

《就地 HPGe 谱仪测量土壤中 γ 核素
技术规范 (征求意见稿) 》
编制说明

《就地 HPGe 谱仪测量土壤中 γ 核素技术规范》标准编制组
二〇一九年七月

目录

1 项目背景.....	201
1.1 任务来源.....	201
1.2 工作过程.....	201
2 标准编制必要性分析.....	202
3 国内外相关分析方法研究.....	203
3.1 主要国家、地区和国际组织相关分析方法.....	203
3.2 国内相关分析方法研究.....	205
4 标准制订的基本原则和技术路线.....	205
4.1 标准制订的基本原则.....	205
4.2 标准制订的技术路线.....	206
5. 方法研究报告.....	209
5.1 方法研究的目标.....	209
5.2 方法原理.....	209
5.3 仪器和设备.....	210
5.4 测量条件.....	211
5.5 分析步骤.....	212
5.6 结果计算.....	213
5.7 地表 γ 注量率的计算.....	214
5.8 HPGe 谱仪有效前面积的刻度.....	218
5.9 HPGe 谱仪角度修正因子的刻度.....	224
6 方法验证.....	226
6.1 方法验证方案.....	226
6.2 方法验证过程.....	229
7 参考文献.....	230

1 项目背景

1.1 任务来源

2018 年，生态环境保护部科技标准司下达编制任务，项目编号为 2018-60，承担单位为生态环境部核与辐射安全中心。

1.2 工作过程

2018 年 3 月初，召开项目启动会，讨论标准编制的基本技术路线和拟解决关键技术问题。

2018 年 3 月 29 日，召开专家咨询会，咨询《就地 γ 能谱测量技术规范》编制大纲相关内容。

2018 年 6 月 1 日，召开标准编制开题论证会。论证委员会通过该标准的开题论证，认为开题论证材料齐全、内容完整；标准主编单位对国内外方法标准及文献进行了充分调研；标准定位基本准确，技术路线合理可行；建议将标准名称改为《就地 HPGe 谱仪测量土壤中 γ 核素技术规范》。

2018 年 6 月至 2018 年 12 月，项目编制组通过文献调研、理论计算和实验验证相结合的方法，全面开展标准编制工作，形成征求意见稿初稿。

2019 年 3 月 19 日，组织召开标准征求意见稿技术审查会，审查委员会通过该标准征求意见稿的技术审查；认为该标准征求意见稿材料齐全、内容完整；标准编制单位对国内外方法标准及文献进行了充

分调研；标准定位准确，技术路线合理可行，标准内容具有可操作性。

2019年4月至今，编制单位组织开展现场测量比对，并取的分层样品，开展理论计算和实验验证各单位的HPGe几何结构模型，同时征求相关单位意见，修改完善形成征求意见稿。

2 标准编制必要性分析

就地 γ 能谱测量技术具有测量时间短，代表性强的优势,是核或辐射应急监测、环境质量监测重要监测方法。国内辐射环境监测机构也配备了大量便携式HPGe γ 谱仪，在核素识别、定性分析等取得较好的应用。但，因缺少统一的国家标准或行业标准，就地 γ 能谱定量测量土壤中 γ 核素的应用受到了限制，各单位也只能按照各自经验开展研究性工作，量值一致性、准确性有待提高。

一是可有效提升应急监测的时效性。应急监测工作是制定应急响应决策重要依据，是核与辐射应急强有力的支撑。2011年日本福岛核事故、2013和2016年东北边境应急时，应急监测工作及时开展，监测数据及时公开，有效破除了谣言传播，避免突发事件和言论引起的社会恐慌。因此，应急时快速、准确获取环境放射性水平显得异常重要。就地HPGe γ 谱仪作为一种便携式仪器，可以随车携带，具有很高的机动性，可以在事故现场及周围环境准确获取放射性污染种类及含量，是应急监测的重要工具之一。与现场采样-实验室 γ 谱仪分析相比，就地 γ 谱仪测量技术具有测量时间短，工作效率高等优点。一般情况下，就地HPGe γ 谱仪只需要测量30-90分钟，而现场采样-实验室 γ 谱仪分析，要达到同样的计数统计精度，则需要测量几个小时甚至更长时间。而且，实验室 γ 谱仪分析还需要增加取样、运输、制

样等工作量。制定统一的就地 γ 谱仪测量标准，将有助于核设施营运单位、环保部门掌握快速、有效应急监测手段，切实提高应急监测的时效性。

二是可提升样品的代表性。就地 γ 谱仪测量时，将 HPGe 谱仪放置于野外现场 1m 高的支架上，可有效地探测到来自半径 12 米以上的地表 γ 射线，即它能探测到约 500 平方米的一块面积内的土壤，土壤的样品量多大几吨重，取样代表性较强。而采用“现场采样-实验室分析”的工作模式，分析测量的样品量只不过 200~300 克，样品的代表性不足。

该标准的制定可以指导和规范就地 HPGe γ 谱仪测量环境土壤放射性核素的活度浓度，规范监测人员开展高纯锗探测器本征探测效率和角响应刻度、土壤中放射性核素在空气中注量率计算、现场解谱分析土壤中放射性核素的种类及含量等，可有效提升国内辐射环境质量监测和应急监测的技术能力。

3 国内外相关分析方法研究

3.1 主要国家、地区和国际组织相关分析研究方法

3.1.1 国际辐射单位和测量委员会（ICRU）

1994 年，国际辐射单位与测量委员会（ICRU）发布了 53 号报告书《Gamma-Ray Spectrometry in the Environment》。该报告介绍了环境中 γ 谱仪（就地谱仪和航空谱仪）测量土壤及大气中 γ 放射性的技术，在各个国家被作为标准引用。关于就地 HPGe 谱仪部分，主要介绍了 γ 谱仪的基本原理（ γ 射线与物质相互作用、 γ 谱仪、 γ 能谱分析、能量刻度、探测器响应函数、活度确定和质量保证）、就地谱仪（就地谱

仪测量地面的放射性核素、角校正因子、单位活度的 γ 射线通量、灵敏度和不确定度分析，就地谱仪测量地面非指数分布的放射性核素、空气中放射性核素)。

3.1.2 国家标准化组织 (ISO)

国际标准化组织(ISO)于 2013 年发布了《Measurement of radioactivity in the environment---Soil Part 7: In situ measurement of gamma-emitting radionuclides》(ISO 18589-7:2013)。该标准主要介绍了就地 HPGe 谱仪测量土壤中放射性核素种类及活度浓度的方法。该标准包括了就地 HPGe 谱仪的原理 (Beck 公式)、仪器设备、测量程序、质量保证和质控程序、结果表达和测试报告等内容。该报告被英国等等同采用，作为国家标准。

3.1.3 美国国家标准委员会(ANSI)

美国国家标准委员会 (ANSI) 于 2004 年发布了《Calibration of Germanium Detectors for In-Situ Gamma-Ray Measurements》(ANSI N42.28-2002)。该标准主要规范就地 HPGe 谱仪的刻度。校准对象包括测量均匀污染的表层土壤、平面物体的表面污染、圆柱形和矩形物体的内部污染、集装箱的均匀分布源 (柱状容器和矩形容器)、屏蔽的放射源的就地 HPGe 谱仪。该标准介绍了刻度就地 HPGe 谱仪的要求 (测量条件、测试程序、放射源)、就地 HPGe 谱仪的性能分析和评价、就地 HPGe 谱仪的蒙特卡洛模拟等内容。

