

γ 能谱级联符合相加效应校正技术 研究进展

樊元庆 李 奇 张新军 赵允刚 贾怀茂 张瑞芹 李芮莹
牛亚洲 王世联

(禁核试北京国家数据中心和北京放射性核素实验室 北京 100085)

摘要 使用 γ 谱仪近距离测量具有级联衰变关系的放射性核素时会不可避免地发生级联符合相加效应。级联符合相加效应会导致能谱中的全能峰计数变化,并产生干扰能谱分析的加和峰,从而影响 γ 能谱分析的准确性和效率,为此,国内外研究机构建立了多种方法和技术用于 γ 能谱级联符合相加效应的校正。本文在详细总结级联符合相加效应校正技术发展历程的基础上,对级联符合相加效应的产生机制、校正算法、校正软件、技术应用等进行了综述,并对不同校正算法和软件进行了比较。结合发展现状,对级联符合相加效应校正技术今后的研究方向提出了建议。

关键词 级联符合相加效应, γ 能谱, 加出效应, 加入效应

中图分类号 TL814

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.030001

Research progress on correction techniques for coincidence summing effect in γ -ray spectrometry

FAN Yuanqing LI Qi ZHANG Xinjun ZHAO Yungang JIA Huaimao ZHANG Ruiqin
LI Ruiying NIU Yazhou WANG Shilian

(CTBT Beijing National Data Centre and Beijing Radionuclide Laboratory, Beijing 100085, China)

Abstract As a passive nondestructive nuclear technique, gamma ray spectrometry is used in many radioactivity laboratories. Gamma-ray spectrometry enables the identification of radionuclides in a sample from their emitted photon energy and calculation of their activities from the number of photons collected for each energy. However coincidence summing effects will influence the reliability of both radionuclide identification and calculation of activity. Coincidence summing effects appear when sources emitting coincident gamma rays are measured via gamma-ray spectrometry. Those effects that result in losses from the full energy peaks and enhancement of sum peaks influence the accuracy of the spectral analysis. To eliminate this influence, many correction methods have been established. Research on the coincidence summing effect (CSE) originated in the 1960s. Subsequently, many algorithm-based generation mechanisms of CSE have been built together with the development of corresponding correction software. Massive amounts of technological information on and achievements about coincidence summing correction have been reported by researchers from different countries, hence several intercomparisons of these methods, and self-consistency testing of cascaded additive effect correction algorithm were organized by the

第一作者: 樊元庆, 男, 1980 年出生, 2022 年于军事科学院防化研究院获博士学位, 辐射防护及环境保护专业

通信作者: 王世联, E-mail: shilian.wang@nrl.org.cn

收稿日期: 2023-10-12, 修回日期: 2023-11-15

First author: FAN Yuanqing, male, born in 1980, graduated from Chemical Defense Research Institute of the Academy of Military Sciences with a doctoral degree in 2022, major in radiation protection and environmental protection

Corresponding author: WANG Shilian, E-mail: shilian.wang@nrl.org.cn

Received date: 2023-10-12, revised date: 2023-11-15

International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM). Based on a detailed summary of the development history of correction methods, the CSE mechanisms, correction algorithms, correction software, and application of correction techniques were reviewed in this paper. Cobalt-60 was taken as an example to illustrate the influence of the summing-in and summing-out effects, with correction equations based on different measurement geometries and considering the impact of angular correlations. Meanwhile, the performance of different algorithms and software were compared and analyzed. Combined with the current research status, some suggestions are presented for future research for domestic researchers on the coincidence summing effect correction. First, the efficiency must be accurately established for the geometrical conditions of the measurement. Second, the number of cascades in the algorithm must be taken into account owing to its influence on the results. Third, correction software with a user-friendly interface and database of accurate decay schemes should be developed.

Key words Coincidence summing effect, Gamma-ray spectrometry, Summing-out effect, Summing-in effect

作为放射性测量的主要方法之一, γ 能谱测量法在核科学、核医学、环境科学、天文学等研究领域得到了广泛应用。气体探测器、闪烁探测器和半导体探测器均可用 γ 射线测量。作为最早被发明的 γ 射线探测器, 气体探测器具有结构简单、造价低廉的优势, 但其探测效率低、平均电离能较大(约 30 eV), 通常只用于 γ 射线的强度测量, 不能获取 γ 能谱。20 世纪 50 年代初, NaI(Tl) 闪烁探测器的出现开创了近代 γ 射线的能谱学时代, 通过分析 NaI(Tl) 闪烁探测器获取的 γ 能谱可以确定样品中放射性核素种类和活度, 大大提高了放射性测量的水平^[1]。20 世纪 60 年代初发明的 Ge(Li) 探测器及随后出现的高纯锗 (HPGe) 探测器则因其卓越的能量分辨率和较大的能量响应范围, 使得放射性测量水平进一步提高, 在 γ 射线能量、发射概率、半衰期及样品活度等测量分析方面体现出明显的优势。

使用 γ 谱仪测量环境水平放射性样品时, 为提高探测效率, 通常将样品靠近探测器进行测量, 在这种测量条件下, 具有级联衰变关系的放射性核素在测量过程中会不可避免地发生级联符合相加效应 (Coincidence Summing Effect)。级联符合相加效应的发生会从两个方面增加能谱分析的难度: 1) 产生级联加和峰, 这些加和峰并非放射性核素的特征 γ 射线在探测器中沉积能量产生, 而是两条及以上的特征 γ 射线加和产生的, 这些加和峰会干扰样品中核素种类的确定; 2) 引起样品特征峰计数减少或增加, 这将严重影响样品中放射性核素活度计算的准确性。

