

核材料 γ 能谱指纹模糊识别机理研究

王崇杰^{1)†} 包东敏¹⁾ 程 松¹⁾ 张爱莲²⁾

1) 辽宁师范大学物理与电子技术学院, 大连 116029)

2) 辽宁师范大学分析测试中心, 大连 116029)

(2007 年 11 月 27 日收到, 2008 年 1 月 30 日收到修改稿)

以 γ 射线的能量与强度所构成的二维平面为论域, 提出了关于 γ 射线能谱的二维模糊集合的概念, 建立了 γ 射线能谱二维模糊集合隶属函数. 提出和介绍了 γ 射线能谱指纹模糊识别的基本原理与方法. 通过对 γ 能谱数据的归一化处理, 实现了 γ 射线能谱指纹的类型识别和个体识别. 通过引入识别增强因子, 获得了较高的识别置信度. 对模拟放射性物质的 γ 射线能谱指纹进行了识别研究, 探讨了系统统计涨落以及探测距离变化对识别隶属度的影响. 研究表明, γ 射线能谱指纹模糊识别方法具有较强的类型识别能力和个体识别能力, 可应用于核安全保障等领域.

关键词: γ 能谱指纹, 模糊识别, 核材料

PACC: 0150M, 0650D

1. 引 言

作为一种辐射指纹, γ 射线能谱可以起到标识和鉴别放射性物体的作用, 并已在核武器核查、核材料安全监控等方面得到广泛应用^[1-3]. γ 能谱指纹识别技术的主要研究内容之一就是寻找可靠的分析方法, 对放射性物体的 γ 射线能谱指纹进行分析, 并以较高的置信度对放射性物体的类型或个体做出肯定与否定的判别, 进而达到标识或鉴别放射性物体等目的. 2003 年, 王崇杰等^[4]提出了基于模糊技术的 γ 能谱定性分析方法, 该文在此基础上, 进一步提出了基于二维模糊识别技术的 γ 射线能谱指纹类型和个体识别方法, 并对模糊识别机理进行了深入探讨.

2. γ 能谱指纹模糊识别基本原理

放射性物体的 γ 能谱指纹主要特征表现为 γ 射线的能量和强度, 在 γ 能谱中则表现为一定测量条件下全能峰峰位和全能峰计数或峰位计数. 由于统计涨落等因素的影响, 在测量时间一定, 重复多次测量情况下, 能量和强度一定的 γ 射线 γ_i ($i = 1, 2, \dots$)

每次在多道分析器上形成的峰位 p_i 和峰位计数 N_i 是随机的, 且一般按正态分布规律分布, 但中心峰位 p_{i0} 和峰位计数平均值 N_{i0} 是确定的. 如果以 γ 射线能量与强度所构成的二维平面 S 为论域 $U^{[5,6]}$, 则具有特定能量和一定强度的 γ 射线 γ_i 可设为论域 U 上的模式类 Γ_i , 而各模式类所对应的模糊集合 A_i 的元素为 γ 射线 γ_i 在二维平面 S 上所对应的所有可能的点 $Q_i = (P_i, N_i)^T$, 模糊集合 A_i 的隶属函数 μ_{A_i} 可表示为

$$\mu_{A_i}(Q) = \exp\left\{-\frac{1}{2}[S(Q - Q_{i0})] \times K_i^{-1}[S(Q - Q_{i0})]\right\}, \quad (1)$$

(1) 式中 $Q_{i0} = (p_{i0}, N_{i0})^T$, S 称为增强因子, K_i 为 p_i 与 N_i 的协方差矩阵, 且

$$K_i = \begin{bmatrix} \sigma_{p_{i0}}^2 & r\sigma_{p_{i0}}\sigma_{N_{i0}} \\ r\sigma_{p_{i0}}\sigma_{N_{i0}} & \sigma_{N_{i0}}^2 \end{bmatrix}, \quad (2)$$

式(2)中 r 为 N_i 与 p_i 之间的相关系数. 由于全能峰峰位计数与峰位无关, 因此, $r = 0$. 如果参考谱中含有 m 个峰位, 可以把参考谱看成是这 m 个模式类集合的并集 X , 则参考谱模糊集合 X 的隶属函数为

$$\mu_X(Q) = \max[\mu_{A_i}(Q)]. \quad (3)$$

† E-mail: wang_chongjie@163.com

设比较谱中含有 n 个峰位 (n 条 γ 射线), 根据 (3) 式可分别计算出这 n 条 γ 射线在参考谱中的隶属度

$$\mu_x(Q_j) = \max[\mu_{A_i}(Q_j)], \quad (4)$$

(4) 式中, $Q_j = (p_j, N_j)^T$, $j = 1, 2, \dots, n$ 为比较谱中第 j 条 γ 射线峰位及峰位计数所构成的向量. 比较谱在参考谱中的平均隶属度为