3.2 国内相关分析方法研究

上世纪八十年代中期就地 γ 谱仪技术引入国内，研究内容集中于原理性介绍、照射量率测量技术和核素活度测量技术的定性描述。2000年前后，国内已开展就地 γ 谱仪刻度技术的研究：一是研究利用蒙特卡罗方法刻度 γ 谱仪；二是根据 γ 射线的迭加原理和正六边形面源特点，以有限尺寸面源替代无限大面源的实验刻度方法。近年来，就地 γ 谱仪已经初步应用于放射性污染水平调查和区域性环境本底调查，并开展利用就地 γ 谱仪测量人工核素深度分布及土壤密度技术研究，但都没有开展延续性研究和大规模应用。目前，国内尚无关于就地 HPGe 谱仪相关的国家标准或行业标准。

4 标准制订的基本原则和技术路线

4.1 标准制订的基本原则

核事故应急时，亟需快速确定放射性污染程度和范围。本标准的基本原则就是快速、准确地利用就地 HPGe 谱仪现场测量出环境土壤落下灰中放射性核素种类及活度浓度。本标准充分调研国内外标准、规范及相关文献，并考虑国内辐射环境监测机构的现状，编制过程中注重将操作步骤和方法标准化、规范化，并注意技术方法的可操作性。监测人员可参考本规范相关谱仪参数得到探测效率，得到人工放射性核素的沉降量或等效表面沉降量。此外，大范围的辐射环境本底调查、辐射环境质量监测时，就地 HPGe 谱仪也有很高的使用价值，监测人员可根据天然放射性核素是均匀分布，人工放射性核素是指数分布计

算得到土壤中 γ 核素的活度浓度。

4.2 标准制订的技术路线

4.2.1 基本原理

地表 γ 辐射场由初级 γ 光子和次级 γ 光子两部分组成，与土壤中放射性核素的比活度、核素在土壤中的分布以及土壤的化学组分、土壤的含水率等因素有关。当上述因素不变时，土壤中任何一种放射性核素或其子体（如果存在子体，假定与母体处于放射性平衡）所发射的某一种能量的初级 γ 光子，距地面高 1 米处的探测器测量的全能峰计数与土壤中该核素的比活度成正比，即：

$$N_f \propto A \quad (1)$$

式中：

A —放射性核素在土壤中的比活度；

N_f —放射性素或其子体所发射的某一能量初级 γ 光子产生的全能峰计数率。

基于上述原理，Beck 公式利用三个比例系数相乘表达上述的比例关系：

$$\varepsilon = \eta \times W \times F \quad (2)$$

式中：

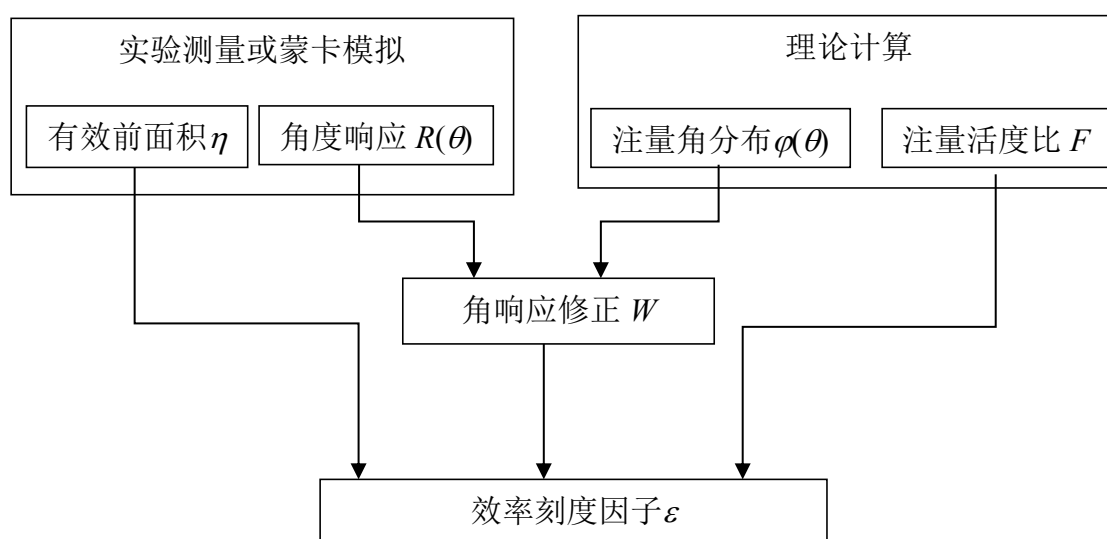
F —注量活度比，土壤中单位活度浓度的核素在地表 1m 处产生的初级 γ 射线注量率， $(\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1})\cdot(\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1})^{-1}$ 或 $(\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1})\cdot(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2})^{-1}$ 。该物理量由放射性核素在土壤中分布、土壤组分与密度等因素决定，与探测器无关。

W —角度修正因子，由探测器的角响应因子 $R(\theta)$ 和地表 γ 射线注量率角分布 $\varphi(\theta)$ 共同决定的，量纲一的量。该物理量与探测器几何结构、 γ 射线能量、放射性核素在土壤的分布有关。

η —有效前面积， cm^2 。该物理量只与所用的探测器有关，由探测器晶体尺寸、材料、几何结构等因素决定，与土壤中放射性核素分布无关。

4.2.2 技术路线

本标准的关键问题就是利用公式 (2) 得到就地 HPGe 谱仪的探测效率，本文采用了以下技术路线。



4.2.2.1 就地 HPGe γ 谱仪有效前面积的刻度

HPGe 谱仪的有效前面积是指沿着探测器轴向入射单位注量率的 γ 射线所产生的计数率。一般情况，可以采用标准点源进行效率刻度，或者利用蒙特卡洛方法模拟计算。本标准分析、研究制定统一、易行的就地 HPGe γ 谱仪有效前面积的刻度方法。

4.2.2.2 就地 HPGe γ 谱仪角度响应因子的刻度

由于 HPGe 探测器为非标准球体，对不同角度入射的 γ 射线探测效率并不相同。而探测器所在的位置， γ 射线是从土壤方向 2π 立体角内发射而来的，而非沿探测器轴向平行入射的 γ 射线，故需要进行角度修正。对探测器进行角度修正时，需要两个参数：一是只与探测器相关的角度响应因子 $R(\theta)$ ；二是只与土壤中放射性核素相关的，探测器高度处初级 γ 射线角分布 $\varphi(\theta)$ 。本标准也是采用标准点源或蒙特卡罗方法进行计算探测器的计数率随 γ 射线入射角 (θ) 的变化关系。

4.2.2.3 土壤中放射性核素产生 γ 光子注量率及角分布的计算

本标准通过调查我国典型土壤（红壤、黄棕壤、褐土、黑钙土等）元素组成和含水率（10%）的典型情况，按照表面分布、指数分布和均匀分布三种情况计算土壤中单位放射性核素在地表 1m 处产生的初级 γ 光子注量率及角分布。

4.2.2.4 就地 γ HPGe 的不确定度分析

分析影响就地测量环境放射性核素 HPGe γ 谱仪分析技术的准确度的变量，按照不确定度传播公式进行计算。

4.2.2.5 分析步骤及质量控制

分析研究本规范的测量条件、影响测量结果的关键因素，制定出统一、规范的分析步骤和质控措施。

5. 方法研究报告

5.1 方法研究的目标

针对核事故应急时快速测定放射性污染的需求，本标准制定就地 HPGe 谱仪的技术规范，以快速、准确测量环境土壤中 γ 核素的活度浓度。本标准计划达到以下三点目标：

(1) 主要目标：快速测定核事故后环境土壤中落下灰中 γ 核素活度浓度，测量 ^{137}Cs 的探测下限为 100Bq/m^2 ；

(2) 测量环境土壤中铀、钍、镭、钾等天然放射性核素活度浓度；

(3) 测量经过一定时间迁移后， ^{137}Cs 的活度浓度。

5.2 方法原理

地表 γ 射线的注量率与土壤中放射性核素的活度浓度、核素在土壤中的分布，以及土壤的化学组分、含水率等因素有关。探测器高度为 1 米时，测量的全能吸收峰计数率与土壤中放射性核素的活度浓度成正比。

$$A = \frac{N_f}{\varepsilon} \quad (1)$$

式中：

ε —探测效率，HPGe 探测器的全能吸收峰净计数率与土壤中待测放射性核素的活度浓度之比， $\text{s}^{-1}\cdot(\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1})^{-1}$ 或 $\text{s}^{-1}\cdot(\text{Bq}\cdot\text{m}^2)^{-1}$ ；