为消除级联符合相加效应对 γ 能谱分析结果的影响, 自 20 世纪 60 年代以来, 国内外相关机构和人员开展了大量的研究工作, 建立了多种级联符合相加效应校正的方法, 编制了多款校正因子计算软件, 并组织了国际比对对这些方法和软件进行评估。本文拟在文献调研的基础上, 梳理 γ 能谱级联符合相

加效应校正技术的发展历程进行, 分析校正技术建立过程中遇到的问题, 通过比较现有技术, 为相关人员在 γ 能谱测量分析活动中选择合适的相关校正技术提供参考。

1 级联符合相加效应

20 世纪 60 年代, 伴随着能量分辨率更好的 Ge(Li) 探测器和 HPGe 探测器的发明和使用, 级联符合相加效应对 γ 能谱测量和分析的影响开始引起科研人员的注意。1968 年, Luukko 等^[2]使用 Ge(Li) 探测器测量 ^{22}Na 时, 在获取的 γ 能谱中观察到了能量为 1.785 MeV 的 γ 射线峰, 通过分析确定该峰不是 ^{22}Na 的特征 γ 射线峰, 而是 ^{22}Na 发射的正电子湮灭后产生的能量为 0.511 MeV 的光子与 ^{22}Na 能量为 1.274 MeV 的特征 γ 射线发生符合相加产生的加和峰, 这是 γ 谱仪的级联符合相加效应首次见诸文献报道。

1975 年, McCallum 等^[3]在标定 Ge(Li) 探测器效率时发现, 当标准源到探测器的距离发生变化, 多 γ 射线核素 ^{56}Na 和 ^{66}Ga 的相对峰计数率也随之变化, 而单能 γ 射线核素则不存在这一现象。McCallum 等分析后确认级联符合相加效应是导致这种情况的根本原因, 并从原理出发首次系统地总结了级联符合相加效应的对 γ 能谱的影响。

γ 谱仪能把两个探测信号区分开的最小时间间隔称之为系统的分辨时间, 通常用 τ 表示, 一般为 μs 量级。使用 γ 谱仪测量放射性核素时, 对于没有级联关系的 γ 射线, 它们入射到探测器与晶体相互作用的时间间隔通常大于 γ 谱仪分辨时间, γ 谱仪系统能够将它们因能量沉积而形成的信号区分开来并分别记录, 此时不发生级联符合相加效应。

图 1 为 ^{60}Co 衰变纲图, 可以看出, γ_1 和 γ_2 存在级联符合关系, 两者发射的时间间隔小于 1 ps, 远小于 γ 谱仪的分辨时间。它们进入探测器分别沉积能量

E_1 和 E_2 后形成的信号 S_1 和 S_2 不能被 γ 谱仪区分和分别记录,而是被 γ 谱仪系统识别成一个能量为 E_1+E_2 的信号 $S_{E_1+E_2}$ 进行记录,此即为 γ 谱仪级联符合相加效应形成的机制^[4]。

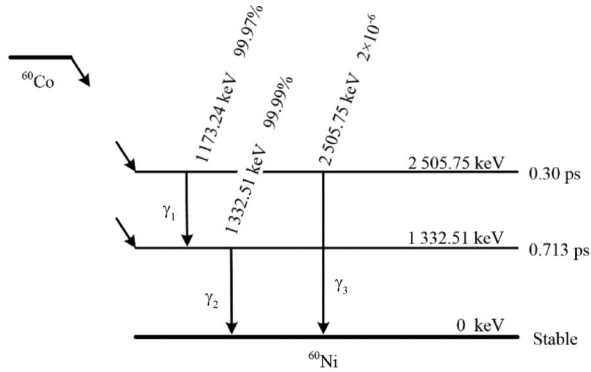


图1 ^{60}Co 衰变纲图
Fig.1 ^{60}Co decay scheme

设 γ_i 射线的特征能量为 E_i , γ_i 入射到探测器与晶体发生相互作用,将能量全部沉积在晶体中时记为 E_i^f ,将部分能量沉积在晶体中时记为 E_i^p ,McCallum等将级联符合相加产生的原因及其对 γ 能谱的影响总结为以下三种:

1) 在符合分辨时间内, γ_1 和 γ_2 均将全部能量沉积在探测器晶体中, γ_1 和 γ_2 的全能峰计数减少,能谱中产生新的能量为 $E_1^f + E_2^f$ 的加和峰,或者使得能谱中能量为 $E_1^f + E_2^f$ 的特征峰计数增加,称为加入效应(Summing-in Effect);

2) 在符合分辨时间内, γ_1 或 γ_2 将全部能量沉积在探测器晶体中,另一条 γ 射线沉积部分能量,能谱中产生能量为 $E_1^f + E_2^p$ 或 $E_1^p + E_2^f$ 的计数,这些计数在能谱中形成连续的基线,导致 γ_1 和 γ_2 的全能峰计数减小,通常称为加出效应(Summing-out Effect);

3) 在符合分辨时间内, γ_1 和 γ_2 均将部分能量沉积在探测器晶体中,能谱中产生能量为 $E_1^p + E_2^p$ 的计数,这些计数在能谱中形成连续的基线,不对能谱中的峰计数产生影响。

2 级联符合相加效应校正

2.1 点源的级联符合相加效应校正

为消除级联符合相加效应对 γ 能谱分析的影响,1972年,Andreev等^[5-6]最早给出了点源的级联符合相加效应校正因子(以下简称校正因子)的计算公式,并利用该式计算了Ge(Li)探测器测量两个不同位置处 ^{152}Eu 点源的校正因子。1975年,McCallum等^[3]对Andreev的计算公式进行了修正,使公式可用

