

医用放射性废液取样容器尺寸的最优化研究

陆小军 刘佳煜 胡崇庆 韩 刚 宋家斑 何林锋 畅金学

(上海市计量测试技术研究院 上海 201203)

摘要 医用放射性废液中核素放射性活度必须经监测满足相关标准后,该放射性废液方可排放,采用 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 晶体探测医用放射性废液的核素活度,废液样品体积及其在探测器周围的分布情况直接影响探测效率,为此利用 Geant4 工具建立 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 晶体探测模型,探索最优马林杯样品盒尺寸参数的变化规律,并在实验室利用 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 晶体探测器和 3D 打印光敏树脂样品盒作验证实验。结果显示:单纯增加样品体积不能提高探测效率,随着样品体积增大,探测效率随样品盒环状部分深度方向的变化趋势趋于平缓。研究得到马林杯最优尺寸比例:环状部分深度(h_2)和顶部半径(r)分别约为探测器晶体长度和空心腔直径的两倍,顶部半径(r)和样品盒高度(H)之比约为 0.5。在最优化尺寸下,全能峰探测效率实验值与模拟结果一致,相对偏差优于 2.5%。研究结果将为后续医用放射性废液监测装置在探测器选择、采样容器设计、加工及放射性废液监测量值溯源方法等方面提供重要的技术借鉴。

关键词 医用放射性废液, 取样容器尺寸, 最优化, Geant4 模拟, $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器

中图分类号 TL84

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.070302

Optimization study on the size of medical radioactive waste liquid sampling container

LU Xiaojun LIU Jiayu HU Chongqing HAN Gang SONG Jiaban HE Linfeng CHANG Jinxue

(Shanghai Institute of Measurement and Testing Technology, Shanghai 201203, China)

Abstract [Background] With the development of nuclear medicine, the amount of medical radioactive waste increase rapidly. The radioactivity of nuclides in medical radioactive liquid waste must be monitored to meet the relevant standards before discharge of the radioactive liquid waste. The volume of the waste sample and its distribution around the detector have a direct impact on the detection efficiency. [Purpose] This study aims to explore the variation law of the size parameters of the optimal Marlin cup sample box and provide a basis for subsequent monitoring methods. [Methods] The $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ crystal was applied to the detection of nuclide activity in medical radioactive waste liquid. Geant4 tool was employed to establish a $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ crystal detection model. The changing rules of the optimal Marin cup sample box size parameters were explored using a $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector, and 3D printed photosensitive resin samples were used in the laboratory box for verification experiments. [Results] Experimental results show that simply increasing the sample volume cannot improve the detection

上海市公共卫生重点学科项目(No.GWVI-11.1-40)、上海市放射性安全检测及污染控制专业技术服务平台研发专项(No.H00RK2319)、上海市市场监督管理局科技项目(No.2022-07)资助

第一作者: 陆小军, 男, 1987 年出生, 2013 年于中国辐射防护研究院获硕士学位, 辐射防护及环境保护专业

通信作者: 畅金学, E-mail: changjx@simt.com.cn

收稿日期: 2023-12-04, 修回日期: 2024-01-16

Supported by the Shanghai Public Health Key Discipline Project (No.GWVI-11.1-40), Pollution Control Professional Technical Service Platform (No. H00RK2319), and the Science and Technology Project of Shanghai Municipal Bureau of Market Supervision (No.2022-07)

First author: LU Xiaojun, male, born in 1987, graduated from China Institute of Radiation Protection with a master's degree in 2013, focusing on radiation protection and environmental protection

Corresponding author: CHANG Jinxue, E-mail: changjx@simt.com.cn

Received date: 2023-12-04, revised date: 2024-01-16

efficiency, and the change trend of the detection efficiency in the depth direction of the annular part of the sample container tends to be flat with increase of the sample volume. The optimal size ratio of the Marinelli beaker is that the depth of the annular portion (h_2) and the radius (r) are approximately two times the length of the detector crystal and the diameter of the hollow cavity, respectively, and the ratio of the radius (r) to the height of the sample container (H) is approximately 0.5. The experimental results of the full energy peak detection efficiency with optimized sample container size are consistent with the simulation results, and the relative deviation is better than 2.5%. **[Conclusions]** The results of the study provide an important technical reference for detector selection, sampling container design, and processing and traceability methods of medical radioactive liquid waste monitoring devices.