N_f —待测放射性核素的全能吸收峰计数率, s^{-1} ;

A —待测放射性核素的活度浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$ 或 $Bq \cdot m^{-2}$ 。

5.3 仪器和设备

5.3.1 HPGe 谱仪

HPGe 谱仪具有能量分辨力好、探测效率高等优势, 而且技术成熟, 已在国内环境保护系统较普及, 所以选择 HPGe 谱仪作为测量仪器。对于碘化钠、溴化镧等探测器, 虽然可参考本标准使用, 但是因分辨力低, 核事故时分辨不同放射性核素的特征 γ 射线稍弱, 因此本标准不再专门选择这两种仪器。HPGe 谱仪由 HPGe 探测器、高压电源、主放大器、多道脉冲幅度分析器 (MCA)、制冷单元 (液氮或电制冷)、数据处理系统等 6 个主要部分构成。

(1) HPGe 探测器: 对于 ^{60}Co 的 1332.5 keV γ 射线全能吸收峰能量分辨力应优于 2.5keV。N 型或 P 型 HPGe 探测器都可, 但一般情况下不推荐 N 型探测器, 这是因为 N 型探测器与 P 型探测器相比较脆弱。推荐使用具有各向同性响应函数的探测器, 即对入射光子方向没有或几乎没有依赖关系的探测器。探测器的表面积 (即垂直于入射光子方向的截面) 与入射角度不相关时 (即晶体的直径与高度近似相等时), 会满足这个条件。

(2) 高压电源: 根据所用探测器的最佳工作状态选择探测器高压。电源输出电压应连续可调, 波纹电压应不大于 0.01%, 电流应不小于 100 μA 。对于同轴 P 型 HPGe 探测器, 要加正高压, 同轴 N 型要加负高压。

(3) 主放大器: 又称谱学放大器, 属于线性放大器, 应具有波

形调节并与前置放大器及多道脉冲幅度分析器匹配。

(4) 多道脉冲幅度分析器(MCA): 与 HPGe 探测器相匹配的 MCA 的道数应不少于 8192 道。

(5) 数据处理系统

a) 接收 MCA 的谱数据并对其进行处理。数据处理系统由计算机硬件设备和软件构成。

b) 软件主要包括解析 能谱的各种常规程序, 诸如能量刻度、效率刻度、谱光滑、核素识别、峰面积计算、峰面积校正、效率校正、母子体校正和重峰分析等基本程序。

c) 数据处理系统的硬件设备主要包括计算机及配套的读出读入装置。

5.3.2 三角架: 能够固定探测器晶体中心距地面 1m 高的支架, 应使用低原子序数、低密度的材料制造 (如: 铝、塑料、木材)。

5.3.3 卷尺: 卷尺的刻度长度应大于 1m, 且刻度精度不小于 1mm

5.3.4 其它辅助设备: 应配备全球定位系统 (GPS) 仪、温湿度仪, 记录测试时的地理坐标、温湿度。

5.4 测量条件

一般情况, 选择一个开阔、平坦的区域, 而且探测器的视阈半径 R_s 内应无干扰物体 (如建筑物)。测量落下灰时, 应选择自落下灰沉积以来放射性核素在土壤中分布未被破坏的区域 (如: 没有农业活动)。

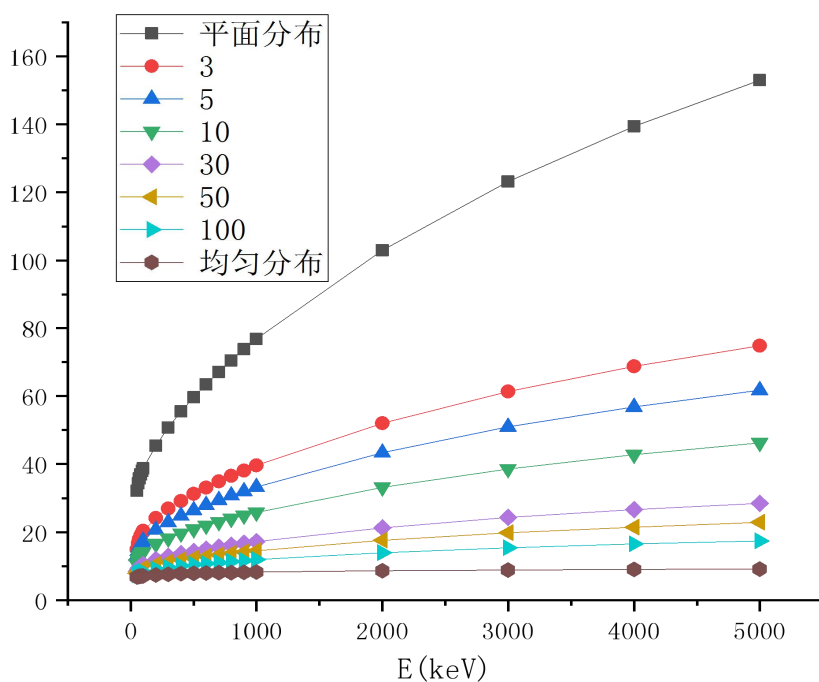


图 1 不同质量张弛深度的各能量 γ 射线的视阈 R_s (m)

5.5 分析步骤

(1) 测量条件记录

记录测量点位温湿度、GPS 坐标等。

(2) 仪器状态的检查

就地测量前，检查 HPGe 探测器的晶体温度是否达到工作温度。

之后再打开 HPGe 探测器的偏压电源，检查仪器的能量分辨力。

(3) 就地 γ 谱仪的安装

在选定的测量区域中间位置，将 HPGe 探测器稳定地安装在测量支架上，探测器的端面朝下。调整探测器高度，使之距离地表 1 米。连接 HPGe 谱仪电子学仪器的所有电缆。

(4) 测量设置

根据现场待测核素特征峰的计数率，设置测量时间，使得感兴趣

区计数统计涨落在 10%以内。

(5) 能谱的采集

在预定的时间内获取 γ 能谱。分析人员应离开探测器几米远。停止测量后，在适当的文件名下存储收集到的 γ 能谱。

(6) γ 能谱分析

用 γ 能谱分析软件查看采集的 γ 能谱，若能谱中存在可明显辨别的峰，根据峰形特征设置适合的感兴趣区域，读取全能吸收峰的净峰面积；若能谱中无可明显辨别的峰，则根据待测核素的特征峰的能量和谱仪的半高宽，设置感兴趣区，读取全能吸收峰的积分面积。