于 β^- 衰变核素的湮灭光子引起符合相加效应校正。

1979年,Debertin等^[7]对Andreev的计算公式进行了改写,新公式直接以 γ 射线的发射概率作为变量,而不再引入 β 射线发射概率,使得级联符合相加效应校正因子的计算公式更加简洁明了,其中 ^{60}Co 三条 γ 射线的校正因子计算公式见式(1)~(3),式中 ε_1 、 ε_2 、 ε_3 为 γ_1 、 γ_2 和 γ_3 在探测器中的全能峰效率; ε_{t1} 、 ε_{t2} 为 γ_1 和 γ_2 的总效率; p_1 、 p_2 、 p_3 分别为 γ_1 、 γ_2 和 γ_3 的发射概率。

$$C_1 = \frac{1}{1 - \varepsilon_{t2}} \quad (1)$$

$$C_2 = \frac{1}{1 - \frac{p_1}{p_2} \varepsilon_{t1}} \quad (2)$$

$$C_3 = \frac{1}{1 + p_1 \varepsilon_1 \varepsilon_2 / (p_3 \varepsilon_3)} \quad (3)$$

Debertin等计算并实验测量了 ^{60}Co 、 ^{88}Y 和 ^{152}Eu 三种多 γ 射线核素的点源和马林杯样品的校正因子,结果表明,校正因子的计算值和实验测量值相对偏差小于1%。此外,Debertin等还基于已有校正因子计算方法开发了校正因子计算程序KORSUM^[7],并利用该程序计算了18种放射性核素的53条 γ 射线的校正因子。从校正因子计算结果可以看出,受级联符合相加效应的影响,一些 γ 射线(如 ^{140}La 能量为328.8 keV的 γ 射线)在 γ 能谱中的峰计数率“损失”甚至超过40%,如果不进行校正,而将这些峰计数用于活度计算,则无法得到正确的分析结果。

对于衰变纲图复杂的放射性核素,按照Andreev和Debertin的公式得到 γ 射线校正因子表达式也比较复杂,Semkow等^[8]巧妙地把核素的衰变参数、探测器的全能峰效率、探测器总效率分别用矩阵表示,从而把校正因子表示为矩阵运算的形式。校正因子的矩阵算法清晰简洁,易于进行程序设计,因此,在校正因子计算软件中广泛采用^[9-11]。

至此,在掌握产生机制、建立计算方法、编制计算程序和实验验证正确性的基础上,点源的级联符合相加效应校正技术基本建立,该校正技术建立后被广泛应用于 γ 谱仪的效率准确标定^[12-14],为放射性样品的准确测量奠定了基础。此外,为了在可接受的误差范围内快速得到校正因子,多种简化的或半经验的校正因子计算方法被建立起来,可在无法进行校正因子准确计算情况下使用^[15-17]。

2.2 体源的级联符合相加效应校正

利用 γ 谱仪进行环境水平放射性测量时,为提高样品探测效率,通常将大体积的样品(体源)靠近探测器进行测量,这种测量条件下必然发生级联符

合相加效应。虽然产生机制相同,但体源的级联符合相加效应校正比点源的更加复杂,自20世纪90年代以来,体源的级联符合相加效应校正一直是 γ 能谱分析技术的研究热点。

以 ^{60}Co 为例,体源的校正因子不能用式(1)~(3)计算,而需要用积分的方法进行分析。 γ 谱仪测量体源的情形如图2所示,体源可以被划分成一系列体积元 dV ,体积元足够小时可被视为点源,体积元发射的 γ_1 、 γ_2 和 γ_3 在探测器中的全能峰效率分别为 $\varepsilon_1(\mathbf{r})$ 、 $\varepsilon_2(\mathbf{r})$ 、 $\varepsilon_3(\mathbf{r})$, γ_1 和 γ_2 的总效率分别为 $\varepsilon_{11}(\mathbf{r})$ 、 $\varepsilon_{12}(\mathbf{r})$,则 ^{60}Co 三条 γ 射线的校正因子计算公式为式(4)~(6)^[7]。从式(4)~(6)可以看出,校正因子不仅与相关 γ 射线的能量有关,还与体积元的空间位置的有关。

$$C_1 = \frac{1}{1 - \frac{\int \varepsilon_1(\mathbf{r})\varepsilon_{12}(\mathbf{r})dV}{\int \varepsilon_1(\mathbf{r})dV}} \quad (4)$$

$$C_2 = \frac{1}{1 - \frac{\int \varepsilon_2(\mathbf{r})\varepsilon_{11}(\mathbf{r})dV}{\int \varepsilon_2(\mathbf{r})dV}} \quad (5)$$

$$C_3 = \frac{1}{1 - \frac{p_1 \int \varepsilon_1(\mathbf{r})\varepsilon_2(\mathbf{r})dV}{p_3 \int \varepsilon_3(\mathbf{r})dV}} \quad (6)$$

早在研究点源的级联符合相加效应时,Debertin等^[7]就曾用Ge(Li)探测器测量了1 L柱状体源内40个位置的点源全能峰效率和总效率,并将这些效率实验值代入式(4)~(6)计算得到了该柱状体源的校正因子。1989年,Debertin等^[18]又测量了1 L和0.25 L马林杯体源内36个位置的点源全能峰效率和总效率,并计算得到了马林杯体源校正因子。采用实验的方法确定校正因子时需要标定体源内多点位的效率,除涉及标准源的制备外还需进行数十次的测量,资金和时间成本较大,自Debertin后再未见有类似的研究工作。

