

进出口货物中天然放射性物质检测技术研究

战 俭¹, 史建峰¹, 侯永明¹, 郑玉来², 刘 超², 王 强², 李 永², 张连军², 王 楠²

(1. 中国海关管理干部学院, 河北 秦皇岛 066004;

2. 中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要:为监测海关进口的大量大宗矿物及稀有金属的辐射情况, 通常采用现场取样送检第三方实验室检测方式来识别该矿产是否具有危害性, 检测周期通常约为 10 d。为进一步满足海关对矿物中天然放射性物质核素现场快速检测的实际需求, 本研究建立天然放射性物质快速检测技术, 以现场快速鉴别进出口货物中的放射性物质是否天然, 提高通关率。系统测试结果表明: 平均检测时间为 46.5 s, 比活度相对误差均小于 10%, 满足快速检测要求。

关键词:天然放射性; 马林杯; GEANT4; 快速检测

中图分类号: TL812+.1

文献标志码: A

文章编号: 1000-7512(2025)03-0269-07

doi: 10.7538/tws.2025.youxian.021

Research and Development of a Natural Radioactivity Detection System for Import and Export Goods

ZHAN Jian¹, SHI Jianfeng¹, HOU Yongming¹, ZHENG Yulai², LIU Chao², WANG Qiang²,
LI Yong², ZHANG Lianjun², WANG Nan²

(1. Chinese Academy of Customs Administration, Qinhuangdao 066004, China;

2. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: China imports a large amount of bulk minerals and rare metals every year, and during customs radiation monitoring, harmless alarms are often triggered due to the presence of natural radioactive elements (NORM) in the minerals. At present, on-site sampling and third-party laboratory testing are commonly used to identify whether the mineral is hazardous, which is time-consuming and hinders trade facilitation. Based on the actual demand of customs for rapid on-site detection of natural radioactive substances in minerals, research is being conducted on the rapid detection technology of natural radioactive substances in import and export goods, which can quickly identify whether the radioactive substances in minerals are natural nuclides or illegal trafficking on site, and improve the clearance rate. The average detection time is 46.5 seconds, the relative error of specific activity is less than 10%.

Key words: natural radioactivity; marin cup; GEANT4; quick detection

收稿日期: 2025-03-24; 修回日期: 2025-04-21

基金项目: 国际原子能机构全球协调研究项目 (J02015)

通信作者: 史建峰

自然界赋存的矿产资源普遍含有天然放射性核素(NORM),这类物质伴随矿产资源开发已深度融入现代工业体系,既作为关键原料应用于能源、建材、装饰品制造等领域,又通过 γ 射线外照射及放射性核素摄入等途径对人体健康构成潜在威胁。随着我国国际贸易规模持续扩大,跨境货物种类和体量呈指数级增长,伴随进口货物输入放射性物质的风险系数同步攀升^[1]。

作为国家核安全的重要屏障,海关在全国进出境口岸已全面部署辐射监测系统,对进出境交通工具、货物、行李物品及人员实施多维度核辐射筛查^[1]。实践表明,口岸放射性检测设备常因矿石类商品携带 NORM 产生无害报警现象。以年进口量逾百万吨的锆英砂为例,其天然钍-232 活度浓度高达 2.6×10^4 Bq/kg,触发检测警报后需启动人工复检程序,平均处置周期长达 10 个工作日,直接导致通关效率下降 35%,每年造成数亿元贸易损失^[2]。亟需开发一种小型化、可以现场对放射性矿物进行甄别和分析的核素快速识别和检测装置,实现 NORM 的实时鉴别与危害评估,构建智能化的通关核验体系^[2]。

目前,市场未有针对海关进出口货物中天然放射性物质检测的装置,本研究针对海关在口岸核辐射监测的技术关键点^[3],基于马林杯结构的移动快速检测系统对粒度较小的精矿或矿砂设计检测系统,集成 γ 射线能谱快速分析技术,采用模块化设计思路构建紧凑型检测单元(尺寸 $\leq 0.5 \text{ m}^3$)^[3],配备自动样品切换模块实现连续检测功能。实验测试表明,该系统单次检测平均耗时 46.5 s,比活度检测相对误差控制在 10% 以内,较传统实验室检测效率明显提升,可为口岸放射性物质监管提供新的技术支持。

