

激光与光电子学进展

基于蒙特卡罗模拟研究锗死层对高纯锗探测效率的影响

宋海声¹, 庞荣妮^{1,2*}, 蔡啸²¹西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃 兰州 730070;²中国科学院高能物理研究所核探测器与核电子学国家重点实验室, 北京 100043

摘要 为了更精确方便地分析测量样品的放射性含量, 本文提出了利用蒙特卡罗应用软件工具(Geant4)获取高纯度锗(HPGe)探测器的全能峰效率曲线, 进行放射性样品测量中全能峰效率的模拟及修正。测量距离高纯锗探头 25 cm 处探测器对点源中不同特征能量 γ 射线的实验探测效率, 与模拟探测效率进行对比, 采用 Geant4 模拟方式研究了高纯锗晶体表面死层对探测器效率的影响。通过修正上、下死层厚度依次分段对模型探测效率进行校正, 优化探测器蒙特卡罗几何模型参数。将优化模型的模拟计算效率与点源的实测效率进行比较, 得到了高纯锗探测器在 59.54~1406 keV 范围内的全能峰效率曲线。实验结果表明, 蒙特卡罗模拟结果与实验测量结果有很好的一致性, 相对误差在 5% 之内, 并证实高纯锗晶体表面死层厚度随探测器的老化而发生变化, 在 7 年后死层厚度从 0.5 mm 增加到约为 1.40 mm \pm 0.05 mm。

关键词 探测器; 放射性; 高纯锗探测器; 能量刻度; 蒙特卡罗模拟; 死层厚度

中图分类号 TL84; TL814; TL817+.2

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP223019

Effect of Germanium Dead Layer on Detection Efficiency of High-Purity Germanium Based on Monte Carlo Simulations

Song Haisheng¹, Pang Rongni^{1,2*}, Cai Xiao²¹School of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, Gansu, China;²State Key Laboratory of Nuclear Detectors and Nuclear Electronics, Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100043, China

Abstract In order to analyze and measure the radioactive content of samples more accurately and conveniently, a Monte Carlo application software tool (Geant4) is used to obtain the full energy peak efficiency curve of high-purity germanium (HPGe) detectors and thus to simulate and correct it in the measurement of radioactive samples. In particular, the different characteristic energies of a detector are measured in response to a point source 25 cm away from the HPGe probe. The experimental detection efficiency of γ -rays is compared with the simulation detection efficiency, and the influence of the dead layer on the detector efficiency of the HPGe crystal surface is studied by means of Geant4 simulations. The detection efficiency of the model is corrected by modifying the thickness of the upper and lower dead layers in turn, and the parameters of the Monte Carlo geometric model of the detector are optimized. Thereafter, the simulated efficiency of the optimized model is again compared with the measured efficiency of the point source, and the full energy peak efficiency curve of the HPGe detector in the range of 59.54–1406 keV is obtained. The experimental measurement results show good agreement with the Monte Carlo simulations, exhibiting a relative error within 5%. The experimental results also demonstrate that the thickness of the dead layer on the surface of the HPGe crystal changes with the aging of the detector. After 7 years, the thickness of the dead layer increases from 0.5 mm to approximately 140 mm \pm 0.05 mm.

Key words detector; radioactivity; high-purity germanium detector; energy scale; Monte Carlo simulation; dead layer thickness