Key words Medical radioactive liquid waste, Sampling container size, Optimization, Geant4 simulation, $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector

医用放射性废液是核医学活动中产生的含有放射性核素或被放射性核素污染的液态废物。为了减小对环境和公众的辐射危害,医用放射性废液的活度必须经监测达标后方可排放^[1]。目前,医用放射性废液的活度监测主要通过现场采样后的实验室 γ 谱分析实现,对于医用放射性废液来讲,所含核素通常寿命较短,如 ^{131}I 的半衰期为8.025 d, ^{18}F 的半衰期仅110 min,且能谱分布相对简单,若能实现现场取样分析测量,则能更及时、准确地测得医用放射性废液中短寿命核素的活度,进而准确评估排放对环境及公众造成的影响^[2-3]。 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器具有较好的能量分辨力和探测效率,且测量过程中不需要制冷设备,可以克服实验室高纯锗能谱分析周期长、样品过程控制严格的问题。

为了尽可能减少放射性废液的采样量,且提高仪器的探测效率,取样容器尺寸的最优化问题一直备受国内外学者关注。Klemola^[4]、Park^[5]、Ahmed等^[6]基于蒙特卡罗模拟计算程序MCNP(Monte Carlo N-Particle Transport code),借助高纯锗 γ 谱仪探究了马林杯半径及高度、体积参数的最佳化设计,Zamzamian^[7-8]通过Matlab遗传算法与MCNP模拟相结合,探究了高纯锗 γ 谱仪测量均匀和非均匀样品马林杯尺寸的最优化设计。国内学者则多通过MCNP模拟或高纯锗 γ 谱仪配套的LabSOCS无源效率刻度软件进行不同介质、组分、密度下的探测效率模拟,进而选出最佳的样品盒尺寸参数^[9-11]。为此文章拟利用实验室现有的 $\text{O}25.4\text{ mm}\times25.4\text{ mm}$ 的 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器和Geant4(Geometry and Tracking 4)工具建立 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 晶体探测模型,模拟探测器对不同体积及马林杯尺寸 ^{131}I 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 和 ^{18}F 水溶液的全能峰探测效率,探索每种体积下的最优尺寸参数及规律,并借助3D打印技术加工光敏树脂马林杯样品盒,实验验证最优马林杯尺寸参数。

1 实验器具和材料

1.1 Geant4模拟工具

Geant4 是一种由欧洲核子中心(European Organization for Nuclear Research, CERN)和日本高能物理中心(High Energy Accelerator Research Organization, KEK)联合开发的面向对象、源代码开放、基于C++语言的蒙特卡罗模拟软件,主要用于模拟粒子输运和粒子与物质相互作用的过程,具有可视化、粒子追踪、可以处理复杂的几何体等优点,大大降低实验和时间成本,在核辐射探测等方面获得了广泛的应用。

本研究采用蒙特卡罗库工具包 Geant4 10.0,根据厂家提供的 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器结构图,在探测器几何结构描述文件中建立了包括 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器和马林杯样品盒的简易探测模型,见图1。根据Zamzamian^[7]等的研究,探测器探头包壳材料密度对探测器最佳尺寸的影响可忽略,故而为简化模型,模拟时 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 晶体与被测样品之间采用空气填充。由于关注核素特征 γ 射线的能量主要在低能区,故选用Geant4中适用于低能电磁相互作用模拟的Penelope物理过程。设置粒子发射起点均匀分布于凹槽形马林杯水溶液样品模型中,各向同性地向外辐射 γ 射线,利用Geant4代码对 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 中 γ 光子的能量沉积情况进行模拟。在模拟中通过改变马林杯样品盒的参数(高度 H 、马林杯半径 r (不含壁厚 t)、马林杯内环状部分高度 h_2 (含壁厚 t)),设置固定的半径 r 和高度 h_2 的步进长度 Δh ,以使不同体积的样品填充到马林杯样品盒中。为便于实际工作中操作,选择模拟样品体积分别为500 mL、1 000 mL、1 500 mL和2 000 mL,模拟过程中马林杯的孔半径 d (不含壁厚 t)保持不变。每一个体积下的截止条件为: $h_2\geq H, V=\pi r^2 h_1+\pi(r^2-(d+t)^2)h_2>$ 设定体积 V_0 。