5.6 结果计算

用公式 (2) 计算土壤中放射性核素的活度浓度：

$$A = \frac{n_{\text{net}}}{t \cdot \varepsilon \cdot p \cdot f_d} \quad (2)$$

式中：

A —测量的放射性核素的活度浓度， $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ 或 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ；

n_{net} —能量为 E 的 γ 射线全能吸收峰净计数，是能量为 E 的 γ 射线全能吸收峰总计数 n_g 减去本底计数 n_b ，量纲一的量；

t —测量活时间，s；

ε —能量为 E 的 ε 射线探测器刻度因子，量纲一的量；

p —能量为 E 的 γ 射线的发射几率，量纲一的量；

f_d —测量时间内的衰变修正因子，量纲一的量。

5.7 地表 γ 注量率的计算

地表 1m 处的初级 γ 射线注量率不仅与放射性核素在土壤的深度分布有关，而且与土壤的密度相关。为此，引入质量深度 ζ 这一物理量：

$$\zeta = \int_0^z \rho(z') dz' \quad (3)$$

式中：

$\rho(z)$ —土壤密度 $\rho(z)$ 是随深度 z 变化的函数。

通常而言，落下灰中的放射核素活度浓度随着土壤深度的增加而呈指数衰减。土壤质量深度 ζ 处放射性核素的活度浓度可以用式（4）描述：

$$A(\zeta) = A_{m,0} \times \exp\left(-\frac{\zeta}{\beta}\right) \quad (4)$$

式中，

$A_{m,0}$ —表面土壤中放射性核素的活度浓度， $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 或 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ ；

$A(\zeta)$ —质量深度 ζ 处放射性核素的活度浓度， $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 或 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ ；

β —质量张弛深度， $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ ；

ζ —放射性核素的质量深度， $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ ；

单位表面积沉降的放射性核素活度浓度 A_α ，可利用式(5)计算：

$$A_\alpha = \int_0^\infty A_{m,0} \cdot \exp\left(-\frac{\zeta}{\beta}\right) d\zeta = \beta \cdot A_{m,0} \quad (5)$$

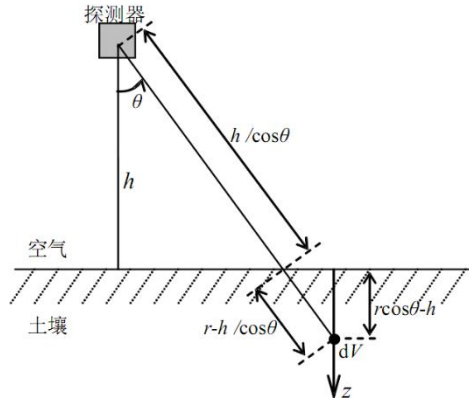


图 2 就地 HPGe 谱仪在无穷大平面地表的测量示意图

HPGe 探测器高度为 h ，以灵敏中心作为球坐标原点，用极坐标表示。土壤中放射性核素在探测器的灵敏中心产生的初级 γ 射线注量率可用下式计算：

$$\varphi_{\cos\theta, \phi} = \frac{p}{4\pi} \cdot \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) \cdot \int_{h/\cos\theta}^{\infty} A_V(r, \cos\theta, \phi) \cdot \exp\left(-\int_0^z \mu'_s(z') / \cos\theta \cdot dz'\right) dr \quad (6)$$

式中：

p — 能量为 E 为 γ 射线的分支比，量纲为一的量；

μ_a — 空气对能量为 E 为 γ 射线的线性吸收系数， m ；

$\mu_s(z)$ — z 深度处的土壤对能量为 E 为 γ 射线的线性吸收系数， m ；

$A_V(r, \cos\theta, \phi)$ — z 深度处（极坐标为 $r, \cos\theta, \phi$ ）的土壤中放射性核素的活度浓度， $Bq \cdot g^{-1}$ 。

对于无穷大平面的土壤，方位角 ϕ 取值为 $[0, 2\pi]$ 。土壤深度 z cm 处放射性核素活度浓度与方位角 ϕ 无关，因此对公式(7)进行积分，可得：

$$\varphi_{\cos\theta} = \frac{p}{2} \cdot \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) \cdot \int_{h/\cos\theta}^{\infty} A_V(r, \cos\theta) \cdot \exp\left(-\int_0^z \mu'_s(z') / \cos\theta \cdot dz'\right) dr \quad (7)$$

土壤深度 z 处土壤的单位体积元内放射性核素活度浓度为：

$$A_V(r, \cos\theta) = \rho(z) \cdot A_{m,0} \cdot \exp\left(-\frac{\zeta}{\beta}\right) \quad (8)$$

将公式(8)带入公式(7)可得:

$$\varphi_{\cos\theta} = \frac{p}{2} A_{m,0} \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) \cdot \int_{h/\cos\theta}^{\infty} \rho(z) \cdot \exp(-\int_0^z \mu'_s(z') / \cos\theta \cdot dz' - \zeta / \beta) \cdot dr \quad (9)$$

若土壤的组分和密度不随深度 z 变化, 则 ρ 和 μ_s 为恒定值。

$$\varphi_{\cos\theta} = \frac{p}{2} A_{m,0} \frac{\exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta)}{\mu'_s / \rho + \cos\theta / \beta} \quad (10)$$

通过对(10)的天顶角 θ 进行积分, 可以得到初级 γ 射线注量率:

$$\varphi = \frac{p(E)}{2} A_{m,0} \int_0^1 \frac{\exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta)}{\mu'_s / \rho + \cos\theta / \beta} d \cos\theta \quad (11)$$

对于均匀分布的放射性核素, 单位体积内放射性核素活度浓度可以用下式计算:

$$A_V(r, \cos\theta, \phi) = \rho(z) \cdot A_m \cdot \begin{cases} 1 & \cos\theta > 0 \text{ 且 } r \geq h / \cos\theta \\ 0 & \cos\theta > 0 \text{ 且 } r \leq h / \cos\theta \\ 0 & \cos\theta < 0 \end{cases} \quad (12)$$

将公式(12)代入(7)得到初级 γ 射线注量率:

$$\varphi_{\cos\theta} = \frac{p}{2} A_m \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) \int_{h/\cos\theta}^{\infty} \rho(z) \cdot \exp(-\int_0^z \mu'_s(z') / \cos\theta \cdot dz') \cdot dr \quad (13)$$

若土壤的组分和密度不随深度 z 变化, 则 ρ 和 μ_s 为恒定值, 公式

(13) 积分为化为:

$$\varphi_{\cos\theta} = \frac{p \cdot \rho}{2 \mu'_s} \cdot A_m \cdot \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) \quad (14)$$

通过对(14)的天顶角 θ 进行积分, 可以得到初级 γ 射线注量率:

$$\varphi = \frac{p \cdot \rho}{2 \mu'_s} \cdot A_{m,0} \cdot \int_0^1 \exp(-\mu'_a \cdot h / \cos\theta) d \cos\theta \quad (15)$$

引入一个数学积分函数:

$$E_2(x) = x \int_x^{\infty} \frac{e^{-t}}{t^2} dt \quad (16)$$

空气中 γ 射线注量率可以写为:

$$\varphi = \frac{p(E) \cdot \rho}{2\mu'_s} \cdot A_{m,0} \cdot E_2(\mu'_a h) \quad (17)$$

我国典型土壤类型有红壤、黄棕壤、褐土、黑钙土等。然后根据调研的几种土壤的组分，计算了土壤中单位放射性核素在地表 1m 处产生的初级 γ 光子注量率。图 3 和图 4 是放射性核素在地表 1m 处产生的 γ 射线注量率和极差值，选择放射性核素在土壤中为均匀分。这是因为均匀分布受土壤组分影响最大。从图 3 和图 4 可以看出，土壤组分对地表 1m 处注量率计算结果的影响较少。 γ 射线能量大于 100keV 时，因不同土壤组分造成的极差值小于 5%。

