

放射性分析中本底对表观计数效率的影响

冯孝贵, 袁建华, 何千舸, 王建晨, 陈 靖

清华大学核能与新能源技术研究院, 北京 100084

摘要: 在放射性分析中, 尤其对低活度样品, 样品本底的影响是必须要考虑的一个因素。分析实践中, 常常涉及计数效率和本底(准确说是确定性本底)的概念, 但很少提到表观计数效率和随机性本底。本工作在介绍相关概念的基础上, 利用 Excel “随机数发生器” 研究了本底(包括确定性本底和随机性本底)对表观计数效率的影响规律。本底的影响分为两个方面: 一个是因本底扣除不准确而引入的系统误差, 它使所有表观计数效率向同一方向偏离计数效率; 另一个是本底波动导致的偶然误差, 它使表观计数效率在一定范围内随机波动。不管是哪一种误差, 本底对表观计数效率的影响均将随着样品活度的降低而增大。对高活度样品, 可以不用区分表观计数效率和计数效率这两个概念, 但对低活度样品必须区别使用。在有高活度标准源时, 不推荐使用通过测量大量低活度样品来获取计数效率的低效方法, 宜通过测量活度足够高的标准样品(即本底影响可以忽略的样品)来获取计数效率。

关键词: 放射性分析; 本底; 随机性本底; 计数效率; 表观计数效率

中图分类号: O615.13 文献标志码: A 文章编号: 0253-9950(2024)03-0240-06

doi: 10.7538/hhx.2024.46.03.0240

Influence of Background on Apparent Counting Efficiency in Radioactivity Analysis

FENG Xiao-gui, YUAN Jian-hua, HE Qian-ge, WANG Jian-chen, CHEN Jing

Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China

Abstract: In radioactivity analysis, counting efficiency(E) and background(to be precise, it should be deterministic background) are usually discussed, but apparent counting efficiency(E') and random background are rarely mentioned. However, the influence of background(including both deterministic background and random background) on apparent counting efficiency must be considered, especially for samples with low radioactivity. The relation between E and E' can be described as the equation $E' = E + \Delta B/A$, where A is the sample radioactivity, and ΔB is the residue background, including two parts: the counting rate of residual deterministic background caused by inaccurate deduction of background and the counting rate of random background that cannot be deducted. In this paper, E' was studied on the following assumptions: E was fixed at 90%; A was changing from 0.1 to 100, with a step of 0.1(relative unit, similarly hereinafter); and ΔB was set to be fixed, or to follow a specific distribution. The simplest continuous distribution(uniform distribution) and the most commonly used continuous distribution(normal distribution) were chosen for this research, and the function “random number generator” of the software Excel was

used to simulate the random variable ΔB . Specifically speaking, the random variable ΔB was assumed to follow $\pm 0.1 \cdot U(0,1)$, $\pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$, $\pm 0.1 \cdot N(0.5,1)$, or $\pm 0.1 \cdot N(0,1)$, where U stands for uniform distribution and N for normal distribution. The influence of background on apparent counting efficiencies is divided into two aspects: one is the systematic error introduced by inaccurate background deduction, which makes all apparent counting efficiencies deviate from the counting efficiency in the same direction; the other is the accidental error caused by background fluctuations, which makes apparent counting efficiency fluctuate within a certain range. Regardless of the error type, the influence of background on apparent counting efficiency will increase as the radioactivity of the sample decreases. For samples with high radioactivity, the difference between apparent counting efficiency and counting efficiency is so small that it can be ignored, therefore it is not necessary to distinguish between the two concepts of apparent counting efficiency and counting efficiency; but for samples with low radioactivity, they must be used differently. Unless there is no standard sample with high radioactivity, it is not recommended to use the inefficient method, which is reported in Lin's paper(ACS Earth Space Chem, 2022, 6(7): 1868-1875), to obtain counting efficiency by measuring a large number of samples with low radioactivity. It is advisable to obtain counting efficiency by measuring standard samples with sufficiently high radioactivity, in which the influence of background can be negligible.

