利用高纯锗 γ 射线能谱进行放射性同位素测定的机器学习技术

Ajeeta Khatiwada、Marc Klasky、Marcie Lombardi、Jason Matheny、Arvind Mohan

美国新墨西哥州洛斯阿拉莫斯 *87545*，洛斯阿拉莫斯国家实验室

arXiv:2301.01415v1 [physics.data-an] 4 Jan 2023

摘要

γ 射线能谱分析是一种定量、无损技术，可用于识别放射性核素并对其同位素组成进行定量估算。传统的同位素测定方法面临各种挑战，导致估算的同位素组成存在统计不确定性和系统不确定性。此外，这些方法通常需要进行许多预处理步骤，而且仅在屏蔽条件有限的实验室环境中经过严格测试。在本研究中，我们考察了多种基于机器学习的回归算法，作为传统方法的替代方案，用于分析应急响应领域的 γ 射线能谱数据。这种方法不仅省去了分析过程中的许多步骤，因此有望降低这一系统不确定性的来源，而且在应急响应应用中也展现出与传统方法相当的性能。

关键词：放射性核素，γ射线能谱，同位素测定，丰度测定，机器学习 ，核保障，核威胁探测

1. 引言

对可能含有铀和/或钚的样品/物体进行识别并定量测定其同位素含量，对于核材料保障、军备控制核查、核安全、应急响应（ER）以及核修复领域都至关重要 [1, 2, 3, 4,5, 6, 7, 8, 9, 10]。采用 γ射线能谱进行同位素组成/丰度测定的传统方法，需要许多耗时的步骤

1. 光峰识别，2. 本底和连续谱扣除，3. 特征提取，4. 相对效率曲线估计，以及 5. 将提取的特征与已知核素的特征进行匹配，以估计同位素的分数 [11]。

在许多此类应用领域，必须利用远程探测技术快速确定同位素丰度。这些限制要求使用无损分析方法（NDA）及配套的自动化算法进行定量分析。在某些应用中，出于安全考虑，无法披露核材料的物理布置细节，例如在条约核查活动中；而在核安全和应急响应活动中，屏蔽以及物理构型的其他方面可能是未知的。本文研究了多种机器学习（ML）技术在应急响应应用中对铀和钚同位素组成进行自动识别和定量分析的能力。

2. 论文结构

在本研究中，我们考察了多种机器学习算法在应急响应应用中用于铀和钚同位素估算的效果。在讨论本研究所采用的机器学习算法之前，我们先在第3节回顾传统方法和机器学习方法如何进行定量同位素识别。本研究采用的机器学习算法将在第4节介绍。第5节讨论机器学习训练数据的生成，并探讨这些

*通讯作者电子邮箱：ajeeta@lanl.gov (Ajeeta Khatiwada)

模拟对实验数据的仿真准确度。第6节介绍能谱数据的预处理细节，包括本底、连续谱扣除和特征提取。第7节介绍基于模拟的机器学习结果。第8节介绍超参数研究。第9节介绍使用实验数据开展的研究，并讨论结果。最后，第10节给出总结和结论。

3. 背景

3.1. 传统方法

从20世纪70年代初开始，研究人员开发了多种方法，用于对铀和钚同位素进行定量无损分析光谱分析 [12]。如今，已有三种通用的无损分析方法变体用于推断 ^{235}U的同位素含量。第一种方法目前由国际原子能机构（IAEA）采用，其原理是测量使用锗或碘化钠能谱仪系统获得的能谱中 ^{235}U的186 keV谱线 [13], ，并且需要使用已知富集度的标准样品进行校准。如果所测样品与参考样品相似，即几何形状和厚度相同，且测量条件保持恒定，那么185.7 keV峰的计数率与富集度成正比。尽管这种方法已成功用于推断 ^{235}U的含量，但仍有若干局限：样品必须满足无限厚度准则 [14], ；不同容器中的样品需要分别校准；并且在测量富集度之前，必须确定壁厚 [15]。实际上，这一限制使该方法仅适用于测量物体表面以下0.26 cm深度范围内的铀金属，以及0.74 cm深度范围内的U_3O_8 粉末的富集度 [14]。这种方法的自动化版本称为NaIGEM（NaI(Tl)伽马丰度测量），已集成于国际原子能机构使用的HM-5仪器中 [16]。使用低分辨率探测器测量不含污染物的铀样品，无论富集度如何，精度均可达到1%；而少量铀同位素造成的污染则会引入5–10%的偏差 [17]。

