

以 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合计数法及 $4\pi\gamma$ 计数法测量 ^{133}Ba 溶液比活度

孟令泽^{1,2}, 田业辉^{1,2}, 朱保吉^{1,2}, 夏文^{1,2}

(1. 中国原子能科学研究院, 北京 102413;

2. 计量与校准技术国家级重点实验室, 北京 102413)

摘要: ^{133}Ba 是一种 EC 衰变的 γ 射线源核素, 常用于 HPGe- γ 能谱仪的校准。随着近年来放射性活度测量需求激增, 需要建立一种快速、准确的 ^{133}Ba 活度测量方法。利用 $4\pi\beta(\text{PC})\text{-}\gamma(\text{NaI})$ 符合活度标准装置、 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置和 $4\pi\gamma$ 高压电离室, 开展 ^{133}Ba 活度测量方法研究, 通过 MC 模拟无源效率校准的 $4\pi\gamma$ 活度测量装置能否用于 ^{133}Ba 溶液比活度测量。以 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置测量 ^{133}Ba 溶液比活度, 得到参考值为 614.0 kBq/g, 相对扩展不确定度 ($k=2$) 为 1.5%; 基于 MC 模拟得到 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置对 ^{133}Ba 点源的探测效率为 98.5%, 相应 ^{133}Ba 溶液比活度测量值为 606.1 kBq/g, 相对扩展不确定度 ($k=2$) 为 0.93%; 基于 NPL 实验室的标准量值, 以 $4\pi\gamma$ 高压电离室给出的 ^{133}Ba 溶液比活度验证值为 611.0 kBq/g, 相对扩展不确定度 ($k=2$) 为 1.3%。测量值与验证值的 $|E_n|$ 值分别为 0.73 与 0.25, 均小于 1, 可以认为三种测量方法的结果在不确定度范围内保持一致。结果表明, 以基于 MC 模拟的无源效率校准结合 $4\pi\gamma$ 活度测量装置对 ^{133}Ba 进行活度定值可行、可靠, 可免去 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 标准装置必须的制备薄膜源与效率外推等复杂流程。

关键词: ^{133}Ba ; 放射性活度绝对测量; $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合; 井型 NaI

中图分类号: TL84

文献标志码: A

文章编号: 1000-7512(2025)02-0162-08

doi: 10.7538/tws.2022.youxian.110

The Specific Activity Measurement of ^{133}Ba Solution by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence Counting Method and $4\pi\gamma$ Counting Method

MENG Lingze^{1,2}, TIAN Yehui^{1,2}, ZHU Baoji^{1,2}, XIA Wen^{1,2}

(1. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

2. National Key Laboratory for Metrology and Calibration Techniques, Beijing 102413, China)

Abstract: ^{133}Ba is an EC-decay γ -ray source nuclide, which is often used in the calibration of HPGe- γ spectrometer. With the rapid increase in demand for radioactive activity measurement in recent years, it is necessary to establish a fast and accurate ^{133}Ba activity measurement method. Using $4\pi\beta(\text{PC})\text{-}\gamma(\text{NaI})$ coincidence activity standard measurement device, $4\pi\gamma$ well-type NaI activity measurement device and $4\pi\gamma$ high pressure ionization chamber, the ^{133}Ba activity measurement method was studied to confirm whether the $4\pi\gamma$ activity measurement device, which is calibrated passively by MC simulation, can be used to measure the specific activity of ^{133}Ba solution. The

specific activity of ^{133}Ba solution was measured by the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence activity standard measurement device, and the reference value obtained was 614.0 kBq/g, with a relative expanded uncertainty ($k=2$) of 1.5%. Based on MC simulation, the detection efficiency of ^{133}Ba point source by $4\pi\gamma$ well-type NaI activity measurement device is 98.5%, and the measured value of specific activity of ^{133}Ba solution was 606.1 kBq/g, with a relative expanded uncertainty ($k=2$) of 0.93%. Based on the standard values from the NPL, the specific activity verified value of ^{133}Ba solution given by a $4\pi\gamma$ high-pressure ionization chamber was 611.0 kBq/g, with a relative expanded uncertainty ($k=2$) of 1.3%. The $|E_n|$ of the measured value and the verified value are 0.73 and 0.25 respectively, both of which are less than 1. It can be considered that the results of all three measurement methods were consistent within the uncertainty range. Therefore, it is feasible and reliable to get the specific activity value of ^{133}Ba solution by using the passive efficiency calibration based on MC simulation combine with the $4\pi\gamma$ well-type NaI activity measurement device, which can avoid the complicated process of film sources preparation and efficiency data extrapolation which are necessary for the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence activity standard measurement device.

