

三双符合比-切伦科夫方法中 β 核素 壁效应的影响

范梓浩^{1,2} 梁珺成² 刘皓然² 袁大庆¹ 肖扬² 孙昌昊² 杨志杰² 刘玫玲²

1(中国原子能科学研究院 北京 102413)

2(中国计量科学研究院 北京 100029)

摘要 为分析三双符合比-切伦科夫(TDCR (Triple-to-double Coincidence Ratio)-切伦科夫)方法中壁效应对效率计算的影响。首先,对 β 粒子在溶液到瓶壁过程的运输进行分段分析,得到不同能量的粒子在不同材料中的沉积能谱与所产生的切伦科夫光子数的关系式,并对其进行了计算上的简化,进一步完善TDCR-切伦科夫效率的计算模型;之后利用Geant4计算了 β 在介质和瓶壁中的沉积谱,得到考虑了壁效应的切伦科夫光子数与 β 能量的关系曲线以用于对核素的效率计算;最后开展了多种纯 β 核素的实验测量以验证考虑壁效应后的计算模型的准确性。结果显示:考虑壁效应后的TDCR-切伦科夫方法与液闪方法的结果在不确定度范围内一致,且对高能 β 核素,其结果与液闪之间的相对偏差由原方法的0.47%降低至0.02%(⁹⁰Y),0.64%降低至-0.16%(³²P),表明考虑壁效应后的TDCR-切伦科夫方法对高能 β 核素的测量结果更准确。

关键词 TDCR, 切伦科夫, 壁效应, 放射性活度

中图分类号 TL84

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.060504

Influence of wall effect on detection efficiency of β -emitters in TDCR-Čerenkov method

FAN Zihao^{1,2} LIANG Juncheng² LIU Haoran² YUAN Daqing¹ XIAO Yang² SUN Changhao²
YANG Zhijie² LIU Meiling²

1(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

2(National Institute of Metrology, Beijing 100029, China)

Abstract [Background] The triple-to-double coincidence ratio-Čerenkov (TDCR-Čerenkov) method can be applied to the activity measurement of radionuclides by detecting the Čerenkov photons produced in a non-scintillation solution. The computation of the detection efficiency of this method is based on the premise that the energy of emitted β is completely deposited in the solution. However, this precondition is ideal and does not apply to the actual measurement because of the counting loss caused by the restrictions of a finite solution and the wall of the counting vial (i. e., wall effect). [Purpose] This study aims to analyze the influence of the wall effect on the computation of detection efficiency. [Methods] The transport process of emitted β from the solution to the vial wall was analyzed in sections. Thereby the relationship between the number of Čerenkov photons and the deposition energy spectra of emitted β with different energies in different matrices was obtained. This relationship was used to further improve the calculation model of the TDCR-Čerenkov method. Subsequently, the calculation model was simplified to reduce the required time. Geant4 calculated the deposition spectra of emitted β in different matrices,

第一作者: 范梓浩, 男, 1994年出生, 2018年毕业于东华理工大学, 博士研究生, 研究领域为放射性活度计量

通信作者: 袁大庆, E-mail: yuandq@ciae.ac.cn

收稿日期: 2022-12-29, 修回日期: 2023-02-17

First author: FAN Zihao, male, born in 1994, graduated from East China University of Technology in 2018, doctoral student, focusing on radioactivity metrology

Corresponding author: YUAN Daqing, E-mail: yuandq@ciae.ac.cn

Received date: 2022-12-29, revised date: 2023-02-17

subsequently, the efficiency of different nuclides was calculated using curves of the number of Čerenkov photons vs. the energy of the emitted β . To verify the accuracy of the improved calculation model, measurements were carried out on a variety of pure β -emitters. **[Results]** The results derived from the improved TDCR-Čerenkov method are in good agreement with those of the TDCR-LS method. Especially for high energy β -emitters, the relative deviation of the results between the TDCR-Čerenkov and TDCR-LS methods is reduced from 0.47% for the original method to 0.02% (^{90}Y), and 0.64% to -0.16% (^{32}P). **[Conclusions]** The TDCR-Čerenkov method is more accurate when considering the wall effect in the activity measurement of high-energy β -emitters.

Key words TDCR, Čerenkov, Wall effect, Activity

当放射性核素衰变时出射的 β 粒子穿过介质的速度大于光在该介质中的相速度时会产生切伦科夫光^[1-3],该效应被广泛应用于微观粒子研究^[4]与核技术领域。其中,切伦科夫计数法即利用光电倍增管(Photomultiplier, PMT)探测切伦科夫光来实现对 β 核素的活度测定。该方法相较于液闪(Liquid Scintillation, LS)计数法具有无须闪烁液、样品制备简单且核素可回收等优点。自1997年Navarro等^[5]首次成功将切伦科夫计数法应用在 ^{234}Th 的活度定值以来,西班牙、德国和法国等计量机构相继在双管和三双符合比(Triple-to-double Coincidence Ratio, TDCR)测量装置上利用该方法对纯 β 核素样品活度进行了定值^[6-8]。

