

放射性同位素分离在线检测软件设计与实现

曾 雄¹, 石 睿¹, 王 洲¹, 刘敏俊¹, 王 博¹, 李 波², 胡映江²

(1. 四川轻化工大学 计算机科学与工程学院, 宜宾 644005;

2. 中国核动力研究设计院 第一研究所, 成都 610213)

摘要:核素分离是放射性同位素制备的关键技术之一, 其中快速准确地判断目标核素的分离情况对同位素分离十分重要。本研究针对放射性同位素分离典型过程, 基于闪烁体探测器设计和开发了一款放射性同位素分离在线检测软件, 用于测量分离过程中管路内流动的放射性情况, 包括计数率、放射性核素组成。测量信号传输至分离装置控制系统, 进行分析、处理、显示。核素判别中利用序贯贝叶斯核素识别算法, 并基于遗传算法优化卡尔曼滤波器, 实现更优的参数估计, 准确快速地判别混合物中特定放射性核素, 提高核素分离过程的效率和准确性。该软件基于串口通信实现设备与系统之间的数据传输, 实现了数据采集、实时测量、可视化显示、 γ 能谱绘制、 γ 能谱分析、系统设置、流程控制、核素识别等功能, 软件界面简洁, 经实验测试, 运行稳定, 人机交互友好, 具有较好的实用性和可维护性, 可为放射性同位素分离制备在线检测提供技术参考。

关键词: PyQt5; γ 能谱分析; 串口通信; 核素判定

中图分类号: TL84; TL92+2; TP319

文献标志码: A

文章编号: 1000-7512(2024)02-0164-09

doi: 10.7538/tws.2024.37.02.0164

Design and Implementation of On-line Detection Software for Radioisotope Separation

ZENG Xiong¹, SHI Rui¹, WANG Zhou¹, LIU Minjun¹, WANG Bo¹, LI Bo², HU Yingjiang²

(1. Sichuan University of Science & Engineering, School of Science and Engineering, Yibin 644005, China;

2. Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China)

Abstract: The importance of radioisotopes in modern nuclear medicine is becoming more and more significant. It is imperative to speed up independent research and development and get rid of the plight of relying on imports of radioisotopes. Nuclide separation is one of the key technologies for radioisotope preparation, and it is very important for engineers to master the separation process to quickly and accurately judge the separation of target nuclides. Aiming at the typical process of radioisotope separation, an online detection software for radioisotope separation is designed and developed based on scintillation detector. The software is used to measure the radioactivity flowing in the pipeline during the separation process, including count rate and radionuclide composition. The

收稿日期: 2023-10-10; 修回日期: 2023-11-29

基金项目: 国家自然科学基金项目(42074218、U19A2086、12205210、42374227); 四川省高等教育人才培养质量和教学改革项目(JG2021-1062); 四川轻化工大学研究生教育教学改革研究项目(JG202101); 四川轻化工大学研究生创新基金资助项目(Y2022177)

通信作者: 石 睿

measured signal is transmitted to the control system of the separation device for analysis, processing and display. In the nuclide discrimination, the sequential Bayesian nuclide identification algorithm is used, and the Kalman filter is optimized based on the genetic algorithm to achieve better parameter estimation, accurately and quickly identify specific radionuclides in the mixture, and improve the efficiency and efficiency of the nuclide separation process. accuracy. The software realizes the data transmission between the equipment and the system based on the serial port communication, realizes the functions of data acquisition, real-time measurement, visual display, gamma energy spectrum drawing, gamma energy spectrum analysis, system setting, process control, nuclide identification, etc., software interface Simple, experimentally tested, stable operation, friendly human-computer interaction, good practicability and maintainability, providing a technical reference for on-line detection of radioisotope separation and preparation.

Key words: PyQt5; gamma energy spectrum analysis; serial communication; nuclide determination

用于诊断和治疗的放射性药物广泛应用于核医学领域^[1-4], 一直以来, 放射性药物所需的放射性同位素生产受到广泛关注, 放射性药物对放射性同位素的纯度要求较高, 这对放射性同位素的分离提出了更高要求。放射性同位素分离的典型过程^[5], 从辐照含有感兴趣同位素的目标材料开始, 辐照后对目标材料进行处理以提取所需的同位素, 该材料可能含有各种其他同位素和元素, 需再经过化学分离, 主要包括溶解、萃取、纯化, 将含有目标同位素进一步纯化, 以去除任何剩余的杂质或污染物, 这涉及到重复的提取和纯化循环^[6-7]。

在分离过程, 识别样本中特定核素的任何延误都可能导致经济损失和安全风险, 实现快速核素识别至关重要。传统放射性核素识别算法通过数字化多道能谱仪对核脉冲信号进行采集, 统计脉冲幅度形成能谱, 对能谱进行光滑、寻峰、能量刻度等分析, 提取能谱特征信息, 并将其与特定核素的已知能级进行匹配, 实现核素识别^[8-10]。但为满足能谱统计性要求, 该方法需要测量时间较长, 识别速度较慢。为了提高核素识别效率, 一些学者尝试利用神经网络和序贯贝叶斯算法来解决核素识别问题。刘议聪等^[11]利用 BP 网络算法和 RBF 网络算法可快速地完成核素识别。梁菲惜等^[12]使用卷积神经网络对粗糙的 γ 能谱识别率达到较高的准确率。王瑶等^[13]提出了基于长短时记忆神经网络 (LSTM) 的能谱核素识别方法, 解决了在混合放射性核素的噪声环境中存在识别速度慢、准确率较低等问题。Candy 等^[14]

