

基于电子加速器的核共振荧光无损探测模拟计算

张晨, 郑玉来, 张连军, 王强

(中国原子能科学研究院核技术综合研究所, 北京 102413)

摘要:核共振荧光(nuclear resonance fluorescence, NRF)是一种新兴的无损探测技术,通过分析伽马能谱中的特征能量来识别特定同位素,在含未知爆炸物小型箱体的扫描检查中发挥重要作用。本研究利用电子加速器韧致辐射产生的X射线为射线源,通过蒙特卡罗模拟程序Geant4优化设计NRF背散射探测方案。结果表明,优化后的X射线泄漏率降低了386倍,束流不对称度低于2%,束流均匀度高于70%。基于HPGe探测器获得石墨样品、硝酸铵样品的NRF特征能谱验证了设计方案的可行性,利用重要性抽样法将石墨样品模拟计算效率提高了72.23倍。该设计方案和计算结果可为基于NRF的无损核探测系统研发提供技术支撑。

关键词:无损探测;韧致辐射;核共振荧光;蒙特卡罗计算;重要性抽样

中图分类号:TL814

文献标志码:A

文章编号:1000-7512(2024)03-0260-07

doi:10.7538/tws.2023.youxian.055

Simulation of Nondestructive Inspection of Nuclear Resonance Fluorescence Based on Electron Accelerator

ZHANG Chen, ZHENG Yulai, ZHANG Lianjun, WANG Qiang

(Department of Nuclear Technology and Application, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: Nuclear resonance fluorescence (NRF) is an emerging nondestructive active inspection technology. Specific isotopes can be identified by analyzing the characteristic energy recorded in the gamma spectrum. This technology plays an important role in the scanning inspection of small containers containing unknown explosives. In this paper, an NRF backscatter inspection scheme is optimized using Monte Carlo simulation program based on the X-ray source generated by electron accelerator bremsstrahlung radiation. After optimized design, X-ray leakage rate is reduced by 386 times, the beam asymmetry is less than 2%, the beam uniformity is more than 70%. The NRF characteristic energy spectrum of graphite samples and ammonium nitrate sample obtained by HPGe detector verifies the feasibility of the design scheme. The innovative application of importance sampling technique improves the simulation calculation efficiency of graphite sample by 72.23 times. The design scheme and calculation results provide technical support for the research and development of NRF based non-destructive nuclear detection system.

Key words: nondestructive inspection; bremsstrahlung radiation; nuclear resonance fluorescence; monte carlo calculation; importance sampling

收稿日期: 2023-07-20; 修回日期: 2023-08-29

基金项目: 稳定基础科研计划资助项目(WDJC-2019-09)

通信作者: 郑玉来

爆炸恐怖活动已经成为当今世界恐怖活动最主要的表现形式^[1]。目前大规模配备的爆炸物检测技术为X光机透射扫描成像技术,其原理是利用X射线强大的穿透力,根据不同物质的密度、厚度形成并获取集装箱中所装货物的图像,通过图像分析判断货物的情况^[2],但无法获取货物元素成分信息,对可疑货物部分仍需进一步检查。中子探测技术如快中子技术存在中子活化的残留放射性、中子防护困难,难以实现小型化中子源等限制^[3],也使该技术无法应用于大规模查验场合。亟待研究更先进、快速的安全检查技术以有效识别爆炸物违禁品。

核共振荧光(nuclear resonance fluorescence, NRF)通过使用1.5~8.0 MeV能量范围的光子穿透大量材料发生特异性共振产生荧光光子,荧光光子携带表征元素特征与含量的信息,可分析该信息确定货物的物质组成并快速筛查出非法违禁品。加速器韧致辐射产生的X射线能量能够覆盖违禁品元素的NRF反应能量值,可以实现对大量元素的有效识别^[4]。但感兴趣元素的NRF能级宽度很窄,通常在0.1 eV左右,只有很小一部分入射光子能够发生NRF反应,这是违禁品核共振荧光探测甄别的难点。