收稿日期: 2022-11-10; 修回日期: 2022-12-05; 录用日期: 2022-12-19; 网络首发日期: 2023-01-05

通信作者: *1825628308@qq.com

1 引言

在环境样品天然放射性分析过程中,主要目标是分析²³⁸U、²³⁵U、²³²Th、²²⁶Ra、⁴⁰K、¹³⁷Cs、⁶⁰Co等放射性含量,用它们来表征环境样品的天然放射性水平^[1]。高纯锗探测器能量分辨率高、探测效率高,被广泛应用于不同的实验研究领域,如中微子实验和暗物质实验,通过 γ 射线能谱分析,用于识别放射性核素和确定其在环境样品中的浓度^[2]。高能物理研究所(IHEP)在2014年建造了一台基于高纯锗探测器的反康普顿伽马谱仪,用于一些实验材料的放射性测量,特别是为江门中微子实验(JUNO)选取低放射性材料。为了提高探测铀和钍的检测能力和检测结果的准确性,需要对探测器系统进行标定,主要为道址-能量刻度、全能量峰值效率刻度。针对不同的测量条件比如源的形式、几何位置、测量环境等,一般需要通过标准样品测量得到探测器在此条件下的探测效率,由于体源制作不易,既昂贵又费时,现在常通过蒙特卡罗方法模拟计算探测器对光子的全能峰效率,过程简便,而且准确度很高^[3]。Ródenas等^[4]和Budjás等^[5]研究了死层厚度对探测器效率响应的影响,他们观察到,死层厚度的增加会导致探测器效率降低,其原因不仅因为死层会导致 γ 射线衰减,还有探测器^[6-7]活动体积减小。邓海军等^[8]运用灵活性强、适用范围广的无源效率刻度方法,建立了相应的无源效率刻度曲线,提高了环境放射性分析的精度。利用灵活性强、适用范围广的无源效率刻度方法,可以建立相应的无源效率刻度曲线,提高放射性分析的精度^[8]。P型同轴型高纯锗探测器受到探头尺寸和死层厚度的影响很大,因此准确确定死层的厚度至关重要^[9]。

本文利用蒙特卡罗Geant4工具包,以厂家给出的尺寸参数为参考建立待测样品与探测器的蒙特卡罗模型。研究了探测器尺寸和死层厚度变化对探测器效率的影响。设置不同类型的源项和死层厚度等参数建立物理模型使得模拟效率与放射源刻度数据吻合,利用Geant4模拟了在59.50~1836 keV能量范围内的 γ 源的高纯锗探测器的全能峰效率曲线,并将仿真结果与实验测试结果进行比较,验证了该模型的可靠性。从而使Geant4能更好地应用于环境样品的放射性核素定量和定性分析中。

2 基本原理以及实验仿真

2.1 实验仪器与材料

本实验采用的探测器是Canberra公司生产的Coaxial Ge (HPGe),型号为GC12021的P型同轴高纯锗探测器。探头尺寸为10.16 cm,相对探测效率为120%,分辨率为2.1 keV&1.33 MkV (FWHM),峰康比为80(60Co@1332 keV),探头工作偏压为+3500 V,可探测能量范围为3 keV~3 MeV。制造厂商给出的探测器晶体尺寸如表1所示。

表1 制造商提供的锗探测器晶体尺寸

Table 1 Crystal size of germanium detector provided by manufacturer

Dimension parameters of various parts of germanium detector	Value /mm
Germanium crystal diameter	86.3
Crystal length	85.8
Distance between crystal surface and aluminum shell front window	4.89
Thickness of outer package aluminum shell	1.5
Dead layer thickness (front)	0.5
Thickness of side dead layer	0.5
Cold finger core diameter	18
Cold finger core depth	52

利用已知活度的放射源,计算放射源在此探测器中的全能峰效率,在实验中为了更好地进行效率刻度,选择多条特征射线,选择的特征 γ 射线能量及其活度如表2所示,选取了三个不同的放射源,这三个放射源覆盖能量范围比较广,可以更加精确地进行效率的标定,计算全能峰的本征探测效率的公式为

$$\epsilon = \frac{N}{A \times P \times t}, \quad (1)$$

式中: N 是感兴趣峰值能量的净峰面积; P 是放射性核素中特征 γ 射线的发射概率; t 是GammaVersion测试的计数活时间; A 是已知的放射源活度。根据误差传播规律给出了全能峰效率的不确定度为

$$\sigma_{\epsilon} = \sqrt{\sigma_N^2 + \sigma_A^2 + \sigma_P^2}, \quad (2)$$

式中: σ_N 是感兴趣峰值能量的净面积的不确定度; σ_A 是放射源活度的不确定度; σ_P 是来自放射性核素的特定 γ 射线的发射概率的不确定度。

表2 实验所用标准点源

Table 2 Standard point source used in experiment

Radioactive source	Energy /keV	Branching ratio	Half life /a	Correction activity /Bq
²⁴¹ Am	59.54	0.3570	432.212	3.65×10 ⁵
	81.06	0.3406		
	302.85	0.1833	10.538	2.25×10 ⁵
¹³³ Ba	356.02	0.6205		
	121.78	0.2837		
	344.29	0.2658		
¹⁵² Eu	778.20	0.1296	13.516	2.23×10 ⁵
	964.11	0.1462		
	1112.08	0.1350		
	1408.00	0.2085		

