

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2019.05.019

一种提高样品放射性活度测量准确度的新方法

钟万兵, 徐家云, 白立新

(四川大学物理学院, 成都 610065)

摘要: 在使用高纯锗 γ 谱仪测量样品的放射性活度时, 探测器对 γ 射线的探测效率是影响测量准确度的一个重要因素。目前使用的两种得到探测效率的方法——标准样品法和蒙特卡洛法, 因为各自的局限性, 都存在一定的系统误差。结合两种方法, 提出并建立了一种能够消除前两种方法系统误差, 获得更准确的探测效率的新方法, 即用蒙特卡洛方法计算待测样和标准样的探测效率的比值, 再乘以实验测量得到的标准样的探测效率, 得到待测样品的探测效率。所建方法的正确性通过蒙特卡洛软件计算的模拟实验得到了验证, 并证明了新方法能够完全消除标准样品法的系统误差, 并且在绝大多数情况下消除了蒙特卡洛法的系统误差。

关键词: 放射性活度; 蒙特卡罗方法; 高纯锗探测器; 探测效率

中图分类号: O615.13 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2019)05-0915-06

A new method to improve the accuracy of radioactivity of sample

ZHONG Wan-Bing, XU Jia-Yun, BAI Li-Xin

(College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

Abstract: Detection efficiency of gamma rays is an important factor to affect the measurement accuracy of radioactivity. There are two methods to acquire detection efficiency currently, the standard sample method and Monte Carlo method. Both methods have their own problems which would result in system error of detection efficiency. A new method based on the above two methods is proposed. In this method, the detection efficiency ratio of the tested sample to the standard sample was calculated through Monte Carlo method, multiplied by the detection efficiency of the standard sample obtained from the experiment, then the detection efficiency of sample tested is acquired. The correctness of the new method was verified by Monte Carlo software and proved that this new method could avoid the system errors from the standard sample method entirely and Monte Carlo method in most cases.

Keywords: Radioactivity; Monte Carlo method; HPGGe detector; Detection efficiency

1 引言

研究提高样品放射性活度测量准确度的方法, 对于环境放射性监测、 ^{137}Cs 法水土流失研究、被活化材料样品所含微量杂质元素含量的分析等都具有重要意义^[1]。由于高纯锗 γ 探测器的能量分辨率较高, 目前通常采用高纯锗 γ 谱仪测量样品的放射性活度以得到更高的准确度。待测样品的放射性活

度 A_x 与用 γ 谱仪获取的来自样品特征 γ 射线全能峰净面积 S_x 的关系如下:

$$A_x = \frac{S_x}{f_\gamma \cdot t_x \cdot \epsilon_x} \quad (1)$$

(1) 式中的下标 x 表待测样品; f_γ 为一次核衰变时放出某一能量特征 γ 射线的数目, 该值可查资料得到; t_x 是实际测量时间; ϵ_x 为探测器对特征 γ 的源峰探测效率。

从(1)式可以看出,活度测量的准确度主要取决于两个参数的准确度:全能峰净面积 S_x 和探测效率 ϵ_x . 在用能量分辨率较高的高纯锗探测器以及适当延长测量时间的情况下,全能峰净面积 S_x 可以足够准确得到. 因此,探测效率 ϵ_x 的准确度就成为影响活度测量准确度的一个重要因素^[2-3].

目前,用来确定 ϵ_x 大小的方法明显存在系统误差. 普遍使用的一种方法是标准样品法,即用已知活度 A_s 的标准样品通过(2)式计算出标准样品的探测效率 ϵ_s (下标 S 表示标准样品),

$$\epsilon_s = \frac{S_s}{f_\gamma \cdot t_s \cdot A_s} \quad (2)$$

然后假定两样品的探测效率相等,即 $\epsilon_x = \epsilon_s$,将 ϵ_s 的值带入(1)式得到待测样品的活度. 用标准样品法的优点是不需要准确知道所用 γ 探测器的内部组成和结构,因为两样品是用同一个探测器测量^[4-5].