1 系统组成

系统构建了包含三级联动的功能架构。1)前端原位数据获取单元;2)无线遥测传输模块;3)云端数据分析平台。其中,现场智能终端集成自主开发的采集控制程序,具备实时能谱解析、本地化报告生成及 4G/5G 双模数据传输能力,实现检测数据与中央处理系统的毫秒级同步。

系统技术方案包含以下设计。

(1)探测器选型设计。本设计主要针对天然放射性物质,主要 γ 射线能量范围在 50 keV~2.8 MeV,设计探测器为高灵敏度碘化钠闪烁体探测器,其能量分辨率 $\leq 7.5\% @ 662 \text{ keV}$,满足 40 keV~3 MeV 宽能域测量需求。

(2)几何结构优化设计。常用的马林杯有 0.7、1.0、2.0 L 三种规格,尺寸分别是 $\phi 130 \text{ mm} \times 148 \text{ mm}$ 、 $\phi 140 \text{ mm} \times 175 \text{ mm}$ 和 $\phi 170 \text{ mm} \times 190 \text{ mm}$ 。选用样品密度为 4.8 g/cm^3 ,样品比活度为 1 Bq/g,对不同马林杯的装样质量和配套铅室重量进行对比。

$\phi 140 \text{ mm} \times 175 \text{ mm}$ 和 $\phi 170 \text{ mm} \times 190 \text{ mm}$ 的马林杯装样重量分别是 10.7 kg 和 18.3 kg^[4],超出的 10 kg; $\phi 150 \text{ mm} \times 135 \text{ mm}$ 尺寸的马林杯比 $\phi 130 \text{ mm} \times 148 \text{ mm}$ 尺寸的马林杯装样重量多 1.4 kg,配套的 30 mm 铅室重量增加 13 kg,对 1 Bq/g 样品的计数率增加 24 s^{-1} (29.3%)。因此,选用 $\phi 150 \text{ mm} \times 135 \text{ mm}$ 的马林杯在探测效率上有更大优势。

(3)本底抑制设计。铅屏蔽分为铅室主体和铅室盖两部分。铅室主体为圆柱体结构,屏蔽环境射线的同时作为样品测量室,内部屏蔽中间与碘化钠探测器紧密连接。铅室盖安装在支架上部,由导轨连接,可左右移动,操作方便。考虑到 γ 射线会将 Pb 材料激发,发出能量在 72 keV~95 keV 的特征 X 射线,为避免该 X 射线对测量结果造成影响,铅室设计从外向内依次采用为铅、铜和有机玻璃,有效减少铅材料被激发后韧致辐射对测量结果的影响。构建多层复合屏蔽结构(含 5 cm 铅当量+2 mm 铜+5 mm 有机玻璃),使环境本底计数率降至 12.5 s^{-1} ,较开放环境降低两个数量级。

(4)自动化流程设计。集成传输进样机构,实现样品的精准定位(重复定位精度 $\pm 0.1 \text{ mm}$)与批次处理(最大通量每小时 30 样本)^[5],配合自诊断系统确保操作可靠性。

系统硬件架构由五个核心模块构成:①复合屏蔽测量舱体;②气动传输进样机构;③马林杯式测量腔室;④NaI(Tl)谱仪系统;⑤边缘计算终端。针对进口货物普遍存在的低活度特征,设计检测环境在低本底环境中进行能谱测量和分析系统,结合蒙特卡罗模拟优化的能窗设置算法,由计算机软件系统对检测能谱进行分析和处理,简要测量流程示于图 1。



图 1 进口货物放射性测量流程
Fig.1 Procedure for radioactivity monitor of imported goods

1.1 低本底铅室设计

要实现便捷移动需要设备的重量小于 300 kg, 而一般低本底能谱测量分析时需要约 10 cm 厚度的铅屏蔽降低本底计数率, 从而保证设备测量下限, 10 cm 厚度的铅室预估重量为 800 kg。本设备需要降低铅屏蔽厚度减少设备重量, 同时要考虑环境本底对设备测量下限的影响。