点源与探测器之间放置距离为25 cm,配置规格如图1所示。选择这个距离是为了减少符合相加效应,保持死时间在2%以下,保持堆积效应的计数率可以忽略^[10]。设置120 s的计数活时间,以便在全能峰区

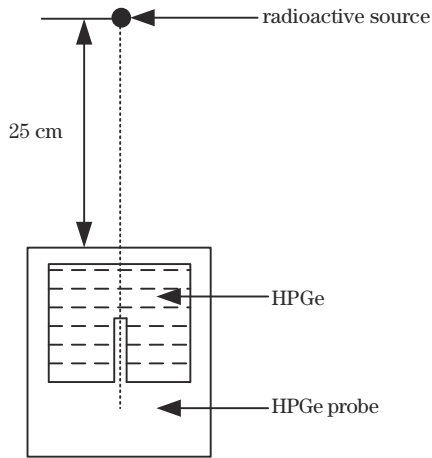


图1 用于测量高纯锗(HPGe)相应的辐照结构图

Fig. 1 Corresponding irradiation structure diagram for measuring high-purity germanium (HPGe)

上达到 0.3% 以下的统计不确定度。 ^{241}Am 是一个单能峰源,不会受到其他能量峰的影响, ^{133}Ba 和 ^{152}Eu 源各有几个从低能到高能覆盖的光电子峰,高能光电子与低能光电子相比,由于电荷的不完全收集,表面事件对全能峰没有贡献。因此,低能光子更有可能在死层中相互作用,死层的厚度会影响 γ 射线低能全能峰探测效率。因此, ^{241}Am 源的 59.54 keV、 ^{133}Ba 源的 81 keV 和 ^{152}Eu 的低能射线用于研究死层厚度变化对探测效率的影响,其他能量的光电子峰用来效率标定。测量中使用的放射源活度已知,通过比较蒙特卡罗模拟效率和实际测量效率差值,可以优化死层厚度。在实验中,点源被放置在探测器端盖的正上方,如图 1 所示,采用两根不锈钢支架做成固定装置固定放射源,并测量源与端帽之间的距离达到 25 cm,放射源中的光电子发射到晶体中,来自接触电极的电压信号被输入到一个脉冲复位前置放大器中,使用主放大器和多道发生器对信号进行放大整形和数字化,测量得到的数字化脉冲信号使用 Canberra 公司的 GammaVersion 软件进行分析。

2.2 探测器能量刻度

能量刻度决定判断特征峰的准确性,能量线性度越好,测试能谱越准,才能准确地判断样品中所含放射性核素的种类。能量刻度就是标定射线的能量与全能峰道址之间的函数关系。利用放射源 ^{152}Eu 衰变的多条特征射线,将 HPGe 谱仪能量刻度用线性函数拟合实验得到能量与道址之间的函数关系式为

$$E=0.01887C+0.1917, \quad (3)$$

式中: E 为射线能量,keV; C 为全能峰道址。拟合函数的线性相关系数为 1,说明伽马谱仪的能量线性度很好。本实验得到的能量-道址对应关系曲线如图 2 所示。