将贝叶斯和序贯概率比结合起来, 对目标核素的存在性实时分析与判定, 在相同的探测环境下, 相较于传统的能谱分析, 对能谱数据统计性要求降低, 可更快的识别核素, 但该方法所需参数估计还存在局部最优化等问题, 在识别精度和方法稳定性方面还需提升。遗传算法是一种全局最优化技术, 广泛应用于金融、交通运输和医学等各个领域, 可将遗传算法应用于序贯贝叶斯核素识别中, 通过迭代探索优化模型参数, 提高放射性同位素识别的准确性和效率。

分离过程中管路内流动的放射性情况, 对于判断整个分离过程的进展至关重要。目前通用型 γ 能谱测量软件多用于放射性制剂、放射性样品的分析, 并不适用于测量同位素分离过程。如杨悦等^[15]基于 Matlab 开发的核能谱数据处理软件和卞治权等^[16]基于 Qt 和 QWT 开发的 γ 能谱分析软件, 主要为离线数据处理分析。为了实现针对放射性同位素分离过程中放射性情况的评估和判断, 设计一款服务于放射性同位素分离在线检测的软件必不可少。探测器方面, 综合考虑能量分辨率、响应时间和成本等因素, 选用相比于 NaI(Tl) 闪烁体探测器具有更好能谱测量性能, 同时相比高纯锗探测器价格更便宜的 LaBr₃ 探测器。

本研究基于序贯贝叶斯核素识别算法, 利用遗传算法优化卡尔曼滤波参数估计, 缩短核素识别所需的时间, 并设计了一款放射性同位素分离在线检测软件, 实现能谱获取、能谱分析(能谱光滑、能谱寻峰、峰面积计算、核素

识别、计数率显示)、流程控制等功能,完成从数据获取到数据分析后结果展示,为工程人员判断目标核素的分离情况提供了技术参考。

1 序贯贝叶斯核素识别算法原理

序贯贝叶斯核素识别算法将每个特征伽马射线视为独立的单能量伽马源,重点研究每个光子的关键参数,例如半衰期、特征伽马射线

能量和分支比信息。为了识别放射性核素,具有相似能量的光子被分组为光子事件组,形成代表特定放射性核素发射的光子组合特征辐射脉冲序列^[17],如图1所示。这些序列是特定放射性核素发射的光子的组合特征,然后采用序贯概率比来计算特定放射性核素存在的概率。随着新数据的收集,不断更新决策函数,从而实现核素的准确识别^[18]。

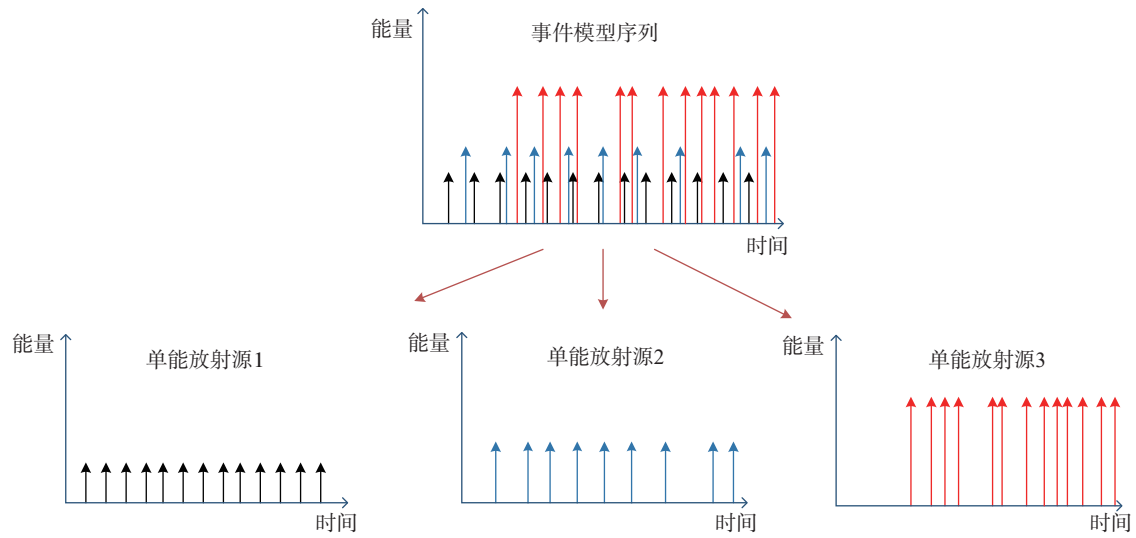


图1 单能 γ 射线源辐射脉冲序列示意图

Fig.1 Schematic diagram of radiation pulse sequence of monoenergetic gamma ray source

1.1 EMS 序列处理模块

对于每一个到达光子事件,其携带的能量和到达时间信息可用 $[\{\varepsilon_m\},\{\tau_m\}]$, $m=1,\dots,M_\varepsilon$ 表示。其中 m 代表放射性核素的第 m 个特征 γ 射线; ε_m 为 m 特征射线的能量; τ_m 为光子到达时间; M_ε 指该放射性核素有 M_ε 条特征 γ 射线^[19]。