本研究针对设备运行环境的真实需求对铅室厚度和材料进行优化设计。设计铅室材料从外向内依次为 3 mm 不锈钢、30 mm 铅、3 mm 不锈钢、3 mm 铜^[4]。铅室设计中, 因选择的特征核素能量较大(大于 1000 keV), 碘化钠探测器测量环境本底基本小于 1000 keV(图 2), 增加铅屏蔽对保证目标核素特征峰的探测下限作用不大(铅屏蔽厚度与 3600 s 探测下限的关系曲线示于图 3), 因此本研究选择设计铅屏蔽厚度为 30 mm。

铅室内衬铜材料用于吸收铅材料能量在 92 keV 附近韧致辐射, 根据铜对 X 射线吸收的计算(见表 1), 铜厚度大于 3 mm 后对 90 keV 射

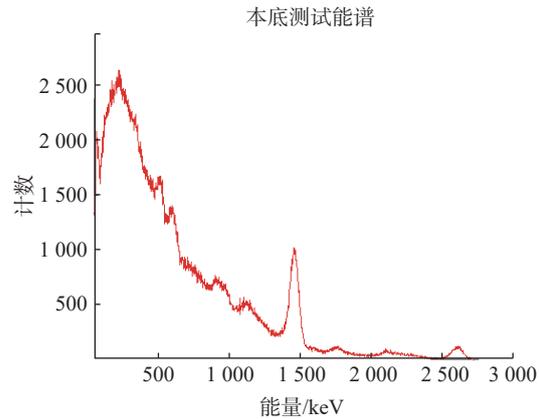


图 2 碘化钠本底测试能谱图
Fig.2 Energy spectrum of sodium iodide background test

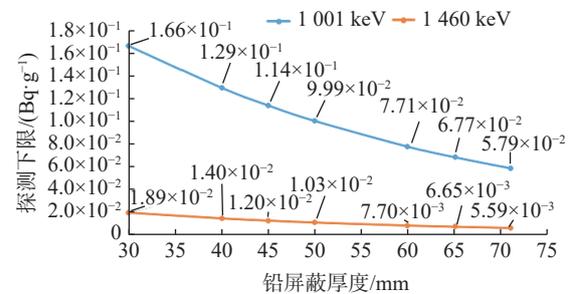


图 3 铅屏蔽厚度与 3600 s 探测下限关系曲线
Fig.3 Relationship curve between lead shielding thickness and 3600 s detection lower limit

线的吸收量大于 80%。因此铅室内铜衬底厚度选择 3 mm。

表 1 铜对 X 射线吸收计算结果

Table 1 Calculation results of copper's X-ray absorption

能量/keV	质量衰减系数/(cm ² ·g ⁻¹)	厚度/cm	密度/(g·cm ⁻³)	质量厚度/(g·cm ⁻¹)	衰减剩余	吸收量
90	0.6271	0.1	8.96	0.896	57.01%	42.99%
90	0.6271	0.2	8.96	1.792	32.51%	67.49%
90	0.6271	0.3	8.96	2.688	18.53%	81.47%
90	0.6271	0.5	8.96	4.480	6.02%	93.98%
90	0.6271	0.6	8.96	5.376	3.43%	96.57%
90	0.6271	0.7	8.96	6.272	1.96%	98.04%
90	0.6271	0.8	8.96	7.168	1.12%	98.88%

1.2 马林杯设计

待测样品中放射性核素发射出的 γ 射线需要穿过周围矿石材料和样品容器的杯壁才会有机会进入探测器内部, 所以样品容器材质和尺寸的选择对探测效率的影响比较大。由于海关货物中天然放射性物质待测样品的放射性活度一般都较低, 需要尽可能提高探测效率, 才能在

较短时间内满足测量精度的要求。

为提高探测效率, 选择聚乙烯(PE)材质的马林杯^[4]。马林杯是一种专门用于核技术和辐射探测学科中盛放样品的容器, 该容器材料有较低背景辐射, 其密度 0.92 g/cm³~0.96 g/cm³, 对 γ 射线的吸收截面小, 有助于减少测量过程中的干扰, 提高探测效率和准确性。马林杯内