Key words: radioactivity analysis; background; random background; counting efficiency; apparent counting efficiency

在放射性分析中,样品本底的影响是必须要考虑的一个因素,尤其对低活度样品分析更是如此(本工作中,低活度样品指本底影响不能忽略的样品,高活度样品指本底影响可以忽略的样品)。因此,文献[1-5]均对本底的来源以及降低本底的方法进行了详细论述。但是,这些文献均未提到随机性本底对计数效率或表观计数效率的影响。在分析实践中,不仅有初学者受困于低活度样品计数效率规律难寻的烦恼,而且有研究者花费大量时间做低效工作来获取样品的计数效率^[6]。究其原因,一方面,可能是没有高活度标准源;另一方面,可能是没有区分计数效率与表观计数效率,或者是没有区分确定性本底与随机性本底。为了避免在分析低活度样品时继续做大量低效工作,本工作拟在介绍相关概念的基础上,利用 Excel“随机数发生器”得到的随机数模拟随机性本底,进而分析本底对表观计数效率的影响规律。

1 基本概念

广义地讲,待测放射性核素之外的任何原因引起的计数,都可以看作是本底。分析实践中均会将某个确定的数值作为本底扣除,这种处理方式只考虑了确定性本底,没有考虑随机性本底。

实际上本底应该包括两种:确定性本底(可以采用通常的方式扣除)和随机性本底(不可以采用通常的方式扣除)。因此,样品计数率与样品活度的关系应该如式(1)。

$$R = E \cdot A + B + \Delta B \quad (1)$$

式中: R , 实验测得的样品计数率, s^{-1} ; E , 计数效率, 本工作计数效率均指探测器记录到的净计数率与样品活度之比; A , 样品活度, Bq ; B , 通常情况下扣除的确定性本底计数率, s^{-1} ; ΔB , 残余本底计数率, 包括扣本底不准确导致的残留确定性本底以及无法扣除的随机性本底的计数率, s^{-1} 。

将式(1)变形可得式(2)。

$$E = \frac{R - B - \Delta B}{A} \quad (2)$$

当忽略 ΔB 的影响时,式(2)变为式(3)。

$$E' = \frac{R - B}{A} \quad (3)$$

E 与 E' 关系如式(4)。

$$E' = E + \frac{\Delta B}{A} \quad (4)$$

式中: E 是通常意义上的计数效率,它与本底和样品活度无关; E' , 表观计数效率,由于它没有考虑 ΔB 的干扰,所以会受到本底和样品活度两个方面的影响。从式(4)可知, ΔB 对表观计数效率的影响总是以 $\Delta B/A$ 形式出现,因此,只要 ΔB 与 A 采用

彼此对应的单位,表观计数效率的数值就会保持不变。也就是说,在式(1)说明中给出的各物理量的单位只是一个示例,也可以采用另外的单位,比如:如果 A 的单位是 min^{-1} ,则 R 、 B 、 ΔB 的单位为 min^{-1} 。当然, E 和 E' 总是纯数,量纲为1。由于样品活度为 1 Bq 与样品活度为 1 min^{-1} 给人的感觉是活度差了60倍,因此,为了避免产生这种差异,也为了叙述方便,后文在通常情况下将省略物理量的单位。

下面先假定随机性本底可忽略,但确定性本底扣除得不准确,即式(4)中 ΔB 为某个确定值,看其对表观计数效率的影响如何,然后再将 ΔB 假设为满足某种特定分布的随机变量进行进一步研究。虽然通常认为放射性计数满足泊松分布,但泊松分布是整数型离散分布,而 ΔB 表示的是计数率,计数率的取值绝大多数都不是整数,因此考虑采用最简单的连续分布(均匀分布)和最常用的连续分布(正态分布)进行研究。