定义 $\xi(n;\varepsilon_m(n),\tau_m(n))$ 为放射性核素发射的第 n 个 m 单能射线, $\tau_m(n)=\tau_m(n)-\tau_m(n-1)$ 为脉冲到达时间间隔,那么每一个到达脉冲可表示为:

$$\xi(n;\varepsilon_m,\tau_m)=\varepsilon_m(n)\delta(t-\tau_m(n)) \quad (1)$$

定义 $\overline{\tau_m}=\{\tau_m(1),\dots,\tau_m(N_\varepsilon(m))\}$, $\overline{\varepsilon_m}=\{\varepsilon_m(1),\dots,\varepsilon_m(N_\varepsilon(m))\}$,其中 $N_\varepsilon(m)$ 是 $[t_0,T)$ 时间内 m 单能射线的个数,则 $[t_0,T)$ 时间内 m 单能 γ 源的辐射脉冲序列可表示为:

$$\xi(N_\varepsilon(m);\overline{\varepsilon_m},\overline{\tau_m})=\sum_{n=1}^{N_\varepsilon(m)}\varepsilon_m(n)\delta(t-\tau_m(n))n \quad (2)$$

当多个 γ 辐射脉冲序列集合起来,就是放

射性核素的事件模型序列(event mode sequence, EMS)。

分析处理放射性核素的事件模型序列前,根据探测器的型号、放射源活度以及放射源与探测器之间的距离来预设参数。在固定的探测布局下,探测器单位时间可探测到的 m 单能射线的光电事件数 \mathcal{N}_m^t 已知。下一步的操作包括:特征光子事件识别、序贯贝叶斯决策和核素识别决策阈值。

1.1.1 特征光子事件识别 特征光子事件识别是对光子的能量 $\varepsilon_m(n)$ 和平均脉冲间隔 $\overline{\tau_m}(n)$ 加以甄别,判断是否为目标放射性核素的特征 γ 射线。

能量阈值的区间为:

$$[\varepsilon_m^t - k_\varepsilon \sigma_{\varepsilon_m^t} \leq \varepsilon_m(n) \leq \varepsilon_m^t + k_\varepsilon \sigma_{\varepsilon_m^t}] \quad (3)$$

式中: ε_m^t 为特征光子事件的标准能量值; k_ε 为置信水平 γ 下的置信系数; $\sigma_{\varepsilon_m^t}$ 为检测系统所对应的能量标准偏差,与探测器的能量分辨率相关:

$$\sigma_{\varepsilon_m^t} = FWHM/2.355 \quad (4)$$

平均脉冲间隔甄别器的阈值区间为:

$$\left[\tau_m^t - k_\tau \sigma_{\tau_m^t} \leq \overline{\tau_m}(n) \leq \tau_m^t + k_\tau \sigma_{\tau_m^t} \right] \quad (5)$$

式中: τ_m^t 为标准脉冲间隔 ($\tau_m^t = 1/\lambda_m^t$); k_τ 为置信水平 γ 下的置信系数; $\sigma_{\tau_m^t}$ 为标准差 ($\sigma_{\tau_m^t} = \tau_m^t / \sqrt{n}$); $\overline{\tau_m}(n)$ 为辐射事件平均到达间隔时间, 且满足关系:

$$\overline{\tau_m}(n) = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \tau_m(i) \quad (6)$$

随着脉冲信号的测量, 只有同时满足能量和平均脉冲时间间隔阈值区间的脉冲, 才会被传入决策函数中, 否则就是无效脉冲, 继续读取下一个脉冲信号。

1.1.2 序贯贝叶斯决策 用于核素存在性判别, 建立零假设 H_0 (目标核素不存在), 其对立假设 H_1 (目标核素存在):

$$H_0 : \xi(n; \varepsilon, \tau) = R(n; \varepsilon, \tau) + v(n)$$

$$H_1 : \xi(n; \varepsilon, \tau) = R\left(n; \varepsilon^t, \tau^t\right) + v(n) \quad (7)$$

式中: $R(n; \varepsilon, \tau) + v(n)$ 和 $R\left(n; \varepsilon^t, \tau^t\right) + v(n)$ 为两种核素存在性假设状态, 辐射事件序列中第 n 个到达的 γ 射线; $v(n)$ 为测量噪声; $\xi(n; \varepsilon, \tau)$ 为通过能量和平均脉冲时间间隔阈值区间的第 n 个光子事件序列。

根据序贯概率比检验法, 结合前 $n-1$ 个脉冲样本, 以序贯概率比的形式对每个目标放射性核素进行判决, 比较第 n 个脉冲在两类假设下的概率, 其决策函数为:

$$\begin{aligned} \Lambda(\Xi_n) = & \Lambda(\Xi_{n-1}) + \\ & \sum_{m=1}^{M_\varepsilon} \left[\ln \left(\frac{(\alpha_m^t)^2 \lambda_{\tau_m}^t}{\sqrt{2\pi} \sigma_{\varepsilon_m^t}} \right) - \ln \left(\frac{(\alpha_m^2) \lambda_{\tau_m}^t}{\sqrt{2\pi} \sigma_{\varepsilon_m}} \right) \right] + \\ & \sum_{m=1}^{M_\varepsilon} (\alpha_m \lambda_{\tau_m} - \alpha_m^t \lambda_{\tau_m}^t) \tau_m(n) + \\ & \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{M_\varepsilon} \left[\left(\frac{\varepsilon_m(n) - \widehat{\varepsilon_m}(n)}{\sigma_{\varepsilon_m}} \right)^2 - \frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon_m(n) - \varepsilon_m^t}{\sigma_{\varepsilon_m^t}} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (8)$$