壁厚度设计为 3 mm, 减少对 γ 射线的阻挡和吸收, 外壁厚设计为 5 mm, 保证容器的机械强度、耐久性和热稳定性。马林杯结构示于图 4。

马林杯直径和高度采用蒙特卡罗方法对不同厚度矿石进行建模计算^[5], 分析矿石厚度与探测器响应之间的关系来确定。计算模型中包含 NaI(Tl) 晶体(3 英寸)、晶体铝外壳、马林杯和矿石, 模型示于图 5。根据矿山常见的射线能量分别选择 1000、1460、1764、2615 keV。模拟计算结果示于图 6。

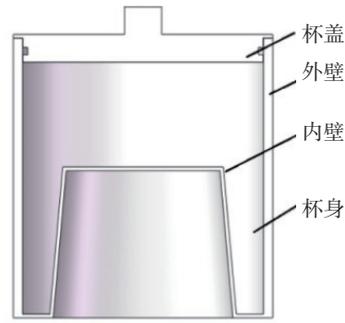
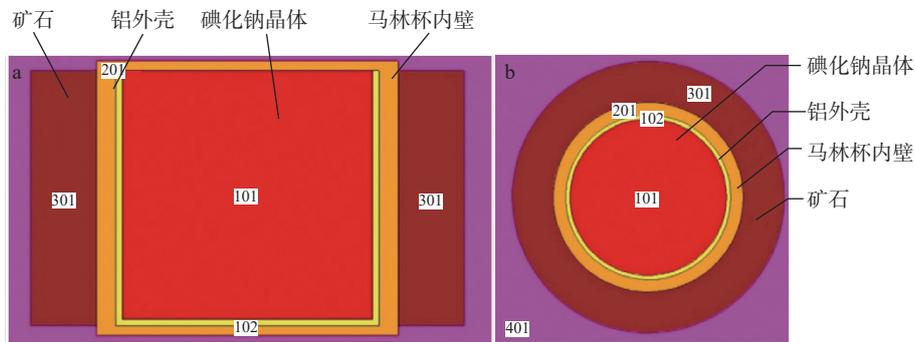


图 4 马林杯结构示意图
Fig.4 Schematic diagram of the Marinelli beaker



a——侧视图; b——俯视图

图 5 马林杯直径计算模型

Fig.5 Marin cup diameter calculation model

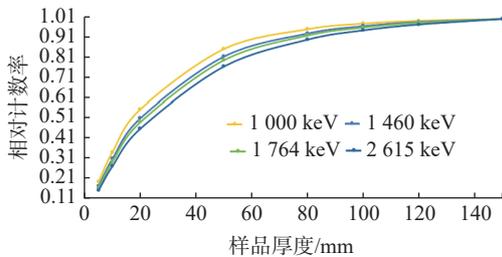


图 6 马林杯内矿石径向厚度与相对计数率模拟计算结果

Fig.6 Calculation results of radial thickness and relative counting ratio of ore in Marin Cup

根据计算结果, 马林杯径向样品厚度大于 100 mm, 计数率不再增加; 样品厚度在 50 mm, 计数率处于饱和值的约 80%; 样品厚度大于 20 mm, 计数率大于饱和值的 50%, 因此矿石的径向厚度应在 20 mm~50 mm 之间为适合。马林杯高度计算模型示于图 7, 模拟计算结果示于图 8。

计算结果表明, 马林杯轴向样品厚度大于 80 mm 时, 计数率基本不再增加; 样品厚度在

50 mm 时, 计数率达饱和值的约 80%; 样品厚度大于 20 mm 时, 计数率大于饱和值的约 50%。因此马林杯轴向的矿石厚度应在 20 mm~50 mm 之间为适合。马林杯尺寸的选择需要兼顾装样后的重量, 根据以上计算尺寸进行重量估算, 结