根据已有文献报道^[7-9],在目前基于TDCR装置的切伦科夫计数法(TDCR-切伦科夫方法)中,其探测效率计算模型中对于 β 粒子在溶液中产生的切伦科夫光子数是在认为核素衰变发射的 β 粒子会被溶液介质完全吸收的前提进行计算的。但在Jaubert^[10]、Johansson^[11]和Laureano-Pérez^[12]的工作中可知,在LS计数法中,靠近瓶壁10 mm处发射的低能 β 粒子或穿透能力弱的 α 粒子在样品中会与计数瓶壁发生相互作用而造成探测效率的损失。而在TDCR-切伦科夫方法中,所用样品规格与LS计数法中的基本一致,但同能量的 β 粒子在非闪烁介质中(样品介质一般为水或稀盐酸)产生的光子数远低于闪烁液中产生的光子数,故壁效应的影响可能会更明显。另一方面,样品瓶壁同样作为透明材料,从溶液出射的 β 粒子亦存在一定概率在瓶壁中产生可光子,故在这两种情况的叠加下,使得TDCR-切伦科夫方法中的壁效应复杂程度高于LS计数法的。

为了对TDCR-切伦科夫方法的壁效应对活度测量结果的影响进行分析,本文建立了TDCR-切伦科夫方法的探测效率计算模型,在此模型基础上对切伦科夫光子数计算部分进行了壁效应的考虑,并提出了一种简化的计算方法,以降低效率计算的复杂度。之后对核医学、核能安全及计量等领域重点关注的几种中高能纯 β 放射性核素(^{90}Y 、 ^{32}P 和 ^{204}Tl)

进行了测量,并根据建立的计算模型对上述三种核素进行了效率计算并得到其比活度,最后将两种不同考虑前提的模型所得结果与三双符合比-液闪(TDCR-LS)方法的测量结果进行对比,三者的结果在不确定度范围内一致吻合。

1 计算模型

根据Frank和Tamm理论^[13],当带电粒子在透明介质中以大于光在介质中的相速度穿行时,其在介质中产生的切伦科夫光子数 dk 与其穿行的距离 dx 之间的关系如下:

$$\frac{dk}{dx} = 2\pi z^2 \alpha_{\text{FS}} \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n_M^2} \right) \quad (1)$$

式中: α_{FS} 为超精细常数,为 $1/137$; z 为带电粒子所带电荷; λ_1 和 λ_2 分别为切伦科夫光波长范围的上、下限,二者取决于测量装置所装配的PMT的波长响应范围;带电粒子相速度 $\beta = v/c$, v 为带电粒子的速度, c 为光在真空中的速度; n_M 为介质的折射率^[14]。

对于放射性核素在介质中衰变发射的 β 粒子,产生的切伦科夫光子数 k 则为其初始能量 E 在式(1)的积分:

$$k(E) = \int_{E_M^*}^E \frac{dk}{dx} \frac{1}{\rho_M (dE/dx)_M} dE \quad (2)$$

式中: E_M^* 是粒子在基质中产生切伦科夫光子的能量阈值,取决于基质的折射率; ρ_M 为基质密度, $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$;基质的阻止本领 $(dE/dx)_M$ 的数据则取自ESTAR数据库^[15]。

样品在TDCR测量装置中的探测效率与TDCR-LS方法的计算方法类似^[16-17],但不同之处在于切伦科夫计数法中不存在电离猝灭效应,以及切伦科夫光的各向异性须在效率的计算公式中加以考虑,不同符合情况下的探测效率由Kossert给出^[7]。

1.1 模型壁效应分析

已有的TDCR-切伦科夫计算模型中进行切伦

科夫光子数的计算时,式(2)的积分下限是固定的。但在实际情况中, β 粒子存在一定的概率与计数瓶壁发生相互作用而损失探测效率;另一方面, β 粒子在进入计数瓶壁时,存在 β 粒子在瓶壁中产生切伦科夫光子的情况。对于聚乙烯(Polyethylene, PE)样品瓶而言, β 粒子在瓶壁中发生切伦科夫效应的阈值要低于切伦科夫常用基质溶液的阈值(如PE材料的阈值 E_{th}^V 为167.5 keV^[18],1 mol·L⁻¹盐酸的阈值 E_{th}^M 为256.7 keV)。基质溶液中的光子数损失及瓶壁中的补偿使得TDCR-切伦科夫模型中的壁效应相比于LS计数法中的壁效应更为复杂,切伦科夫样品中存在的壁效应无法被直观地认为是导致探测效率损失的过程,因此需要更进一步分析。

假设能量为 E_i 的 β 粒子在基质中损失 δE_i 的能量后进入瓶壁,视该损失部分能量后的 β 粒子能量为进入瓶壁的初始入射 β 粒子,则此时 β 粒子能量为:

$$E_j = (1 - \delta)E_i \quad (3)$$

若此时 E_j 大于 E_{th}^V , β 粒子将与瓶壁发生切伦科夫效应产生光子,直到能量衰减至小于 E_{th}^V 或在能量仍大于 E_{th}^V 时输运至瓶壁外部。由于核素衰变时发射的 β 粒子能量一般不足以支撑其在出射到瓶壁外侧后继续与其他材料(空气或PMT入射窗)发生切伦科夫效应。因此,在进行TDCR-切伦科夫模型的壁效应修正时,只考虑 β 粒子在基质和瓶壁中的输运过程。