随着计算机技术和蒙特卡罗仿真技术的发展,MCNP、GEANT和EGS等蒙特卡罗软件被用于体源校正因子的计算。利用蒙特卡罗软件计算体源校正因子的方法有两种:一种是计算得体积元内各点在探测器内的全能峰效率和总效率,然后将这些效率值代入公式计算得到校正因子^[19-21];另一种是通过仿真计算得到无级联符合效应的全能峰效率和存在级联符合相加效应的全能峰效率,两者之比即为校正因子^[22]。由体源校正因子的计算原理可知,图2中

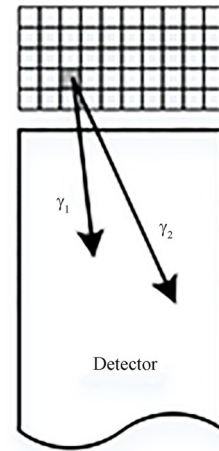


图2 体源测量示意图

Fig.2 Schematic of the volume source measurement

体积元 dV 划分越小,体积元数量越多,计算得到的校正因子越准确。这正是仿真计算的优势所在,在计算机算力允许的条件下,建模时通过调节参数实现体积元数量的增加,可有效提高校正因子计算的准确性,比对结果表明,体源校正因子的计算值和实验值偏差可控制在5%以内^[23]。

与点源类似,为了在可接受的误差范围内快速得到校正因子,多种简化的或半经验的体源校正因子计算方法被建立起来,在不具备体源校正因子准确计算的条件下,亦可实现 γ 能谱的体源级联符合相加效应校正^[24-26]。此外,Fan等^[27]和Sima等^[28]分别对反康普顿 γ 能谱的校正因子算法进行了研究,在成功利用反康普顿 γ 谱仪探测高灵敏度优势的基础上,提高了反康普顿 γ 能谱分析的准确性。

3 级联符合相加效应校正软件

作为 γ 能谱高精度分析必不可少的环节,级联符合相加效应校正日益受到国际相关研究机构的重视。通过测量标准源来确定校正因子依然是最准确可靠的方法,其用式(7)计算。

$$C = A \frac{\varepsilon p}{n} \frac{1}{D} \quad (7)$$

式中: C 为符合相加效应校正因子; A 为标准源活度; n 、 p 和 ε 分别为能谱中观察到的 γ 射线峰计数率、发射概率和峰效率; D 为衰变校正因子, $D = \frac{\lambda T_m e^{\lambda t}}{1 - e^{-\lambda T_m}}$ (T_m 为样品测量时间, t 为测量开始时刻至参比时刻的时间间隔, λ 为衰变常数)。

要通过实验的方法得到准确的校正因子就需要具备大量的标准源,这样不仅会引入较高的成本,而且有些核素的标准源不易获得。因此,相关研究机

构开发了一系列操作界面友好、使用方便的级联符合相加效应校正软件。这些校正软件的工作原理基本相同,通常先基于蒙特卡罗仿真技术计算得到探测器的峰效率和总效率,然后将这些效率值代入根据衰变纲图确定的校正因子计算公式中,即可得到相关 γ 射线校正因子。采用软件计算校正因子时避免了大量标准源的引入,但仿真计算得到的峰效率和总效率不确定度较大,因此,校正因子软件计算结果的不确定度通常比实验结果的大。

1979年,Debertin等^[7]为德国技术物理实验室(Physikalisch-Technische Bundesanstalt, PTB)开发的KORSUM是已知最早的校正因子计算程序。KORSUM可用于点源和体源校正因子的计算,计算时需要输入全能峰效率和总效率值,但该程序未提供仿真计算效率值的功能,全能峰效率和总效率值需通过实验标定获得。实验结果表明,当输入全能峰效率和总效率实验值时,KORSUM的校正因子计算值与实验值偏差小于1.5%。

芬兰辐射和核安全局(Säteilyturvakeskus, STUK)开发的CSCOR^[29]、法国原子能委员会(Commissariat à l'Energie Atomique, CEA)开发的ETNA^[30-31]、匈牙利Kossuth大学开发的TRUECOINC^[32]、比利时核研究中心(Belgian Nuclear Research Centre, SCK-CEN)开发的EFFTRAN^[33]等软件与KORSUM类似,在输入全能峰效率和总效率值后,可计算点源和体源的校正因子。

罗马尼亚布加勒斯特大学开发的GESPECOR^[34-36]、西班牙能源技术研究院开发的PENELope^[37]、美国CANBERRA公司开发的GENIE 2000^[38]、美国ORTEC公司开发的GammaVision^[39]、全面禁止核试验条约组织开发的VGSL^[40]、荷兰DSM公司研究中心开发的KAYZERO^[41]等软件具备效率计算功能,可通过仿真计算得到探测器的全能峰效率和总效率,并利用这些效率值计算校正因子。

为了评估级校正因子计算机软件的性能,国际放射性核素计量委员会(International Committee for Radionuclide Metrology, ICRM)于2010年至2012年组织了 γ 能谱级联符合相加效应校正算法国际比对^[42-43]。比对分两轮进行,第一轮比对内容为计算距探测器2 cm、5 cm和10 cm处的¹³⁴Cs和¹⁵²Eu点源的校正因子,共有15个实验室参加第一轮比对,这些实验室在比对中使用了包括KORSUM、GESPECOR在内的8款知名的校正因子计算软件,以及人工计算及半经验计算方法等4种其他算法。