2.3 蒙特卡罗模拟与晶体结构参数的优化

HPGe 探测器可以分为死层(没有电荷或只有部分电荷被电极收集)和一个大块晶体部分(产生的所有电

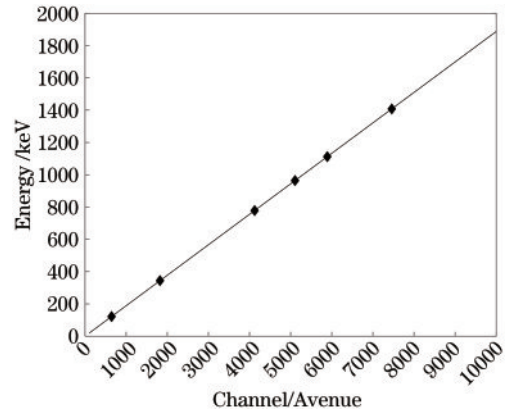


图2 探测器能量-道址函数关系

Fig. 2 Function relationship between detector energy and channel address

荷被电极完全收集)。死层由两层组成:一个是非活性层,电极不能收集电荷;另一个是过渡层,电荷收集效率从 0 增加到 1^[10]。因此,死层中的事件不能提供沉积在探测器中的全能峰能量,应该通过应用效率校正来与主体事件区分开来。随着探测器的使用,冷指孔内锂离子会发生漂移,锂的扩散一直发生,导致靠近冷指孔的部分锗晶体不再对射线产生信号响应,也即冷指孔晶体死层会随时间变厚,使用制造商给出的死层厚度进行模拟是不可靠的,因此需通过实验来优化得到死层参数。

Geant4 是一款基于蒙特卡罗方法,主要用于模拟各种粒子输运过程及其与物质相互作用的软件程序^[11]。本文利用 Geant4 模拟计算高纯锗探测器的探测效率时,关键在于获取探测器的尺寸,建立精确的蒙特卡罗模型,才能保证模拟计算结果的精确性。确定好模型尺寸后,便可利用蒙特卡罗方法模拟高纯锗探测器对入射粒子的响应,从而计算 γ 射线的全能峰效率^[12]。

在模拟中,按照厂家提供的尺寸参数建立探测器的蒙特卡罗模型,探测器的关键尺寸如表 1 所示。在源项设置中,定义发射粒子为 γ 射线,发射位置在距离探测器表面 25 cm 的轴心位置,发射方向为 4π 立体角各向同性。在修正探测器死层参数所使用的源项是光子,因此本文中考虑的物理过程主要是光子和电子的物理作用机制。对于光子的物理机制,主要是光电效应、康普顿散射、电子对效应和瑞利散射;对于正负电子的物理机制,主要是电子在物质中发生的多重散射和电离。并对上述三种粒子设置能量范围为(250 eV, 100 MeV)的能量截断以加快运算速度。

建立光电子耦合输运程序对建立的模型模拟计算,计算过程中对光子和电子所有次级过程进行模拟追踪。每个特征峰模拟数量为 1000000 个事例,采用 ROOT 处理收集到的发射粒子源信息,计算点源发出的 γ 射线在 HPGe 晶体内的脉冲高度能谱分布。模拟的探测效率计算式为

$$\epsilon_{\text{simu}} = \frac{Q}{M}, \quad (4)$$

式中： ϵ_{simu} 为模拟的全能量峰值效率； Q 为将其沉积在有源探测器体积中的全部能量的事件数； M 为给定能量的模拟事件总数。

死层厚度会随着探测器的使用时长而改变，可以通过模拟匹配实验来估计优化。假定探头顶部死层与侧面的死层厚度是相同的，在模拟中不断调整优化参数，将非活性锗外死层厚度从 0.5 mm 开始，以 0.1 mm 为步长逐次增加，逐次扫描，将死层厚度增加到 2 mm 时停止。将模拟结果与在 59.50~1836 keV

能量范围内的实验测量结果进行比较，使得模拟和实验探测效率误差在 5% 以内，得到死层厚度的优化值。在大多数研究中，效率的相对误差在 5%~10% 之内。

3 分析与讨论

部分死层厚度的模拟效率与实验效率比较结果如表 3 所示，其中相对误差 $\delta = \left| \frac{\epsilon_{\text{sim}} - \epsilon_{\text{exp}}}{\epsilon_{\text{exp}}} \right| \times 100\%$ 。从表 3 可以观察到，随着死层厚度的增加，探测器的探测效率在逐渐减小，尤其是对低能的射线更为显著。