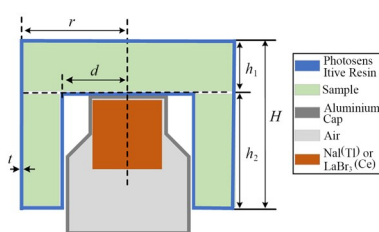


图1 LaBr₃(Ce)探测器和马林杯盒的探测模型示意图
Fig.1 Diagram of detection model of the LaBr₃(Ce) detector and Marinelli beakers

1.2 3D打印光敏树脂马林杯样品盒

采用3D打印光敏树脂技术,由聚合物单体与预聚体组成的树脂材料在一定波长的紫外光(250~300 nm)照射下引起聚合反应,完成固态化转换,成型快且可自定义形状和尺寸^[12-13],实验中用来对样

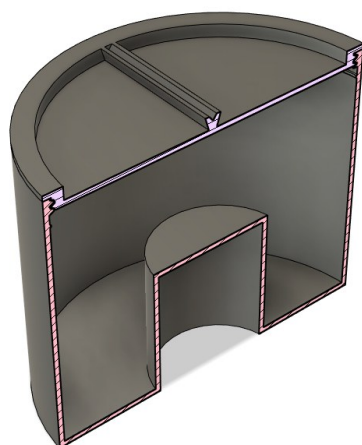


图2 3D打印样品盒设计图及实物图
Fig.2 Design and physical drawing of 3D printing Marinelli beakers

1.4 医用放射性核素参考溶液

实验用医用放射性核素(¹³¹I、¹⁸F、^{99m}Tc)由上海原子科兴药业有限公司提供,溶液初始活度为18.5~37 MBq,γ杂质小于0.1%。通过移液器分装至10 mL中硼硅西林瓶,西林瓶外径(22.5±0.3) mm,壁厚(1.0±0.1) mm,扩容至3.0 g,核素活度溯源至4πγ电离室活度标准装置,相对扩展不确定度为2.5%(k=2)。

2 原理及方法

2.1 马林杯样品盒的样品体积及变量考虑

根据图1,马林杯内样品的体积由式(1)计算:

$$V = \pi r^2 h_1 + \pi [r^2 - (d + t)^2] \cdot h_2 \quad (1)$$

品容器尺寸最优化模拟结果的验证,本研究采用白色光敏树脂3D打印最优化模拟得到的样品容器尺寸的样品盒,材料密度1.3 g·cm⁻³,尺寸精度±1 mm。外观设计及实物图见图2。

1.3 LaBr₃(Ce)闪烁探测器

实验用LaBr₃(Ce)闪烁体探测器生产厂家为SAINT-GOBAIN,晶体型号为B380,尺寸Ø25.4 mm×25.4 mm,光电倍增管型号为R9420,与晶体之间通过光导连接,外围由0.5 mm厚的铝材包覆,铝材与晶体之间距离为2.5 mm,由空气填充。探测器高压、前置及多道分析器由14针接口DigiBASE提供,生产厂家为美国ORTEC公司,尺寸Ø63 mm×80 mm,最大数据通过率200 ks⁻¹,与LaBr₃(Ce)闪烁晶体适配后,设置工作高压为850 V,探测器对¹³⁷Cs点源661.7 keV射线的能量分辨率3.7%。