第二轮比对内容为计算直径分别小于、等于和大于探测器直径的3种尺寸体源的校正因子,共有16个实验室参加第二轮比对,使用了10款校正因子计算软件和人工计算方法。比对结果表明,与体源相比,比对软件的点源校正因子计算结果与实验值符合较好,各软件校正因子计算结果的一致性也更好;使用效率实验值的软件计算结果好于使用效率仿真计算值的软件;KORSUM、GESPECOR和ETNA在比对中的总体表现较好。

为分析2010年至2012年比对中体源校正因子软件计算结果一致性稍差的原因,ICRM于2014~2016年组织了级联符合相加效应校正因子计算软件的一致性评估^[44-45]。评估结果表明,那些完全基于仿真技术、不使用实验结果和半经验方法的校正因子计算软件在使用相同的模型参数和核数据后,其校正因子计算结果的一致性较好。8款软件的校正因子计算结果与平均值之间的相对偏差,除个别稍大(最大值为3%)外,其他均小于1%。因此,评估小组认为模型参数的差异和使用不同的核数据是造成2010年至2012年比对中体源校正因子软件计算结果一致性稍差的重要原因。此外,ICRM还于2020年组织了级联符合相加效应校正算法的自恰性测试,以体源为测试目标对软件的校正因子算法进行评估,结果表明,绝大部分软件校正因子算法具有较好的自恰性,具备准确计算体源校正因子的能力^[46]。

在进行盲样 γ 能谱分析时,为避免遗漏样品中可能存在的核素,通常要为 γ 能谱中的每一个 γ 射线峰找到归属核素,而能谱中往往存在大量因加入效应产生的加和峰,由于这些加和峰不是由核素的特征 γ 射线形成的,利用现有核数据较难快速确定其归属核素。Fan等^[47]基于全面禁止核试验条约组织筹备委员会临时技术秘书处开发的AATAMI能谱分析软件,将放射性核素因加入效应产生的加和峰能量、发射概率等参数与特征 γ 射线参数一同写入该核素的特征 γ 射线数据库,利用该数据库实现了对 γ 能谱中加和峰来源的快速甄别,大大提高了盲样 γ 能谱的分析效率。

4 角关联的影响

原子核发射两个具有级联关系的 γ 光子时,光子的发射概率与这两个光子发射方向的夹角有关,这种现象称为级联 γ 辐射的方向角关联^[48]。以式(4)为例,式中 γ_1 的全能峰效率 $\varepsilon_1(\mathbf{r})$ 和 γ_2 的总效率 $\varepsilon_2(\mathbf{r})$ 是在未考虑两者存在角关联关系的情况下分别通过实验标定的,利用该式计算校正因子,即认为

γ_1 和 γ_2 的出射概率是 4π 立体角均匀且独立分布的,从物理原理上说这种假设是不合理的。

1975年, Mccallum等^[3]首先关注到角关联对级联符合相加效应校正的影响,并在校正因子计算公式中引入了“角关联因子” $\overline{w_{ij}}$ 来体现角关联对校正因子的影响。1977年, Gehrke等^[49]引入“角关联因子”后,详细推导了的各种级联符合情况下的校正因子计算公式。

对于 ^{60}Co 点源校正因子,在考虑角关联影响的情况下,式(1)~(3)改写为:

$$C_1 = \frac{1}{1 - \varepsilon_{12} \overline{w_{12}}} \quad (7)$$

$$C_2 = \frac{1}{1 - \frac{p_1}{p_2} \varepsilon_{11} \overline{w_{12}}} \quad (8)$$

$$C_3 = \frac{1}{1 + p_1 \varepsilon_1 \varepsilon_2 \overline{w_{12}} / (p_3 \varepsilon_3)} \quad (9)$$

式中: $\overline{w_{12}}$ 代表由于 γ_1 和 γ_2 存在角关联关系产生的影响^[50]。

同理,对于 ^{60}Co 体源校正因子,考虑角关联影响的情况下,式(4)~(6)改写为:

$$C_1 = \frac{1}{1 - \frac{\int \varepsilon_1(\mathbf{r}) \varepsilon_2(\mathbf{r}) \overline{w_{12}} dV}{\int \varepsilon_1(\mathbf{r}) dV}} \quad (10)$$

$$C_2 = \frac{1}{1 - \frac{\int \varepsilon_2(\mathbf{r}) \varepsilon_{11}(\mathbf{r}) \overline{w_{12}} dV}{\int \varepsilon_2(\mathbf{r}) dV}} \quad (11)$$

$$C_3 = \frac{1}{1 - \frac{p_1 \int \varepsilon_1(\mathbf{r}) \varepsilon_2(\mathbf{r}) \overline{w_{12}} dV}{p_3 \int \varepsilon_3(\mathbf{r}) dV}} \quad (12)$$

式中: $\overline{w_{ij}}$ 取值与 γ 射线的能量、原子核的能级状态、跃迁方式、放射源与探测器之间的相对位置有关。角关联对加出效应校正因子的影响通常较小,可以忽略(可认为 $\overline{w_{ij}}=1$),而对加入效应校正因子的影响较大^[51]。当放射源与探测器的距离从小到大变化时,角关联对校正因子的影响先变大后变小,即当放射源位于探测器表面或距离较远时(对点源大于25 cm),角关联对校正因子影响最小,当放射源位于中间位置时,角关联对校正因子的影响较大^[52]。Roteta等^[50]评估后认为角关联对校正因子的影响不大于0.8%;徐晨曦等^[53]的评估结果认为角关联的影响不大于2%。综上所述,相对于探测器全能峰效率和总效率值的引入的不确定度(3%),大多数情况