根据上述所述的 β 粒子在样品中的输运, β 粒子在1 mol·L⁻¹盐酸溶液和瓶壁中的输运可分为两种情况进行讨论:

1) $E_i \geq E_{\text{th}}^M$ 且 $E_j < E_{\text{th}}^V$

当 β 粒子能量大于 E_{th}^M ,并在溶液中损失部分能量后输运至瓶壁,但进入瓶壁的 β 粒子能量小于 E_{th}^V ,此时产生的切伦科夫光子是在溶液中产生的,产生的切伦科夫光子数为:

$$k_M(E) = \int_{E_{\text{th}}^M}^{E_i} 2\pi z^2 \alpha_{\text{FS}} \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n_M^2} \right) \frac{1}{\rho_M(dE/dX)_M} dE \quad (4)$$

2) $E_j \geq E_{\text{th}}^V$

当 β 粒子能量大于 E_{th}^M ,在溶液中损失 δE_i 的能量后进入瓶壁,且 E_j 大于 E_{th}^V ,则 β 粒子亦会在瓶壁中产生切伦科夫光子。或 β 粒子能量小于 E_{th}^M ,此时 $k_M(E)$ 为0,但 E_j 大于 E_{th}^V ,则切伦科夫光子仅在瓶壁中产生。将二者统一考虑,产生的切伦科夫光子数为 β 粒子在溶液和容器壁中产生的光子数的和:

$$k(E) = k_M(E) + k_V(E) \quad (5)$$

$$k_V(E) = \int_{(1-\eta)E_i}^{E_j} 2\pi z^2 \alpha_{\text{FS}} \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n_V^2} \right) \frac{1}{\rho_V(dE/dX)_V} dE \quad (6)$$

式中:粒子在瓶壁中沉积的能量为 ηE_j ; n_V 为瓶壁材料介质的折射率^[18]; ρ_V 为瓶壁材料密度, g·cm⁻³; 瓶壁的阻止本领 $(dE/dx)_V$ 的数据则取自ESTAR数据库^[15]。且此时 $k_M(E)$ 的积分下限不再为 E_{th}^M ,而是 $(1 - \delta)E_i$ 。

式(4)和式(6)中, β 粒子在不同介质中的损失能量份额 δ 和 η 都具有其各自的分布概率且这个分布概率与粒子的初始能量 E_i 有关。在第2)种情况中,令能量为 E_i 的 β 粒子在基质中沉积能量为 δE_i 的概率为 $P_M(E_i, \delta)$,之后 β 粒子进入瓶壁,并在其中沉积能量为 $\eta(1 - \delta)E_i$ 的概率为 $P_V((1 - \delta)E_i, \eta)$ 。 P_M 和 P_V 服从某种分布,可使用蒙特卡罗模拟软件 β 粒子在样品中的输运进行模拟,具体过程如下:

在得到样品瓶几何尺寸和瓶内基质的成分及密度等参数后,对核素所在的样品瓶及基质进行蒙特卡罗建模。设置初始能量为 E_i 的 β 粒子的出射位置在基质中均匀分布,出射方向为各向同性。统计每次模拟 β 粒子在两种材料的能量沉积,将所有事件的沉积能量以能谱的形式进行统计。对能谱归一化后能量为 E_i 的 β 粒子在溶液中的沉积能谱 $S_M(E_i)$ 。同理,损失了部分能量后的 β 粒子在瓶壁中的沉积能谱为 $S_V(E_j)$ 。

在只考虑 β 粒子在基质和瓶壁中的输运的前提下,认为归一化后的能谱是沉积能量的概率密度函数 $S_M(E_i)$ 和 $S_V(E_j)$,则沉积能量份额为 δ_i 和 η_j ($\delta_i, \eta_j \in [0, 1]$)处的概率分别为 $S_M(E_i, \delta_i)$ 和 $S_V(E_j, \eta_j)$ 。对于能量为 E_i 的 β 粒子,令其在介质中产生的切伦科夫光子数为沉积能量份额的函数,则式(4)和式(6)可改写为:

$$k_M(E_i, \delta_i) = \int_{(1-\delta_i)E_i}^{E_i} 2\pi z^2 \alpha_{\text{FS}} \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n_M^2} \right) \frac{1}{\rho_M(dE/dX)_M} dE \quad (7)$$

$$k_V(E_j, \eta_j) = \int_{(1-\eta_j)E_j}^{E_j} 2\pi z^2 \alpha_{\text{FS}} \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n_V^2} \right) \frac{1}{\rho_V(dE/dX)_V} dE \quad (8)$$