由式(1)可以看出,对于特定探测器,内半径*d*即已知。若给定样品体积*V*和容器的壁厚*t*,则存在样品盒半径*r*(不含壁厚*t*)、样品盒环状部分高度*h*₂(含探头顶部容器壁厚*t*)和圆柱状部分高度*h*₁(不含探头顶部容器壁厚*t*)这三个变量,很难通过数值方法计算得到三个变量的最优解,但是如果已知其中的两个变量,则第三个变量可由式(1)计算得到。因此,本研究工作选择马林杯半径*r*和环状部分的深度*h*₂两个变量的优化。

2.2 实验步骤

1)在样品体积分别为0.5 L、1.0 L、1.5 L、2.0 L时,固定马林杯半径*r*,利用Geant4工具分别模拟探测器在*h*₂深度方向上的全能峰效率,探寻探测器对¹³¹I、^{99m}Tc和¹⁸F核素主要能量峰的最优全能峰效率

ε_i 及对应的深度 h_{2i} ;

2)在最优深度 $h_{2i} \pm 2\Delta h$ 范围内,以 $\Delta h/2$ 步长范围内再次模拟探寻最优半径 r ;

3)3D打印光敏树脂样品盒对模拟结果进行实验验证;

4)LaBr₃(Ce)探测器对水样的最小可探测活度浓度估算^[14],计算方法见式(2)。

$$A = \frac{L_D}{t \cdot \varepsilon \cdot p \cdot V} = \frac{2.71 + 2L_C}{t \cdot \varepsilon \cdot p \cdot V} = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{N_b}}{t \cdot \varepsilon \cdot p \cdot V} \quad (2)$$

式中: L_D 为探测器的探测下限; L_C 为探测器的判断

限; t 为测量时间; s ; ε 为全能峰探测效率; p 为核素的分支比; V 为水样的体积, L 。

3 结果及分析

3.1 环状部分深度 h_2 及半径 r 的最优化

常用的0.5 L马林杯的半径 r 约53 mm,故本工作取53 mm作为初始半径,马林杯环状部分以步长 $\Delta h=10$ mm逐渐增大,对于特定的样品体积(0.5 L、1.0 L、1.5 L、2.0 L),直至图1中根据式(1)计算 $h_1 \leq 0$ 时,模拟停止,结果见图3。

