4 辐射体, 其荧光产额随厚度逐渐增加后保持饱和, 饱和厚度 0.6 cm 且散射并不随之增加; 在辐射体为中心设置多个探测器, 比对有无荧光发生装置的模拟数据, 荧光发生装置具有很好地屏蔽和准直效果, 荧光以辐射体中心垂直面呈对称逐渐减小分布; 随着次级过滤器材料厚度的增加, K_{α} 荧光纯度逐渐增大后减小, 在 TeO_2 次级过滤厚度为 0.35 mm 时 K_{α} 荧光纯度达到最大为 94.521%。

通过 LEGe 探测器试验测量数据, TeO_2 次级过滤器很好地消除了 L 射线, 减小了 K_{β} 相对于 K_{α} 射线的强度, 显著提高了 K_{α} 光子的纯度。

MC Simulation and Energy Spectrum Measurement of K Fluorescence Radiation Field

CHEN Cheng¹, LI Xiao-ling¹, WU Jin-jie², CHEN Xiang-lei¹, WU Rong-jun¹, XU Xiao-hui¹, ZHU Guo-hua¹

1. Wuhan Second Ship Design and Research Institute, Wuhan 430064, China

2. China Academy of Metrology, Beijing 100013, China

Abstract K fluorescence radiation device can fill the metrological verification needs of super large measuring area nuclear radiation detector in China. The device has the advantages of high flux, many energy points, good monochromaticity, low cost and is ready to use. The principle is that the X-ray emitted by the X-ray machine bombards the radiator material to produce a variety of characteristic X-rays, namely fluorescent rays. A secondary filter is added to the fluorescent ray emission path to absorb the excess rays and improve fluorescent purity. The material thickness of the radiator and the secondary filter is directly related to the fluorescent yield and purity. The results of various index parameters of the fluorescent device are calculated by the Monte Carlo program to guide the establishment and research of the later test device. The data of Cs_2SO_4 radiator simulated by MCNP5 software show that the fluorescent device has good shielding and collimation effect, and the fluorescence is symmetrical and gradually decreases in the vertical plane of the radiator Center; The fluorescence yield increases with the increase of radiator thickness, but there is a relative saturation thickness; In order to obtain a single energy fluorescence radiation field, a secondary filter TeO_2 material is added in the direction of the fluorescence beam, which absorbs L and K_β The ray will be much greater than K_α Radiation; When the thickness of the secondary filter is 0.035 cm, the fluorescence purity of 94.521% is the maximum and the fluorescence yield is the highest; The fluorescence purity first increases and then decreases with the increase of the thickness of the secondary filter material; The energy spectrum data of K fluorescence radiation device is obtained through the actual measurement of the detector, and the energy spectrum data is processed and analyzed by root program to fit $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$. The peak location error of the energy point is less than 0.005%. The deviation between energy value and the theoretical value is 0.19% and 0.23% respectively, and the results are consistent. The measurement results can verify that the secondary filter material calculated by the MCNP5 program has a good absorption effect and realizes the single energy Fluorescence reference radiation field.

Keywords MCNP5; Root; Fluorescence device; Fluorescence purity; Energy spectrum measurement

(Received Oct. 20, 2021; accepted Apr. 17, 2022)