下,角关联对校正因子的影响是可以忽略的。

苏琼^[54]认为,在计算级联符合相加效应校正因子时,角关联对校正因子的影响可以忽略,但如果直接省略了角关联影响评估的环节,则计算得到校正因子理论上是不正确的,因此,描述校正因子计算过程时需对如何处理角关联的影响做出说明。

5 结语

国外针对级联符合相加效应校正开展了深入研究,通过分析级联符合相加效应的产生机制,确定了其影响 γ 能谱的方式,建立了不同测量条件下级联符合相加效应的校正算法,并基于这些算法开发了多种校正因子计算软件。一系列的比对、测试和评估等活动表明,利用这些软件可以较好地解决 γ 能谱受级联符合相加效应影响的难题。作为级联符合相加效应校正技术的关键环节,国内在探测器效率仿真计算方面开展了很多工作,但在校正算法方面的研究不足,校正因子计算软件性能与国外同类软件相比尚有差距。因此,建议从以下方面开展研究工作。

1)衰变纲图显示了放射性核素衰变时能级和射线的关系,是分析级联符合相加效应产生机制的依据,因此,应剖析常用放射性核素的衰变纲图并将其数字化,为确定校正因子算法和开发校正因子计算软件奠定基础。

2)校正因子是探测器全能峰效率和总效率的函数,效率值准确与否直接影响校正因子的准确性,因此,应深入开展仿真计算技术研究,进一步提高效率计算值的准确性,尤其是针对体源的和低能区的效率计算值。

3)在完成上述两点的基础上,设计开发功能界面友好、功能完备、结果准确的校正因子计算软件,并结合实验对其进行测试升级。

4)组织国内的级联符合相加效应校正技术比对,促进国内相关技术共同发展。

作者贡献说明 樊元庆负责提出写作思路、归纳写作材料并负责论文起草;李奇负责级联符合相加效应校正原理分析;张新军负责校正软件方面材料收集和总结;赵允刚负责点源校正技术总结;贾怀茂负责体源校正技术总结;张瑞芹负责点源校正技术材料收集;李芮莹负责体源校正技术材料收集;牛亚洲负责校正软件国际比对的总结;王世联负责审核、把关论文的科学性、严谨性。

参考文献

- 1 安继刚. 电离辐射探测器[M]. 北京: 原子能出版社, 1995.
AN Jigang. Ionizing radiation detector[M]. Beijing: Atomic Press, 1995.
- 2 Luukko A, Holmberg P. Coincident summing effects in Ge (Li) -detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1968, **65**(1): 121 - 122. DOI: [10.1016/0029-554X\(68\)90020-7](https://doi.org/10.1016/0029-554X(68)90020-7).
- 3 McCallum G J, Coote G E. Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with Ge(Li) spectrometers[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1975, **130**(1): 189 - 197. DOI: [10.1016/0029-554X\(75\)90173-1](https://doi.org/10.1016/0029-554X(75)90173-1).
- 4 Debertin K, Helmer R G. Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors[M]. Amsterdam: North-Holland, 1988.
- 5 Andreev D S, Erokina K I, Zvonov V S, *et al.* Consideration of cascade transition in determining the absolute yield of gamma rays[J]. Instruments and Experimental Techniques, 1972, **15**(5): 1358 - 1360.
- 6 Andreev D S, Erokina K I, Zvonov V S, *et al.* Determination of the γ -detection efficiency in energy peaks by means of nuclides having a complicated decay scheme in close-geometry conditions[J]. Izvestiia Akademii Nauk SSSR Seriiia Fiz, 1973, **37**(8): 1609.
- 7 Debertin K, Schötzig U. Coincidence summing corrections in Ge(Li) -spectrometry at low source-to-detector distances[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1979, **158**: 471 - 477. DOI: [10.1016/s0029-554x\(79\)94845-6](https://doi.org/10.1016/s0029-554x(79)94845-6).
- 8 Semkow T M, Mehmood G, Parekh P P, *et al.* Coincidence summing in gamma-ray spectroscopy[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1990, **290**(2 - 3): 437 - 444. DOI: [10.1016/0168-9002\(90\)90561-j](https://doi.org/10.1016/0168-9002(90)90561-j).
- 9 Schima F J, Hoppes D D. Tables for cascade-summing corrections in gamma-ray spectrometry[J]. International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1983, **34**(8): 1109 - 1114. DOI: [10.1016/0020-708X\(83\)90177-1](https://doi.org/10.1016/0020-708X(83)90177-1).
- 10 Morel J, Chauvenet B, Kadachi A. Coincidence-summing corrections in gamma-ray spectrometry for normalized geometries[J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1983, **34**(8): 1115 - 1122. DOI: [10.1016/0020-708X\(83\)90178-3](https://doi.org/10.1016/0020-708X(83)90178-3).
- 11 Korun M, Martinčič R. Coincidence summing in gamma and X-ray spectrometry[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1993, **325**(3): 478 - 484. DOI: [10.1016/0168-9002\(93\)90394-w](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90394-w).
- 12 Debertin K, Grosswendt B. Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1982, **203**(1 - 3): 343 - 352. DOI: [10.1016/0167-5087\(82\)90646-9](https://doi.org/10.1016/0167-5087(82)90646-9).
- 13 Debertin K, Peßara W. Calibration of high-purity germanium detectors in the energy range from 25 to 122 keV[J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1983, **34**(2): 515 - 517. DOI: [10.1016/0020-708X\(83\)90271-5](https://doi.org/10.1016/0020-708X(83)90271-5).
- 14 Blaauw M. The use of sources emitting coincident γ -rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1993, **332**(3): 493 - 500. DOI: [10.1016/0168-9002\(93\)90305-2](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90305-2).
- 15 Quintana B, Fernandez F. An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 1995, **46**(9): 961 - 964. DOI: [10.1016/0969-8043\(95\)00182-D](https://doi.org/10.1016/0969-8043(95)00182-D).
- 16 Kafala S I. Simple method for true coincidence summing correction[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1995, **191**(1): 105 - 114. DOI: [10.1007/BF02035990](https://doi.org/10.1007/BF02035990).
- 17 De Felice P, Angelini P, Fazio A, *et al.* Fast procedures for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2000, **52**(3): 745 - 752. DOI: [10.1016/S0969-8043\(99\)00239-0](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00239-0).
- 18 Debertin K, Ren J P. Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli beakers[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1989, **278**(2): 541 - 549. DOI: [10.1016/0168-9002\(89\)90877-2](https://doi.org/10.1016/0168-9002(89)90877-2).
- 19 Nakamura T, Suzuki T. Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1983, **205**(1 - 2): 211 - 218. DOI: [10.1016/0167-5087\(83\)90191-6](https://doi.org/10.1016/0167-5087(83)90191-6).
- 20 Sima O. Monte Carlo simulation versus semiempirical calculation of autoabsorption factors for semiconductor detector calibration in complex geometries[J]. Progress in