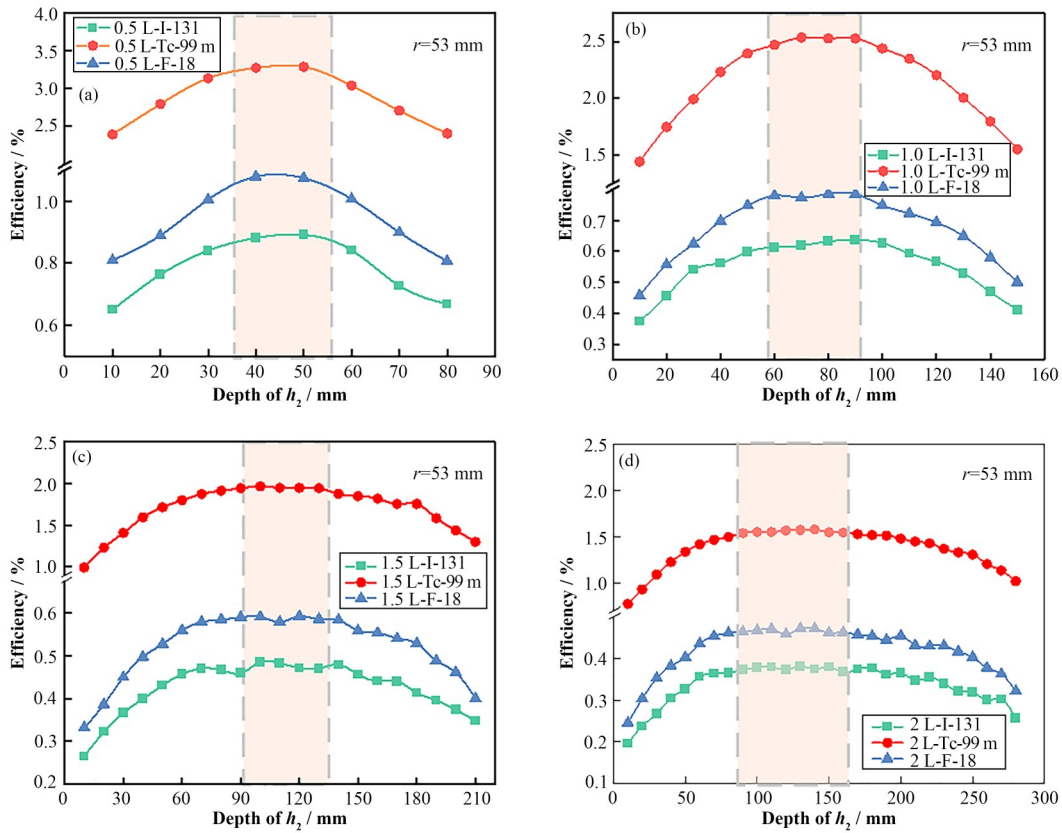


图3 在 $r=53$ mm时,LaBr₃(Ce)谱仪对¹³¹I、¹⁸F、^{99m}Tc的全能峰效率随深度 h_2 变化的曲线
Fig.3 Variation curve of total energy peak efficiency of the LaBr₃(Ce) detector for ¹³¹I, ¹⁸F, and ^{99m}Tc with depth h_2 at $r = 53$ mm

由图3可以看出,全能峰效率在环状部分深度方向近似呈现对称分布,且LaBr₃(Ce)探测器对^{99m}Tc样品的探测效率明显大于¹³¹I和¹⁸F,探测效率从大到小依次为^{99m}Tc>¹⁸F>¹³¹I。同时可以看出随着采样体积的增大,全能峰效率呈现下降趋势,说明单纯增加样品体积,并不能增加探测效率;体积越大,效率随深度方向的变化趋势趋于平缓,表明此时深度方向的变化对效率的影响显著性降低。为此,本实验在对1.5 L和2.0 L样品半径 r 方向优化时,增大了 h_2 的筛选范围,然后在 (h_{2Low}, h_{2High}) 之间以 $1/2\Delta h$ 的步长进行内插,在半径 r 分别为28 mm、33 mm、

38 mm、43 mm、48 mm、53 mm、58 mm、63 mm、68 mm、73 mm进行效率模拟,结果见图4。

由图4可以看出,当采样体积为0.5 L时,对于特定的半径 r ,探测效率在深度 h_2 方向上变化相对显著;随着体积的增大,尤其当体积大于1 L,半径 r 小于53 mm时,效率随着半径 r 的增大而逐渐增大,在相同的半径 r 处,效率在深度90~160 mm范围内的变化已不明显。同时可以看出,在4种采样体积下,LaBr₃(Ce)探测器对¹³¹I、¹⁸F、^{99m}Tc三种核素的最高探测效率对应的半径 r 是一致的,分别为48 mm(+10%)、53 mm(+10%)、58 mm(+9%)和68 mm