式中, 能量参数 $\widehat{\varepsilon_m}(n)$ 是根据能量平均值和标准偏差, 结合卡尔曼滤波器 (Kalman Filter) 和最大后验估计得出估计参数; 平均脉冲间隔 $\widehat{\tau_m}(n)$

服从指数分布, 采用粒子滤波器结合测量得到的事件达到事件间隔序列, 得到脉冲时间间隔估计。

1.1.3 遗传算法优化卡尔曼滤波器参数估计 整个时序脉冲能量满足高斯分布, 卡尔曼滤波器就是线性的 Gauss-Markov 模型的最大后验估计算法, 估计所得到的能量分布信息, 可由数学形式表示为:

$$\Pr(\varepsilon_m(n) | \Xi_n) \sim N(\hat{\varepsilon}_m(n | n), \hat{\sigma}_{\varepsilon_m}^2(n | n)) \quad (9)$$

$$\hat{\varepsilon}_m(n | n) = \hat{\varepsilon}_m(n | n-1) + K_{\varepsilon_m}(n) \cdot i_m(n) \quad (10)$$

$$i_m(n) = \xi_\varepsilon(n) - \hat{\varepsilon}_m(n | n-1) \quad (11)$$

$$K_{\varepsilon_m}(n) = \text{cov}((\varepsilon_m(n) - \hat{\varepsilon}_m(n | n)) / \text{cov}(i_m(n))) \quad (12)$$

其中, $\hat{\varepsilon}_m(n | n-1)$ 为第 n 个脉冲能量的先验概率估计, $\hat{\varepsilon}_m(n | n)$ 为第 n 个脉冲时刻的后验均值估计, $i_m(n)$ 为估计误差, $K_{\varepsilon_m}(n)$ 为误差增益。

卡尔曼滤波器和遗传算法 (genetic algorithm, GA) 的结合, 一方面可以有效的估计和降低给定输入和输出数据中的噪声, 最大限度地降低直接应用遗传算法时过度拟合的风险。同时, 由于遗传算法能够更有效的处理复杂参数耦合的系统, 从而获得更快、更准确的优化结果。

通过以上对脉冲能量的估计, 确立了两类存在性假设中零假设 H_0 中的能量分布信息。

1.1.4 核素识别决策阈值 从式 (8) 可知, 每当有一个通过能量和平均脉冲间隔阈值区间的有效脉冲输入, 决策函数就会更新。当:

$$\Lambda(\Xi_n) > \ln T_1(n), \text{ 接收 } H_1$$

$$\ln T_0(n) \leq \Lambda(\Xi_n) \leq \ln T_1(n), \text{ 继续}$$

$$\Lambda(\Xi_n) < \ln T_1(n), \text{ 接收 } H_2 \quad (13)$$

式 (13) 中 $T_1(n)$ 和 $T_0(n)$ 这两个临界值由虚警率 (P_{FA}) 和漏警率 (P_M) 确定:

$$T_0(n) = \frac{P_M(n)}{1 - P_{FA}(n)}, T_1(n) = \frac{1 - P_M(n)}{P_{FA}(n)} \quad (14)$$