表 3 不同死层厚度的实验探测效率与模拟探测效率结果

Table 3 Experimental and simulated detection efficiency results for different dead layer thicknesses

Dead layer thickness	Dead layer thickness							
	ϵ_{exp}	0.6	1.0	1.2	1.4	1.6	1.8	2.0
59.54 keV	0.0012	0.0032	0.0020	0.0016	0.0013	0.0011	0.0008	0.0006
$\delta / \%$	—	166.67	66.67	33.33	8.33	8.33	33.33	50.00
121.78 keV	0.0045	0.0053	0.0047	0.0045	0.0042	0.0041	0.0039	0.0039
$\delta / \%$	—	17.78	4.44	0	6.67	8.89	15.38	15.38
344.29 keV	0.0032	0.0034	0.0035	0.0032	0.0032	0.0032	0.0031	0.0031
$\delta / \%$	—	6.25	9.37	0	0	0	3.13	3.13

选择 ^{241}Am 、 ^{133}Ba 、 ^{152}Eu 三个点源的不同能量特征峰进行模拟，其中 ^{241}Am 的 59.54 keV 射线结果如图 3 所示，可以看到高纯锗探测器对 ^{241}Am 的 59.54 keV 射线的探测效率随着外死层厚度的增加而降低，这与 Huy^[13] 得出的结果非常一致。不同能量下的优化死层厚度结果如表 4 所示。其中， ^{152}Eu 的 344 keV 对应的锗死层值略有不同，这是由于中高能光子与晶体锗的弱

表 4 不同特征射线的死层厚度

Table 4 Dead layer thickness of different characteristic rays

Characteristic peak energy value /keV	Thickness of outer dead layer /mm	Error
59.54	1.50	0.02
121.78	1.41	0.03
344.29	1.30	0.03

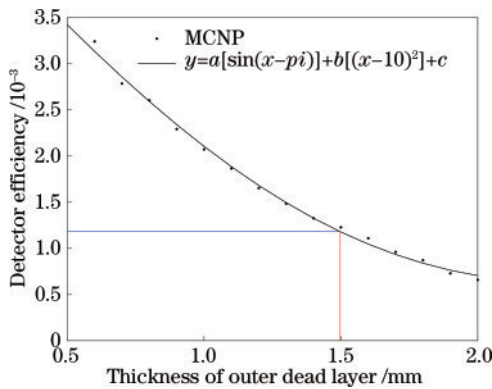


图 3 ^{241}Am 点源死层厚度与模拟效率的关系，黑点数据来自模拟效率，水平线来自于实验数据，垂直线通过实验和模拟线性函数计算值来确定死层厚度

Fig. 3 Relationship between dead layer thickness and simulation efficiency of ^{241}Am point source. Black spot data comes from simulation efficiency, horizontal line comes from experimental data, and vertical line determines thickness of dead layer through experimental and simulation linear function calculation

相互作用降低了吸收概率^[14]。由此得到平均死层厚度为 $1.40 \text{ mm} \pm 0.05 \text{ mm}$ 。

在 Geant4 中分别对没有死层修正、出厂厂家给定的死层以及优化过后的死层做效率的蒙特卡罗模拟，与实际利用放射源测试的效率做比较，结果如图 4 所

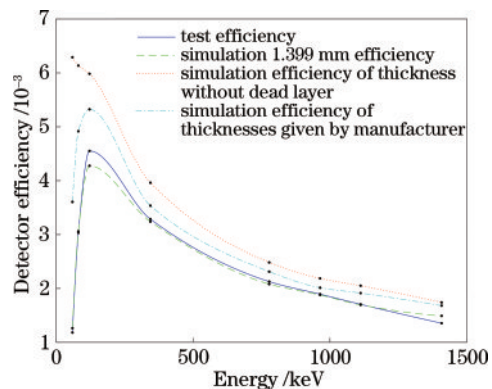


图 4 实际效率和蒙特卡罗模拟不同死层厚度的效率对比
Fig. 4 Comparison of actual efficiencies and Monte Carlo simulation efficiencies of different dead layer thicknesses