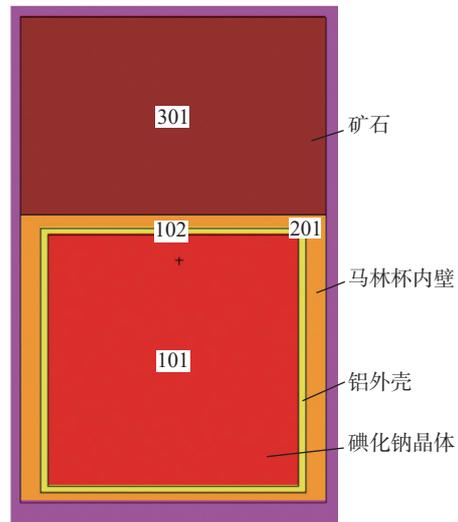


图 7 马林杯高度计算模型
Fig.7 Marlin cup height calculation model

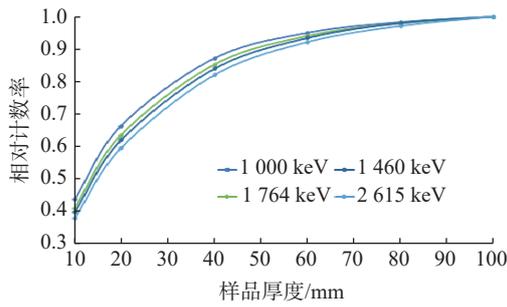


图8 马林杯内矿石轴向厚度与相对计数比例计算结果

Fig.8 Calculation results of axial thickness and relative counting ratio of ore in Marin Cup

果列于表2。

样品径向厚度 30 mm, 轴向厚度 50 mm 时, 装样重量为 7.8 kg, 满足设计要求。马林杯设计

表2 马林杯装样厚度与重量估算表
Table 2 Marin cup sample thickness and weight estimation table

高度/mm	不同厚度的马林杯重量/kg			
	20 mm	30 mm	40 mm	50 mm
20	3.6	5.5	7.8	10.4
30	4.1	6.3	8.8	11.6
40	4.7	7.0	9.7	12.8
50	5.2	7.8	10.7	14.0

尺寸内壁为 $\phi 140\text{ mm}\times 130\text{ mm}$, 外壁为 $\phi 150\text{ mm}\times 135\text{ mm}$ 。经过调研, 常用的马林杯有 0.7 L、1.0 L 和 2 L 三种规格, 尺寸分别是 $\phi 130\text{ mm}\times 148\text{ mm}$ 、 $\phi 140\text{ mm}\times 175\text{ mm}$ 和 $\phi 170\text{ mm}\times 190\text{ mm}$ 。对不同马林杯的装样质量和配套铅室重量进行对比, 结果列于表3。

表3 不同马林杯装样质量和配套铅室重量对比

Table 3 Comparison of sample quality and matching lead chamber weight for different marin cups

序号	马林杯尺寸/mm	装样重量/kg	30 mm铅室重量/kg	1 Bq/g样品计数率/ s^{-1}	3 600 s测量下限/ $(\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1})$
1	$\phi 150\times 135$	7.8	126	108	1.66×10^{-1}
2	$\phi 130\times 148$	6.4	120	84	2.12×10^{-1}
3	$\phi 140\times 175$	10.7	130	106	1.67×10^{-1}
4	$\phi 170\times 190$	18.3	/	/	/

由表3可知, $\phi 140\text{ mm}\times 175\text{ mm}$ 和 $\phi 170\text{ mm}\times 190\text{ mm}$ 的马林杯装样重量分别是 10.7 kg 和 18.3 kg, 超出的 10 kg 的指标要求; $\phi 150\text{ mm}\times 135\text{ mm}$ 尺寸的马林杯比 $\phi 130\text{ mm}\times 148\text{ mm}$ 尺寸的马林杯装样重量增加了 1.4 kg, 配套的 30 mm 铅室重量增加了 6 kg, 对 1 Bq/g 样品的计数率增加了 24 s^{-1} (29.3%)^[4]。因此, 选用计算结果 $\phi 150\text{ mm}\times 135\text{ mm}$ 的马林杯在探测效率上有更大优势, 本研究将选用 $\phi 150\text{ mm}\times 135\text{ mm}$ 马林杯作为装样容器。