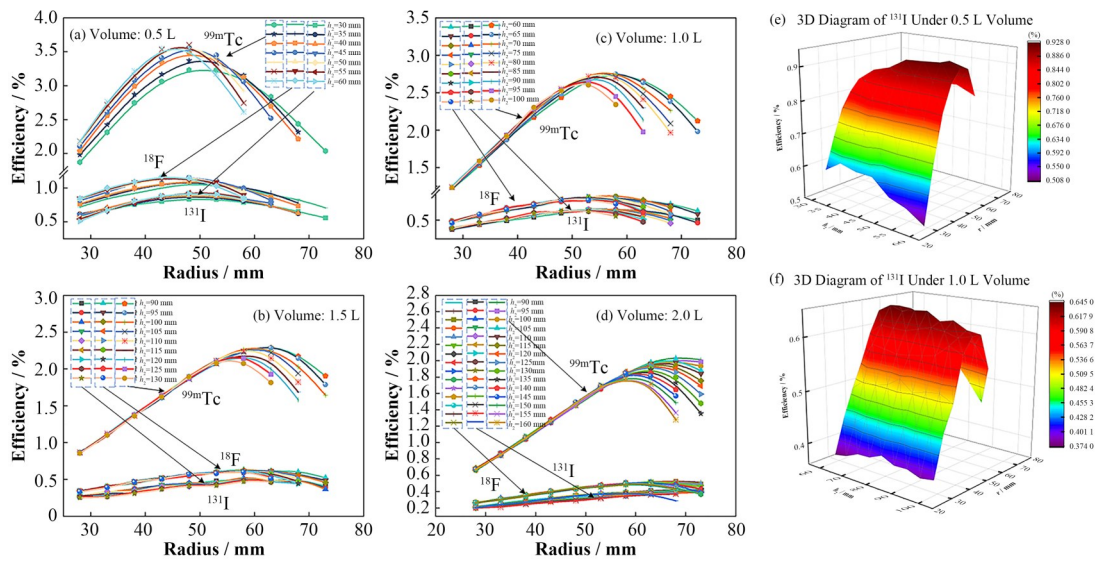


图4 h_2 筛选范围内,LaBr₃(Ce)探测器对不同体积¹³¹I、¹⁸F、^{99m}Tc的模拟效率随半径 r 变化
(a) 0.5 L,(b) 1.5 L,(c) 1.0 L,(d) 2.0 L)及半径-深度方向的3D分布((e) 0.5 L,(f) 1.0 L)

Fig.4 Within the screening range of h_2 , variation curves of the simulation efficiency for ¹³¹I, ¹⁸F, and ^{99m}Tc with radius r at volumes of 0.5 L (a), 1.5 L (b), 1.0 L (c), 2.0 L (d), and the 3D distribution of the radius-depth direction at volumes of 0.5 L (e) and 1.0 L (f)

(+8%),最优深度在 $\Delta h=5$ mm内存在差异,全能峰模拟效率偏差不超过1%,这说明样品盒的最优尺寸对射线能量是不敏感的,而效率的差异主要是因为探测器对空间位置不同能量的粒子响应及蒙特卡罗模拟粒子输运结果本身的不确定性引起的。根据模拟结果发现,效率最佳的马林杯几何形状和尺寸比例为:环状部分深度(h_2)和顶部半径(r)分别约为探

测器晶体长度和空心腔直径的两倍,顶部半径(r)和样品盒高度(H)之比约为0.5。

3.2 最优化尺寸的验证

为验证 Geant4 模拟结果,通过 3D 打印技术,筛选和加工了两种采样体积下不同半径(r)和深度(h_2)的光敏树脂样品盒,用¹³¹I($T_{1/2}=8.025$ d)核素进行实验验证,样品盒尺寸见表1。

表1 实验验证用3D打印马林杯样品盒尺寸参数
Table 1 Size parameters of 3D printing Marinelli beaker sample container

马林杯序号 Marinelli beaker No.	体积 Volume / L	半径 Radius r / mm	深度 Depth h_2 / mm	体积 Volume / L	半径 Radius r / mm	深度 Depth h_2 / mm
1	0.5	43	50	1.0	58	55
2		48	40		53	60
3		53	45		63	50
4		48	55		58	70
5		53	55		53	65
6		48	50		53	75
7		48	60		53	80
8		48	45		58	50

验证结果见图5,从图中可以看出,两种体积下,实验结果普遍低于模拟结果,4号和5号马林杯对应探测效率均为最高,与模拟结果一致,相对偏差优于2.5%,说明 Geant4 建立的探测模型是可靠的,模拟的最优尺寸是可信的。

采用表1中4号马林杯,根据式(2)计算 LaBr₃(Ce)探测器在无屏蔽条件下,测量 10 min,对 0.5 L 和 1.0 L 饮用水样品中¹³¹I的最低可探测活度浓度