示,在没有死层修正时模拟效率与实测效率误差很大,尤其是对于低能量的射线。死层参数设置为厂家出厂时的尺寸时,模拟和实测效率仍不能很好地符合。而在优化死层厚度为 1.40 mm 建立的 Geant4 物理模型中计算的探测效率与实际测量效率误差在 5% 之内,可以看出优化的物理模型和实际相符合。随着高纯锗探头使用年限的增加,在模拟中需要重新校正模型参数,以达到更好的仿真模拟效果,提高检测的准确度,更好地为江门中微子实验筛选低放射性材料。

4 结 论

材料检测中,采用蒙特卡罗模拟探测效率对计算样品的放射性活度以及检出限至关重要。本文介绍了 HPGe 探测器死层的测量方法,采用放射源 ^{241}Am 、 ^{133}Ba 和 ^{152}Eu 源中低能特征射线来确定死层厚度。模拟计算得到优化的死层厚度为 $1.40\text{ mm}\pm 0.05\text{ mm}$,整体探测效率相对误差均在 5% 以内。标准源刻度数据与优化死层厚度建模的模拟数据能够较好地符合,这对使用效率模拟来替代制作体源具有重要意义,在放射性定量与定性测量中具有很好的实用价值。

参 考 文 献

- [1] 邓海军, 赖万昌, 甘霖, 等. HPGe 伽马谱仪测量环境样品的效率刻度方法[J]. 核电子学与探测技术, 2014, 34(11): 1283-1286.
Deng H J, Lai W C, Gan L, et al. The efficiency calibration methods in measuring environmental samples by HPGe gamma spectrometer[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2014, 34(11): 1283-1286.
- [2] 张斌全, 马吉增, 程建平, 等. 蒙特卡罗方法计算用于低能光子测量的高纯锗探测器的效率[J]. 核电子学与探测技术, 2005, 25(3): 274-277.
Zhang B Q, Ma J Z, Cheng J P, et al. Calculation of the detection efficiency of an HPGe detector in low energy photon measurement with Monte Carlo method[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2005, 25(3): 274-277.
- [3] Jiang H, Yue Q, Li Y L, et al. Measurement of the dead layer thickness in a p-type point contact germanium detector[J]. Chinese Physics C, 2016(9): 82-88.
- [4] Ródenas J, et al. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2003, 496(2/3): 390-399.
- [5] Budjaš D, et al. Optimisation of the MC-model of a p-type Ge-spectrometer for the purpose of efficiency determination[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(5): 706-710.
- [6] Vargas M J, Timón A F, Sánchez D, et al. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2002, 57(6): 893-898.
- [7] Hardy J C, et al. Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2002, 56(1/2): 65-69.
- [8] 韩良文, 高业栋, 夏星汉, 等. 基于 MCNP 的 HPGe 探测器无源效率刻度[J]. 核安全, 2020, 19(03): 76-80.
Han L W, Gao Y D, Xia X H, et al. Passive efficiency calibration of HPGe detector based on MCNP[J]. Nuclear Safety, 2020, 19(03): 76-80.
- [9] Khan W, Zhang Q, He C, et al. Monte Carlo simulation of the full energy peak efficiency of an HPGe detector[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2018, 131: 67-70.
- [10] Lam C H, Ling C C. Decomposition of positron lifetime spectra generated by Monte Carlo method: The case study of 6H silicon carbide[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2006, 251(2): 479-483.
- [11] Agostinelli S, Allison J, Amako K, et al. Geant4: a simulation toolkit[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2003, 506(3): 250-303.
- [12] Ródenas J, Martinavarro A, Rius V. Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2000, 450(1): 88-97.
- [13] Huy N Q. The influence of dead layer thickness increase on efficiency decrease for a coaxial HPGe p-type detector [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, 621(1/2/3): 390-394.
- [14] Azbouche A, Belamri M, Tchakoua T. Study of the germanium dead layer influence on HP(Ge) detector efficiency by Monte Carlo simulation[J]. Radiation Detection Technology and Methods, 2018, 2(2): 45.