由美国国土安全部(DHS)支持,在2010年护照系统公司(Passport Systems, Inc.)为核与辐射成像平台(NRIP)项目研制了一款货物成像系统,该系统使用9 MeV电子加速器产生连续能量X射线进行主动探测,采用NRF作为探测技术之一^[5]。目前,国内仅有中国原子能科学研究院、清华大学、南华大学、西北核技术研究所等单位开展了NRF探测技术的研究^[6-8],但均围绕大型准单能光源进行综述报告和理论、模拟计算,基于小型化电子加速器的NRF探测技术研究方面较少。

本研究以9 MeV电子加速器轰击高Z材料产生的X射线作为射线源,从理论分析、蒙特卡罗模拟计算开展研究,对NRF背散射探测方案进行优化设计,计算高X射线本底下弱NRF信号的特征能谱,针对宽韧致辐射能谱入射源计算效率低的问题提出重要性抽样方法,以为研制基于NRF技术的无损探测系统提供参考。

1 核共振荧光原理

核共振荧光(nuclear resonance fluorescence,

NRF)是典型的 $X(\gamma, \gamma')X$ 反应,描述了原子核通过共振吸收一个光子并被激发到一个特定的激发态,然后通过发射一个或多个光子退激的过程。在绝对零度 $T=0$ K下,入射能量为 E 的光子时,目标原子通过孤立共振吸收能量到达能级 E_r 处,然后衰减到能级 E_j 或基态,其反应截面遵循单能级Breit-Wigner规律^[9]:

$$\sigma_{\text{NRF}}(E) = \pi \frac{2J_r + 1}{2(2J_0 + 1)} \left(\frac{\hbar c}{E} \right)^2 \frac{\Gamma_{r,0} \Gamma_{r,j}}{(E - E_r)^2 + (\Gamma_r/2)^2} \quad (1)$$

式中, E 为入射 γ 能量, E_r 为共振能量; J_0 和 J_r 分别是基态和激发态的核自旋角动量, $\Gamma_{r,0}$ 和 $\Gamma_{r,j}$ 项表示从 E_r 衰减到基态和从 E_r 衰减到 E_j 的带宽,而 Γ_r 是能级跃迁的总带宽。在非绝对零度($T \neq 0$ K)下,NRF反应截面能级展宽会使NRF截面下降,但与其他电磁相互作用过程如光电效应、康普顿散射及电子对效应的截面值相比,NRF截面仍然与之相当甚至超过^[10],因此即使是少量的爆炸物材料也可以被检测到,探测系统的灵敏度很高。爆炸物的主要组成元素 ^{12}C 、 ^{14}N 、 ^{16}O 的NRF共振能级、带宽和截面列于表1。

表1 ^{12}C 、 ^{14}N 、 ^{16}O 的NRF共振能级、带宽和截面
Table 1 NRF resonance energy levels, bandwidths and cross sections of ^{12}C , ^{14}N and ^{16}O

核素	E_r/keV	Γ/MeV	$\sigma_{\text{int}}/(\text{b}\cdot\text{eV})$
^{12}C	4 438	10.80±0.60	6.32±0.40
	4 915	84.00±16.00	4.43±0.83
^{14}N	7 029	123.30±13.30	15.58±1.68
	6 917	97.07±2.68	38.95±1.08
^{16}O	7 116	54.90±3.30	12.49±0.75

电子加速器的高能电子束通过韧致辐射产生的X射线具有能量连续、通量高的特点,X射线的最高能量为电子能量。实时监测电子束流的强度,能够对检出的核素进行化合物组成的快速判断,满足对不同种类爆炸物的探测和灵敏度的要求。电子加速器产生的X射线具有前向性,为屏蔽与束流方向夹角大于一定角度的X射线,设计了束流准直结构,表征其准直性能的参数^[11]主要包括相对辐射泄漏量 η_x 、X射线束径向不对称度 η_b 和X射线束径向均匀度 η_h ,计算公式如式(2)~式(4),测量示意图

示于图1。

$$\eta_x = \frac{N_x}{N'_0} \times 100\% \quad (2)$$

$$\eta_b = \frac{\Delta N}{N} = \left| \frac{N_i - N'_i}{(N_i + N'_i)/2} \right| \times 100\% \quad (3)$$

$$\eta_h = \frac{N_{\min}}{N_0} \times 100\% \quad (4)$$

以靶中心为原点,面向O点为0°。式中 N_x 表示距离靶中心 20 cm、24°方向的 X 射线计数, N'_0 表示距离靶中心 20 cm、0°方向的 X 射线计数; N_i 表示图1中 A、B、C、D 点的 X 射线计数, N'_i 表示 A'、B'、C'、D' 点的 X 射线计数, N_0 表示 O 点的计数, N_{\min} 表示四对对称检测点中 X 射线计数的最小值。