因此,对于能量为 E_i 的 β 粒子在样品内产生的切伦科夫光子总数为:

$$\bar{k}(E_i) = \int_0^1 S_M(E_i, \delta_i) [k_M(E_i, \delta_i) + k_V(E_j)] dS_M \quad (9)$$

$$k_V(E_j) = \int_0^1 S_V(E_j, \eta_j) k_V(E_j, \eta_j) dS_V \quad (10)$$

故对于三管符合的探测效率计算公式可改写为:

$$\begin{aligned} \varepsilon_T = \int_0^{E_{\max}} \frac{N(E)}{3} & \left[\left(1 - e^{-\frac{q_A \bar{k}(E) \alpha_1}{3}} \right) \left(1 - e^{-\frac{q_B \bar{k}(E) \alpha_2}{3}} \right) \right. \\ & \left(1 - e^{-\frac{q_C \bar{k}(E) \alpha_3}{3}} \right) + \left(1 - e^{-\frac{q_A \bar{k}(E) \alpha_1}{3}} \right) \left(1 - e^{-\frac{q_B \bar{k}(E) \alpha_2}{3}} \right) \\ & \left(1 - e^{-\frac{q_C \bar{k}(E) \alpha_3}{3}} \right) + \left(1 - e^{-\frac{q_A \bar{k}(E) \alpha_1}{3}} \right) \left(1 - e^{-\frac{q_B \bar{k}(E) \alpha_2}{3}} \right) \\ & \left. \left(1 - e^{-\frac{q_C \bar{k}(E) \alpha_3}{3}} \right) \right] dE \end{aligned} \quad (11)$$

同理其他符合情况的探测效率亦可进行类似的修改。

1.2 壁效应简化计算模型

由式(9)可知,令计算时所用沉积份额能谱道址数为 2^h ,对于某一能量的 β 粒子而言,模拟时需要对 2^h 个长度同样为 2^h 的能谱进行数据处理。在进行某一能量所产生的切伦科夫光子数计算前,还需保证模拟所得到的所有沉积能谱数据统计涨落足够小。另一方面,模拟计算得到的沉积能谱 $S_M(E_i)$ 和 $S_V(E_j)$ 并非以解析式的方式给出,故需采用数值积分的方法来计算光子数。则每个能量的 β 粒子所产生的光子数都需要进行 2^{2h} 次迭代计算才可计算结果。最后,对于放射性核素衰变时所发射的 β 粒子,其能谱分布为连续分布,假设其发射能谱中大于切伦科夫阈值部分的长度为 m ,则在计算时至少要进行 $m \times 2^{2h}$ 次迭代才能得到某种符合情况下的探测效率,这将大大拖慢探测效率计算的速度。

故本节提出一种简化的计算模型,以降低计算效率时繁复的循环迭代及大量模拟计算所耗费的时间。简化过程如下:

首先,在计算 β 粒子在溶液和瓶壁中的沉积能谱时,将两种材料分开进行沉积能谱的统计。在建立好完整的样品模型时,仅统计粒子溶液中的沉积能谱。以一定能量(10 keV)为步长,依次设置模拟时 β 粒子的初始能量,得到不同初始能量的归一化后的沉积能谱 $S_M(E_i)$ 。根据所计算的沉积能谱,可得到 β 粒子在溶液中产生的光子数。之后,将样品

瓶中的溶液设置为真空(对 β 粒子无阻止吸收),粒子出射位置和出射方向矢量保持不变,同理可得到 β 粒子在瓶壁中的归一化后的沉积能谱 $S_V(E_j)$,则这一部分的切伦科夫光子数与能量的关系为:

$$\bar{k}_V(E_j) = \int_0^1 S_V(E_j, \eta) k_V(E_j, \eta) dS_V \quad (12)$$

根据式(12)可得到不同能量的 β 粒子在瓶壁中产生的光子数,并在实际效率计算时通过线性插值的方式得到瓶壁内不同能量点所对应的切伦科夫光子数,此时式(9)可改写为:

$$\bar{k}(E_i) = \int_0^1 S_M(E_i, \delta) [k_M(\delta) + \bar{k}_V((1 - \delta)E_i)] dS_M \quad (13)$$

同理,根据溶液中的沉积能谱 $S_M(E_i, \delta)$ 可求得各个能量点在溶液和样品瓶壁上所产生的光子数,并在计算探测效率时利用线性内插的方式得到对应的切伦科夫光子数来代入计算。此举可降低前期计算光子数所耗费的时间,在得到样品溶液的密度和成分的前提下,即可通过上述简化计算模型求解考虑了壁效应的探测效率。

2 实验部分

2.1 实验材料

BJPX-SG170II回旋式立式恒温振荡箱(中国山东博科生物产业有限公司);1 000~5 000 μ L单道可调移液器(中国山东博科生物产业有限公司);Milli-Q超纯水机(美国Millipore公司);CP225D电子天平($d=0.01$ mg,德国Sartorius公司)。

^{90}Y 溶液、 ^{32}P 溶液和 ^{204}Tl 溶液由中国计量科学研究院(National Institute of Metrology, NIM)提供;分析纯浓盐酸(质量分数:36%~38%)购自中国济南天泰化工有限公司;ULTIMA GOLD AB闪烁液、塑料闪烁瓶(20 mL)和玻璃计数瓶(20 mL)均购自美国PerkinElmer公司。

2.2 样品制备

三种核素的样品制备过程如图1所示,将 $1.0 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的盐酸溶液分装在4个塑料闪烁瓶中,ULTIMA GOLD AB闪烁液分装在4个玻璃计数瓶中,每瓶15 mL。两种规格的样品瓶各留出一个作为本底样品。采用差重法对放射性溶液进行定量移取,称重所用十万分之一天平可溯源至国家质量标准,同时记录前后时刻的温湿度和大气压,用于后续计算中将称重质量进行空气浮力修正。定量称取的放射性核素溶液添加至另外的塑料闪烁瓶和玻璃计数瓶中,使得每个样品的总活度在500~2 000 Bq范