随脉冲信号的不断输入, 决策函数也随着更新, 当决策值达到阈值时, 给出判定结果。算法流程工作模型示于图 2。

2 软件系统设计与实现

软件的总体架构示于图 3。主要涉及 γ 能

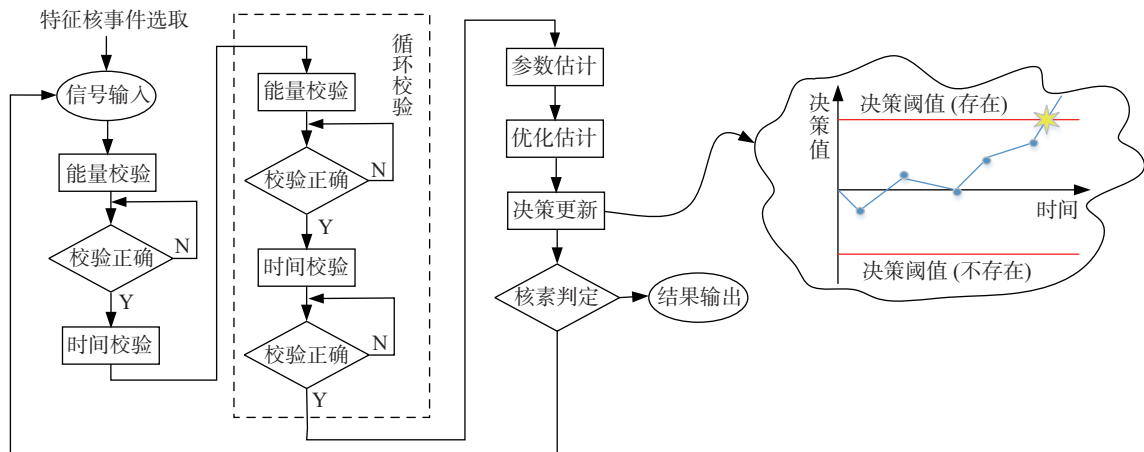


图2 算法流程模型图

Fig.2 Algorithm flow model diagram

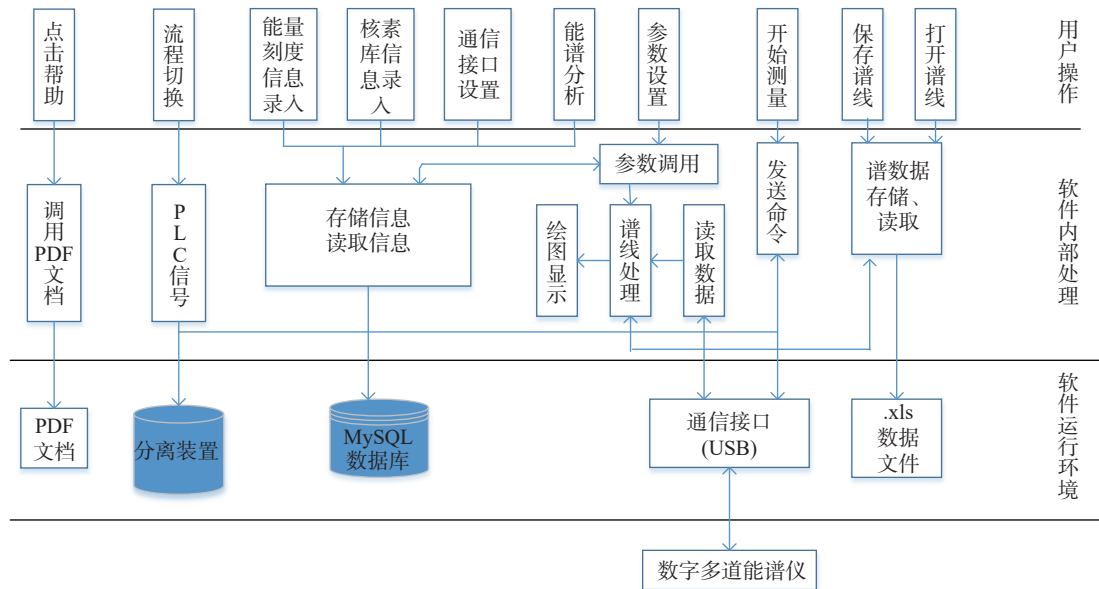


图3 软件架构图

Fig.3 Software architecture diagram

谱数据的获取、能谱分析、能谱显示、核素识别、计数率趋势显示、流程控制等功能。

从软件内部处理分析,软件应具备以下主要功能:参数调用、谱线处理、谱线显示、能谱分析、保存谱数据、数据库存储、串口通信、流程切换和提供帮助等^[20-21]。

从软件运行环境分析,应配备信息存储数据文件:PDF帮助文件、数据库和.xls数据文件等。

2.1 数据采集和显示模块

通过闪烁体探测器进行 γ 射线探测,将其转换为脉冲信号,利用数字化多道能谱仪进行核信号处理与分析转换为离散的数字信号,

FPGA进行能谱数据的提取形成能谱,最后通过USB串口通信将能谱数据传输到放射性同位素分离在线检测软件,从而实现了能谱光滑、寻峰、能量刻度等一系列数据处理功能。软件向谱仪发送能谱数据命令(300~1000 ms可调),软件将每次数据累加并实时展示在软件主界面上,能谱显示界面示于图4a。另外,用户可以根据数据效果对仪器的参数和算法参数进行调节,参数设置界面示于图4b。

2.2 计数率分离模块

根据能谱数据计算出计数率变化,确定目标产物是否开始流出,若检测到产物流出则给

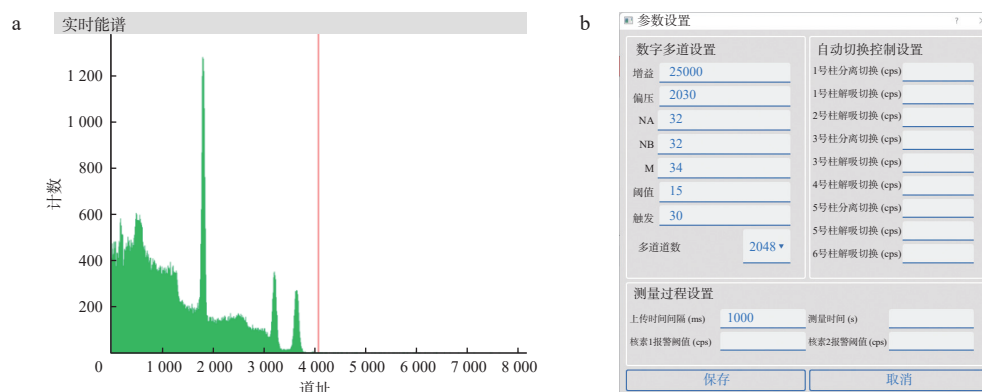


图4 能谱显示和参数设置界面

Fig.4 Energy spectrum display and parameter setting interface

出相应信号至色谱分离装置控制系统,分离装置控制系统得到信号指令:切换相应泵、阀,实现分离流程的转换。在实验室搭建模拟实验平台,如图5所示,通过轨道平台移动模拟管道流动,以 ^{137}Cs (红色)和 ^{60}Co (黑色)为例,检测总计数率(蓝色)、单核素的计数率,当 ^{137}Cs 放射源由远及近、由近及远时, ^{60}Co 放射源固定不动时计数率变化情况示于图6。