(置信水平 95%),结果分别为 37.4 Bq·L⁻¹和 54.8 Bq·L⁻¹,显然大于 HJ 1188—2021 对医用放射性废液的排放限值要求(10 Bq·L⁻¹),考虑到现场环境辐射水平高于本底,现场监测时应通过设计增加屏蔽材料和测量时间,尽可能提升最小可分析活度,满足现场在线监测要求。

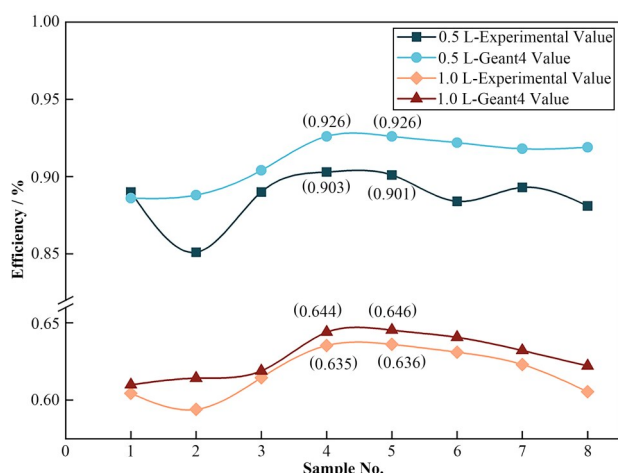


图5 用 ^{131}I 核素对0.5 L和1.0 L样品盒尺寸的实验及模拟结果验证

Fig.5 Experimental verification results of 0.5 L and 1.0 L container sizes using ^{131}I nuclide

4 结语

通过 Geant4 蒙特卡洛模拟探究了 $\text{O}25.4\text{ mm}\times 25.4\text{ mm}$ $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器对4种体积马林杯样品盒的最优尺寸,并应用3D打印技术加工了光敏树脂样品盒进行实验验证,结果证明:1)Geant4建立的探测模型是可靠的,单纯增加样品体积不能提高探测效率;2)随着样品体积增大,探测效率随样品盒环状部分深度方向的变化趋势趋于平缓,取样容器的最优化尺寸为环状部分深度(h_2)和顶部半径(r)分别约为探测器晶体长度和空心腔直径(d)的两倍、顶部半径(r)和样品盒高度(H)之比约为0.5。

本研究可为医用放射性废液监测装置中探测器的选择、采样容器设计、加工及放射性废液监测量值溯源方法等方面提供重要的技术借鉴,后期还将通过研究进一步提高 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 探测器可探测活度,以满足医用放射性废液排放监测的要求。

作者贡献声明 陆小军完成了实验方案设计、数据分析并撰写了论文;刘佳煜完成 Geant4 蒙特卡洛模型建立及模拟结果处理;胡崇庆参与样品容器的3D打印尺寸设计及制图;韩刚参考溶液的制备及定值;宋家斑参与探测效率实验测试;何林锋提供参考源制备方案及论文结构设计;畅金学参与论文结构审查,并提供项目资助。

参考文献

- 1 中华人民共和国生态环境部. 核医学辐射防护与安全要求: HJ 1188—2021[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2021.
Ministry of Ecology and Environment of the People's

Republic of China. Radiation protection and safety requirements for nuclear medicine: HJ 1188—2021[S]. Beijing: China Environmental Science Press, 2021.