但是,两样品探测效率相同这一假定的正确性取决于待测样与标准样在下列几个方面的一致性:两样品的组成成分、密度和几何尺寸. 已有的研究证明^[6],两样品组成成分的差别是一个很小的影响因素,实际测量中可以忽略成分差别的影响;两种样品在实际测量中都是被装在同一形状和大小塑料盒内,如果都是满装,两样品的几何尺寸不存在差别. 因此实际测量中两样品密度的差别是导致两样品探测效率不相同的主要因素^[7]. 实验中,标准样通常以密度约为 1.3 g/cm^3 的黄土为基质,而被测样品可能是密度大到约为 2.5 g/cm^3 的砂石或者比黄土密度小得多的水样或生物样,这样的密度差别会严重影响用标准样品法得到的探测效率的正确性. 除了两样品的密度往往存在差别外,由于待测样采样量过少,不能在塑料盒内满装,两样品的体积或在样品盒内的高度不一样,如果这一差别较大,也会明显影响到探测效率的准确性.

待测样和标准样在密度和装样量方面的差别会使得到的探测效率存在较大误差. 消除这一误差的方法从原理上讲是制作一系列和待测样参数相同的多个标准样品,但这在实际中不具备可行性. 目前 γ 谱仪实验室一般对同一种放射性核素(比如 ^{232}Th 或 ^{226}Ra)都是使用一个标准样品.

得到探测效率的另一个方法是用蒙特卡洛方法计算^[8-12]. 蒙特卡洛方法可以准确地描述样品的密度和几何尺寸等参数,因此得到的探测效率不存在标准样品法的系统误差,但是存在由蒙特卡洛法

引起的系统误差. 这一系统误差的来源是:使用蒙特卡洛软件计算探测效率时,需要对包括高纯锗探测器在内的整个系统的组成结构和尺寸在输入文件中进行精确的描述^[13-17]. 探测效率计算的准确性取决于对整个系统描述的准确性,而这种描述的准确性很难做到^[18-21],因为探测器生产厂家往往不能详细准确给出探测器的内部结构参数. 此外,蒙特卡洛程序对物理空间的描述往往也只能是简化的,不可能完整地描述整个物理空间. 因此,用蒙特卡洛方法计算探测效率也会由于描述的不准确和系统空间描述的简化带来较大的误差. 从理论上讲,存在足够好的模型结构参数使得程序计算的结果与实验结果完全吻合,但是寻找这样理想的模型结构及参数实际上十分困难.

从上述可知,不论是用标准样品法,还是蒙特卡洛算法,得到的探测效率都不可避免存在系统误差. 因此建立一种获得更准确探测效率且实验上易于操作的方法,对于提高样品活度测量的准确度,具有明显实际意义.

2 方法的建立

从上面的叙述可以看出,不论是用标准样品法,还是用蒙特卡洛法,得到的探测效率都存在系统误差. 标准样品法的系统误差来源于待测样和标准样在密度、几何尺寸等方面的不一致,而与高纯锗探测器的组成结构是否准确已知无关;蒙特卡洛法的系统误差与对探测器系统描述的不准确有关,而与样品密度、形状尺寸等无关. 根据两种方法各自的优缺点,如果把两种方法巧妙地结合起来,就能取长补短,做到既消除标准样品法引起的系统误差,又消除蒙特卡洛法引起的系统误差,得到更准确的探测效率.

在结合两种方法的基础上,建立了获得更准确探测效率的新方法. 这一方法的建立基于提出的一个关系式和一个假定.

提出的一个关系式为:

$$\epsilon_x = \frac{\epsilon_x}{\epsilon_s} \cdot \epsilon_s \quad (3)$$

即待测样探测效率 ϵ_x 等于待测样探测效率与标准样探测效率的比值乘以标准样探测效率 ϵ_s .

从(3)式可以看出,这一等式在数学上是一恒等式,因此(3)式无疑是正确的. 提出这一等式的意义在于:待测样的探测效率不再一定等于标准样的探测效率,而是与两样品的密度尺寸等参数的差别

表 1 不同尺寸探测器对来自各样品 238.6 keV γ 射线的探测效率及比值(比值 1 和比值 2 分别为标准样品与待测样品 1# 和 2# 的探测效率的之比)

Tab. 1 Detection efficiency and their ratios for detectors of different sizes to γ ray with energy of 238.6 keV (ratio 1 and ratio 2 are the ratios of detection efficiency of standard sample to sample 1# and sample 2#, respectively)