$$\mu_E = \frac{n}{m} \sum_{j=1}^n \mu_x(Q_j). \quad (5)$$

显然, μ_E 值越大, 说明比较谱与参考谱为同一类型或同一个体的可能性越大; 反之, 可能性越小. 对于一定的谱仪系统, 总可以设定一个合理的平均隶属度阈值 μ_{th} , 如果 $\mu_E \geq \mu_{th}$, 则说明比较谱与参考谱为同一类型或同一个体的能谱. 反之, 则说明比较谱与参考谱不属于同一类型或同一个体谱. 而比较谱与参考谱是属于同一类型还是属于同一个体, 则取决于识别前对谱数据的归一化是峰位计数归一化还是时间归一化.

3. γ 能谱指纹模糊识别方法

3.1. γ 能谱模糊集合隶属函数的确定

根据 γ 能谱分析^[4], 某一确定的 γ 能谱的全能峰峰位 p_{i0} 和峰位计数 N_{i0} 是可求的. 而峰位随机分布方差可表示为 $\sigma_{p_{i0}} = \frac{1}{2\sqrt{\chi \ln(2)}} F_{i0}$, 其中 F_{i0} 为第 i 个峰的半宽度. 峰位中心计数的分布方差可表示为 $\sigma_{N_{i0}} = \sqrt{N_{i0}}$. 根据 (1)(3) 式即可确定 γ 能谱模糊集合隶属函数 $\mu_x(Q)$.

3.2. γ 能谱数据归一化

在类型识别过程中, 考虑谱数据采集时间可能不同, 以及不同个体之间放射性活度差异的影响, 须对比较谱进行峰位计数归一化, 即使比较谱中某一全能峰 (称为参考峰) 的峰位计数与参考谱中相应的全能峰峰位计数相等, 即令 $C_k = \frac{M_s}{M_x} C'_k$, 其中 M_s , M_x 分别为参考谱中参考峰峰位计数和比较谱中相应参考峰峰位计数, C'_k , C_k 分别为比较谱归一化前后道址 K 上的计数值. 考虑测量过程中谱仪系统死时间和堆积效应的影响, 一般选择中等强度的全能峰作为参考峰. 如果在参考谱中没有与比较谱中相

对应的参考峰, 则在编制自动识别软件时, 可取参考谱中相应道址上的计数进行峰计数归一化.

在类型识别的基础上, 为了对同一类型中的个体进行识别, 考虑谱数据的采集时间可能不同, 须对比较谱进行时间归一化, 即使比较谱的采集时间与参考谱的采集时间相同, 即令 $C_k = \frac{T_s}{T_x} C'_k$, 其中 T'_k , T_k 分别为参考谱和比较谱的采集时间.

3.3. γ 能谱指纹识别过程

首先按下列步骤对谱进行类型识别, 然后再按相同步骤对每一类型中的个体进行识别. 具体步骤如下:

- 1) 对谱数据进行消噪和归一化, 找峰并求出峰位计数;
- 2) 选取适当的增强因子, 并根据 (3) 式求出参考谱模糊集合隶属函数;
- 3) 根据 (5) 式求比较谱在参考谱中的隶属度 μ_E ;
- 4) 根据 γ 能谱仪系统的特性, 设定隶属度阈值 μ_{th} ;
- 5) 如果 $\mu_E \geq \mu_{th}$, 则比较谱与参考谱为同一类型或同一个体, 否则不属于同一类型或同一个体.

4. 模拟 γ 能谱指纹识别

该文对核材料 γ 射线能谱指纹的模拟识别主要基于下列分类原则:

不同类型 1) 核素成分不同 2) 核素成分相同但各成分所占比例不同.

相同类型 3) 核素成分及各成分所占比例均相同, 但个体的总放射性活度不同.

4.1. 实验仪器设备与谱数据测量方法

所用仪器为美国 EG&G ORTEC 公司的同轴型 HPGc γ 探测器-918A 多道能谱仪, 能量分辨率为 2.0 keV (在 1332.5 keV 处), 峰康比为 56:1, 相对效率为 30%.

所用放射源为 ^{241}Am , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na 和 ^{152}Eu 点源.

测量方法 利用放射源支架对放射源进行定位, 确保实验重复性和探测方位的定位精度.