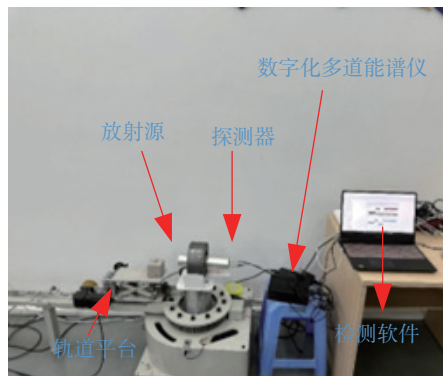


图5 模拟实验平台

Fig.5 Simulation experiment platform

2.3 文件输出模块

该软件支持打开.Chn文件,.Chn文件是常见的谱分析软件文件保存形式,方便打开能谱数据对比分析;计数率和能谱数据生成成为.xls文件,当分离流程切换时自动保存当前所有数据,按时间和数据类型命名文件保存。同时该软件生成文件包括:开始时间、死时间、活时间、测量时间、计数率、道址、计数等信息。

3 实验验证和分析

采用NaI(Tl)探测器进行实验验证。序贯贝

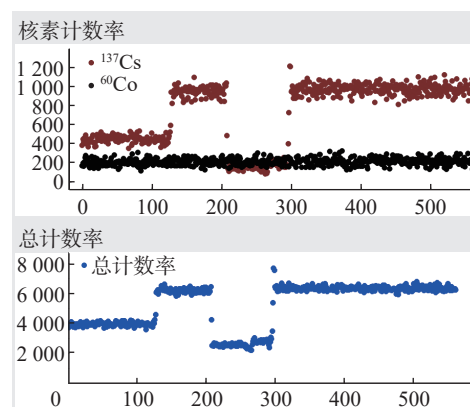


图6 核素分离过程中计数率显示

Fig.6 Count rate display during nuclide separation

叶斯核素识别算法参数设置:在序贯贝叶斯分析中需预设探测模型,根据预设模型得到EMS处理模块的初始参数。事件甄别模块和核素判决模块的初始化参数列于表1和表2。

将 ^{137}Cs ($3.73 \times 10^5 \text{Bq}$)和 ^{60}Co ($3.94 \times 10^5 \text{Bq}$)源

表1 特征光子事件初始化参数

Table 1 Feature core event initialization parameters			能量甄别		平均时间间隔甄别
$\varepsilon_m^t/\text{keV}$	$\sigma_{\varepsilon_m^t}/\text{keV}$	k_ε	τ_m^t/s	k_τ	
661.62	8.71	1.967	0.011	1.967	
1173.23	14.01	1.967	0.018	1.967	
1332.50	12.08	1.967	0.021	1.967	

表2 决策阈值始化参数

Table 2 Decision threshold initialization parameters				
$P_{FA}/\%$	$P_M/\%$	$\ln T_1(n)$	$\ln T_0(n)$	$\Lambda(\Xi_0)$
2	2	3.89	-3.89	0

放置在 NaI(Tl) 探测器前端 10 cm 处, 分别使用序贯贝叶斯核素识别算法(Kalman 估计)、改进后的序贯贝叶斯核素识别算法(Kalman+GA 估

计)和传统能谱分析核素识别算法, 对比算法的核素识别速度, 实验中每个读取时间识别 100 次, 求平均值, 结果列于表 3。

表 3 核素识别时间对比

Table 3 Comparison of nuclide identification time

核素	识别算法	读取时间/ms								能谱分析方法识别时间/s
		1000	900	800	700	600	500	400	300	
^{60}Co	Kalman /s	16.1	16.3	15.8	15	14.1	11.5	9.9	8.9	22.8
	Kalman+GA /s	10.2	9.4	9.1	7.5	6.3	5.3	4.6	3.5	
^{137}Cs	Kalman /s	13.3	11.7	10.1	8.8	8.3	6.5	5.5	3.96	16.7
	Kalman+GA /s	12.9	11.9	8.7	8.5	6.5	4.3	4.2	4.0	

用 Kalman 估计和 Kalman+GA 估计验证识别 ^{60}Co 源, 在相同条件下测量 100 次, 核素识别结果示于图 7 与图 8, 小于 0 代表识别错误, 核素识别率大于 95%。Kalman+GA 估计的决策函

数随时间不断更新, 趋势变化速度存在差异但相对平稳, 如图 9 所示, 在不同的时刻识别出 ^{60}Co 源, 决策时间最短为 3.5 s, 此时的能谱测量结果示于图 10, 能谱分析方法还达不到核素识别的效果。

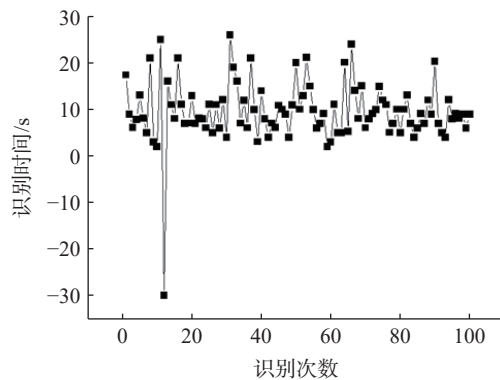


图 7 ^{60}Co 源 Kalman 估计识别 100 次结果
Fig.7 ^{60}Co source Kalman estimation identification result chart 100 times