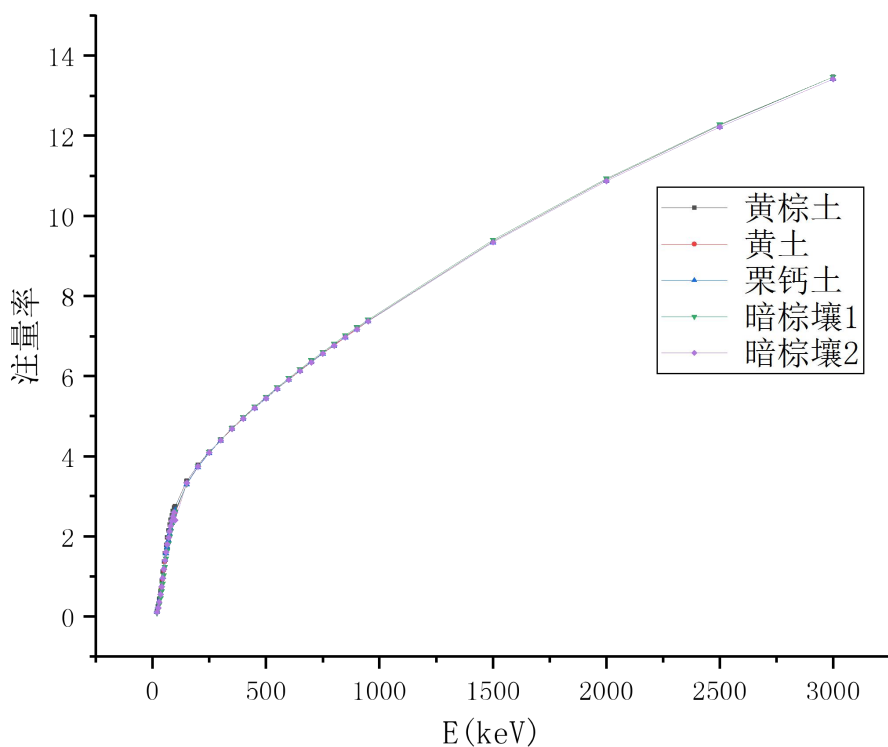


图 3 不同土壤组分在地表 1m 处产生的 γ 射线注量率

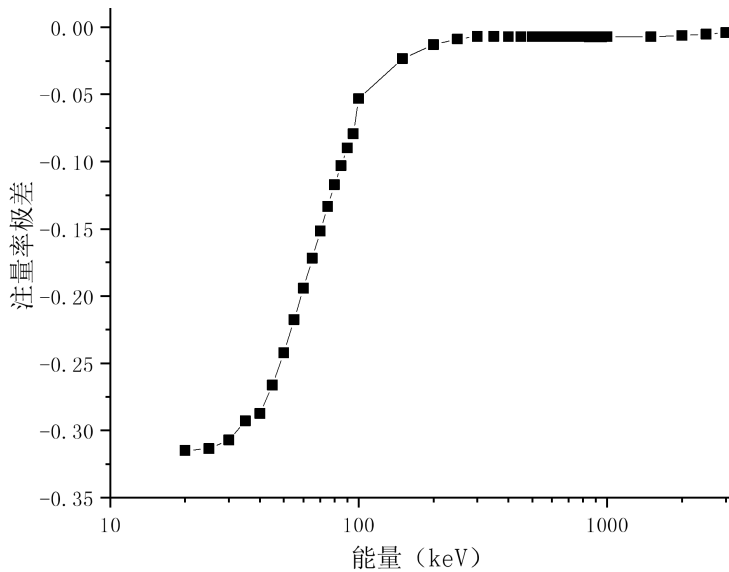


图 4 不同土壤组分在地表 1m 处产生的 γ 射线注量率极差值

对能量大于 100keV 的 γ 射线来说,土壤组分不同引起的注量率影响不大,所以就采用国际上较通用的 ICRU Report-53 中的计算结果,以及土壤组分 Al_2O_3 13.5 %; Fe_2O_3 4.5 %; SiO_2 67.5 %; CO_2 4.5 %; H_2O 10 %。

5.8 HPGe 谱仪有效前面积的刻度

有效前面积是表征探测器全能吸收峰探测效率的参数,即能量为 E 的 γ 射线束沿探测器轴向平行入射的情况下,单位注量率所产生的全能吸收峰计数率, m^2 。一般,采用标准 γ 点源或蒙特卡洛方法进行刻度。

5.8.1 标准 γ 点源刻度

刻度 HPGe 探测器有效前面积 η 的标准 γ 点源应能够发射低能 γ 射线和高能 γ 射线,一般包括 ^{241}Am 、 ^{133}Ba 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 等。

(1) 将标准 γ 点源放在探测器轴向线上,尽可能远离探测器 (> 10 探测器长度),以便使得到达探测器前表面的光束近似为平行光

束。开始获取数据，使待测的全能吸收峰面积的统计涨落小于 5%。
计算在探测器的有效晶体中心的注量率；

$$\varphi = \frac{A_k p}{4\pi r^2} e^{-\mu_a x} e^{-\mu_h y} \quad (18)$$

式中：

A_k —刻度源的活度，Bq；

p —能量为 E 的 γ 射线的发射几率，量纲为一的量；

μ_a —能量为 E 的 γ 射线在空气中的衰减系数， cm^{-1} ；

x —空气中源的容器和探测器前帽之间的距离，cm；

μ_h —源容器（壁）中的减弱系数， cm^{-1} ；

y — γ 射线在到达探测器途中在源容器穿过壁中的距离，cm；

r —源到晶体有效中心的距离，cm；

i 对 $E > 1\text{MeV}$ 的 γ 射线，晶体的有效中心近似在晶体的几何中心；

ii 对 $E < 0.1\text{MeV}$ 的 γ 射线，晶体的有效中心在晶体的表面；

iii 对能量处在上面二个值之间的 γ 射线，必须根据晶体的吸收系数作出平均穿透厚度的估算：

$$r = \frac{1}{\mu} \cdot \frac{1 - e^{-\mu d} (1 + \mu d)}{1 - e^{-\mu d}} + d_0 + x \quad (19)$$

μ —能量为 E 的 γ 射线在 HPGe 晶体中的减弱系数， cm^{-1} ；

d —HPGe 晶体的厚度，cm；

d_0 —端帽到晶体的距离，cm。

(2) 采集并储存 γ 能谱，进行解谱，确定刻度源特征峰的全能吸

收峰的计数率 n_g 。

(3) 采集不放源时的本底谱，进行谱分析，获取本底计数率 n_b 。

(4) 由修正后的计数率(n_g-n_b)除以注量率 φ ，得到 η 。

$$\eta = \frac{n_g - n_b}{\varphi} \quad (20)$$

(5) 对于其它刻度源，重复 (1) ~ (4) 步，得到探测器不同能量的有效前面积 η 。

5.8.2 蒙特卡洛模拟计算

蒙特卡洛方法能够准确地模拟粒子在物质中的输运过程。该项技术在处理复杂几何条件具有很大的优势。目前，已经可以在个人计算机上，利用蒙特卡洛方法模拟计算 HPGe 探测器的探测效率和角响应等。本节提供蒙特卡洛模拟计算 HPGe 探测器的有效前面积和角响应的技术规范。

蒙特卡洛模拟计算的准确度取决于仿真计算模型与实际情况的一致性。因此，在构建几何模型前，用户需要获取探测器的准确材料组成和几何尺寸。一般情况下，用户虽然无法获得确切的探测器组件材料和几何尺寸，但能够根据所有已知的探测器组件信息和实验测量数据，构建一个合适的几何模型。