探测器尺寸 变化方式	尺寸大小 (半径或高度)/cm	标准样品 探测效率/%	待测样品 1# 探测效率/%	比值 1	待测样品 2# 探测效率/%	比值 2
半径变化	2.88	2.87	2.22	1.29	3.63	0.791
	3.04	3.17	2.44	1.30	4.00	0.793
	3.16	3.39	2.61	1.30	4.29	0.790
	3.24	3.55	2.73	1.30	4.48	0.792
	3.32	3.70	2.84	1.30	4.68	0.791
高度变化	6.6	3.17	2.44	1.30	4.01	0.792
	6.7	3.28	2.52	1.30	4.14	0.791
	6.8	3.39	2.61	1.30	4.29	0.791
	6.9	3.51	2.70	1.30	4.44	0.791
	7.0	3.63	2.79	1.30	4.60	0.791

表 2 不同尺寸探测器对来自各样品 911.2 keV γ 射线的探测效率及比值(比值 1 和比值 2 分别为标准样品与待测样品 1# 和 2# 的探测效率的之比)

Tab. 2 Detection efficiency and their ratios for detectors of different sizes to γ ray with energy of 911.2 keV (ratio 1 and ratio 2 are the ratios of detection efficiency of standard sample to sample 1# and sample 2#, respectively)

探测器尺寸 变化方式	尺寸大小 (半径或高度)/cm	标准样品 探测效率/%	待测样品 1# 探测效率/%	比值 1	待测样品 2# 探测效率/%	比值 2
半径变化	2.88	1.088	0.917	1.186	1.342	0.811
	3.04	1.241	1.044	1.189	1.530	0.811
	3.16	1.360	1.143	1.199	1.672	0.813
	3.24	1.442	1.211	1.191	1.772	0.814
	3.32	1.524	1.279	1.192	1.874	0.813
高度变化	6.6	1.195	1.005	1.189	1.467	0.815
	6.7	1.240	1.043	1.189	1.525	0.813
	6.8	1.291	1.085	1.190	1.587	0.813
	6.9	1.339	1.126	1.189	1.649	0.812
	7.0	1.391	1.170	1.189	1.716	0.811

表 3 不同尺寸探测器对来自各样品 1764.5 keV γ 射线的探测效率及比值(比值 1 和比值 2 分别为标准样品与待测样品 1# 和 2# 的探测效率的之比)

Tab. 3 Detection efficiency and their ratios for detectors of different sizes to γ ray with energy of 1764.5 keV (ratio 1 and ratio 2 are the ratios of detection efficiency of standard sample to sample 1# and sample 2#, respectively)

探测器尺寸 变化方式	尺寸大小 (半径或高度)/cm	标准样品 探测效率/%	待测样品 1# 探测效率/%	比值 1	待测样品 2# 探测效率/%	比值 2
半径变化	2.88	0.691	0.606	1.14	0.841	0.822
	3.04	0.797	0.699	1.14	0.970	0.822
	3.16	0.881	0.773	1.14	1.07	0.823
	3.24	0.937	0.821	1.14	1.14	0.822
	3.32	0.997	0.872	1.14	1.21	0.824
高度变化	6.6	0.816	0.716	1.14	0.993	0.822
	6.7	0.849	0.744	1.14	1.03	0.823
	6.8	0.881	0.773	1.14	1.07	0.822
	6.9	0.914	0.801	1.14	1.11	0.820

表 1 的结果表明,当高纯锗探测器半径从 2.88 cm 变化到 3.32 cm,对应密度为 1.3 g/cm³ 标准样品的探测效率从 2.87% 变化到 3.70%;而对

应密度为 2.5 g/cm³ 待测样品 1# 的探测效率从 2.22% 变化到 2.84%;对应密度为 1.3 g/cm³ 但装样量只有标准样 75% 的待测样 2# 的探测效率

从3.63%变化到4.68%。三样品的探测效率随探测器半径的变化幅度都接近30%,但是标准样与待测样1#的探测效率比值都基本稳定在1.3,标准样与待测样2#的探测效率比值都基本稳定在0.79,相对变化小于1%,在蒙特卡洛计算的统计误差范围内。证明标准样品和待测样品的探测效率之比不随探测器半径的变化发生变化。