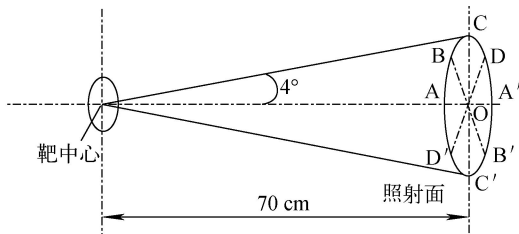
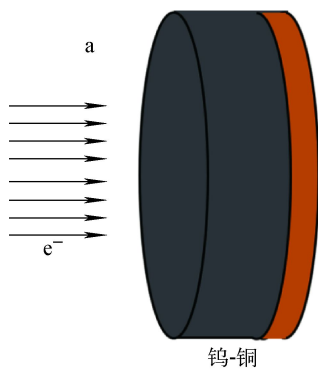


图1 X射线束均匀度与不对称度测量示意图
Fig.1 X-ray beam uniformity and asymmetry measurement diagram

为测定未知材料中同位素的种类,选用背散射探测方法测量来自货物箱的散射光子(图2)。



a——钨-铜复合靶结构示意图; b——准直器结构示意图

图3 钨-铜复合靶与准直器示意图

Fig.3 Schematic diagram of tungsten copper composite target and collimator

2.2 探测系统可行性验证

为验证设计方案进行 NRF 无损探测的可行性,使用石墨(主要成分为 ^{12}C , NRF 共振能量

主要部件包括脉冲电子加速器、钨铜复合靶、准直器、被检材料和 HPGe 探测器,探测器包裹有辐射屏蔽体。其中以束流方向为 0°靶中心为原点,探测器位于 24°方向,以被检材料为原点探测器位于 110°方向。

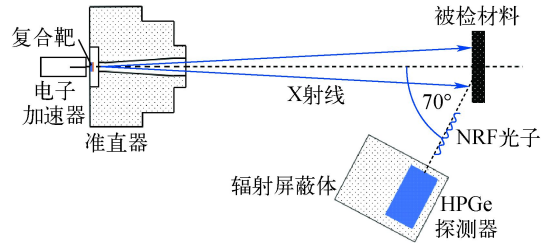
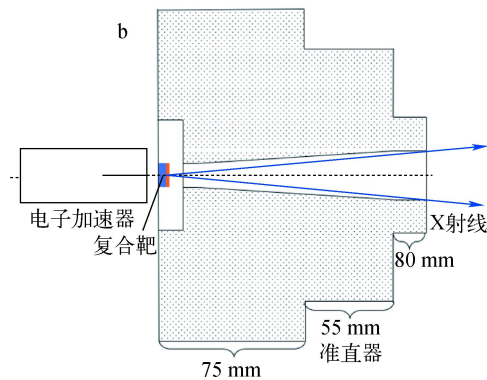


图2 基于电子加速器的 NRF 探测示意图
Fig.2 Schematic diagram of NRF detection based on electron accelerator

2 研究方法

2.1 模拟优化

在蒙特卡罗 Geant4 程序中构建了钨-铜复合靶及准直器,设计采用 0.2 cm 厚的圆柱形钨靶与 0.05 cm 厚的圆柱形铜靶作复合靶,半径均为 0.5 cm,复合靶模块示意图示于图3a,复合靶外侧为钨合金准直器,示意图示于图3b。使用 9 MeV 电子束以焦点直径 2 mm 轰击复合靶,获得的 X 射线的最高能量为 9 MeV,平均能量为 1.296 MeV。



4.438 MeV)作为被检材料进行整体的模拟计算。被检材料为正方体厚片,边长 10 cm×10 cm,厚度 4 cm。探测器选择相对探测效率为 100%@

1.33 MeV 的 P 型同轴 HPGe 探测器, 晶体轴向长度 19 cm, 直径 9.5 cm, 位于背向束流方向 110° 散射角处, 距离被检材料 20 cm。探测器轴向端面采用 2.5 cm 厚铅屏蔽板, 用于屏蔽来自被检靶件的低能量散射光子。