围内。放射性溶液滴加完毕后,将各样品拧紧瓶盖放入恒温振荡箱中摇匀待测。

2.3 TDCR测量装置

测量切伦科夫样品的测量装置为NIM自主搭建的TDCR装置,由探测器部分、电子学部分和PC三部分组成(图2)。

装置配备三只型号为9813QB的PMT,其波长响应范围为160~630 nm,几乎可覆盖切伦科夫光子主要波长范围(400~600 nm^[19]),由三个独立高压(CAKE 353)供电,输入高压值约为2.0 kV,PMT输出信号接入快速放大器(CAEN N978),经放大后的信号输入数字分析仪(CAEN DT5730),获得携带每只PMT输出信号信息的列表模式(list-mode)文件,文件内包括每个输出信号的能量和时间戳等信息。



图2 TDCR计数系统 (a) 实物图,(b) 系统框图
Fig.2 TDCR counting system (a) Physical object diagram, (b) System diagram

3 结果

根据§1.2所述内容,利用Geant4模拟工具^[21-22]得到不同能量的 β 粒子在盐酸溶液和瓶壁中的沉积能谱,以700 keV和2 800 keV的 β 粒子为例,给出了 β 粒子在溶液中的沉积能谱(图3)。当 β 粒子能量变高时,粒子能量完全沉积的概率会变低。 β 粒子能量为700 keV时,粒子能量完全沉积在溶液中的概率约为33%, β 粒子能量为2 800 keV时,这个概率则约为13%,而当粒子能量仅有部分沉积在溶液中时,实际产生的切伦科夫光子小于理论计算值。图4给出了 β 粒子在瓶壁中的沉积能谱,由图4可知,随着粒子能量升高,粒子能量的沉积份额逐渐向左偏移,且当 β 能量为2 800 keV时,能谱中右端点处($E=2 800$ keV)的概率为0,即瓶壁无法完全阻止吸收该能量粒子。

根据所得到的沉积能谱,并基于所建立的切伦科夫光子数计算模型得到光子数 $k(E)$ 与能量的关系曲线,并与不考虑壁效应的 $k(E)$ 曲线进行了对比

利用基于Bouchard等^[20]的MAC3符合原理开发的软件对三个list-mode文件进行扩展死时间和符合处理,得到样品的符合计数率。

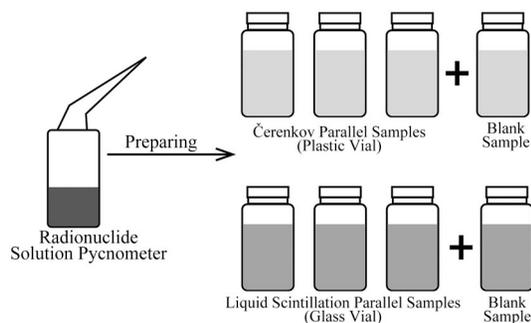
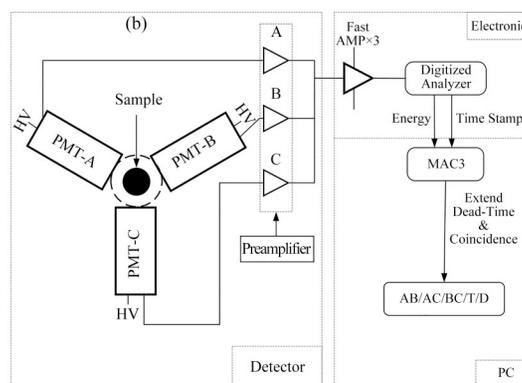


图1 样品制备示意图
Fig.1 Schematic diagram of sample preparation



(图5)。在考虑壁效应后,端点能量处(3 500 keV)的切伦科夫光子分别约为1 400和900,两种情形下的 $k(E)$ 值偏差与能量成反比关系,这是因为当 β 粒子能量较低时,除靠近瓶壁的部分粒子以外,大部分粒子的能量都被溶液介质阻止衰减至 E_{th}^m 以下,因此在小于1 000 keV能量以下的部分,有壁效应的 $k(E)$ 值略低于无壁效应的 $k(E)$ 值;但当 β 粒子能量较高时,粒子能量不完全沉积在溶液中的概率升高,并在瓶壁中产生切伦科夫光子,但由于瓶壁厚度有限,这部分所产生光子的补偿不足以弥补溶液中产生的光子的缺失份额,因此随着粒子能量的升高,两种情形下的 $k(E)$ 值差距逐渐变大。

3.1 活度测量结果对比

根据不同考虑情况下得到的 $k(E)$ 曲线,利用参考源对比的方式^[6]设置模型中的各向异性系数 x 为1.16(无壁效应)和1.21(有壁效应),并将所得结果与TDCR-LS方法测得的样品结果进行对比(表1)。在考虑和不考虑壁效应的两种情形下,TDCR-切伦