Key words: ^{133}Ba ; radioactivity absolute measurement; $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence; well-type NaI

^{133}Ba 通过 100% 的电子俘获 (electron capture, EC) 过程衰变为子体 ^{133}Cs ^[1], 并在大部分情况下放出能量在 53~384 keV 的级联 γ 射线 (分支比 >99.9%)^[2]; 若考虑 EC 衰变及内转换 (Internal Conversion, IC) 效应产生的 30~40 keV 的 X 射线及符合相加效应, 其全谱的能量峰将集中在 30~480 keV 的低能区间。由于 ^{133}Ba 的半衰期较长 ($T_{1/2}=10.54$ a), 特征 γ 射线种类少、能量低^[3-5], 常作为低能段的代表性核素用于 HPGe- γ 能谱仪的效率校准与能量校准^[6]; 且由于其与高需求医用核素 ^{131}I 的能谱相近, 也常作为替代核素用于制备相应的传递标准源^[7]。随着近年来利用 HPGe- γ 能谱仪进行放射性活度测量的需求不断增加, 对 ^{131}I 替代核素标准源的需求也不断攀升, ^{133}Ba 标准溶液制备中的比活度测量需要在保持准确性的情况下更加快速、高效的进行。本研究利用 $4\pi\beta(\text{PC})\text{-}\gamma(\text{NaI})$ 符合活度标准装置、 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置与 $4\pi\gamma$ 高气压

电离室等活度测量装置, 通过测量 ^{133}Ba 放射性核素溶液的比活度, 对 ^{133}Ba 的活度定值方法进行研究; 同时验证以蒙特卡罗 (Monte Carlo, MC) 模拟进行无源效率校准得到的 $4\pi\gamma$ 活度测量装置对 ^{133}Ba 点源探测效率的准确度, 为后续工作中实现准确、快速的 ^{133}Ba 活度定值奠定基础。

1 装置与原理

1.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置

$4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置由 $4\pi\beta$ 正比计数器和位于其上下的两个 NaI(Tl)- γ 射线探测器组成, β 正比计数器的工作气体为氩甲烷, 测量对象为将放射性溶液滴加在喷涂硅胶并蒸金的 VYNS 型树脂膜上制成的薄膜源, 源斑直径 2~3 mm^[8]。

该装置构成示于图 1, 主要测量方法为 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法, 该绝对测量方法适用于 $\beta\text{-}\gamma$ 级联核素,

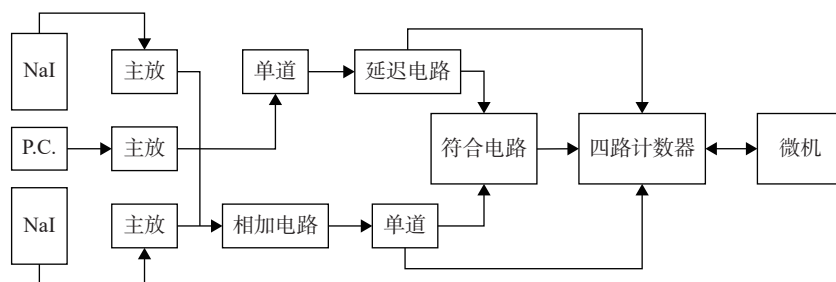


图 1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置构成

Fig.1 The block diagram of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence activity standard measurement device

对放出俄歇电子与 X 射线并伴有级联 γ 的 ^{133}Ba 核素同样适用^[9-12]。

由符合法的基本原理, 设 $\rho(v)$ 是单位体积内放射源的活度, $\varepsilon_\beta(v)$ 为 β 探测器对源放出的 β 射线的探测效率, $\varepsilon_\gamma(v)$ 为 γ 探测器对源放出的 γ 射线的探测效率, 后两者是放射源体积元 dv 的函数。在理想的典型的 β - γ 级联条件下, β - γ 符合探测器的三道计数率分别为:

$$n_{\beta 0} = \int \rho(v) \varepsilon_\beta(v) dv \quad (1)$$

$$n_{\gamma 0} = \int \rho(v) \varepsilon_\gamma(v) dv \quad (2)$$

$$n_{co} = \int \rho(v) \varepsilon_\beta(v) \varepsilon_\gamma(v) dv \quad (3)$$