为了克服富集度测量仪原理的缺点，人们提出了采用多峰自校准的方法。第一种变体——峰面积（PA）——利用 89 至 120 千电子伏范围内的能谱线 [3]。不同铀同位素或其子体的相对效率曲线根据能谱中的有限数量的峰进行估算。MGAU（铀多群分析）等复杂代码便基于这一原理。这种估算效率响应的精度取决于同位素峰的数量和强度。然而，这些方法在通过厚壁容器测量铀时仍然存在性能问题 [18, 19, 2, 20, 21]。

为克服屏蔽层厚度有限所带来的限制，研究人员提出了相对效率（RE）法 [12]。RE 法利用 144 至 1001 千电子伏能量范围内测量光谱中各峰的相对效率来计算铀浓缩度。包括 FRAM 和 MGA++[1] 在内的若干软件包均已实现这一方法 [8, 22, 23]。MGA++ 和 FRAM 均可利用低能量 γ 射线能谱以及较高能量的 γ射线 [3, 22]进行钚同位素组成分析。

对相对效率（RE）法三种实现方式的比较得出结论：在低浓缩度下，随着壁厚增加，其性能和适用性依次为 PC/FRAM、MGA++ 和 MGAU。因此，在有屏蔽的情况下，建议使用 PC/FRAM，基于同轴探测器能谱分析能量高于 200 千电子伏的 γ 射线。最后需要指出，所评估的屏蔽层厚度远低于 ER 场景 [23], 中可能遇到的厚度；也就是说，屏蔽层厚度可能显著大于采用传统方法测定铀浓缩度和/或钚同位素组成时所分析的厚度。

3.2. 机器学习方法

用于对铀浓缩度和钚同位素进行无损分析与定量的方法需要大量预处理步骤，并且难以处理存在未知屏蔽、重叠峰或厚屏蔽的环境。这些问题，加上过去十年机器学习（ML）技术开发与应用所取得的成功，促使人们开始研究机器学习技术，以解决这些不足。事实上，将机器学习技术应用于辐射探测、源

[1] 一套由三个软件程序（MGA、U235 和 MGAHI）组成的软件，用于分析锗探测器采集的锕系元素能谱。其中，MGAHI 是一种使用 200 千电子伏至 1 兆电子伏能区的钚同位素分析代码。

识别和放射性核素定量评估中的分类与回归问题，已日益受到广泛关注。

机器学习在处理放射性同位素问题方面的突出应用之一，是用于核保障和军备控制领域的探测与识别。为此，Olmos 最早开展了将神经网络用于放射性同位素识别的研究之一，采用低分辨率碘化钠探测器 [24]。Yoshida 的另一项早期研究则使用多层感知机（MLP）网络和高纯锗能谱，识别含有多种放射性同位素的样品中的放射性同位素 [25]。Kangas 还开发了一种神经网络，用于分析分辨率极低的聚乙烯基甲苯（PVT）能谱，以便在国际边境口岸识别放射性物质 [26]。近年来，Liang 展示了一种卷积神经网络（CNN）算法：该算法利用碘化钠探测器的蒙特卡罗中子-粒子输运（MCNP）[27]模拟进行训练，在低计数率区间也能识别通常难以识别的放射性同位素，因此无需进行本底扣除、能谱平滑等能谱预处理 [28]。Bobin 将贝叶斯序贯方法与脉冲神经网络相结合，实现了能谱门户监测系统中对来自多种 γ 射线放射性核素混合物的探测信号进行实时处理 [29]。最后，Sharma等人采用机器学习技术，降低了使用 γ 射线能谱仪识别藏匿放射性物质人员时的虚警率 [30]。

针对将神经网络用于放射性同位素识别的应用，已开展了更多研究 [31, 32, 33, 34]。总体而言，这些研究采用了多层感知机或卷积神经网络，并使用多种特征提取方法，包括离散余弦变换（DCT）和 Karhunen-Lo`eve 变换（KLT）。研究表明，采用低分辨率碘化钠探测器的更先进神经网络架构（使用自编码器）相较于传统技术能够提升异常检测效果 [35]。