重要抽样法是最有效的蒙特卡罗技巧之一, 其主要思想是对所给定的概率分布进行修改, 使得对模拟结果有重要贡献的部分多出现, 从而达到提高效率、减少模拟时间、缩减方差的目的。在宽韧致辐射谱入射大量 X 射线的源项条件中, 低能量段 X 射线的模拟计算占用了大量计算资源, 为提高计算效率使用重要抽样法, 对韧致辐射谱中 NRF 共振峰能量附近采用高密度抽样计算, 其余能量段设定为较小密度抽样计算^[12]。抽样过程中同时计算该抽样能量段的权重因子, 最后获得带权重因子的探测器能谱。

3 结果与讨论

3.1 探测系统的蒙特卡罗模拟优化

使用 FLUKA 构建钨铜复合靶模型计算韧致辐射产生的 X 射线通量, 复合靶出射的 X 射线通量二维分布图示于图 4, 根据出射 X 射线的束流通量规律, 采用阶梯厚度圆柱体相结合的模式设计了准直器模块, 采用高密度、高原子序数的钨合金材料, 在中心留有圆台形准直孔实现出束束流的准直。在 FLUKA 程序中加入准直器后进行计算, 得到的 X 射线通量二维分布图示于图 5。

图 4 表明, 电子束流通过韧致辐射产生的 X 射线具有一定的前向性, 且 X 射线通量以束流方向为轴呈对称分布。对比图 4 与图 5 可知,

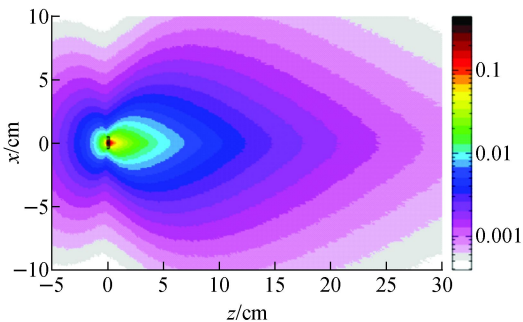


图 4 电子加速器产生的 X 射线二维分布图
Fig.4 Two-dimensional distribution of X-rays produced by an electron accelerator

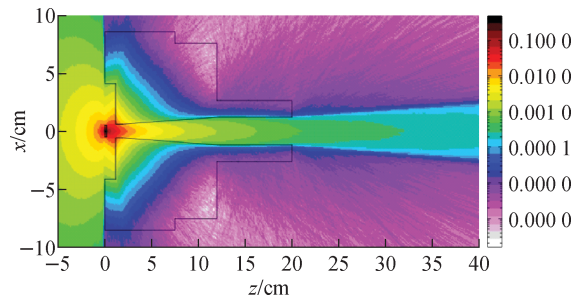


图 5 电子加速器产生的 X 射线经过准直器后的二维分布图

Fig.5 Two-dimensional distribution of electron accelerator X-rays after passing through a collimator

X 射线通过准直器后被约束到一个小角度内, 加入准直器前的辐射泄露率为 $\eta_x=0.295$, 加入中准直计算辐射泄露率 $\eta_x=7.65 \times 10^{-4}$, 降低了 386 倍。

计算得到距离靶中心径向 70 cm 处的被检材料位置处的 X 射线计数分布示于图 6。根据归一化的计数率数据可知, 准直后的 X 射线分布在以 10 cm 为边长的正方形区域内, 在直径 8 cm 的圆形区域计算束流均匀度和不对称度参数列于表 2, 出射束流的均匀度高于 70%, 不对称度低于 1.5%, 均优于国家标准的合格值^[13]。