4.2. 类型识别

4.2.1. 核素成分不同的类型识别

我们对 ^{241}Am , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{60}Co 组合源和 ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{60}Co 组合源分别进行了 1h 和 5h 测量. 识别结果见表 1. 谱文件名中 Am, Co, CsCo 和 Nec 分别表示上述放射源或其组合. 表 1 中 4 列隶属度值分别表示以 Am5h, Co5h, CsCo5h 和 Nec5h 为参考谱对其他各谱进行识别时所对应的隶属度值. 由表 1 可看出, 只要隶属度阈值在 0.50—0.95 之间取值, 即使在测量活时间相差较大的情况下, 也可对核素成分不同的 γ 能谱指纹做出完全准确的类型识别. 另一方面也表明, 经峰位计数归一化后, 方法不具备活度类型识别能力, 但可在类型识别基础上, 通过时间归一化再进一步进行个体识别.

表 1 成分不同的类型识别结果($S = 10$)

谱文件	隶属度			
Am1h	0.999	0.000	0.000	0.000
Am5h	1.000	0.000	0.000	0.000
Co1h	0.000	0.998	0.000	0.001
Co5h	0.000	1.000	0.000	0.002
CsCo1h	0.000	0.110	0.983	0.402
CsCo5h	0.000	0.000	1.000	0.408
Nec1h	0.000	0.087	0.399	0.998
Nec5h	0.000	0.002	0.408	1.000

4.2.2. 核素成分相同各成分活度不同的类型识别

我们对 ^{60}Co 和 ^{137}Cs 放射源进行了组合测量. 首先, 对 ^{60}Co 分别测量 2 h 和 4 h, 再分别换上 ^{137}Cs , 在 ^{60}Co 谱数据基础上, 分别继续采集 1 h 和 2 h. 谱文件 Co2cs1 表示在 ^{60}Co 2 h 谱数据基础上再累积测量 ^{137}Cs 1 h 所得谱数据, 其他依此类推. 分别以个谱为参考谱进行类型识别, 结果如表 2 所示. 表中 4 列数据分

表 2 成分相同各成分活度不同的类型识别结果($S = 10$)

谱文件	隶属度			
Co2cs1	1.000	0.105	0.008	0.969
Co2cs2	0.103	1.000	0.001	0.017
Co4cs1	0.008	0.001	1.000	0.091
Co4cs2	0.968	0.015	0.091	1.000

别是以 Co2cs1, Co2cs2, Co4cs1 和 Co4cs2 为参考谱进行识别所得的隶属度值. 由表 2 可看出, 方法给出了正确的类型识别结果. 其中 Co2cs1 和 Co4cs2 被认为

是同一类型, 原因是 Co4cs2 中各成分(^{60}Co 和 ^{137}Cs) 的测量时间均是 Co2cs1 中各成分测量时间的 2 倍, 相当于对同一放射性物体进行了两次不同时间的测量. 因此类型识别不能对二者进行区分, 这与 4.2.1 的结论是一致的, 须进行个体识别.

4.2.3. 差异较小能谱指纹的类型识别

两个放射性物体 γ 射线能谱指纹的差异较小, 一是能够用来区分二者的特征 γ 射线的数目占谱中总特征 γ 射线数目的比例小; 二是成分相同, 只有部分成分的活度不同, 而且差值小. 对此, 我们做了如下模拟测量. 对 ^{152}Eu 采集数据 1 h, 再分别换上 ^{60}Co 和 ^{137}Cs , 在 ^{152}Eu 谱数据基础上, 分别继续采集数据, 并且每 5 min 存储一套谱数据. 以 ^{152}Eu 测量 1 h 谱 Eu 1h 为参考谱对各谱进行识别, 如表 3 所示.

表 3 差异较小的能谱指纹识别结果($S = 10$)

谱文件	隶属度	谱段总计数 相对偏差/%	谱文件	隶属度	谱段总计数 相对偏差/%
Eu1h	1.000	0.000			
EuCs5	0.739	1.989	EuCo5	0.634	0.724
EuCs10	0.589	3.940	EuCo10	0.630	1.444
EuCs15	0.520	5.830	EuCo15	0.627	2.163
EuCs20	0.461	7.690	EuCo20	0.624	2.872
EuCs25	0.391	9.520	EuCo25	0.622	3.571
EuCs30	0.344	11.307	EuCo30	0.620	4.267