- Nuclear Energy, 1990, **24**(1 - 3): 327 - 336. DOI: [10.1016/0149-1970\(90\)90052-7](https://doi.org/10.1016/0149-1970(90)90052-7).
- 21 Haase G, Tait D, Wiechen A. Monte Carlo simulation of several gamma-emitting source and detector arrangements for determining corrections of self-attenuation and coincidence summation in gamma-spectrometry[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1993, **329**(3): 483 - 492. DOI: [10.1016/0168-9002\(93\)91284-t](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)91284-t).
- 22 Décombaz M, Gostely J J, Laedermann J P. Coincidence-summing corrections for extended sources in gamma-ray spectrometry using Monte Carlo simulation[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1992, **312**(1 - 2): 152 - 159. DOI: [10.1016/0168-9002\(92\)90146-u](https://doi.org/10.1016/0168-9002(92)90146-u).
- 23 Agarwal C, Chaudhury S, Goswami A, *et al.* True coincidence summing corrections in point and extended sources[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2011, **289**(3): 773 - 780. DOI: [10.1007/s10967-011-1126-7](https://doi.org/10.1007/s10967-011-1126-7).
- 24 Kolotov V P, Koskelo M J. Testing of different true coincidence correction approaches for gamma-ray spectrometry of voluminous sources[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1998, **233**(1): 95 - 100. DOI: [10.1007/BF02389653](https://doi.org/10.1007/BF02389653).
- 25 Dryak P, Kovar P, Suran J R. Determination of corrections to true summations of photons for measurements in Marinelli beakers[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2002, **56**(1 - 2): 111 - 116. DOI: [10.1016/S0969-8043\(01\)00175-0](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00175-0).
- 26 Shizuma K, Oba Y, Takada M. A practical method for determining γ -ray full-energy peak efficiency considering coincidence-summing and self-absorption corrections for the measurement of environmental samples after the Fukushima reactor accident[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2016, **383**: 183 - 190. DOI: [10.1016/j.nimb.2016.06.019](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2016.06.019).
- 27 Fan Y Q, Wang J, Wang S L, *et al.* The coincidence-summing correction of the Compton-suppression spectrometer[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2012, **70**(9): 2124 - 2126. DOI: [10.1016/j.apradiso.2012.02.072](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2012.02.072).
- 28 Sima O, Osvath I. Calibration of a low-level anti-Compton underground gamma-spectrometer by experiment and Monte Carlo[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2013, **81**: 109 - 113. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.03.025](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.025).
- 29 Sinkko K, Aaltonen H. Calculation of the true coincidence summing correction for different sample geometries in gamma-ray spectroscopy[R]. Helsinki: Centre for Radiation and Nuclear Safety, Surveillance Department, 1985.
- 30 Piton F, Lépy M C, Bé M M, *et al.* Efficiency transfer and coincidence summing corrections for γ -ray spectrometry [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2000, **52**(3): 791 - 795. DOI: [10.1016/S0969-8043\(99\)00246-8](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00246-8).
- 31 Lépy M C, Brun P, Collin C, *et al.* Experimental validation of coincidence summing corrections computed by the ETNA software[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2006, **64**(10 - 11): 1340 - 1345. DOI: [10.1016/j.apradiso.2006.02.042](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.02.042).
- 32 Sudár S. 'TRUECOINC' a software utility for calculation of the true coincidence correction, in the specialized software utilities for gamma spectrometry[R]. International Atomic Energy Agency Report, Vienna: IAEA-1275, 2002: 37 - 38.
- 33 Vidmar T, Kanisch G, Vidmar G. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2011, **69**(6): 908 - 911. DOI: [10.1016/j.apradiso.2011.02.042](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2011.02.042).
- 34 Sima O, Arnold D. Accurate computation of coincidence summing corrections in low level gamma-ray spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2000, **53**(1 - 2): 51 - 56. DOI: [10.1016/S0969-8043\(00\)00113-5](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(00)00113-5).
- 35 Sima O, Arnold D, Dovlete C. GESPECOR: a versatile tool in gamma-ray spectrometry[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2001, **248**(2): 359 - 364. DOI: [10.1023/A:1010619806898](https://doi.org/10.1023/A:1010619806898).
- 36 Sima O, Arnold D. A tool for processing decay scheme data that encompasses coincidence summing calculations [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2008, **66**(6 - 7): 705 - 710. DOI: [10.1016/j.apradiso.2008.02.007](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2008.02.007).
- 37 Vargas A, Camp A, Serrano I, *et al.* Coincidence summing corrections for volume samples using the PENELOPE/penEasy Monte Carlo code[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, **87**: 376 - 379. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.11.057](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.057).
- 38 Zhu H, Venkataraman R, Mueller W, *et al.* X-ray true coincidence summing correction in Genie 2000[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, **67**(5): 696 - 700. DOI: [10.1016/j.apradiso.2009.01.013](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.01.013).
- 39 Keyser, Ronald M, Haywood, *et al.* Performance of the True Coincidence Correction Method in GammaVision[R/OL]. (2002-07-01)[2023-10-23]. <https://www.ortec-online>.