2 当 ΔB 为某个确定值时

式(4)反映了本底对表观计数效率的影响规律,为了更加直观,按式(4)作图示于图1,其中假设 $E=90\%$, ΔB 分别为 0.1 、 0 、 -0.1 , A 在 $0.1\sim 100$ 变化。由图1可知:当 $\Delta B=0$ 时,表观计数效率与计数效率没有区别,表现为图1中的水平直线;当 $\Delta B=0.1$ 时,表观计数效率大于计数效率;反之,当 $\Delta B=-0.1$ 时,表观计数效率小于计数效率。对于 ΔB 等于 0.1 或 -0.1 的情形,样品活度越低,表观计数效率受到的影响就越大。

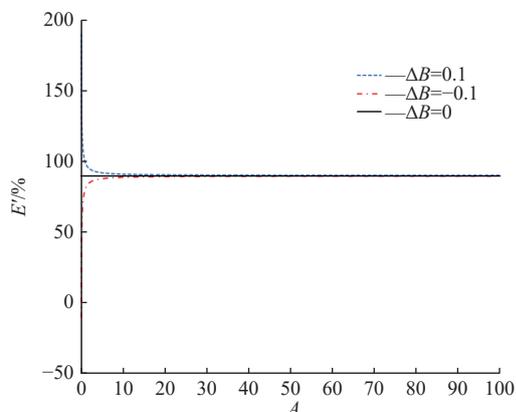


图1 ΔB 为确定值时表观计数效率的变化规律
Fig. 1 Variation of apparent counting efficiency when ΔB is fixed

因此,应该根据不同的情况来决定是否需要区分计数效率和表观计数效率这两个概念。当样品活度足够高时, ΔB 的影响可以忽略,其效果与 $\Delta B=0$ 几乎完全相同,可把按式(3)计算得到的 E' 当成 E ,从而不用区分这两个概念。反之,当样品活度特别低时, ΔB 的影响不可以忽略,在这种情况下就必须区分 E' 和 E ,否则就会得到“样品计数效率随样品活度而变化”的错误结论。

3 当 ΔB 满足均匀分布时

3.1 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ 时

按式(4)作图示于图2,其中假设: $E=90\%$; A 在 $0.1\sim 100$ 变化,步长为 0.1 ,数据个数为 1000 ; $U(0,1)$ 是 $(0,1)$ 之间的均匀分布,期望值为 $1/2$,方差为 $1/12$ 。因此, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ 的期望值为 $\pm 0.1/2$,方差为 $0.01/12$ 。Excel生成的随机数个数为 1000 。

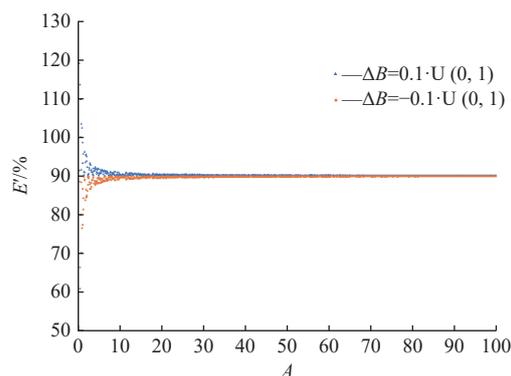


图2 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ 时表观计数效率的变化规律
Fig. 2 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$

对比图2与图1可知,图2中 $\Delta B = 0.1 \cdot U(0,1)$ 的点在两条线之间波动,这两条线正好与图1中 $\Delta B = 0.1$ 的曲线和 $\Delta B = 0$ 的水平直线相对应。图2中 $\Delta B = -0.1 \cdot U(0,1)$ 的点也在两条线之间波动,这两条线也正好与图1中 $\Delta B = -0.1$ 的曲线和 $\Delta B = 0$ 的水平直线相对应。也就是说,图1中的3条线是图2中相应情况下的分界线。为了更清楚展示数据点波动较大部分的情况,将图2中 $A \leq 10$ 的部分单独作图,结果示于图3。注意到当 $A < 5$ 时,图3中表观计数效率波动很大,因此直接把表观计数效率当作计数效率使用不可取。将式(1)改写为式(5)。