式中: $n_{\beta 0}$ 、 $n_{\gamma 0}$ 、 n_{co} 分别为 β 道、 γ 道、符合道的计数率(理想环境忽略本底, 实际为净计数率), s^{-1} 。由此可以得到:

$$\frac{n_{\beta 0} n_{\gamma 0}}{n_{co}} = \frac{\int \rho(v) \varepsilon_\beta(v) dv \times \int \rho(v) \varepsilon_\gamma(v) dv}{\int \rho(v) \varepsilon_\beta(v) \varepsilon_\gamma(v) dv} \quad (4)$$

当两个探测器中的一个对放射源各点的探测效率都相等时(对源斑直径在 mm 量级的薄膜源, $4\pi\beta$ 计数器与 γ 探测器均可近似满足条件), 上式简化为:

$$\frac{n_{\beta 0} n_{\gamma 0}}{n_{co}} = \int \rho(v) dv = A_0 \quad (5)$$

式(5)中 A_0 为放射源的活度, Bq。

在式(5)基础上, 引入①本底修正、②符合分辨时间修正、③IC 电子修正、④ β 探测器对 γ 射线灵敏度修正、⑤ β 探测器对 γ 射线灵敏度及 IC 电子综合修正、⑥死时间修正。该部分推导内容及细节说明较多, 详见文献[13], 这里给出考虑上述 6 项修正的最终结果:

$$A_0 = \frac{(n_\beta - n_{\beta b})(n_\gamma - n_{\gamma b})[1 - \tau_R(n_\beta + n_\gamma)]}{(n_c - 2\tau_R n_\beta n_\gamma)(1 - n_{co} t_D)} \left[1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \frac{1}{1 + \alpha} \left(\varepsilon_\beta \gamma - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma} + \alpha \varepsilon_{ce} \right) \right] \quad (6)$$

式中: n_β 为 β 道计数率, $n_{\beta b}$ 为 β 道本底计数率, n_γ 为 γ 道计数率, $n_{\gamma b}$ 为 γ 道本底计数率; n_c 为符合道计数率, $n_{co} = \frac{n_c - 2\tau_R n_\beta n_\gamma}{1 - \tau_R(n_\beta + n_\gamma)}$ 为真符合计数率; τ_R 为分辨时间, t_D 为死时间; ε_β 、 ε_γ 、 ε_c 分别为 β 道、 γ 道、符合道的计数效率, α 为内转

换系数, $\varepsilon_{\beta\gamma}$ 为 β 探测器对 γ 射线灵敏引起的探测效率, ε_{ce} 为 β 探测器对 IC 电子探测的效率。所有计数率单位 s^{-1} , 时间单位 s 。

在 τ_R 及 t_D 足够小、本底屏蔽良好的情况下 ($4\pi\beta$ - γ 符合活度标准装置的 $\tau_R=1 \mu s$ 、 $t_D=4 \mu s$, 满足这一条件), 式(6)分数线左侧的部分将回到与式(5)等号左侧一致的状态; 在使用 $4\pi\beta$ 探测器的情况下, $\varepsilon_\beta \rightarrow 1$, 式(6)分数线右侧的部分将被消去。此时整个式(6)将回归式(5), 实验无法直接测得的变量将被简化。

以上是 β - γ 符合法的理论基础, 在实际测量中一般结合 β 效率外推法^[13]。将式(6)分数线左侧化简后调整形式, 形成式(7):

$$\frac{n_{\beta 0} n_{\gamma 0}}{n_{co}} = A_0 \cdot \left[1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \cdot \frac{1}{1 + \alpha} \left(\varepsilon_\beta \gamma - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma} + \alpha \varepsilon_{ce} \right) \right] \quad (7)$$