- 2 张胜, 王永军, 王瑞军, 等. 基于4G-RTU的水体 γ 放射性在线监测系统研制[J]. 核技术, 2024, 47(1): 010402. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010402.
ZHANG Sheng, WANG Yongjun, WANG Ruijun, *et al.* Development of an online monitoring system for water body γ radioactivity based on 4G-RTU[J]. Nuclear Techniques, 2024, 47(1): 010402. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010402.
- 3 郭生良, 向叶舟, 葛良全, 等. 水体放射性在线监测系统校准装置设计[J]. 核技术, 2023, 46(1): 010401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.010401.
GUO Shengliang, XIANG Yezhou, GE Liangquan, *et al.* Design of calibration device for real-time on-line monitoring system of water radioactivity[J]. Nuclear Techniques, 2023, 46(1): 010401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.010401.
- 4 Klemola S. Optimization of sample geometries in low-level gamma spectroscopy[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1996, 369(2 - 3): 578 - 581. DOI: 10.1016/s0168-9002(96)80055-6.
- 5 Park T S, Jeon W J. Measurement of radioactive samples in Marinelli beakers by gamma-ray spectrometry[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1995, 193(1): 133 - 144. DOI: 10.1007/BF02041927.
- 6 Ahmed A S, Capello K, Chiang A, *et al.* Optimization of geometric parameters for Marinelli beaker to maximize the detection efficiency of an HPGe detector[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, 610(3): 718 - 723. DOI: 10.1016/j.nima.2009.09.020.
- 7 Zamzamian S M, Hosseini S A, Samadfam M. Optimization of the marinelli beaker dimensions using genetic algorithm[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2017, 172: 81 - 88. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.03.020.
- 8 Zamzamian S M, Hosseini S A, Feghhi S A, *et al.* Determining of the optimized dimensions of the Marinelli beaker containing source with inhomogeneous emission rate by using genetic algorithm coupled with MCNP and determining distribution type by neural networks[J].

- Applied Radiation and Isotopes: Including Data, Instrumentation and Methods for Use in Agriculture, Industry and Medicine, 2020, **157**: 109039. DOI: 10.1016/j.apradiso.2020.109039.
- 9 许丰, 於国兵, 徐平, 等. γ 能谱分析中马林杯体源几何修正[J]. 核电子学与探测技术, 2021, **41**(6): 1074 - 1079. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.024.
XU Feng, YU Guobing, XU Ping, *et al.* Geometric correction of marinelli BeakerSource in gamma spectrometry[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2021, **41**(6): 1074 - 1079. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.024.
- 10 马运星, 白立新. MCNP程序在HPGe探测器马鞍形样品盒最佳选择中的应用[J]. 原子能科学技术, 2009, **43**(11): 1039 - 1042.
MA Yunxing, BAI Lixin. Application of MCNP code in selection of optimum shape for saddle-like sample box of HPGe detector[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2009, **43**(11): 1039 - 1042.
- 11 王硕, 杨宝路, 周强, 等. 无源效率刻度在马林杯状气体源活度测量中的应用[J]. 中国辐射卫生, 2022, **31**(1): 6 - 12. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.01.002.
- WANG Shuo, YANG Baolu, ZHOU Qiang, *et al.* Application of sourceless efficiency calibration in activity measurement of gas source in Marinelli beaker[J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2022, **31**(1): 6 - 12. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.01.002.
- 12 朱岳. 3D打印用光敏树脂的研究[J]. 山西化工, 2020, **40**(5): 34 - 37. DOI: 10.16525/j.cnki.cn14-1109/tq. 2020. 05.12.
ZHU Yue. Study on photosensitive resin for 3D printing [J]. Shanxi Chemical Industry, 2020, **40**(5): 34 - 37. DOI: 10.16525/j.cnki.cn14-1109/tq.2020.05.12.
- 13 杜月, 林敏, 徐利军, 等. 相转移法制备 ^{137}Cs 3D打印用光敏树脂的可行性研究[J]. 同位素, 2023, **36**(1): 20 - 28. DOI: 10.7538/tws.2022.youxian.020.
DU Yue, LIN Min, XU Lijun, *et al.* Feasibility study on preparation of photosensitive resin for ^{137}Cs 3D printing by phase transfer method[J]. Journal of Isotopes, 2023, **36**(1): 20 - 28. DOI: 10.7538/tws.2022.youxian.020.
- 14 Currie L A. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry [J]. Analytical Chemistry, 1968, **40**(3): 586 - 593. DOI: 10.1021/ac60259a007.