1.3 能谱分析系统设计

系统采用基于碘化钠晶体的辐射探测系统, 其核心组件由三部分构成: 探测单元、运动执行机构及定位控制系统。其中, 核心探测元件选用直径为 3 英寸的 NaI(Tl) 闪烁晶体, 该探测单元通过专用夹具与垂直运动机构形成刚性连接。承载探测器的支撑框架与安装于防护壳体底部的精密直线导轨机构采用螺栓紧固方式实现机械耦合, 确保导轨执行垂直向运动时能同步驱动探测组件完成规定行程。在运动学设

计方面, 探测器中段配置了自适应固定装置——采用环形法兰配合弹性紧固结构, 该机构在升降过程中可与马林杯底部形成动态接触界面, 确保样本容器与探测器维持稳定的同步位移关系。定位控制系统方面, 导轨机构侧向集成双位置检测模块, 通过非接触式磁感应传感器分别标定待机位与测量位坐标, 实现探测器工作位置的程序化控制^[5]。此外, 系统后端配置了符合工业标准的快速连接端口, 该接口集成供电线路与数字通信通道, 为系统提供稳定的电源供给和数据传输保障。

2 测试与结果

准备两组标准样品锆瑛砂, 将准备好的标样装入空白马林杯。测试方法为将标样作为待测样品, 置于天然放射性物质快速检测系统中^[6]; 开启设备电源, 开启计算机软件获取测量数据, 经计算机分析后给出测量结果。

(1) 系统活度校准

实验主要针对锆瑛砂^[7]中的 NORM Th-232,

选取其较有代表性的两个 γ 能量点。

1) 238.63 keV: Pb-212>Bi-212(100% β 衰变), 其分支比为 43.6%;

2) 583.19 keV: Tl-208>Pb-208(100% β 衰变), 其分支比为 30.36%。

根据 GEANT4 建模, 对于两个能量的沉积效率拟合结果列于表 4。

实验采用两组标准样品, 秦皇岛(样品 I)和澳大利亚(样品 II)锆瑛砂标准样品^[7], 校准日期为 2023 年 2 月 8 日和 2023 年 2 月 9 日。用

表 4 Geant4 模型不同粒子数计算能量沉积效率
Table 4 Calculation of energy deposition efficiency for geant4 model with different particle numbers

能量/keV	能量沉积效率(粒子数: 10^7)
238.63	0.0806513
583.19	0.0558754

Geant4 沉积效率配合 3 英寸碘化钠测量系统计算 238 keV 和 583 keV 标准样品的活度与校准活度进行对照。对照标准样品 I 计算结果对照列于表 5。

表 5 样品 I 活度分析对照

Table 5 Activity analysis comparison of sample I

特征能量/keV	净面积	活时间/s	计算活度/Bq	标准样活度/Bq	偏差/%
238.63	880718	85000	303.542	273.508	10.98
583.19	368011	85000	303.71	276.663	9.78

对照标准样品 II 计算结果对照列于表 6。

表 6 样品 II 活度分析对照

Table 6 Activity analysis comparison of sample II

特征能量/keV	净面积	活时间/s	计算活度/Bq	标准样活度/Bq	偏差/%
238.63	840182	85000	287.012	258.052	11.22
583.19	346700	85000	284.1	258.273	10

根据蒙卡方法计算的效率结合碘化钠谱仪系统计算的活度和经过校准的样品活度对比差别平均约为 10%^[6], 误差主要来自于实验建立的模型没有对 γ 反散射、PMT 的光子效率影响、电子学噪声等因素进行考虑。与真实校准结果约 10% 的误差, 可以认为达到验证的目的, 既通过蒙卡方法拟合的系统探测 NORM 的沉积效率可以用于现场测量能谱的定量分析。在数据分析中, 寻峰和峰面积计算会因为统计涨落影响或者相邻能峰距离太近等问题导致峰面积计算误差较大等问题。为了解决这个问题, 在处理复杂的数据时, 通过聚焦于数据的特定部分, 可以减少不必要的数据处理, 减少背景噪声的干扰, 提高分析结果的信噪比, 最后计算出目标核素的比活度。

(2) 系统测试

利用天然放射性物质快速检测系统对锆瑛砂样品进行测量^[8], 锆瑛砂样品中 Th-232 的比活度为 764 Bq/kg, 记录测量值与测量时长, 并计算测量值与真实值的相对误差。如果相对误差