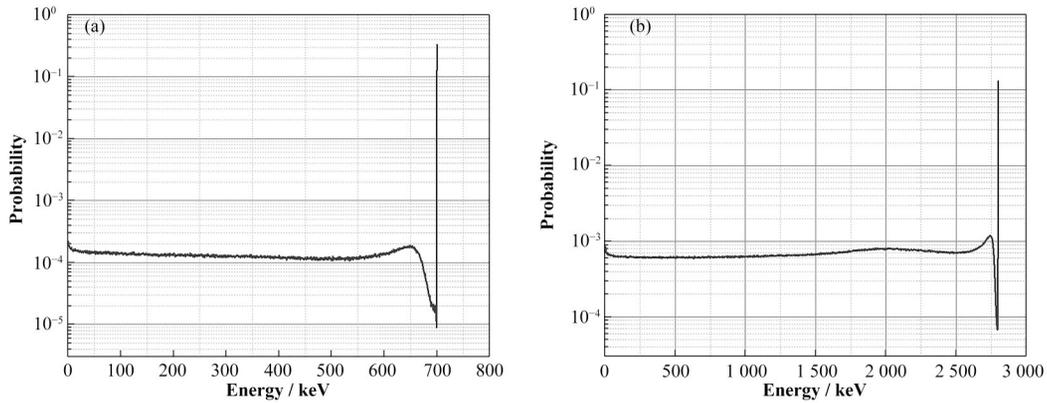


图3 β 在盐酸中的沉积能谱 (a) 700 keV, (b) 2 800 keV
Fig.3 Deposition spectra of β emitters in hydrochloric acid (a) 700 keV, (b) 2 800 keV

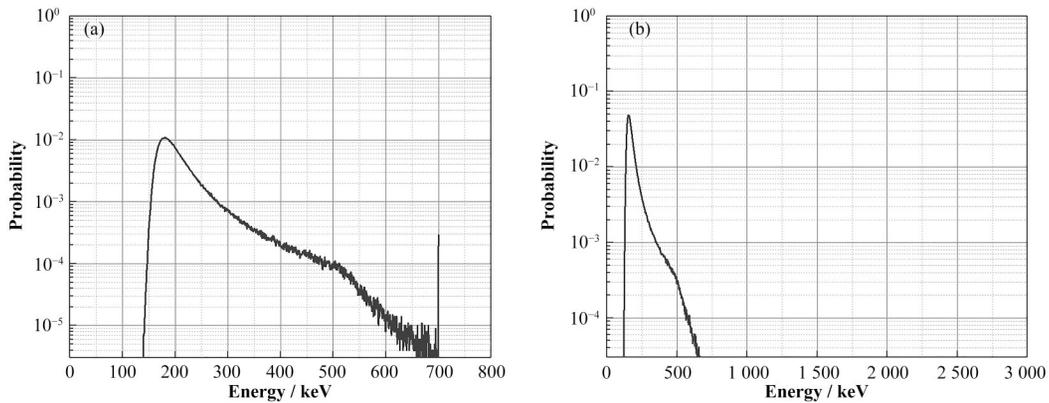


图4 β 在计数瓶壁中的沉积能谱 (a) 700 keV, (b) 2 800 keV
Fig.4 Deposition spectra of β emitters of the wall of counting vial (a) 700 keV, (b) 2 800 keV

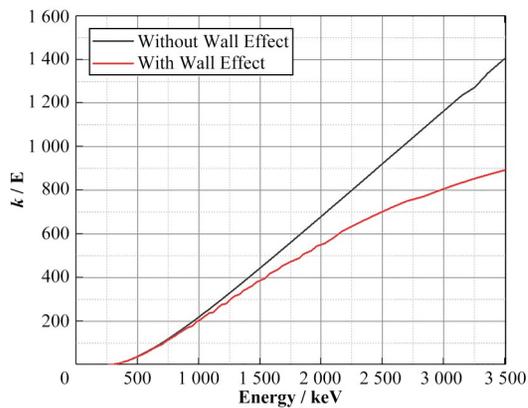


图5 切伦科夫光子数 $k(E)$ 与能量关系曲线
Fig.5 Čerenkov photon numbers $k(E)$ vs. energy

科夫方法测量与TDCR-LS的测量结果之间的RD均小于1%。

3.2 不确定度评定

TDCR-切伦科夫方法所给结果的不确定度主要包括以下分量:制样时的溶液质量称重、测量时的计数统计涨落、模型的各向异性系数、半衰期修正、谱、本底、时间、介质密度和阻止本领等。

其中, β 谱的不确定度由国际计量局(Bureau International des Poids et Mesures, BIPM)发布的蒙特卡罗方法给出^[23],将 β 谱上每个能量-概率的离散点作为独立的输入量,在固定其他计算参数的前提下计算出不同 q 值下的输出期望和相对标准偏差,并在保守估计下给出不同各自对应的 β 谱对结果不确定度的贡献,三种核素的 β 谱不确定度对结果合成不确定度都小于0.01%,对于不同 q 值下的统计结果亦在相等的量级内。各向异性系数引起的不确定度来源于利用参考源进行系数调整时的误差,在保守估计下根据系数的可能取值范围利用极差的方式评估该系数的变化对效率计算结果的影响,以此得到各向异性系数对三种核素的不确定度为:0.36% (^{90}Y)、0.56% (^{32}P)和1.4% (^{204}Tl)。死时间和符合分辨时间所引起的不确定度的评定方法与各向异性系数的相同,其中,死时间的设置范围为20~200 μs ,符合分辨时间的设置范围为50~200 ns。本底的不确定度按A类不确定度的评定方法给出。而介质的密度和阻止本领在TDCR-切伦科夫模型中作为自由参数的两个因子,其不确定度可由所求解的 q 补偿,