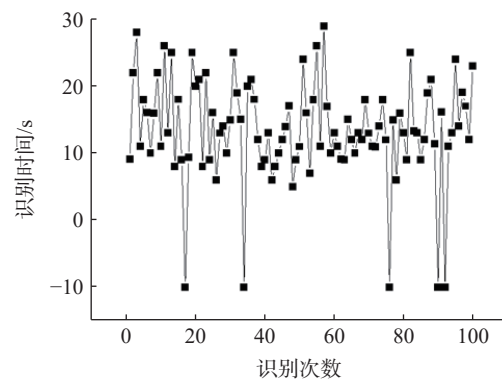


图 8 ^{60}Co 源 Kalman+GA 估计识别 100 次结果
Fig.8 ^{60}Co source Kalman+GA estimation and identification results chart for 100 times

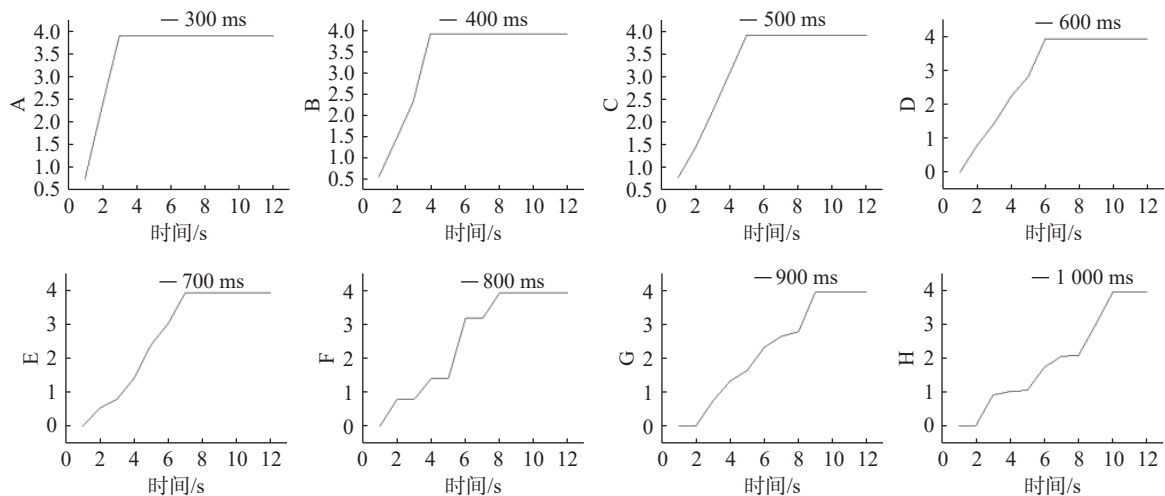
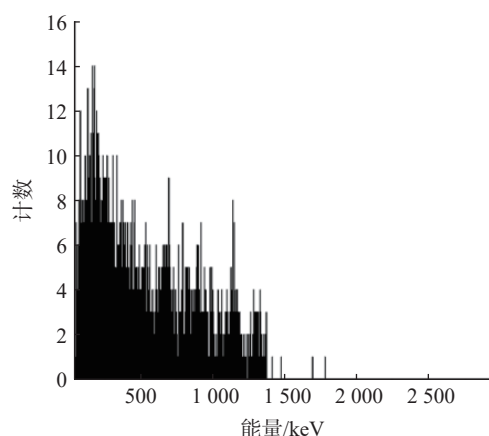


图 9 ^{60}Co 源决策函数随响应时间变化
Fig.9 ^{60}Co source decision function changes with response time

图 10 ^{60}Co 源测量 4 s 能谱图Fig.10 ^{60}Co source measurement 4 s energy spectrum

4 结论

为提高同位素分离过程中操作精度,本研究基于序贯贝叶斯核素识别算法,利用遗传算法优化卡尔曼滤波器参数估计,并在 PyQt5 框架下设计并实现了使用闪烁体探测器的放射性同位素分离在线检测软件,完成与分离装置控制系统的通信,使工程人员掌握并控制整个分离过程。本研究在实验室搭建实验平台,并对使用的方法以及软件的整体功能和流程进行测试验证,与传统的能谱分析核素识别方法对比,对于 $^{137}\text{Cs}(3.73\times 10^5\text{Bq})$ 和 $^{60}\text{Co}(3.94\times 10^5\text{Bq})$ 源,满足核素识别率大于 95%,识别时间仅需其 15%,测试结果证实了本研究的可行性,未来可利用实验数据优化算法,进一步提高同位素分离过程的效率和可靠性。

参考文献:

- [1] 彭述明,杨宇川,谢翔,等.我国堆照医用同位素生产及应用现状与展望[J].科学通报,2020,65(32):3526-3537.
Peng Shuming, Yang Yuchuan, Xie Xiang, et al. Current status and prospects of reactor produced medical radioisotopes in China[J]. Chinese Science Bulletin, 2020, 65(32): 3526-3537 (in Chinese).
- [2] 黄伟,梁积新,吴宇轩,等.我国放射性同位素制备技术的发展[J].同位素,2019,32(3):208-217.
Huang Wei, Liang Jixin, Wu Yuxuan, et al. Development of radioisotopes preparation technology in China[J]. Journal of Isotopes, 2019, 32(3): 208-217 (in Chinese).
- [3] Ruth T J. The medical isotope crisis: how we got here and where we are going[J]. Journal of Nuclear Medicine Technology, 2014, 42(4): 245-248.
- [4] Cao Z, Qi W, Lan H, et al. Experimental study of medical isotopes ^{62}Cu and ^{68}Ga production using intense picosecond laser pulse[J]. Plasma Physics and Controlled Fusion, 2023, 65(5): 055007.
- [5] 任倩倩,李瑜哲,吴高胜,等.基于 Aspen Plus 的 $^{11}\text{BF}_3$ 同位素分离工艺模拟研究[J].原子能科学技术,2023,57(2):244-250.
Ren Qianqian, Li Yuzhe, Wu Gaosheng, et al. $^{11}\text{BF}_3$ isotope separation process simulation based on aspen plus[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2023, 57(2): 244-250 (in Chinese).
- [6] Wang Y, Chen D, dos Santos Augusto R, et al. Production review of accelerator-based medical isotopes[J]. Molecules, 2022, 27(16): 5294.
- [7] 严峰,袁威津,李建新,等.冠醚化学交换分离锂同位素的影响因素分析及进展[J].化工进展,2014,33(S1):47-56.
Yan Feng, Yuan Weijin, Li Jianxin, et al. Impact factor analysis of crown ether chemical exchange for the lithium isotopes separation[J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2014, 33(S1): 47-56 (in Chinese).
- [8] Krot V O, Brinkevich S D, Brinkevich D I, et al. Separation of long-lived radionuclides on QMA light anion-exchange cartridge in manufacture of radiopharmaceutical preparations based on ^{18}F [J]. Radiochemistry, 2021, 63(2): 235-242.
- [9] Rosíková K, John J, Šebesta F. Separation of radionuclides from chemical and electrochemical decontamination wastes[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2003, 255(2): 397-402.
- [10] Li X, Zhang Q, Tan H, et al. Research of nuclide identification method based on background comparison method[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2023, 192: 110596.
- [11] 刘议聪,王伟,牛德青.基于人工神经网络的核素识别分析方法[J].兵工自动化,2015,34(11):86-91.
Liu Yicong, Wang Wei, Niu Deqing. Nuclide identification and analysis using artificial neural network[J]. Ordnance Industry Automation, 2015, 34(11): 86-91 (in Chinese).
- [12] 梁菲惜.基于卷积神经网络的核素识别算法的研究[D].成都:成都理工大学,2019.
- [13] 王瑶,刘志明,万亚平,等.基于长短时记忆神经网络的能谱核素识别方法[J].强激光与粒子束,2020,32(10):154-161.

- Wang Yao, Liu Zhiming, Wan Yaping, et al. Energy spectrum nuclide recognition method based on long short-term memory neural network[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2020, 32(10): 154-161 (in Chinese).
- [14] Candy J V, Breitfeller E, Guidry B L, et al. Physics-based detection of radioactive contraband: a sequential Bayesian approach[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2009, 56(6): 3694-3711.
- [15] 杨悦, 罗旭佳, 李楚. 基于 Matlab 核能谱数据处理软件的设计与研发[J]. *江西化工*, 2019(1): 77-79.
Yang Yue, Luo Xujia, Li Chu. Design and development of nuclear spectrum processing software based on Matlab[J]. *Jiangxi Chemical Industry*, 2019(1): 77-79 (in Chinese).
- [16] 卞治权, 林伟, 涂亚飞, 等. 基于 Qt 和 QWT 的 γ 能谱分析软件设计[J]. *核电子学与探测技术*, 2015, 35(12): 1159-1162, 1174.
Bian Zhiquan, Lin Wei, Tu Yafei, et al. The design of γ spectrum analysis software based on qt, QWT[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2015, 35(12): 1159-1162, 1174 (in Chinese).
- [17] 问斯莹, 王百荣, 肖刚, 等. 基于序贯贝叶斯方法的核素识别算法研究[J]. *核电子学与探测技术*, 2016, 36(2): 179-183.
Wen Siying, Wang Bairong, Xiao Gang, et al. The study on nuclide identification algorithm based on sequential Bayesian analysis[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2016, 36(2): 179-183 (in Chinese).
- [18] Li X Z, Zhang Q X, Tan H Y, et al. Correction to: fast nuclide identification based on a sequential Bayesian method[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2022, 33(3): 26.
- [19] 向清沛. 基于序贯贝叶斯分析的放射性核素快速识别方法研究[D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2014.
- [20] 王琳, 王磊, 庾先国, 等. 基于 C# 的 γ 能谱分析软件设计[J]. *核电子学与探测技术*, 2013, 33(9): 1080-1084.
Wang Lin, Wang Lei, Tuo Xianguo, et al. The design of gamma-ray spectroscopy analysis software written on C#[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2013, 33(9): 1080-1084 (in Chinese).
- [21] 罗琼. 低本底 γ 能谱分析软件的开发[D]. 成都: 成都理工大学, 2019.