机器学习的另一项应用是识别环境样品中的放射性同位素组成 [36,37]。Hata 研究了使用碘化钠探测器和支持向量机（SVM），将铀废料桶分类为天然铀或再处理铀的可行性 [37]。Wei 将径向基神经网络算法用于退役铀尾矿 pond 的环境与处理评估 [4]。最后，Chen 将 KLT 与人工神经网络结合碘化钠探测器使用 [38]。

ML 的其他应用领域还包括对复杂能谱（裂变产物和活化产物）的分析。研究表明，在这些应用中，将前馈神经网络与奇异值分解（SVD）结合使用，可以显著提升性能，并在神经网络完成训练后缩短所需的分析时间 [39]。

在某些应用中，目标是确定放射性同位素的同位素含量。具体而言，在 ER 应用中，目标是确定含有核材料的物体中的铀浓缩度和/或钚同位素组成。在这种情形下，通常使用高纯锗探测器；含有核材料的物体的几何形状，以及物体与探测器之间屏蔽材料的特性（即含有核材料的部件的材料成分和厚度）均未知。尽管已有许多研究使用机器学习算法来确定同位素含量，但几乎所有研究都针对核材料保障及其他应用领域；在这些领域中，配置已知，和/或屏蔽材料已知且/或相对较薄，即厚度小于 1 cm。值得注意的是，Shaban 使用前馈神经网络预测了实验室尺寸样品的铀浓缩度 [40]。

Vigneron 的早期研究表明，将高纯锗能谱测量与主成分分析（PCA）结合，以降低能谱的维度，可利用 MLP [41] 成功测定实验室样品的富集度，所用能量范围为 83 至 103 千电子伏。

Ryu 研究了利用神经网络模型分析低分辨率碘化钠能谱，以测定从贫铀到低富集度铀的富集度；样品放射性极低，装在小烧杯中，计数时间也非常短 [42]。Elmaghraby 还利用神经网络架构，通过高纯锗探测器测量实验室样品，以确定铀的同位素组成 [43]。

最后，Aitkenhead 利用模拟数据，通过人工神经网络评估屏蔽钚的能谱，以检测是否存在钚、估算 ^{239}Pu 含量，并区分屏蔽钚的材料年代 [10]。

4. 机器学习算法

尽管人们已经开展了大量工作，研究机器学习在放射性同位素探测与识别以及放射性同位素定量领域的应用，但几乎所有这些工作

都是在与 ER 社区并不直接相关的条件下进行的。因此，在本研究中，我们考察了机器学习算法——（多层感知机和卷积）神经网络、高斯过程、决策树及其变体，即梯度提升决策树和随机森林，以及最近邻——的应用，以：1）研究基于机器学习的回归算法是否能够作为传统方法的合理替代方案；2）确定一类通用的机器学习算法，使其无需对超参数进行过度微调，便能够稳健地实现上述目标，从而在更符合 ER 应用的条件下确定铀和钚的同位素含量。

4.1. 方法

本文的考察基于对训练数据集进行监督学习，采用集成于 Python 中 Scikit-learn [44]包的回归算法，以及 Mathematica [45]中提供的机器学习算法。Mathematica 的结果在表格中通过算法名称旁的“*”标记。

4.1.1. 决策树

决策树是监督学习中最常用、最实用的方法之一，既可用于解决回归任务，也可用于解决分类任务。决策树以树结构构建回归或分类模型。它将数据集逐步划分为越来越小的子集，同时逐步构建相应的决策树。最终得到一棵包含决策节点和叶节点 [46] 的树。每棵树由多个节点组成，节点的选择依据是寻找特征的最优划分。特征划分通过不纯度度量来确定。对于回归树，两种常见的不纯度度量是最小二乘法和最小绝对偏差。前者的方法类似于在线性模型中最小化最小二乘法。划分的选择旨在使观测值与各节点均值之间的残差平方和最小化。后者则是在节点内最小化相对于中位数的平均绝对偏差。