设一组新函数 $[y = \frac{n_{\beta 0} n_{\gamma 0}}{n_{co}}, x = \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}]$, 通过在实验中改变 ε_β 并产生多组 (x, y) 值, 形成函数曲线; 在该曲线上通过拟合外推使 $x \rightarrow 0$ 、 $\varepsilon_\beta \rightarrow 1$, 此时外推值 $y = \frac{n_{\beta 0} n_{\gamma 0}}{n_{co}} \rightarrow A_0$, 由此得到待测源活度, 进一步计算得到 ^{133}Ba 溶液比活度的参考值。

1.2 $4\pi\gamma$ 井型 NaI(Tl) 活度测量装置

$4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置由井型 NaI 探测器、高压电源、前置放大器、多道计数器和用于分析的计算机组成。井型 NaI 是常用的固体闪烁体探测器, 主体由 NaI(Tl) 晶体加工而成; 其能量分辨率略差, 但对 γ 射线的阻止能力与探测效率极佳, 配合井型结构对密封点源或少量放射性溶液等待测源形成接近 4π 的立体角, 满足 $4\pi\gamma$ 计数法的实行条件。对本次研究使用的 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置, 其探测器晶体尺寸 $\phi 150 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$, 井尺寸 $\phi 20 \text{ mm} \times 85 \text{ mm}$, MgO 反射层厚度 $2 \sim 5 \text{ mm}$, 铝壳厚度 $2 \sim 5 \text{ mm}$ 。

$4\pi\gamma$ 计数法是一种原理简明的放射性活度测量方法, 适用于级联 γ 核素或正电子核素等高 γ 射线发射率放射源的活度测量, ^{133}Ba 属于前者^[14-15]。对立体角接近 4π 的 γ 探测器, 其全谱净计数率 n_0 将接近放射源的 γ 射线发射率 N_0 ; 在已知 N_0 的情况下, 由衰变纲图(包括分支比和 IC 系数)即可得到源的放射源活度 A_0 。探测器的源探测效率 $\varepsilon_s = n/N_0$, 纳入衰变纲图相关常量后的探测效率 $\varepsilon = n/A_0$; 由于探测效率与放

射源及探测器的众多性质参数相关,需要通过校准获取 ε 或 ε_{c} 。

本次研究中对 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置采用无源效率校准,即借助计算机模拟程序以 MC 方法计算相应探测器对放射源的探测效率,使用的软件程序包及版本为 Geant4 ver.11.2.1^[16]。MC 方法的核心思路是以大量随机过程的发生几率逼近事件概率,与核探测过程的契合度很好,在该领域应用广泛。无源效率校准的优势是无需进行实体操作,免去了放射源制备的诸多问题,并因此在需要反复微调与执行的情境下能够快速、高效地解决问题,与本研究背景需求一致。

通过在 Geant4 中完成对探测器的几何建模与材质模拟,并在与现实对应的几何位置创建初始粒子,再以程序包内置函数跟踪记录粒子的衰变过程及探测结果,可以实现对探测效率的模拟计算,以此获取 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置对 ^{133}Ba 点源的 γ 全谱探测效率 ε_{NaI} 。

完成效率校准后进行实际测量。以在 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置上完成测量的 ^{133}Ba 溶液制备 ^{133}Ba 点源,并使用 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置对其 γ 全谱计数 N 进行测量;测量完毕后经死时间修正、本底扣除等数据处理后得到放射源净计数率 N_0 ,则 ^{133}Ba 点源活度 $A_0 = N_0/\varepsilon_{\text{NaI}}$,进一步计算可得 ^{133}Ba 溶液比活度测得值。

1.3 $4\pi\gamma$ 高气压电离室

$4\pi\gamma$ 高气压电离室是一种常见的放射性活度测量装置,依靠测量 γ 射线产生的平均电离电流来测定放射源的活度,将其与电子学及软件高度集成化的产品即为活度计;由于其简单的工作原理与优秀的长期稳定性,常用于次级标准的保存与传递^[17]。本次使用的 $4\pi\gamma$ 高气压电离室保存了来自英国国家物理实验室(National Physical Laboratory, NPL)的标准量值,可用于对上述三种装置得到的活度值进行第三方比对,以确保测量结果和研究结论的可信度。