研究表明, 对于成分差异较小的类型, 须采用特征谱段或谱段组合来进行类型识别. 为便于比较, 在对 ^{152}Eu , ^{137}Cs 组合谱和 ^{152}Eu , ^{60}Co 组合谱进行识别过程中, 所选谱段, 除分别包含 ^{137}Cs 661.661 keV 一个特征峰和 ^{60}Co 1173.24 keV, 1332.50 keV 两个特征峰外, 保证 ^{152}Eu 的特征峰数目一致, 均为七个. 由表 3 可看出, 隶属度阈值在 0.80—0.95 之间取值时, 可以获得准确识别结果. 还可看出, 当成分一定时, 随成分活度差异增大, 隶属度逐渐减小. 在比较谱总计数相对参考谱总计数的偏差接近的情况下, 特征峰数目差别增大, 则隶属度值减小. 考虑仪器统计涨落及测量条件不重复性的影响, 方法存在类型识别下限. 另外, 研究还表明, 由于峰位计数归一化的原因, 该种情况下, 增强因子对提高识别能力作用较小.

4.3. 个体识别

个体识别就是在类型识别基础上, 对同一类型中的两套 γ 能谱指纹进行判别分析, 并以较高的置信度, 对“二者是否属于同一放射性物体”做出“肯定-否定”的判断.

为此,首先在其他测量条件相同的情况下,对放射源及其组合进行了不同时间测量,来模拟同一类型中放射性活度不同的个体.识别结果如表 4 所示.表中文件名表示放射源或放射源组合,带“*”者为

参考谱.由结果可看出,对于个体之间的活度差异较大的情况,隶属度阈值在较大范围(0.5—0.95)内取值时,方法均可做出准确的判别结果.

其次,在相同的测量条件下,对¹⁵²Eu点源重复

表 4 不同活度个体谱识别结果(S = 5)

谱文件	隶属度	谱文件	隶属度	谱文件	隶属度	谱文件	隶属度
Am1h	0.000	Co1h	0.000	Csco1h	0.000	Encc1h	0.000
Am2h	0.005	Co2h	0.000	Csco2h	0.000	Encc2h	0.007
Am3h	0.050	Co3h	0.000	Csco3h	0.000	Encc3h	0.013
Am4h	0.309	Co4h	0.020	Csco4h	0.026	Encc4h	0.238
Am5h*	1.000	Co5h*	1.000	Csco5h*	1.000	Encc5h*	1.000

测量 10 次,测得统计涨落谱(Eu1hA—Eu1hJ);保持测量活时间和探测距离不变,在源与探测器之间分别加上厚度为 0.5 mm,1 mm 和 1.5 mm 的铝吸收片各测量一次,测得吸收片谱(EuAl1—EuAl3);保持测量活时间不变,探测距离每增加 2 mm 测量一次,共测量 10 次,测得距离变化谱(Eu1B—Eu10B).通过对上述谱数据的识别研究,考察了方法对同一类型核材料个体间微小差别的识别能力,探究了谱仪系统统计涨落和探测距离对个体识别的影响,以及增强因子对提高个体识别置信度的作用.结果如图 1 所示,图中曲线显示了以 Eu1hA 为参考谱,对统计涨落谱(Eu1hB, Eu1hE, Eu1hJ),加吸收片谱(EuAl1, EuAl2)和不同探测距离谱(Eu1B, Eu2B)进行个体识别的隶属度值随增强因子变化而变化的情况.

4.3%,说明方法具有较强的个体识别能力.随着增强因子的增加,各类谱的隶属度曲线逐渐分开,使吸收片谱与距离变化谱以及二者与统计涨落谱变得可以识别.说明方法对吸收片厚度和探测距离或核材料位置均很敏感.同时也可看出,如果探测距离允许误差在 4 mm 以内,此时 EuAl1 被距离变化谱 Eu1B 淹没,只可对 EuAl2 做出准确识别.这表明,在一定的实验条件下,方法存在个体识别下限.图中距离变化谱与吸收片谱出现交叉现象的原因,是两谱之间的“距离”包括高、低不同能量段的贡献.由于吸收片和探测距离变化对各能段的影响不同,因此,随着增强因子的增加,各谱中对“距离”起其主要作用的部分显现出来,这正是该方法具有较强个体识别能力的原因.