模拟计算 HPGe 探测器在有、无辐射屏蔽体时受到的来自电子加速器韧致辐射 X 射线的本底, 能谱示于图 7。辐射屏蔽体厚度为 40 cm,

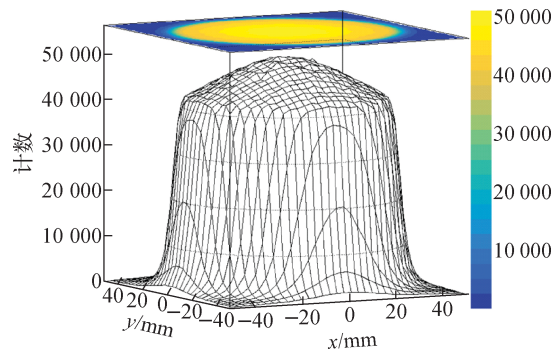


图 6 被检材料的 X 射线计数分布图

Fig.6 X-ray count distribution of the material being inspected

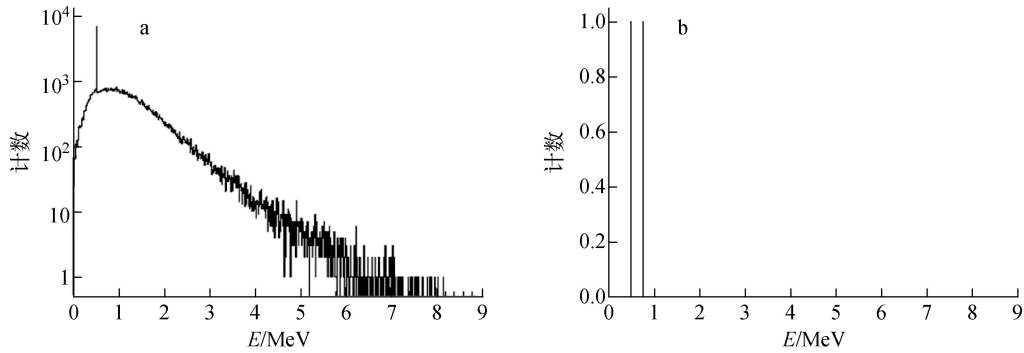
表 2 X 射线束均匀度与不对称度计算结果

Table 2 The calculation results of X-ray beam uniformity and asymmetry

位置	A	B	C	D	合格值
均匀度/%	75.3	75.7	74.1	75.2	≥ 62
不对称度/%	1.3	0.13	0.35	0.83	≤ 3

材料为铅,加入屏蔽体后 HPGe 探测器受到来自电子加速器的本底计数近似为 0。进一步理论分析,当加速器电子束能量为 9 MeV 时,即使对于屏蔽本领最弱的 4 MeV X 射线该屏蔽体的

衰减倍数仍可达到 $10^{7[14-15]}$,此衰减本领可完全屏蔽平均束流强度小于 $320 \mu\text{A}$ 的电子束产生的 X 射线本底。



a——无辐射屏蔽体时; b——有辐射屏蔽体时

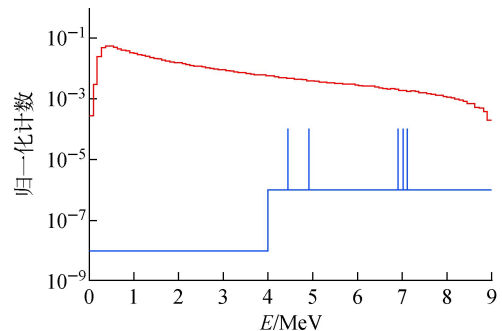
图 7 探测器 X 射线本底能谱图

Fig.7 Detector X-ray background energy spectrum

3.2 探测系统的可行性验证

归一化计算后韧致辐射能谱(红色)和不同能量段重要性抽样的概率密度图(蓝色)示于图 8。通过重要性抽样计算,HPGe 探测器测量的 NRF 特征能谱示于图 9。由图 9 可以甄别出石墨样品产生的 4.438 MeV 的伽马共振峰线,以及其对应的单逃逸峰,同时显示康普顿散射效应本底和正电子湮没效应本底是除 NRF 反应特征信号峰外的探测器的两大本底干扰。