对某一固定的电离室,其测量活度的原理可由公式 $A = IK$ 描述。其中: A 为某一种核素的放射源活度; I 为该放射源的平均电离电流,与 A 成正比; K 为该核素此类放射源的校准因子,和 γ 射线的能量、发射率及电离室自身性能参数有关。对指定核素种类与形式的放射源,

同一电离室的 K 值固定;只要使用相应的标准源进行校准并由软件记录 K 值,即可实现标准量值的保存与传递。

将在 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置上完成测量的 ^{133}Ba 溶液按 NPL 标准的要求装瓶形成溶液源,用载入了 NPL 标准校准系数的 $4\pi\gamma$ 高气压电离室对其进行测量,即可获取 ^{133}Ba 溶液源活度,进一步计算得到 ^{133}Ba 溶液比活度的验证值。

2 实验方法

2.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置

待测的 ^{133}Ba 放射性核素溶液由活度值较高的原始 ^{133}Ba 溶液按制源要求的比活度(约 500 kBq/g)稀释得到,并分装于安瓿瓶内。所有 3 种测量方法中制源所用的 ^{133}Ba 溶液均出自这一来源,相应溶液比活度的真实值应当一致。

制备 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置需要的薄膜源。采用十万分之一精度的微量天平,以差重法准确称取 ^{133}Ba 溶液的质量,将其滴加在喷涂硅胶的蒸金 VYNS 树脂薄膜上,晾干后形成源斑直径 2~3 mm 的薄膜源;在相同条件与流程下,制备的薄膜源数量为 10 枚。

在完成开机预热及本底测量后,使用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置对薄膜源依次进行测量,工作条件设置为: $4\pi\beta$ 正比计数器高压 2 650 V,两台 NaI(Tl)探测器高压均 700 V,系统的死时间 $t_D(\beta)=t_D(\gamma)=4 \mu\text{s}$,符合分辨时间 $\tau_R=1 \mu\text{s}$,每个源的测量时间为 300 s,系统将记录三台探测器测得的能谱数据。测量完毕后进行数据处理,通过在计算过程中改变 β 道甄别阈的方法给出不同 ε_β 下的各道计数,得到效率外推法所需多组数据;完成外推计算后得到薄膜源的活度,综合分析全部 10 枚薄膜源的活度与所用溶液质量后给出 ^{133}Ba 溶液的比活度参考值,并进行不确定度评定。

2.2 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置

制备 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置所需的密封点源。以差重法称取 ^{133}Ba 溶液,将其滴加在圆形塑料承托膜中央待晾干后塑封,制成源斑直径 1~2 mm 的密封点源,共制备 3 枚。

借助 Geant4 程序包,依据井型 NaI 探测器加工过程中的实测数据构筑探测器主体的物理

模型; 实体数据见 1.2 节内容, 模型示于图 2。在晶体中轴井底上方 0.2 mm 位置设置 ^{133}Ba 点源, 初始粒子数共 10^8 个, 截止能量 10 keV; 通过分析模拟程序的输出数据, 可以得到该装置对 ^{133}Ba 点源的 γ 全谱探测效率的无源效率校准结果 (也即 MC 方法给出的模拟值)。

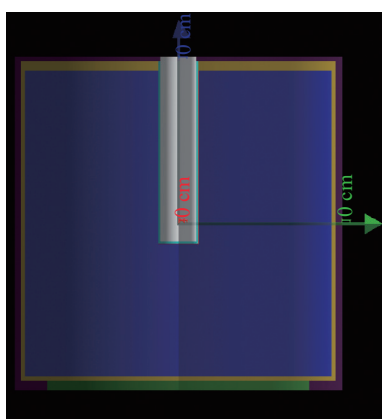


图 2 井型 NaI 探测器的可视化 Geant4 物理模型
Fig.2 The visual Geant4 physical model of well-type NaI detector

在完成开机预热及本底测量后, 使用 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置对 ^{133}Ba 点源依次进行测量, 探测器的工作电压为 650 V。测量系统将记录测得 γ 能谱数据, 并给出截止能量 10 keV 以上的 γ 全谱计数; 经数据处理得到 γ 全谱计数率, 结合 MC 模拟给出的 γ 全谱探测效率算得 ^{133}Ba 点源活度, 综合 3 枚点源活度测量结果及所用溶液质量算得 ^{133}Ba 溶液的比活度测得值, 并进行不确定度评定。