$$R - B = E \cdot A + \Delta B \quad (5)$$

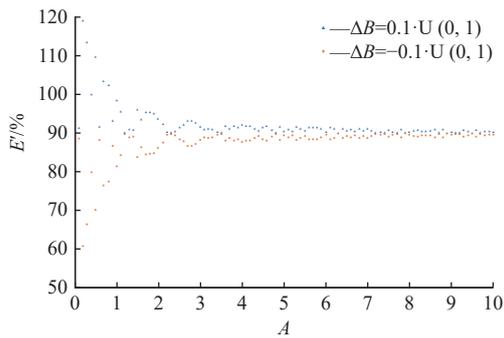


图3 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ 时表观计数效率的变化规律(局部)

Fig. 3 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ (partial enlarged)

然后将图3对应的数据按照式(5)作图,结果示于图4。由图4可知:两条直线的斜率分别为0.8985和0.9015,即对应的计数效率分别为89.85%和90.15%,与预期的计数效率90%近似相等。两条直线的截距分别为 ± 0.0584 ,也接近于 ΔB 的期望值 $\pm 0.1/2$ 。因此,可以考虑将图4方法作为一种获取样品计数效率的措施。尽管文献[6]推荐此法,但这可能只是在没有较高活度标准源情况下的一种权宜之计,因为这种方法工作量大、效率低。如果有较高活度标准源,比如 $A > 100$ (图1、2),只用一个样品就可以得到比较准确的计数效率。

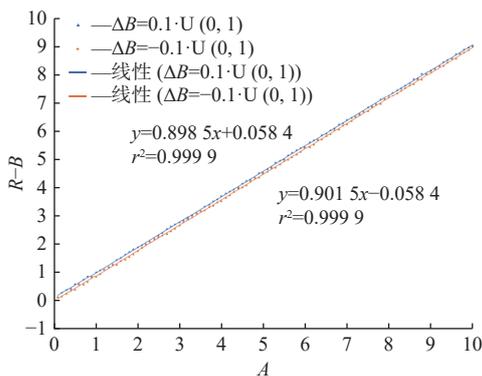


图4 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$ 时 $R-B$ 随 A 的变化

Fig. 4 Variation of $R-B$ with A when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$

考虑到图2的关键信息已在图3显示, ΔB 为满足其它分布的随机变量的情况下也有类似关系,因此下面的讨论均只展示 $A \leq 10$ 时的结果。

3.2 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$ 时

在3.1节中, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(0,1)$, ΔB 的期望值为 $\pm 0.1/2$,表示本底扣除存在系统误差。因此本节讨论没有系统误差的情况。假设: $E = 90\%$; A 在

$0.1 \sim 100$ 变化,步长为0.1,数据个数为1000; $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$,其中 $U(-0.5,0.5)$ 是 $(-0.5,0.5)$ 之间的均匀分布,期望值为0,方差为 $1/12$ 。因此, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$ 的期望值为0,方差为 $0.01/12$ 。Excel生成的随机数个数为1000。将 $A \leq 10$ 的部分数据按式(4)作图示于图5。由图5可知:与图3类似,从左往右,表观计数效率逐渐趋近于90%。不同的是,图3中纵坐标等于90%的水平直线是一条边界线,而图5中纵坐标等于90%的水平直线不是边界线,在从左往右的趋近过程中,数据点来回穿越这条水平直线。这些结果反映了 $U(-0.5,0.5)$ 与 $U(0,1)$ 各自的特征。

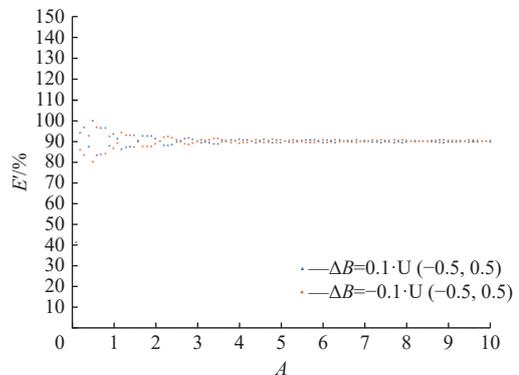


图5 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$ 时表观计数效率的变化规律(局部)