5.8.2.1 HPGe 探测器建模的准确度评估

以下步骤过程用于验证 HPGe 探测器建模的准确度。

(1) 实验刻度确定探测效率

仪器与设备

a) HPGe 谱仪：所用的仪器设备。

b) 标准 γ 点源：实验所用的标准 γ 点源都应可溯源至国家基准。

标准点源的特征 γ 射线应至少涵盖低能、中能和高能区间，一般推荐使用 ^{241}Am 和 ^{152}Eu 标准点源。

c) 支架：用于将放射源固定在固定位置的支架。该支架可在 0° 、 45° 和 90° 的方位角上固定，而且放射源与探测器之间的距离可准确获得。

实验测量

将标准 γ 点源固定在 HPGe 探测器的支架上，分别在 0° 、 45° 和 90° 的方位角位置测量 γ 能谱。当感兴趣区全能吸收峰净计数的超过 10 000 时，停止测量（即计数统计涨落小于 1%）。

在 90° 的方位角位置，与第一次测量位置相差 120° 和 240° 的极角的情况下，各重复测量下测量 γ 能谱一次。

比较三次方位角 90° 的测量值。如果有任何一个测量值大于平均值的 5%，就应计算该探测器的径向偏移量，或者拒绝使用该探测器。若计算探测器的径向偏移量，则在后续的计算和测量中都应用偏移量的数值。