- com/-/media/ametektortec/technical-papers/advances-in-analysis-software/performance-true-coincidence-correction-method-gammavision.pdf? la=en&revision=8d7660b3-27f0-4e5a-9103-219469dcf4e0&hash=1FC36B84ED5A365CC52FEB5A73DEA0F9.
- 40 Karhu P, De Geer L E, McWilliams E, *et al.* Proficiency test for gamma spectroscopic analysis with a simulated fission product reference spectrum[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2006, **64**(10 - 11): 1334 - 1339. DOI: 10.1016/j.apradiso.2006.02.041.
- 41 Kubešová M, Kučera J. Comparison of Kayzero for Windows and k_0 -IAEA software packages for k_0 -standardization in neutron activation analysis[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2011, **654**(1): 206 - 212. DOI: 10.1016/j.nima.2011.06.097.
- 42 Lépy M C, Altitzoglou T, Anagnostakis M J, *et al.* Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2010, **68**(7 - 8): 1407 - 1412. DOI: 10.1016/j.apradiso.2010.01.012.
- 43 Lépy M C, Altitzoglou T, Anagnostakis M J, *et al.* Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry—Part II (volume sources)[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2012, **70**(9): 2112 - 2118. DOI: 10.1016/j.apradiso.2012.02.079.
- 44 Vidmar T, Capogni M, Hult M, *et al.* Equivalence of computer codes for calculation of coincidence summing correction factors[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, **87**: 336 - 341. DOI: 10.1016/j.apradiso.2013.11.045.
- 45 Vidmar T, Camp A, Hurtado S, *et al.* Equivalence of computer codes for calculation of coincidence summing correction factors - Part II[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2016, **109**: 482 - 486. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.11.071.
- 46 Sima O, De Vismes Ott A, Dias M S, *et al.* Consistency test of coincidence-summing calculation methods for extended sources[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2020, **155**: 108921. DOI: 10.1016/j.apradiso.2019.108921.
- 47 Fan Y Q, Li Q, Zhao Y G, *et al.* Application of the coincidence summing-in peaks in spectrum analysis of CTBT Proficiency test exercises sample[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2021, **1010**: 165507. DOI: 10.1016/j.nima.2021.165507.
- 48 卢希庭. 原子核物理[M]. 北京: 原子能出版社, 2000. LU Xiting. Nuclear physics[M]. Beijing: Atomic Press, 2000.
- 49 Gehrke R J, Helmer R G, Greenwood R C. Precise relative γ -ray intensities for calibration of Ge semiconductor detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1977, **147**(2): 405 - 423. DOI: 10.1016/0029-554X(77)90276-2.
- 50 Roteta M, García-Toraño E. An evaluation of the influence of γ - γ angular correlation on the coincidence-summing corrections in γ -ray spectrometry[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1996, **369**(2 - 3): 665 - 670. DOI: 10.1016/S0168-9002(96)80072-6.
- 51 Hager W W IV, Krane K S. The angular correlation factor in gamma-ray coincidence summing[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2020, **976**: 164239. DOI: 10.1016/j.nima.2020.164239.
- 52 Courtine F, Sanzelle S, Pilleyre T, *et al.* Calibration of a germanium well-detector using ^{60}Co : the effects of the angular correlation of the two gamma rays emitted in cascade, quantified with Monte Carlo simulations[J]. Radiation Measurements, 2014, **61**: 78 - 82. DOI: 10.1016/j.radmeas.2013.11.007.
- 53 徐晨曦, 倪建忠, 余功硕, 等. 利用 Geant4 模拟计算角关联对 HPGe 探测器符合相加效应的影响[J]. 现代应用物理, 2019, **10**(1): 3 - 9. DOI: 10.12061/j.issn.2095-6223.2019.010201.
- XU Chenxi, NI Jianzhong, YU Gongshuo, *et al.* Simulation of the angular correlation impact on HPGe detector coincidence summing effect by Geant4[J]. Modern Applied Physics, 2019, **10**(1): 3 - 9. DOI: 10.12061/j.issn.2095-6223.2019.010201.
- 54 苏琼. γ 谱分析中的 γ - γ 级联辐射的符合相加校正方法简介与评价[J]. 核技术, 2000, **23**(10): 746 - 752. SU Qiong. Simple introduction and evaluation about correction methods of coincidence summing effect of γ - γ cascade radiation in γ spectrometry[J]. Nuclear Techniques, 2000, **23**(10): 746 - 752.