从表1还可以看出,当改变圆柱形高纯锗探测器轴向高度(从6.6 cm变到7.0 cm),标准样品的探测效率从3.17%变化到3.63%;待测样品1#的探测效率从2.44%变化到2.79%;待测样2#的探测效率从4.01%变化到4.60%。三样品的探测效率的变化幅度都接近15%,但是标准样与待测样1#的探测效率比值仍然稳定在1.3,标准样与待测样2#的探测效率比值仍然稳定在0.79,相对变化小于1%,在蒙特卡洛计算的统计误差范围内。证明标准样品和待测样品的探测效率不随探测器轴向高度的变化发生变化。此外,这两个探测效率之比与改变探测器半径时标准样和待测样的探测效率之比也是相同的,证明同时改变探测器的半径和轴向高度,对标准样和待测样的探测效率之比也没有影响。

对表2和表3的分析结果与表1类似,结果表明,尽管探测效率之比与 γ 射线的能量有关,与标准样、待测样的参数有关,但是随探测器尺寸的变化不发生改变,或者改变的幅度小到可以忽略。假定的验证对于238.6、1764.5 keV以及之间的能量被证明是正确的(大部分环境中 γ 射线的能量都在这个范围内),证明了假定在这两个能量范围内是正确的。

模拟实验验证了蒙特卡洛程序两样品探测效率之比与模拟时使用探测器参数无关。由于实际实验的情况总是与某一条件下的模拟情况是完全吻合的,即使该条件的探测器参数是未知的,但是只要能够证明该条件对应的探测器尺寸在表1的探测器尺寸变化范围内(因为探测器尺寸变化范围较大,这个证明在实验上是容易进行的),就可证明实验中两样品的探测效率之比就是蒙特卡洛程序计算的探测效率之比。假定正确性就得到了验证。

4 结 论

结合(3)式和(4)式,建立起了得到更准确探测效率的新方法。这是一个将过去得到探测效率的标准样品法和蒙特卡洛法两种方法有机结合在一起

的新方法。即用标准样品通过实验测量得到标准样的探测效率,再用蒙特卡洛法分别得到待测样和标准样的探测效率 ϵ_{mx} 和 ϵ_{ms} ,并求出两探测效率的比值后代入(3)式得到待测样的探测效率 ϵ_x 。

由于用新方法得到的待测样探测效率 ϵ_x 不含系统误差,其准确度得到明显提高。提高的程度取决于使用标准样品法及蒙特卡洛法的系统误差有多大。例如当标准样的密度为1.3 g/cm³,待测样密度为2.5 g/cm³时,两体积同样品探测效率的差别可以相差30%(表1),那么新方法消除了30%的系统误差。

表1、表2和表3计算的探测器尺寸变化对探测效率的影响均超过15%,在大多数情况下能够比较容易通过调整程序中探测器的参数,使得蒙特卡洛程序对样品探测效率的计算结果与实验的结果的偏差降到15%以下。但是,如果程序计算使用的探测器尺寸与实际情况尺寸差异很大,程序计算的探测效率与实验实际的探测效率超过15%,那么新方法则不能保证完全消除蒙特卡洛法的系统误差。例如,对于待测样品2#能量为238.6 keV的 γ 射线,当蒙特卡洛程序直接计算的探测效率的系统误差达到40%,新方法得到的待测样品探测效率的系统误差达到2.5%。由于 γ 射线能量越低,探测器尺寸对探测效率影响越大,因此使用新方法探测更低能量的 γ 射线需要更加谨慎。

综上所述,本文提出的测量样品放射性活度的新方法,消除了标准样品法的系统误差,并在绝大多数情况下消除了蒙特卡洛法的系统误差。该方法与蒙特卡洛法相比最大的优势在于:即使不知道准确、精细的探测器尺寸,只需给出比较粗略的探测器尺寸带入蒙特卡洛程序计算,经过标准样品的探测效率实验测量结果的修正,也能够得到足够准确的待测样品的探测效率。新方法不含系统误差,在实际使用时更加简易可行,因此在放射性活度测量实验中具有更好的应用前景。

参考文献:

- [1] Guevara M V M, Velasco F M. Determination of the HPGe detector efficiency in measurements of radioactivity in extended environmental samples [J]. Appl Radiat Isotopes, 2017, 130: 34.
- [2] Tayyebi P, Davani F A, Tabasi M, et al. A novel technique for detection efficiency determination of HPGe [J]. Appl Radiat Isotopes, 2017, 133: 86.
- [3] Abbas M I. FEPE calibration of a HPGe detector u-