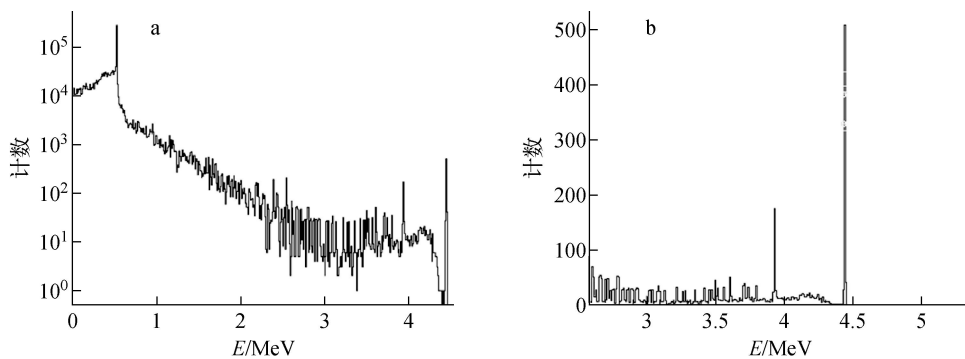
进一步对多成分复合体材料进行模拟计算,使用硝酸铵爆炸物(含 ^{14}N , NRF 共振能量 4.915 MeV、7.029 MeV; 含 ^{16}O , NRF 共振能量 6.917 MeV、7.116 MeV)作为被检材料,获得的



红色——韧致辐射能谱; 蓝色——重要性抽样概率密度分布

图 8 韧致辐射能谱中的重要抽样法应用

Fig.8 Application of importance sampling method in bremsstrahlung spectrum



a——整体能谱; b——NRF 共振峰局部能谱

图 9 石墨样品的探测能谱

Fig.9 Detection energy spectrum of graphite sample

NRF 特征能谱示于图 10, 图中可以甄别出与被检材料所含元素相应的 4 条的伽马共振峰线, 从原理上验证了设计方案的可行性。

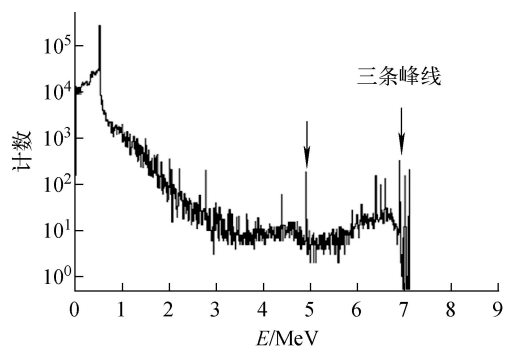


图 10 硝酸铵样品的探测能谱

Fig.10 Detection energy spectrum of ammonium nitrate samples

石墨作为被检材料的模拟计算中设源项入射了 N 个粒子, 第 n 个光子发生了 NRF 反应并被探测器记录, 贡献 η_n 。则:

$$\eta_n = \begin{cases} 1 & \text{记录} \\ 0 & \text{不记录} \end{cases} \quad (5)$$

为统计所有被探测器记录的 NRF 光子数目为 $N_1 = \sum_{n=1}^N \eta_n$, 产生 NRF 信号的概率的近似值为 $\hat{P}_N^{(1)} = \frac{N_1}{N} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \eta_n$, 在置信度水平 $1-\alpha=0.95$ 时, $\hat{P}_N^{(1)}$ 的误差为:

$$\left| \hat{P}_N^{(1)} - P \right| < 1.96\sigma_\eta / \sqrt{N} \quad (6)$$

σ_η 是 η 的均方差, 由于 η 服从二项分布, 故 $\sigma_\eta^2 = \hat{P}_N^{(1)}(1 - \hat{P}_N^{(1)})$, 其相对误差为 $\frac{1.96\sigma_\eta}{P\sqrt{N}}$, 计算效率为 $E_f = \frac{1}{\sigma_\eta^2} \times T$ 。根据模拟计算结果, P 为 2.5×10^{-7} , 在 Intel Gold6230 处理器 32 核并行计算的条件下不同抽样方法的计算效率对比列于表 3。结果表明, 在计算相对误差不变的条件下, 重要性抽样技巧将计算效率提高了 72.23 倍。

表 3 不同抽样方法的计算效率对比

Table 3 Comparison of computational efficiency of different sampling methods

抽样方法	计算时间 T/s	相对误差 $e_0/\%$	计算效率 E_f
直接抽样	3 241 353.78	8.7	1.23
重要性抽样	4 487.72	8.7	89.13