2.3 $4\pi\gamma$ 高气压电离室

根据 NPL 标准值要求的 ^{133}Ba 源溶液形式, 取定量 ^{133}Ba 溶液置入西林瓶中密封形成溶液源, 同时以差重法获取其对应质量。启动内置 NPL 标准值的 $4\pi\gamma$ 高气压电离室, 完成开机预热及本底测量后, 将溶液源置入并测量其活度值; 结合溶液质量, 得到 ^{133}Ba 溶液比活度的验证值, 其不确定度由 NPL 标准值不确定度及溶液称重不确定度合成得到。

2.4 测量结果比较

在得到 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置给出的参考值、 $4\pi\gamma$ 活度测量装置给出的测量值、 $4\pi\gamma$ 高气压电离室给出的验证值及三者的不确定度后, 使用式(8)计算测量值及验证值相对于参考

值的 E_n 值:

$$E_n = \frac{x_{lab} - x_{ref}}{\sqrt{U_{lab}^2 + U_{ref}^2}} \quad (8)$$

式中: x_{lab} 为被验值 (这里为测得值与验证值), x_{ref} 为参考值, U_{lab} 为被验值不确定度, U_{ref} 为参考值不确定度。由此得到的 E_n 值 (及其绝对值 $|E_n|$) 能够用于判断被验值是否与参考值在不确定度范围内保持一致, $|E_n| \leq 1$ 则二者的一致性可以接受, $|E_n| > 1$ 则二者的一致性存在问题^[18]。若二者的 $|E_n|$ 均满足 ≤ 1 的要求, 则证明三者在不不确定度范围内保持一致, 进而证明参考值的测量结果通过了第三种方法的验证, 且使用 $4\pi\gamma$ 活度测量装置结合 MC 模拟探测效率进行 ^{133}Ba 溶液比活度测量的方法可用、结果可信。

3 结果与讨论

3.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合标准装置

利用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置对薄膜源进行测量, 使用空置薄膜测量本底, 再依次测量 10 枚薄膜源。测量得到的原始数据经离线符合、本底扣除、效率外推等数据处理过程后, 得到每枚源的放射性活度, 再结合制源时记录的源溶液质量算得对应的比活度。表 1 列出薄膜源使用的 ^{133}Ba 溶液质量、测得比活度、比活度平均值, 以及各组比活度与其平均值的相对偏差, 其中比活度修正至参考日期 2023 年 5 月 26 日。

表 1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法测量 ^{133}Ba 溶液比活度结果

Table 1 The results of specific activity measurement of ^{133}Ba standard solution by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method

源编号	溶液质量/mg	比活度/(kBq·g ⁻¹)	相对偏差/%
1	10.08	613.2	-0.13
2	8.94	616.8	0.45
3	6.35	616.5	0.41
4	11.38	609.5	-0.73
5	10.46	616.6	0.42
6	11.23	609.8	-0.69
7	10.82	612.0	-0.34
8	9.65	616.7	0.43
9	11.44	619.6	0.90
10	10.54	609.7	-0.71
平均值	/	614.0	/

由表1可见,所有10枚放射源测得的比活度与其平均值的相对偏差均在 $\pm 1\%$ 以内,重复性较好,得到 ^{133}Ba 溶液比活度参考值为 614.0 kBq/g 。对这一测量结果进行不确定度评定,结果列于表2, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法测得比活度参考值的相对扩展不确定度($k=2$)为 1.5% 。

表2 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法测 ^{133}Ba 溶液比活度结果不确定度评定Table 2 The uncertainty evaluation of specific activity measurement results of ^{133}Ba solution by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method

不确定度分量	评定方法	
	A	B
称重	/	0.05%
统计涨落	0.17%	/
死时间	/	0.15%
符合分辨时间	/	0.02%
Gandy效应	/	0.10%
效率外推	/	0.72%
本底	/	0.04%
相对合成不确定度	0.76%	
相对扩展不确定度($k=2$)	1.5%	