小于 10%, 并且测量时长小于 1 min, 则检测正确; 否则检测错。测量数据和结果列于表 7。由表 7 可见, 天然放射性物质快速检测系统测量数据和结果 10 次检测时间均小于 1 min, 平均检测时间为 46.5 s; 比活度相对误差均小于 10%; 连续测量 10 次, 均为正确检测。

表 7 天然放射性物质快速检测系统测量数据和结果
Table 7 Measurement data and results of a rapid detection system for natural radioactive substances

序号	测量时长/s	测量值/(Bq·kg ⁻¹)	相对误差/%	核素种类
1	45	815	6.6	Th-232
2	48	826	8.1	Th-232
3	47	737	-3.5	Th-232
4	49	829	8.5	Th-232
5	45	713	-6.6	Th-232
6	41	730	-4.4	Th-232
7	50	737	-3.5	Th-232
8	48	831	8.8	Th-232
9	44	822	7.6	Th-232
10	48	834	9.1	Th-232

3 结论与讨论

本研究针对海关矿石检测效率低的问题提出移动式快速测量的技术方案,采用薄铅室和马林杯设计,建立基于NaI(Tl)闪烁体探测器的天然放射性物质快速检测系统,实现了海关对天然放射性物质的准确、快速检测,平均检测时间为46.5 s,比活度相对误差均小于10%,提高了海关矿石检测效率,提高了海关通关效率^[6]。

系统不仅可以用于海关进出口矿石放射性检测,还可用于矿场矿石放射性检测和食品放射性检测等不同场景,但是系统对不同矿石成份和核素的测量准确度需要使用标准矿石样品进行校准,不同类型的矿石由于颗粒的大小不同,装样后也会有不同的密度。后续需要通过蒙特卡罗方法建模计算不同矿石不同密度下探测器的响应^[8]。目前仅采用了部分具有标准样品的矿石和理论计算结合的方式确认转换系数,后续使用更全面的标准样品丰富系统数据库,进一步提高系统的准确度和检测速度。

参考文献:

- [1] 宋诚本,黄文金,肖琦璘. 国境口岸核与辐射涉恐事件防范重点探讨[J]. 口岸卫生控制, 2015, 20(5): 9-11.
Song Chengben, Huang Wenjin, Xiao Qilin. Discussion on the prevention of nuclear and radiological terrorist event at border crossings[J]. Port Health Control, 2015, 20(5): 9-11 (in Chinese).
- [2] 张岳林,王远忠. 进口物品放射性入侵风险性的调查报告[J]. 口岸卫生控制, 2007, 12(4): 25-28.
Zhang Yuelin, Wang Yuanzhong. The radioactivity risk investigation from imported goods[J]. Port Health Control, 2007, 12(4): 25-28 (in Chinese).
- [3] 薛会,杨维耿,刘鸿诗,等. 美国辐射监测设备性能测试评估体系简介[J]. 核电子学与探测技术, 2014, 34(11): 1306-1310.
Xue Hui, Yang Weigeng, Liu Hongshi, et al. Introduction to the performance testing and evaluation system of radiation detectors in the USA[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2014, 34(11): 1306-1310 (in Chinese).
- [4] IAEA. Technical and Functional specifications for Border Monitoring Equipment[R]. Vienna: [IAEA], 2006.
- [5] 侯永明,赵斌,许玉婷,等. 辐射探测技术用于海关检测违禁品伪报瞒报[J]. 中国国境卫生检疫杂志, 2022, 45(5): 399-402.
- [6] 杨维耿,黄国庆,赵顺平,等. 我国口岸放射性污染标准及检测方法探讨[J]. 环境与可持续发展, 2019, 38(11): 165-167.
- [7] 唐煜,王鑫. 我国口岸进口锆英砂矿放射性检测探讨[J]. 节能, 2019, 38(11): 165-167.
Tang Yu, Wang Xin. Discussion on radioactive detection of zircon sand imported from ports in China[J]. Energy Conservation, 2019, 38(11): 165-167 (in Chinese).
- [8] 赵斌,战俭. 利用探测器快速鉴别口岸常见天然放射性辐射异常[J]. 中国国境卫生检疫杂志, 2021, 44(6): 437-439.