Fig. 5 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot U(-0.5,0.5)$ (partial enlarged)

4 当 ΔB 满足正态分布时

4.1 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5,1)$ 时

假设: $E = 90\%$; A 在 $0.1 \sim 100$ 变化,步长为0.1,数据个数为1000; $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5,1)$, $N(0.5,1)$ 是期望值为0.5、方差为1的正态分布。因此, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5,1)$ 的期望值为 ± 0.05 ,方差为0.01。Excel生成的随机数个数为1000。将 $A \leq 10$ 的部分数据按式(4)作图示于图6。对比图6与图3,两者本底扣除均有系统误差,两者 ΔB 的期望值都是 ± 0.05 ,即系统误差相同,但由于图6对应的方差(0.01)是图3对应方差(0.01/12)的12倍,因此表观计数效率在图6的波动范围明显大于在图3的波动范围。另外,不像图3中纵坐标等于90%的水平直线是一条边界线,图6中纵坐标等于90%的水平直线不是边界线,这是 $N(0.5,1)$ 与 $U(0,1)$ 分布特征不同造成的。需要提及的是, $N(0.5,1)$

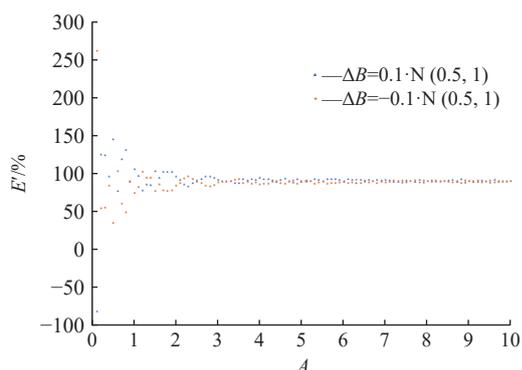


图6 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5, 1)$ 时表观计数效率的变化规律(局部)

Fig. 6 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5, 1)$ (partial enlarged)

的 $\pm 3\sigma$ 范围为 $(-2.5, 3.5)$, 对于最左边的点($A=0.1$), 对应 $\Delta B = 0.1 \cdot N(0.5, 1)$ 的表观计数效率的波动范围为 $(-160\%, 440\%)$, 对应 $\Delta B = -0.1 \cdot N(0.5, 1)$ 的表观计数效率的波动范围为 $(-260\%, 340\%)$, 所以, 尽管图6最左边的点与其它数据点相比, 偏离较远, 但仍然在 $\pm 3\sigma$ 范围内, 属于正常情况。

4.2 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0, 1)$ 时

在4.1节中, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0.5, 1)$, ΔB 的期望值为 ± 0.05 , 表示本底扣除存在系统误差。因此本节讨论没有系统误差的情况。假设: $E=90\%$; A 在 $0.1 \sim 100$ 变化, 步长为 0.1 , 数据个数为 1000 ; $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0, 1)$, $N(0, 1)$ 是期望值为 0 、方差为 1 的正态分布。因此, $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0, 1)$ 的期望值为 0 , 方差为 0.01 。Excel生成的随机数个数为 1000 。将 $A \leq 10$ 的部分数据按式(4)作图示于图7。对比图7与图5, 两者本底扣除均没有系统误差, 两者 ΔB 的期望

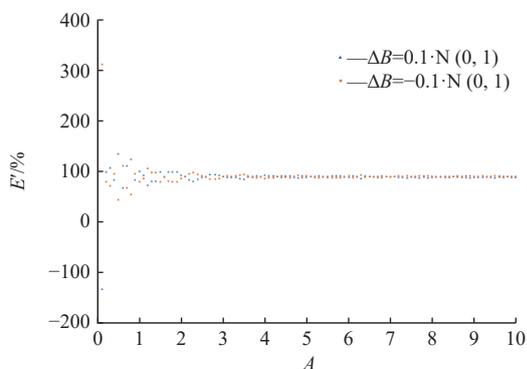


图7 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0, 1)$ 时表观计数效率的变化规律(局部)