解谱分析标准源 γ 射线的特征峰探测效率。

(2) 蒙特卡洛建模

根据仪器制造商或其它方式获取的 HPGe 探测器几何结构和材料信息，构建蒙特卡洛计算模拟模型，确保 HPGe 晶体、探测器外壳、

冷指孔、死层和其它外壳内的组件都得到恰当的建模。

注：除厂家提供尺寸外，还可以通过 X 射线透射成像、电子计算机断层扫描(CT)或 γ 射线透射成像等。

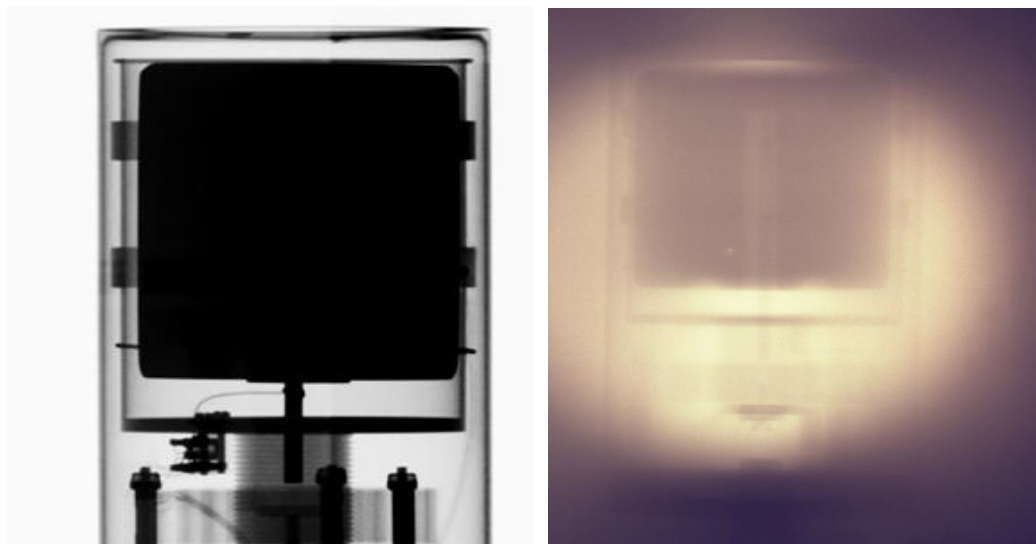


图 5 X 射线和 γ 射线 (^{60}Co) 透射 HPGe 探测器的成像图

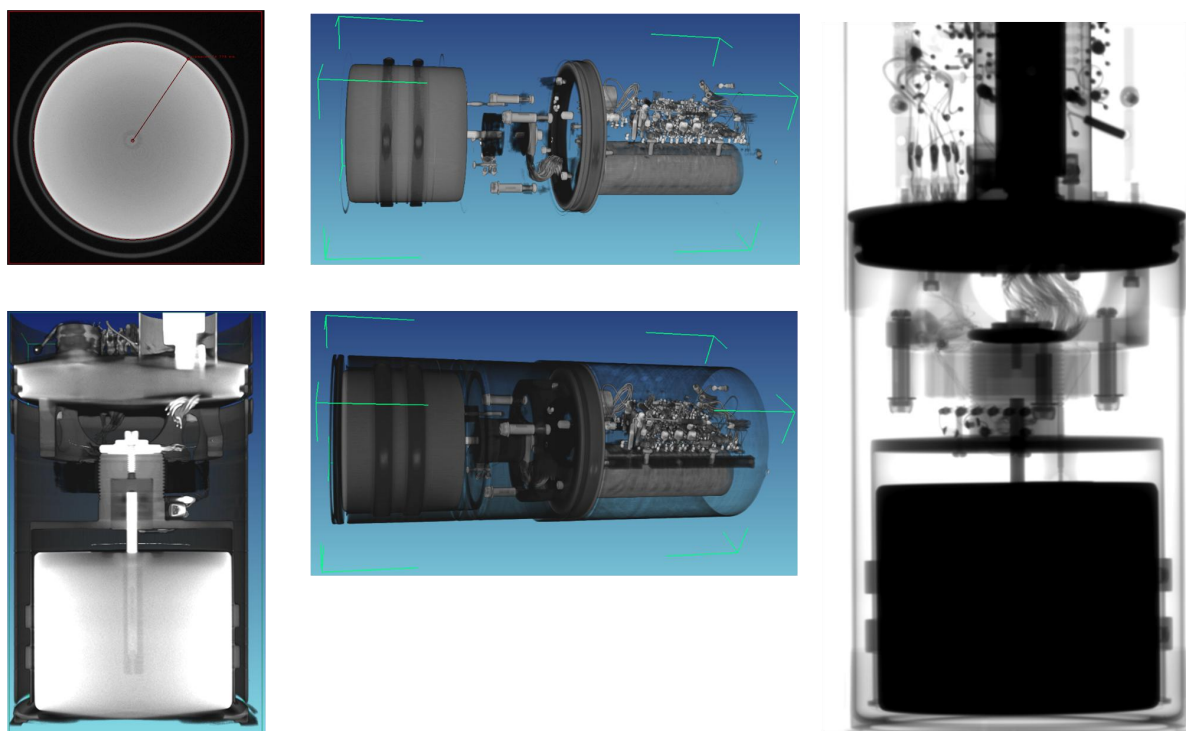


图 6 电子计算机断层扫描(CT) HPGe 探测器的成像图

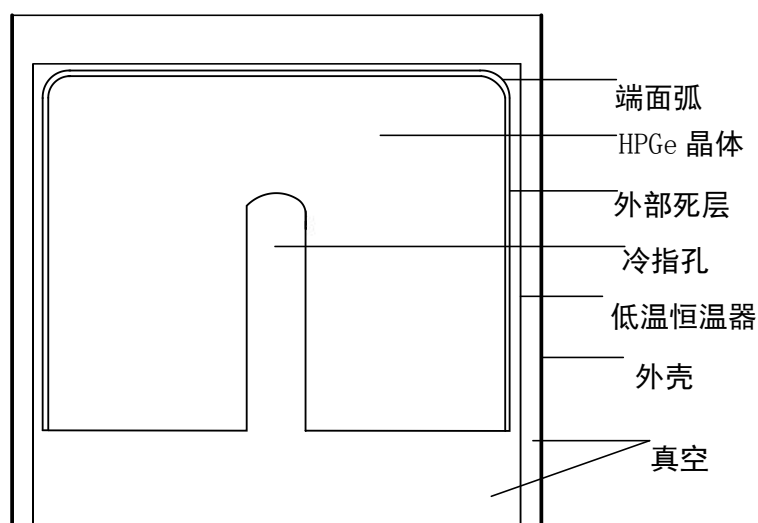


图 7 典型同轴 HPGe 结构示意图

根据实验测量的几何条件，建立放射源、探测器、空气、支架及其它影响探测器效率的组建模型。

利用蒙特卡洛模型程序，计算标准点源各特征峰的全能吸收峰探测效率。尽量增加计算的粒子数或多次运行计算，保证能量点的标准偏差小于 1%。

比较测量和模拟中得到的探测效率，调整探测器的相关参数。保证最终模拟计算结果，每个能量在各位置的相对偏差都在 5%以内。

结合实验测量结果，得到最终的 HPGe 探测器模型。

5.8.2.2 蒙卡模拟计算有效前面积

下面的步骤用于计算 HPGe 探测器的有效前面积。只有经过 5.8.2.1 的步骤检验后，下面的步骤才能够进行。

(1) 建立平面源模型：源平面与探测器的端面相平行；平面源的形状和面积与探测器相同；平面源位于探测器端面正前方； γ 射线

是平行光束，入射至 HPGe 探测器端面。

(2) 计算不同能量的 γ 射线探测效率，能量范围涵盖低能、中能、高能区间。

(3) 根据计算的探测效率与 HPGe 探测器的灵敏面积相乘，计算得到 HPGe 探测器的有效前面积。

5.9 HPGe 谱仪角度修正因子的刻度

5.9.1 探测器角响应因子 $R(\theta)$

用标准 γ 点源或蒙特卡洛方法刻度探测器角度响应因子 $R(\theta)$ ，确定探测器的计数率随 γ 射线入射角 (θ) 的变化关系。

5.9.1.1 标准 γ 点源刻度

刻度 HPGe 探测器角响应因子 $R(\theta)$ 的标准 γ 点源应与 5.8 节相同，一般包括 ^{241}Am 、 ^{133}Ba 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 等。

(1) 用离晶体固定距离至少 1 米的点源，在入射角 $\theta = 0^\circ$ (垂直于探测器的正表面)和 $\theta = 90^\circ$ 之间每隔 10° 间隔测量净峰计数率 $N_f(\theta)$ 。

(2) 用初始位置得到的计数率 N_0 去归一各角度的净计数率 $N_f(\theta)$ ，得到相对响应 $N_f(\theta)/N_0$ 与角度 θ 的关系，然后用多项式进行拟合。

$$R(\theta) = \sum_{i=0}^n A_i \times \cos \theta^i \quad (21)$$

一般情况下，采用四阶多项式，即 $n = 4$ 。

5.9.1.2 蒙特卡洛模拟刻度

根据探测器的材料组成和几何结构等参数，利用蒙特卡洛软件模

拟探测器的角度响应。

(1) 建立平面源模型：平面源在探测器端面前方，距灵敏体积的距离大于 $\sqrt{r^2+h^2}$ ；平面源所在平面的法向量与探测器端面法向量呈 θ 度角（ θ 角在 $180^\circ\sim 90^\circ$ 之间）； γ 射线是平行光束，从平面源平行入射至 HPGe 探测器；平面源在任意 θ 角位置探测器晶体上的投影应大于探测器的面积。

(2) 计算不同能量的 γ 射线探测效率，能量范围涵盖低能、中能、高能区间。

(3) 根据计算的探测效率与平面源的面积，得到 HPGe 探测器在 θ 角时平行 γ 射线单位注量率下的计数率 $(N_f)_\theta$ 。

(4) 依次改变平面源所在平面的法向量与探测器端面法向量的角度，在 $180^\circ\sim 90^\circ$ 之间角度间隔不大于 10° ，重新计算注量率 $(N_f)_\theta$ 。

(5) 根据计算得到的注量率 $(N_f)_\theta$ ，计算不同能量在各个角度注量率与 180° 角之比，得到 $(N_f)_\theta/(N_f)_{180^\circ}$ 。

利用公式（21）计算得到探测器角响应的表达式。

5.9.2 HPGe 角度修正因子的计算

对于每个能量的角度修正因子用下式进行计算

$$W = \int_0^{\pi/2} \frac{\varphi(\theta)}{\varphi} \cdot R(\theta) d\theta \quad (22)$$

式中：

$\varphi(\theta)$ — γ 射线注量率的角分布，可以根据放射性核素在土壤中的

分布计算出来。

对其他几种能量的 γ 光子重复利用公式（22）计算，得到不同能量的角度修正因子 W 。

6 方法验证

6.1 方法验证方案

6.1.1 方法验证的实验室及人员

参加方法验证的实验室有北京市辐射安全技术中心、上海市辐射环境监督站、山东省核与辐射环境管理中心、广西辐射环境监督管理站、四川省辐射环境管理监测中心站和黑龙江省辐射环境监督站等 6 家实验室。此外，生态环境部核与辐射安全中心作为组织单位，也参加了现场测量工作。参加比对的人员信息如下：

表 1 方法验证的人员

序号	姓名	单位
1	胡翔	北京市辐射安全技术中心
2	刘庆云	北京市辐射安全技术中心
3	张磊	上海市辐射环境监督站
4	刘锋	上海市辐射环境监督站
5	王震	山东省核与辐射环境管理中心
6	常明杰	山东省核与辐射环境管理中心
7	李雪泓	四川省辐射环境管理监测中心站

8	郭旭影	四川省辐射环境管理监测中心站
9	何贤文	广西辐射环境监督管理站
10	林明媚	广西辐射环境监督管理站
11	刘海鹏	黑龙江省辐射环境监督站
12	刘慧东	黑龙江省辐射环境监督站
13	吴永乐	生态环境部核与辐射安全中心
14	柳加成	生态环境部核与辐射安全中心
15	谭彬	生态环境部核与辐射安全中心
16	任健宝	生态环境部核与辐射安全中心

6.1.2 方法验证方案

(1) 测量点位

本标准测量介质为无穷大、平坦的土壤；测量项目为 γ 放射性核素； γ 放射性核素在土壤中有三种分布状态：（1）核事故后落下灰中 γ 核素均匀分布在土壤表面；（2）铀、钍、镭、钾等天然放射性核素在土壤中均匀分布；（3）核事故或大气核试验在地表沉积的放射性核素，经一定时间迁移后在土壤中呈指数分布（当前环境中存在的 γ 放射性核素主要为 ^{137}Cs ）。由于天然放射性核素在土壤中均匀分布的，仅需测量地点为无穷大（大于探测器视阈）、平坦的表面即可进行方法验证。放射性核素在土壤中呈指数分布的模型仅在自上世纪 60 年代大气核试验以来，土壤没有受到人为干扰，且测量地点为无穷大（大于

探测器视阈)才能满足方法验证要求。放射性核素在土壤表面分布模型仅在核事故后存在,当前也没有无穷大的面源,故第一种模型无法方法验证,但其准确度可以通过第一或第二种方法验证模型得以验证。因此,选择长白山自然保护区平坦区域作为方法验证地点。这是因为长白山国家自然保护区自1960年设立,保护区内的土壤没有收到人为破坏,大气核试验沉降的 ^{137}Cs 在土壤中扩散为指数分布;长白山自然保护区内有具有半径50m范围内没有建筑物或树木干扰区域的平坦测量场地。