提升决策树稳健性的两种常用技术是集成方法，例如随机森林方法和提升方法。下文将介绍这些方法。

4.1.2. 随机森林

随机森林是经典机器学习中的一种常用技术，其预测能力出色，且计算负担低于神经网络 [47]。从本质上说，随机森林是一种基于决策树的“集成”学习技术。集成学习的策略是对多个独立模型或学习器的预测结果取平均，从而获得更稳健、更准确的预测。随机森林可以配置为针对同一训练数据训练预先设定数量的决策树学习器。每棵决策树都根据训练数据作出目标预测。每棵树还具有由用户指定的深度参数。深度参数表示树在拟合训练数据时允许创建的分支数量。通常，增加深度可以提升决策树的预测能力，因为它能够学习数据中更复杂的特征。然而，若深度超过一定限度，也可能导致过拟合并降低准确度。具体限度取决于数据，需通过反复试验来确定。随机森林会汇总所有这些独立树构成的模型，从而创建一个集成模型。

4.1.3. 梯度提升树

梯度提升是另一类集成方法，它在数据集 [48] 的修改版本上拟合一系列弱学习器（其学习器给出的预测结果略优于随机猜测）。在梯度提升树算法中，通过计算可微损失函数的梯度来提高提升算法的收敛性。在梯度提升中，基学习器是决策树学习器，调参阶段的超参数包括学习器数量和学习率。

*4.1.4. K*近邻回归

K近邻（KNN）的核心思想是根据查询数据点的最近邻进行预测，其中k 是一个整数算法参数。因此，某一点处某个量的值是与该点最近的k 个点的加权平均值 [49, 50]。用户指定用于计算权重的距离度量。可供选择的距离度量有多种：均匀、欧几里得、曼哈顿、闵可夫斯基等。采用均匀权重时，无论邻居与查询点的距离远近，每个邻居的权重都相同。在其他距离度量中，该特定空间内距离查询点较近的邻居，其权重高于距离较远的邻居。因此，这种度量相当于加权平均。

4.1.5. 高斯过程回归

高斯过程回归是一种用于回归问题的非参数贝叶斯方法。它利用理论上无限数量的参数来捕捉输入与输出之间各种各样的关系，并通过贝叶斯推断让数据决定模型的复杂程度[51, 52, 53]。

4.1.6. 多层感知机（*MLP*）回归

多层感知机是一种神经网络，由多个层组成：一个输入层、一个或多个隐藏层，以及一个输出层。每一层都通过非线性激活函数与下一层完全连接。要在模拟数据上训练神经网络，使其能够推广应用于与仿真模型在许多方面都不同的实验数据集，往往颇具挑战。多层感知机尤其容易过拟合，不过可以采用正则化方法来缓解这一问题。为了获得最佳性能，需要调整超参数，例如激活函数、隐藏层数量、每个隐藏层的节点数、正则化程度、随机失活、是否启用提前停止，以及学习率和优化策略的选择。

4.1.7. 卷积神经网络（*CNN*）

卷积神经网络是神经网络的一种，其线性层采用一组卷积的形式 [54,55, 56]。这大幅减少了可训练权重的数量，从而降低了过拟合的风险，同时也使实现具有较高的计算效率。不过，这些方法通常只适用于输入数据具有卷积所隐含的平移不变性属性的情况。

5. 训练数据生成

机器学习算法的训练数据利用 GADRAS [57], 生成，其中采用了配备铋侧屏蔽体和锡滤光片、相对效率为 145% 的高纯锗探测器，并使用金属形态或氧化物形态的钚源或铀源。源被置于三种几何形状之一中，即壳体、圆柱体或球体。由于“自屏蔽”取决于源几何形状，因此，仅几何形状不同的两个相同源，其 γ 能谱也并不相同。因此，针对各自几何形状，使用多种

几何形状	数量层	富集度分数（^{235}铀）	屏蔽存在
壳	1800	0.000 – 0.989	No
壳	15839	0.003 – 1.000	Yes
球体	1800	0.000 – 0.995	No
圆柱体	7000	0.000 – 1.000	No
圆柱体	20000	0.000 – 1.000	Yes

表 1：不同配置下铀训练数据模拟汇总。

几何形状	数量层	同位素组成分数 (^{239}钚)	屏蔽存在
壳	1800	0.000 – 0.995	No
壳	7920	0.230 – 1.000	Yes
球体	1800	0.000 – 0.995	No
圆柱体	5000	0.560 – 1.000	No
圆柱体	20000	0.560 – 1.000	Yes