Fig. 7 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(0, 1)$ (partial enlarged)

值都是 0 , 但由于图7对应的方差(0.01)是图5对应的方差($0.01/12$)的 12 倍, 因此表观计数效率在图7的波动范围明显大于在图5的波动范围。

对于图7数据, $N(0, 1)$ 的 $\pm 3\sigma$ 范围为 $(-3, 3)$, 对于最左边的点($A=0.1$), 表观计数效率的波动范围为 $(-210\%, 390\%)$, 所以, 尽管图7最左边的点与其它数据点相比, 偏离较远, 但仍然在 $\pm 3\sigma$ 范围内, 属于正常情况。至此, 有必要对图5-7中 $A=0.1$ 的点进行单独说明。对于式(4), A 在分母上, ΔB 的波动将会被放大 10 倍, 所以, 一旦 ΔB 的绝对值比较大, E' 就会显著偏离计数效率。图5-7中最左边的点均印证了这一点。

5 关于 ΔB 的补充说明

对第2-4节中的 ΔB , 可以统一表示为 $\pm 0.1 \cdot (x_0 + x_1)$, 其中: 系数 0.1 为伸缩因子, 这是考虑了活度 A 的第一个点以及 A 变化的步长均为 0.1 的因素确定的; x_0 是期望值为 0 的随机变量, 与随机性本底相对应; x_1 是确定值, 与本底扣除不准确引入的系统误差相对应。对于第2节中的 ΔB , $x_0=0$; $x_1=0, \pm 1$ 。对于第3.1节中的 ΔB , $x_0=U(-0.5, 0.5)$; $x_1=0.5$ 。对于第3.2节中的 ΔB , $x_0=U(-0.5, 0.5)$; $x_1=0$ 。对于第4.1节中的 ΔB , $x_0=N(0, 1)$; $x_1=0.5$ 。对于第4.2节中的 ΔB , $x_0=N(0, 1)$; $x_1=0$ 。所以, 上述 ΔB 均是在期望值为 0 的均匀分布 $U(-0.5, 0.5)$ 或正态分布 $N(0, 1)$ 基础上通过平移操作和伸缩操作建立, 相关的期望值和方差计算方法参见文献[7]。

由于本底的影响非常复杂, 因此很难用某个分布来准确模拟本底的影响。不过, 用模拟的方式研究本底和样品活度对表观计数效率影响的

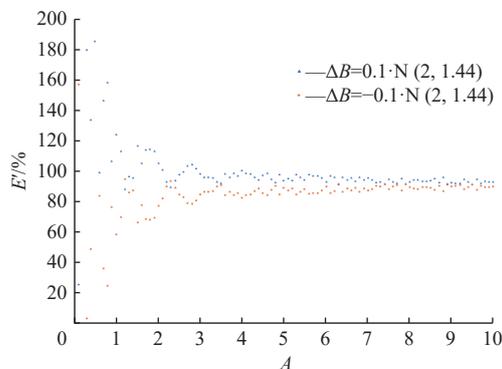


图8 当 $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(2, 1.44)$ 时表观计数效率的变化规律(局部)

Fig. 8 Variation of apparent counting efficiency when $\Delta B = \pm 0.1 \cdot N(2, 1.44)$ (partial enlarged)