(2) 测量仪器及核素

本次参加实验比对的仪器有四种型号:一台仪器为40%相对探测效率的同轴P型HPGe(堪培拉公司的GC4020型,液氮制冷);一台仪器为13%相对探测效率的同轴P型HPGe(奥泰克公司的micro-Detective,电制冷);两台仪器为40%相对探测效率的同轴P型HPGe(奥泰克公司的Detective-100T,电制冷);四台仪器为20%相对探测效率的宽能HPGe(堪培拉公司的Falcon 5000型,电制冷)。

测量核素主要为土壤中天然放射性核素(^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K)以及人工放射性核素 ^{137}Cs 。

(3) 准确度判定

在测量点位的土壤进行分层采样(0~1cm、1~2cm、2~3cm、3~4cm、5~6cm、6~7cm、7~10cm、10~13cm、13~16cm、16~19cm),然后送往实验室用HPGe进行测量,以此结果作为真值并求出 ^{137}Cs 质量张

弛深度。将 6 家方法验证实验室和 1 家规范编制单位的方法与实验室测量结果进行比较，计算相对偏差。

6.2 方法验证过程

项目组组织各方法验证单位在长白山自然保护区西坡测量，利用 HPGe 探测器测量环境土壤中 γ 放射性核素活度浓度。方法验证单位到达场地后，仪器首先进行调试，测试 HPGe 的能量分辨率和相对探测效率。第二天赶赴现场进行测量（4 月 24 日），现场测量见图 8 所示。每台 HPGe 谱仪至少测量 30min，以保证 ^{137}Cs 的净计数大于 300。



图 8 长白山西坡现场方法验证

测量结束后，项目组及方法验证人员后续再进行数据分析讨论三天，在实验室给出质量张弛深度后给出测试报告。

7 参考文献

1. Harold L. Beck, William J. Condon, Wayne M. Lowder, Spectrometric techniques for measuring environment gamma radiation [R], Atomic Energy Commission research reports: HASL-150 (1964).
2. Harold L. Beck, Joseph Decampo, Carl Gogolak. In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry [R]. Atomic Energy Commission research reports: HASL-258 (1972).
3. Kevin M. Miller, Gogolak, et al. Radiation measurements following the Three Mile Island reactor accident [R]. Environmental Measurements Laboratory Publication: EML-357 (1979)
4. Harold L. Beck, P. W. Krey. Radiation exposures in Utah from Nevada Nuclear Tests [J]. Science, 1983, 220:18-24.
5. Gogolak, Winkelmann, et al. Observations of Chernobyl fallout in Germany by in-situ gamma-ray spectrometry [R]. Environmental Measurements Laboratory Publication: EML-460 (1986) .
6. Irene K. Herlfer, Kevin M. Miller. Calibration for Ge Detectors Used for Field Spectrometry [J]. Health Physics, 1988, 55(1):15-29.
7. International Commission ON Radiation Units and Measurements (ICRU). Gamma-Ray Spectrometry in the Environment [R]. ICRU-53 Report (1994).
8. International Atomic Energy Agency (IAEA). Generic procedures for monitoring in a nuclear or radiological emergency [R]. IAEA-TECDOC-1092(1999).
9. 任天山. 本征锗野外 γ 谱仪的刻度[J]. 辐射防护, 1985(5):13-20.
10. 肖雪夫. 就地测量环境放射性核素的 HPGe γ 谱仪的刻度及现场初步应用研究[D]. 北京:中国原子能科学研究院;核工业部原子能研

究所,1990.

11. 冯天成.就地 γ 谱仪测量人工核素深度分布及土壤密度技术研究
[D].北京:清华大学,2010.

附：实验验证结果

为验证就地 HPGe 谱仪的准确性，本工作在长白山国家自然保护区西坡测量结果见表 1-表 4 所示。

表 1 编制单位及 6 家实验验证单位测量 Th-232 活度浓度(Bq/kg, $k=1$)

单位	HPGe 性能	活度浓度	实验室测量值	相对偏差
1	相对探测效率 20%宽能 HPGe	41.0±8.0	35.2±5.3	16%
2	相对探测效率 40%宽能 HPGe	33.6±6.7		-5%
3	相对探测效率 40%P 型 HPGe	30.5±6.1		-13%
4	相对探测效率 20%宽能 HPGe	28.7±5.7		-18%
5	相对探测效率 20%宽能 HPGe	41.1±8.2		16%
6	相对探测效率 20%宽能 HPGe	33.6±6.7		-5%
1-2	相对探测效率 40%P 型 HPGe	30.5±6.2		-13%
7	相对探测效率 13%P 型 HPGe	33.7±6.7		-4%
均值		33.1		35.2

表 2 编制单位及 6 家实验验证单位测量 Ra-226 活度浓度(Bq/kg, $k=1$)

单位	HPGe	活度浓度	实验室测量值	相对偏差
1	相对探测效率 20%宽能 HPGe	36.6±7.2	27.6±4.2	33%
2	相对探测效率 40%宽能 HPGe	19.7±4.8	27.6±4.2	-29%
3	相对探测效率 40%P 型 HPGe	21.7±4.3	27.6±4.2	-21%
4	相对探测效率 20%宽能 HPGe	27.1±5.4	27.6±4.2	-2%
5	相对探测效率 20%宽能 HPGe	24.8±5.9	27.6±4.2	-10%
6	相对探测效率 20%宽能 HPGe	18.7±3.9	27.6±4.2	-32%
1-2	相对探测效率 40%P 型 HPGe	29.5±6.2	27.6±4.2	7%
7	相对探测效率 13%P 型 HPGe	27.7±4.3	27.6±4.2	0%
均值		25.7	27.6	-7%

表 3 编制单位及 6 家实验验证单位测量 K-40 活度浓度(Bq/kg, $k=1$)

单位	HPGe	活度浓度	实验室测量值	相对偏差
1	相对探测效率 20%宽能 HPGe	911±136	797±80	14%
2	相对探测效率 40%宽能 HPGe	740±110	797±80	-7%
3	相对探测效率 40%P 型 HPGe	875±131	797±80	10%
4	相对探测效率 20%宽能 HPGe	867±130	797±80	9%
5	相对探测效率 20%宽能 HPGe	911±137	797±80	5%
6	相对探测效率 20%宽能 HPGe	840±126	797±80	0%
1-2	相对探测效率 40%P 型 HPGe	843±126	797±80	6%
7	相对探测效率 13%P 型 HPGe	724±108	797±80	-9%
均值		824	797	3.4%

表 4 编制单位及 6 家实验验证单位测量 Cs-137 活度浓度(Bq/m², $k=1$)

单位	HPGe	活度浓度	实验室测量值*	相对偏差
1	相对探测效率 20%宽能 HPGe	11539±1730	9969±997	15.7%
2	相对探测效率 40%宽能 HPGe	8839±1325	9969±997	-11.3%
3	相对探测效率 40%P 型 HPGe	9448±1417	9969±997	-5.2%
4	相对探测效率 20%宽能 HPGe	11560±1734	9969±997	16.0%
5	相对探测效率 20%宽能 HPGe	11849±1777	9969±997	18.9%
6	相对探测效率 20%宽能 HPGe	9586±1437	9969±997	-3.8%
1-2	相对探测效率 40%P 型 HPGe	12043±1804	9969±997	20.8%
7	相对探测效率 13%P 型 HPGe	9150±1372	9969±997	-8.2%
均值		10501	9969	5.34%

注：（1）实验室测量土壤中 ¹³⁷Cs 的张弛深度为 7cm；（2）深度在 0~19cm 内均匀混合的土壤，测量的 ¹³⁷Cs 活度浓度为 31.6±3.2Bq/kg，将其换算为表面积 1m² 范围内沉积的 ¹³⁷Cs 活度为 9969Bq/m²。