表1 结果对比
Table 1 Comparison of results

核素 Nuclide	比活度 Specific activity / Bq·g ⁻¹		
	TDCR-切伦科夫(无壁效应) TDCR-Čerenkov (without wall effect)	TDCR-切伦科夫(有壁效应) TDCR-Čerenkov (with wall effect)	TDCR-LS
⁹⁰ Y	25.60(10)×10 ³	25.44(10)×10 ³	25.44(12)×10 ³
³² P	24.99(16)×10 ⁴	24.79(16)×10 ⁴	24.83(5)×10 ⁴
²⁰⁴ Tl	1.03(2)×10 ⁵	1.03(2)×10 ⁵	1.04(1)×10 ⁵

因此无须在合成不确定度评定中考虑。其余分量则按B类不确定度的评价方式给出,这类分量中影响最大的为样品的计数统计涨落。

最后,两种方法的合成不确定度评定如表2所

示。表中,TDCR-LS方法的不确定度分量与TDCR-切伦科夫方法基本一致,唯一不同之处在于其模型中不存在各向异性系数的不确定度分量,但需要考虑电离猝灭参数 kB ^[14]的不确定度。

表2 不同方法的合成不确定度评定(%)
Table 2 Evaluation of the combined uncertainties for method including wall effect (%)

分量 Component	TDCR-切伦科夫 TDCR-Čerenkov			TDCR-LS		
	⁹⁰ Y	³² P	²⁰⁴ Tl	⁹⁰ Y	³² P	²⁰⁴ Tl
测量变异性 Measurement variability	0.10	0.06	0.65	0.48	0.10	0.36
死时间 Dead-time	0.03	0.03	0.01	0.02	0.02	0.01
符合分辨时间 Resolving-time	0.04	0.05	0.16	0.03	0.03	0.04
半衰期修正 Decay correction	0.05	0.03	<0.01	0.05	0.03	<0.01
本底 Background	0.06	0.06	0.06	0.04	0.04	0.04
称重 Mass	0.06	0.17	0.13	0.05	0.17	0.25
β 谱 β spectrum	0.01	0.01	0.02	<0.01	<0.01	<0.01
各向异性系数 Anisotropy coefficient	0.36	0.56	1.4	—	—	—
kB 值 kB value	—	—	—	0.02	0.01	0.04
合成 Combined	0.39	0.60	1.6	0.49	0.21	0.44

4 结语

本研究基于TDCR-切伦科夫方法,考虑了 β 粒子能量在溶液中的不完全沉积以及 β 粒子能量在计数瓶壁中的部分沉积,得到考虑壁效应后的TDCR-切伦科夫计算模型,并利用Geant4对 β 粒子在不同材料中的沉积能谱进行分开计算,在不影响计算模型的前提下对本研究所改进模型的计算过程进行简化,得到考虑壁效应后的 $k(E)$ 曲线,与原 $k(E)$ 曲线相比, β 能量为500 keV时的 $k(E)$ 值约为原来的98.22%,1 000 keV时为92.18%,2 000 keV时为80.13%,能量越高的 β 粒子受壁效应影响越明显。后通过对⁹⁰Y、³²P和²⁰⁴Tl三种纯 β 核素的活度测量结果可知:考虑壁效应后的计算模型对核素的活度计算结果与TDCR-LS方法的测量结果在不确定度范围内一致吻合。但在考虑壁效应后,该方法对高能核素⁹⁰Y和³²P的结果一致性更好,与TDCR-LS方法的相对偏差分别从0.47%降低至0.01%(⁹⁰Y)、0.64%降低至-0.16%(³²P),对于低能核素²⁰⁴Tl,结果无明显差异。结果表明:利用TDCR-切伦科夫方法对高能

β 核素进行活度测量时应考虑壁效应的影响。

作者贡献声明 范梓浩负责设计实验,计算模型建立,分析解释数据,撰写初稿;梁璐成负责提供实验材料和仪器支持,审阅与修改论文;刘皓然负责指导模型建立,审阅及修改论文;袁大庆负责论文总体指导,审阅与修改论文;肖扬负责样品制备,实验辅助;孙昌昊负责辅助论文撰写及图表处理;杨志杰负责仪器性能测试及数据获取;刘玖玲负责文章资料查阅及收集整理。

参考文献

- Čerenkov P A. Visible light from clear liquids under the action of gamma radiation[J]. Comptes Rendus (Doklady) de l'Academie des Sciences de l'URSS, 1934, 2(8): 451 - 454.
- Jelley J V. Čerenkov radiation and its applications[J]. British Journal of Applied Physics, 1955, 6(7): 227 - 232. DOI: 10.1088/0508-3443/6/7/301.
- Čerenkov P A. Visible radiation produced by electrons