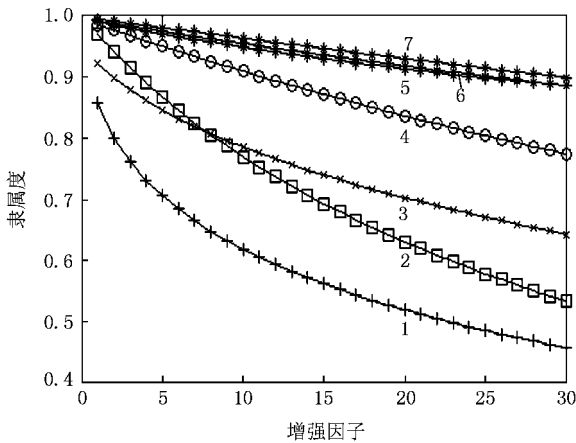


图 1 隶属度随增强因子变化曲线(1. Eu1B 2. Eu2B 3. EuAl1 4. EuAl2 5. Eu1hJ 6. Eu1hE 7. Eu1hB)

由图可看出,当增强因子取 1,隶属度阈值取 0.95 时,两吸收片谱与参考谱(Eu1hA)被识别为不同个体.而 EuAl1 与 Eu1hA 谱总计数的相对偏差为

5. 结 论

放射性物体的 γ 射线能谱与测量条件有关,只有在“特定的测量条件”下 γ 射线能谱才能够成为“指纹”.“特定的测量条件”是指用同一型号的探测器,在相同探测距离、方位对个体放射源的固定部位作不低于某一测量精度的测量^[1].因此,该文的 γ 能谱指纹二维模糊识别方法必须以“特定的测量条件”为基础.

由于同时考虑了 γ 射线的能量和强度两个特征量,因此 γ 能谱指纹二维模糊识别方法同时具有的类型识别能力和个体识别能力.方法可以在“特定的测量条件”下,以较高的置信度对两个放射性物体做出是否为同一类型或同一个体的判别.由于识别均以参考谱为标准,因此,方法不能对未知放射源的具体种类做出直接判别.

增强因子使识别隶属度得到扩展,从而进一步

提高了方法的类型识别能力和个体识别能力. 在相同隶属度阈值的情况下, 提高了识别置信度.

方法对吸收材料厚度及探测距离均很敏感, 不

仅可用于核材料识别, 也可应用于核材料定位.

综上所述, 利用 γ 能谱指纹模糊识别方法对核材料的类型和个体进行识别是可行的.

- [1] Liu S P , Wu H L , Gu D C , Gong J , Hao F H , Hu G C 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2411 [in Chinese] 刘素萍、吴怀龙、古当长、龚建、郝樊华、胡广春 2002 物理学报 **51** 2411]
- [2] Xiong Z H , Kang W , Gong J , Hu G C , Xiang Y C , Pei Y Q 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1 [in Chinese] 熊宗华、亢武、龚建、胡广春、向永春、裴永全 2003 物理学报 **52** 1]
- [3] Tian D F , Xie D , Huo Y K , Yang F J 2000 *Chinese Journal of Computational Physics* **17** 7 [in Chinese] 天东风、解东、霍裕昆、杨福家 2000 计算物理 **17** 7]

- [4] Wang C J , Zhang A L 2003 *Spectrosc and Spectral Anal.* **23** 1028 [王崇杰、张爱莲 2003 光谱学与光谱分析 **23** 1028]
- [5] Peng Z Z , Sun Y Y 2004 *Fuzzy Mathematics and its Application* (Wuhan :Wuhan University Press) pp2—16 [in Chinese] 彭祖赠、孙韞玉 2004 模糊数学及其应用(武汉 :武汉大学出版社)第 2—16 页]
- [6] Zhang Y , Liu Y Q 2002 *Soft Computational Method* (Beijing : Science Press) pp16—25 [张颖、刘艳秋 2002 软计算方法(北京 :科学出版社)第 16—25 页]

Investigation on the fuzzy recognition mechanism for γ -ray fingerprints of nuclear materials

Wang Chong-Jie^{1)†} Bao Dong-Min¹⁾ Cheng Song¹⁾ Zhang Ai-Lian²⁾

1) *College of Physics and Electric Technology , Liaoning Normal University , Dalian 116029 , China)*

2) *Experimental Center , Liaoning Normal University , Dalian 116029 , China)*

(Received 27 November 2007 ; revised manuscript received 30 January 2008)

Abstract

Within the scope of the two-dimensional space with the energy and intensity of γ -ray as coordinates , we brought forward the concept of the two-dimensional fuzzy set about spectra , and established the membership function. We also introduced the fundamental principles and method for identifying the γ -ray fingerprints by fuzzy recognition technique. By regularizing the spectra , we succeeded in identifying the types and individuals of nuclear materials. Further more , we introduced the multiplying factor , and thus obtained high degree of confidence in identifying the spectra. We identified the simulation materials as radiation sources with the method , and studied the influence of the detecting distance and the detecting system fluctuation on the membership degree. The results show that the method has strong capabilities of identifying the types and the individuals of radiation sources , and can be applied to the nuclear materials safeguard.

Keywords : γ -ray fingerprints , fuzzy recognition , nuclear materials

PACC : 0150M , 0650D