- sing radioactive sphere source [J]. *Phys Procedia*, 2017, 90: 364.
- [4] Kang M Y, Sun G M, Kim J, *et al.* Determination of HPGe peak efficiency for voluminous gamma-ray sources by using an effective solid angle method [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2016, 116: 69.
- [5] Rizwan U, Chester A, Domingo T, *et al.* A method for establishing absolute full-energy peak efficiency and its confidence interval for HPGe detectors [J]. *Nucl Instrum Methods*, 2015, 802: 102.
- [6] Li G, Liang Y F, Xu J Y, *et al.* Efficiency corrections in determining the ^{137}Cs inventory of environmental soil samples by using relative measurement method and GEANT4 simulation [J]. *J Environ Radioactiv*, 2015, 146: 94.
- [7] Iurian A R, Millward G E, Sima O, *et al.* Self-attenuation corrections for Pb-210 in gamma-ray spectrometry using well and coaxial HPGe detectors [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2018, 134: 151.
- [8] Östlund K, Samuelsson C, Rääf C L. Experimentally determined *vs.* Monte Carlo simulated peak-to-valley ratios for a well-characterised n-type HPGe detector [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2015, 95: 94.
- [9] Giubrone G, Ortiz J, Gallardo S, *et al.* Calculation of coincidence summing correction factors for an HPGe detector using GEANT4 [J]. *J Environ Radioactiv*, 2016, 158: 114.
- [10] Maidana N L, Vanin V R, García-Alvarez J A, *et al.* Experimental HPGe coaxial detector response and efficiency compared to Monte Carlo simulations [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2016, 108: 64.
- [11] Chagren S, Tekaya M B, Reguigui N, *et al.* Efficiency transfer using the GEANT4 code of CERN for HPGe gamma spectrometry [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2016, 107: 359.
- [12] Morera-Gómez Y, Cartas-Aguila H A, Alonso-Hernández C M, *et al.* Application of the Monte Carlo efficiency transfer method to an HPGe detector with the purpose of environmental samples measurement [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2015, 97: 59.
- [13] Nikolic J, Puzovic J, Todorovic D, *et al.* Application of PHOTON simulation software on calibration of HPGe detectors [J]. *Nucl Instrum Methods*, 2015, 799: 159.
- [14] Modarresi S M, Masoudi S F, Karimi M, *et al.* Calculation of HPGe efficiency for environmental samples; comparison of EFFTRAN and GEANT4 [J]. *Nucl Instrum Methods*, 2014, 763: 347.
- [15] Haj-Heidari M T, Safari M J, Afarideh H, *et al.* Method for developing HPGe detector model in Monte Carlo simulation codes [J]. *Radiat Meas*, 2016, 88: 1.
- [16] Breier R, Laubenstein M, Povinec P P. Monte Carlo simulation of background characteristics of a HPGe detector operating underground in the Gran Sasso national laboratory [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2017, 126: 188.
- [17] Khan W, Zhang Q M, He C H, *et al.* Monte Carlo simulation of the full energy peak efficiency of an HPGe detector [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2018, 131: 67.
- [18] Unno Y, Furukawa R, Yunoki A. Simulation of a well-type HPGe detector for samples both in the hole and on top of the endcap [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2017, 126: 154.
- [19] Chuong H D, Thanh T T, Trang L T N, *et al.* Estimating thickness of the inner dead-layer of n-type HPGe detector [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2016, 116: 174.
- [20] Modarresi S M, Masoudi S F, Karimi M. A method for considering the spatial variations of dead layer thickness in HPGe detectors to improve the FEPE calculation of bulky samples [J]. *Radiat Phys Chem*, 2017, 130: 291.
- [21] Chham E, García F P, Bardouni T E, *et al.* Monte Carlo analysis of the influence of germanium dead layer thickness on the HPGe gamma detector experimental efficiency measured by use of extended sources [J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2015, 95: 30.

引用本文格式:

中文: 钟万兵, 徐家云, 白立新. 一种提高样品放射性活度测量准确度的新方法[J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2019, 56: 915.

英文: Zhong W B, Xu J Y, Bai L X. A new method to improve the accuracy of radioactivity of sample [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2019, 56: 915.