- moving in a medium with velocities exceeding that of light[J]. *Physical Review*, 1937, **52**(4): 378 - 379. DOI: [10.1103/physrev.52.378](https://doi.org/10.1103/physrev.52.378).
- 4 Wang X N. Vector meson spin alignment by the strong force field[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2023, **34** (1): 15. DOI: [10.1007/s41365-023-01166-7](https://doi.org/10.1007/s41365-023-01166-7).
- 5 Navarro N, Grau Carles A, Alvarez A, *et al.* Standardization of ^{234}Th by cerenkov counting[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 1997, **48**(7): 949 - 952. DOI: [10.1016/S0969-8043\(97\)00030-4](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(97)00030-4).
- 6 Grau Carles A, Grau Malonda A. CHEREN2, the Cherenkov counting efficiency by an anisotropy detection model[J]. *Computer Physics Communications*, 2006, **174** (1): 30 - 34. DOI: [10.1016/j.cpc.2005.08.003](https://doi.org/10.1016/j.cpc.2005.08.003).
- 7 Kossert K. Activity standardization by means of a new TDCR- Čerenkov counting technique[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2010, **68**(6): 1116 - 1120. DOI: [10.1016/j.apradiso.2009.12.038](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.12.038).
- 8 Thiam C, Bobin C, Bouchard J. Adaptation of PTB's analytical modelling for TDCR- Čerenkov activity measurements at LNHB[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2017, **314**(2): 591 - 597. DOI: [10.1007/s10967-017-5381-0](https://doi.org/10.1007/s10967-017-5381-0).
- 9 Kossert K, Grau Carles A, Nähle O J. Improved Čerenkov counting techniques based on a free parameter model[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2014, **86**: 7 - 12. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.12.022](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.12.022).
- 10 Jaubert F, Cassette P. Standardization of a ^{32}P solution containing pure-beta impurities using the TDCR method in liquid scintillation counting[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2004, **60**(2 - 4): 601 - 606. DOI: [10.1016/j.apradiso.2003.11.084](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2003.11.084).
- 11 Johansson L, Altitzoglou T, Sibbens G, *et al.* Standardisation of ^{238}Pu using four methods of measurement[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **505**(3): 699 - 706. DOI: [10.1016/S0168-9002\(03\)00627-2](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)00627-2).
- 12 Laureano-Pérez L, Collé R, Fitzgerald R, *et al.* A liquid-scintillation-based primary standardization of ^{210}Pb [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2007, **65**(12): 1368 - 1380. DOI: [10.1016/j.apradiso.2007.06.012](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2007.06.012).
- 13 Frank I, Tamm I. Coherent visible radiation of fast electrons passing through matter[M]//Bolotovskii B M, Frenkel V Y, Peierls R. *Selected Papers*. Berlin, Heidelberg: Springer, 1991: 29 - 35. DOI: [10.1007/978-3-642-74626-0_2](https://doi.org/10.1007/978-3-642-74626-0_2).
- 14 L'Annunziata M F, Grahek Ž, Todorović N. Cherenkov counting[M]//*Handbook of Radioactivity Analysis: Volume 2*. Amsterdam: Elsevier, 2020: 393 - 530. DOI: [10.1016/b978-0-12-814395-7.00006-4](https://doi.org/10.1016/b978-0-12-814395-7.00006-4).
- 15 ESTAR[DB/OL]. 2022-07-08. <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>.
- 16 Broda R, Cassette P, Kossert K. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting[J]. *Metrologia*, 2007, **44** (4): S36 - S52. DOI: [10.1088/0026-1394/44/4/s06](https://doi.org/10.1088/0026-1394/44/4/s06).
- 17 Broda R. A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2003, **58**(5): 585 - 594. DOI: [10.1016/S0969-8043\(03\)00056-3](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(03)00056-3).
- 18 Smith D R, Loewenstein E V. Optical constants of far infrared materials. 3: plastics[J]. *Applied Optics*, 1975, **14** (6): 1335 - 1341. DOI: [10.1364/ao.14.001335](https://doi.org/10.1364/ao.14.001335).
- 19 Kulcsár F, Teherani D, Altmann H. Study of the spectrum of Cherenkov light[J]. *Journal of Radioanalytical Chemistry*, 1982, **68**(1): 161 - 168. DOI: [10.1007/BF02517618](https://doi.org/10.1007/BF02517618).
- 20 Bouchard J, Cassette P. MAC3: an electronic module for the processing of pulses delivered by a three photomultiplier liquid scintillation counting system[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2000, **52**(3): 669 - 672. DOI: [10.1016/S0969-8043\(99\)00228-6](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00228-6).
- 21 Allison J, Amako K, Apostolakis J, *et al.* Geant4 developments and applications[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2006, **53**(1): 270 - 278. DOI: [10.1109/TNS.2006.869826](https://doi.org/10.1109/TNS.2006.869826).
- 22 Agostinelli S, Allison J, Amako K, *et al.* GEANT4 - a simulation toolkit[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **506**(3): 250 - 303. DOI: [10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- 23 Papadopoulos C E, Yeung H. Uncertainty estimation and Monte Carlo simulation method[J]. *Flow Measurement and Instrumentation*, 2001, **12**(4): 291 - 298. DOI: [10.1016/S0955-5986\(01\)00015-2](https://doi.org/10.1016/S0955-5986(01)00015-2).