大致趋势是可能的。用式(4)模拟文献[6]中的数据趋势,结果示于图8,模拟条件为: $E=0.917$,该值与文献[6]拟合直线斜率的倒数相对应,因为该文献纵坐标与横坐标的选择与图4正好相反,所以拟合直线斜率的倒数才是计数效率; $\Delta B=\pm 0.1 \cdot N(2,1.44)$, ΔB 方差 0.01×1.44 转换自该条件下 ^{60}Co 本底标准偏差 0.12 , ΔB 期望值 0.1×2 是假设值(后有说明); A 在 $0.1 \sim 100$ 变化。文献[6]给出的计数效率(实际应该是表观计数效率)与样品活度的关系与图8中 $\Delta B=-0.1 \cdot N(2,1.44)$ 的数据点变化趋势大致相似。文献[6]将图8中 $\Delta B=-0.1 \cdot N(2,1.44)$ 的数据点所示的效率下降和波动现象简单归因于Quantulus GCT 6220液闪仪的GCT(Guard Compensation Technology, GCT)功能,即反符合屏蔽补偿技术,认为是GCT功能把一些本应该属于样品辐射的信号当作本底信号错误地扣除了。这种说法值得商榷,原因有两个方面:一方面,低活度样品的表观计数效率都应该存在类似于图8所示的波动现象,不管所用仪器是液闪仪还是 α 谱仪或 γ 谱仪,也不管液闪仪是否采用GCT功能;另一方面,文献[6]给出 $3 \sim 167 \text{ keV}$ 的本底为 $(0.44 \pm 0.15) \text{ min}^{-1}$,计数效率为 $92.1\% \pm 0.7\%$,而 $4 \sim 167 \text{ keV}$ 的本底为 $(0.64 \pm 0.18) \text{ min}^{-1}$,计数效率为 $91.4\% \pm 0.7\%$,计数效率前者大于后者是满足一般规律的,但本底前者小于后者却与一般规律正好相反,这说明有可能是 $3 \sim 167 \text{ keV}$ 的本底偏低了至少 0.2 min^{-1} ,也有可能是 $4 \sim 167 \text{ keV}$ 的本底偏高了至少 0.2 min^{-1} 。上述数据针对的是 H_2O 空白,对于含 H_2O_2 的空白,文献[6]给出 $4 \sim 167 \text{ keV}$ 的本底为 $(0.78 \pm 0.12) \text{ min}^{-1}$,该本底值很可能也存在偏高现象。图8中 $\Delta B=-0.1 \cdot N(2,1.44)$ 的数据点就是假设本底多扣 0.2 min^{-1} 得到的模拟结果。总之,本底的影响非常复杂,不宜将图8所示的波动现象简单归因于单一的GCT因素。

6 结 论

表观计数效率和计数效率是两个不同的概念,它们的关系类似于随机变量与随机变量期望值的关系。本底和样品活度对计数效率没有影响,但对表观计数效率有影响。本底的影响分为两方面:一是因本底扣除不准确而引入的系统误差,它使所有表观计数效率向同一方向偏离计数效率;另一个是本底波动导致的偶然误差,它使表观计数效率在一定范围内随机波动。不管是系统误差因素,还是偶然误差因素,本底对表观计数效率的影响都将随着样品活度的降低而增大。对高活度样品,可以不用区分表观计数效率和计数效率这两个概念,但对低活度样品必须区别使用。在有高活度标准源时,不推荐使用通过测量大量低活度样品来获取计数效率的低效方法,宜通过测量活度足够高的标准样品(即本底影响可以忽略的样品)来获取计数效率。

参考文献:

- [1] Horrocks D L. Applications of liquid scintillation counting[M]. New York: Academic Press, 1974.
- [2] 郑成法.核辐射测量[M].北京:中国原子能出版社,1983.
- [3] 吴治华等编.原子核物理实验方法[M].3版(修订本).北京:中国原子能出版社,1997.
- [4] Knoll G F. Radiation detection and measurement[M]. 4th ed. Hoboken, N J, USA: John Wiley, 2010.
- [5] L'Annunziata M F. Handbook of radioactivity analysis[M]. 3rd ed. San Diego: Elsevier Science, 2012.
- [6] Lin X, Yu X, Lin M. Analysis of atmospheric radiocesium at natural abundance by a new-type liquid scintillation counter equipped with guard compensation technology[J]. ACS Earth Space Chem, 2022, 6(7): 1868-1875.
- [7] Rice John A. Mathematical statistics and data analysis[M]. 3rd ed. USA: Thomson Brooks/Cole, 2007.