3.2 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置

使用 Geant4 进行 MC 模拟,得到 γ 全谱探测效率的无源效率校准结果为 98.5% 。利用 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置对点源进行实际测量,点源共 3 枚,每枚进行 3 组测量为 1 系列,包括本底在内共得到 4 系列 10 组数据;经本底扣除、效率修正、半衰期修正等处理后结果列于表 3。

表 3 列出点源使用的 ^{133}Ba 溶液质量、各组计数率、系列内计数率平均值、各组计数率与系列内平均值的相对偏差、各系列比活度结果、比活度平均值及各系列比活度与比活度平均值的相对偏差,其中比活度数据修正至参考日期 2023 年 5 月 26 日。

由表 3 可知, $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置得到的 ^{133}Ba 溶液比活度测得值为 606.1 kBq/g ;每枚点源系列内 3 组计数率测量结果的相对偏差在 $\pm 0.1\%$ 以内,3 枚点源比活度结果的相对偏差在 $\pm 0.5\%$ 以内,重复性较好。对比活度测量结果进行不确定度评定,结果列于表 4,比活度测得值的相对扩展不确定度($k=2$)为 0.93% 。

表 3 $4\pi\gamma$ 计数法测 ^{133}Ba 溶液比活度结果Table 3 The $4\pi\gamma$ counting method measures the results of ^{133}Ba solution

源编号	溶液质量/mg	计数率/ s^{-1}	系列内平均计数率/ s^{-1}	与系列内平均值的相对偏差/%	比活度/ $(\text{kBq}\cdot\text{g}^{-1})$	与总平均值的相对偏差/%
本底	/	104.85	/	/	/	/
P01	14.57	8317.11	8314.1	0.04	603.3	-0.47
		8316.30		0.03		
		8308.92		-0.06		
P02	14.94	8563.21	8561.6	0.02	606.0	-0.01
		8556.88		-0.06		
		8564.68		0.04		
P03	20.73	11894.63	11895	0.00	609.0	0.47
		11903.00		0.07		
		11888.04		-0.06		
平均值	/	/	/	/	606.1	/

3.3 $4\pi\gamma$ 高气压电离室

使用选取 NPL 标准值的 $4\pi\gamma$ 高气压电离室对溶液源进行测量。开始测量后仪器自动扣除本底,记录 10 个读数取平均值,并根据溶液源质量计算比活度。算得比活度验证值为

611.0 kBq/g ,扩展不确定度($k=2$)由 NPL 标准值不确定度及溶液称重不确定度合成,为 1.3% 。

3.4 测量结果比较

$4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置、 $4\pi\gamma$ 井型 NaI 活度测量装置和 $4\pi\gamma$ 高气压电离室三种方法测得

表4 $4\pi\gamma$ 计数方法测 ^{133}Ba 溶液比活度结果
不确定度评定

Table 4 The uncertainty evaluation of specific activity measurement results of ^{133}Ba solution by $4\pi\gamma$ counting method

不确定度分量	评定方法	
	A	B
称重	/	0.02%
统计涨落	0.13%	/
死时间	/	0.20%
本底	/	0.12%
探测效率	/	0.38%
相对合成不确定度	0.46%	
相对扩展不确定度($k=2$)	0.93%	

的比活度值(参考日期2023年5月26日)、后两者与参考值的相对偏差及 E_n 值列于表5。

由表5可见,后两者的 $|E_n|$ 均 <1 ,三种测量方法得到的比活度值在不确定度范围内保持一致。

表5 ^{133}Ba 溶液比活度测量结果比对

Table 5 The comparison of measurement results of ^{133}Ba standard solution specific activity

测量装置	结果名称	溶液比活度/ ($\text{kBq}\cdot\text{g}^{-1}$)	扩展不确定度 ($k=2$)/%	相对 偏差/%	E_n 值
$4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度 标准装置	参考值	614.0	1.5	/	/
$4\pi\gamma$ 井型NaI	测得值	606.1	0.92	-1.3	-0.73
$4\pi\gamma$ 高压电电离室	验证值	611.0	1.3	-0.49	-0.25