4 小结

通过设计准直器、探测器辐射屏蔽体等结构, 模拟计算石墨作为被检材料的 NRF 无损探测过程可以得出以下结果: (1) 优化设计的准直器结构将探测器角度方向的 X 射线泄漏率降低为 7.65×10^{-4} , 降低了 386 倍; 同时, X 射线束流均匀度大于 70%、不对称度小于 1.5%, 优于国家标准; (2) 设计探测器面向加速器方向 40 cm 厚辐射屏蔽体, 在加速器平均束流强度小于 $320 \mu A$ 的条件下, 能够较好屏蔽 X 射线对于探测器方向的干扰信号, 提高 NRF 特征信号的甄别率; (3) 在蒙特卡罗 Geant4 程序中使用重要性抽样技巧模拟计算宽谱入射源激发 NRF 过程, 获得了石墨样品、硝酸铵样品的 NRF 特征能谱信息, 验证了 NRF 无损背散射探测技术方案的可行性, 使用重要性抽样技巧将石墨样品的计算效率提高了 72.23 倍。可为基于 NRF 的原理样机开发提供理论和数据参考。

参考文献:

- [1] 郑玉来, 王强, 杨璐, 等. 基于快中子伴随 α 粒子方法的爆炸物检测技术的蒙特卡罗方法模拟[J]. 核电子学与探测技术, 2013, 33(10): 1175-1178, 1202.
Zheng Yulai, Wang Qiang, Yang Lu, et al. Monte Carlo simulation for the explosives inspection technique based the associated α -particle method[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2013, 33(10): 1175-1178, 1202.
- [2] 赵焯. 浅谈 H986 系统在海关查验业务的应用[J]. 科技创新导报, 2012, 9(9): 238.
Zhao Ye. On the application of H986 system in customs inspection[J]. Science and Technology Innovation Herald, 2012, 9(9): 238.
- [3] 陈涵德. 探测爆炸物和放射性材料的核技术方法[J]. 中国工程科学, 2008, 10(1): 77-85.
Chen Hande. Detection of explosives and active material by nuclear technologies[J]. Engineering Sciences, 2008, 10(1): 77-85.
- [4] Bertozzi W, Ledoux R J. Nuclear resonance fluorescence imaging in non-intrusive cargo inspection[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2005, 241(1-4): 820-825.
- [5] Kagan A, Oxley J C. Counterterrorist Detection Techniques of Explosives[M]. 2nd ed. United Kingdom: Elsevier, 2022.

- [6] 蓝浩洋. 基于高强度准单能伽马源的光致蜕变和核共振荧光无损检测研究[D]. 衡阳: 南华大学, 2021.
- [7] 魏坤, 黑东炜, 翁秀峰. 基于高亮度 γ 源的核共振荧光研究综述[J]. 现代应用物理, 2017, 8(1): 3-9.
Wei Kun, Hei Dongwei, Weng Xiufeng. Review of nuclear resonance fluorescence research based on high brilliance γ sources[J]. Modern Applied Physics, 2017, 8(1): 3-9.
- [8] 李碧清, 王勇, 焦晓静, 等. 核共振荧光探测技术的最新进展与应用[C]//全国第七届核监测学术研讨会. 牡丹江: 中国电子学会, 中国核学会, 2009: 49-54.
- [9] Jordan D V, Warren G A. Simulation of nuclear resonance fluorescence in Geant4[C]//2007 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. Honolulu, HI, USA: IEEE, 2007: 1185-1190.
- [10] 黄伟奇, 杨祎罡, 李元景, 等. 基于 LINAC 的 SNM 检测技术研究[C]//第十五届全国核电子学与核探测技术学术年会论文集.[S. l]: 中国电子学会核电子学与核探测技术分会, 2010: 7.
- [11] 李占鹏. 无损检测加速器辐射防护屏蔽设计及多目标优化研究[D]. 苏州: 苏州大学, 2020.
- [12] Vavrek J R, Henderson B S, Danagoulian A. High-accuracy Geant4 simulation and semi-analytical modeling of nuclear resonance fluorescence[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2018, 433: 34-42.
- [13] 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 20129—2015 无损检测用电子直线加速器[S]. 北京: 中国标准出版社, 201610.
- [14] 汲长松. 核辐射探测器及其实验技术手册[M]. 北京: 原子能出版社, 1990: 268-279.
- [15] Hubbell J H, Seltzer S M. Tables of X-ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients (version 1.4)[DB]. National Institute of Standards and Technology[2004].