4 结论

本研究采用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置、 $4\pi\gamma$ 井型NaI活度测量装置及 $4\pi\gamma$ 高压电电离室等方式,测量 ^{133}Ba 溶液比活度,结果分别为 $(614.0\pm 9.2)\text{kBq/g}$ 、 $(606.1\pm 5.6)\text{kBq/g}$ 与 $(611.0\pm 8.2)\text{kBq/g}$ 。以 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合活度标准装置结果为参考值,后两者的相对偏差分别为-1.3%与-0.49%, $|E_n|$ 值分别为0.72与0.25,三种方法的测量结果在不确定度范围内保持一致。由此证明了比活度参考值测量结果的准确性,以及利用MC模拟进行无源探测效率刻度结合 $4\pi\gamma$ 井型NaI活度测量装置进行准确、快速的 ^{133}Ba 比活度测量的可行性。后续的活度定值工作便可直接以 $4\pi\gamma$ 井型NaI活度测量装置实现,无需进行繁琐的薄膜源制备或借助标准装置,由此可大幅提升工作效率。

参考文献:

- [1] LNE-LNHB/CEA. Mono BIPM-5 – Table of Radionuclides, Vol. 8[DB]. Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres, France, 2016[2024-11-05].
- [2] Chauvenet B, Morel J, Legrand J. Intercomparison of the measurement of photon emission rates of X and γ rays emitted by Barium 133[R]. [S. l.]:[s. n.], 1980.
- [3] Mucciolo E R, Helene O. Energy measurement of gamma rays from ^{133}Ba decay: Consistency with cascade cross-over relations[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1987, 256(1): 153-160.
- [4] Ratel G. Activity concentration of a solution of ^{133}Ba : Results of an international comparison[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1992, 316(2-3): 318-323.
- [5] Loureiro J S, da Cruz P A L, Iwahara A, et al. ^{65}Zn and ^{133}Ba standardizing by photon-photon coincidence counting[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2018, 975: 012040.
- [6] 杜云武. HPGe γ 谱仪测量级联 γ 辐射 ^{152}Eu 、 ^{133}Ba 、 ^{60}Co 核素活度的方法[J]. 辐射防护, 2017, 37(2): 116-120.
Du Yunwu. Method for measuring the activity of ^{152}Eu , ^{133}Ba and ^{60}Co with γ ray cascade by HPGe spectrometer[J]. Radiation Protection, 2017, 37(2): 116-120 (in Chinese).
- [7] 夏文, 叶宏生, 宋鑫鹏, 等. ^{133}Ba 活性炭滤盒源制备方法研究[J]. 同位素, 2019, 32(5): 337-342.
Xia Wen, Ye Hongsheng, Song Xinpeng, et al. Study on preparation method of ^{133}Ba activated carbon filter cartridge source[J]. Journal of Isotopes, 2019, 32(5): 337-342 (in Chinese).
- [8] Volkmar M A, Wolke R L. The preparation and measurement of very thin VYNS films[J]. Review of Scientific Instruments, 1969, 40(6): 849-851.
- [9] Barnothy J, Forro M. Coincidence methods of measuring disintegration rates of radioactive sources[J]. The Review of Scientific Instruments, 1951, 22(6): 415-423.
- [10] Campion P J. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors[J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1959, 4(3-4): 232-248.
- [11] Baerg A P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1973, 112(1): 143-150.

- [12] Iwahara A. Técnica de traçador para medida específica de ^{63}Ni , utilizando um sistema de coincidência $4\pi\beta$ - γ Tese de Mestrado[R]. Brasil: Instituto Militar de Engenharia, 1979.
- [13] 吴治华. 原子核物理实验方法[M]. 3版(修订本). 北京: 原子能出版社, 1997.
- [14] Deepa S, Vijay Sai K, Rao D R, et al. EC-decay of ^{133}Ba revisited by electron-gamma spectroscopy[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2021, 328(3): 1001-1010.
- [15] Ravindra A, Kulkarni D B, Sathian V, et al. Standardisation of ^{133}Ba by efficiency extrapolation method and calibration of ionisation chamber[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2021, 174: 109744.
- [16] Amako K. Present status of Geant4[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2000, 453(1-2): 455-460.
- [17] Bergeron D E, Cessna J T. An update on 'dose calibrator' settings for nuclides used in nuclear medicine[J]. *Nuclear Medicine Communications*, 2018, 39(6): 500-504.
- [18] 国家市场监督管理总局. 计量标准考核规范: JJF 1033—2023[S]. 北京: 中国标准出版社, 2023.