表 2：不同配置下钚训练数据模拟的汇总。

^{235}铀富集度/^{239}钚同位素丰度、源厚度以及相应厚度的屏蔽材料，生成了训练数据集。训练数据的特征总结于表 1 和表 2 中。

对于采用壳层构型创建的数据集，源壳层的厚度为 0.02 至 4 cm。对于源厚度大于 2 cm 的钚源，壳体内部有一个半径为 1.6 cm 的空腔；对于所有其他情况，源的外表面半径为 6 cm。球形几何源的能谱对应的半径范围为 0.02 至 4 cm。裸露和有屏蔽构型下生成的圆柱形钚源，高度范围分别为 0.35 至 1.57 cm 和 0.142 至 0.59 cm；对应半径范围分别为 0.4 至 1.1 cm 和 0.353 至 0.931 cm。裸露和有屏蔽构型下生成的圆柱形铀源，高度范围分别为 3.9 至 7.7 cm 和 2.45 至 9.76 cm；对应半径范围分别为 5.35 至 5.44 cm 和 5 至 6 cm。

对于存在屏蔽材料的壳层与球体构型模拟，所使用的材料包括铁（Fe）、钽（Ta）、聚丙烯，或上述材料的某种组合。对于上述材料，屏蔽材料的厚度范围分别为 1–10、1–6 和 1–64 厘米。圆柱几何形状数据集采用铝（Al）、钽（Ta）、铁（Fe）、铅（Pb）和聚丙烯的不同组合进行屏蔽，而屏蔽厚度范围为 0.05–2 厘米。

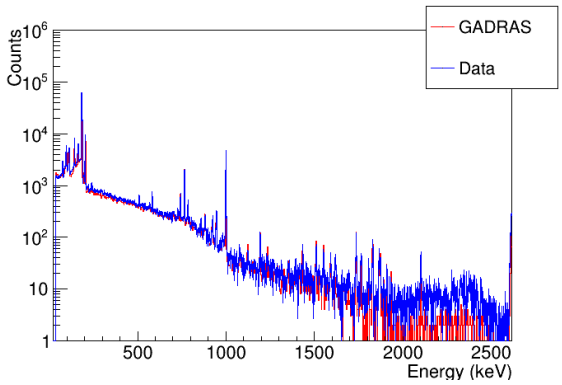


图1：铀源 UISO17 的8倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱的比较。

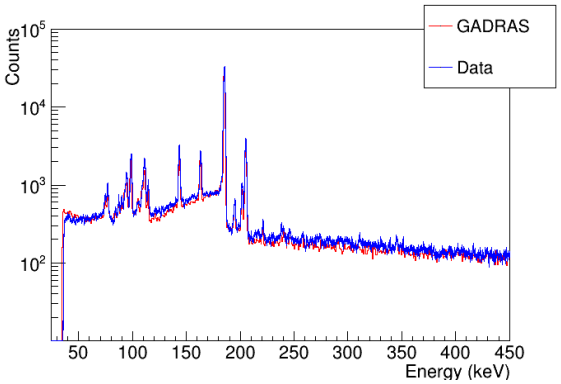


图2：铀源 UISO17 的2倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱的比较。

5.1. 实验数据与*GADRAS*模拟的比较

在机器学习中，当使用模拟进行训练并使用实验测量结果进行测试时，模拟能否复现实验数据是必须解决的一个基本问题。为此，我们使用高纯锗探测器，对带有和不带有屏蔽的铀源和钚源进行了实验，并将实验结果与 GADRAS 模拟能谱进行了比较。模拟采用源数据表中的主要同位素组成、几何形状、材料报告年龄以及尺寸/构型来生成，以对实验数据进行建模。此外，对于 U_3O_8 和 PuO_2 源的 GADRAS 模拟，我们调整了铀和钚的质量分数，以计及实验数据中所采用的氧化物形态。除 ^{235}U、 ^{238}U、 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 以外的铀/钚同位素的同位素丰度，根据这些源的认证表进行选取。对于贫铀壳层模拟，采用了富集度和其他同位素丰度的通用值，同时使空腔/壳体厚度与实验装置中的数值相匹配。此外，对于 U_3O_8 模拟，还调整了 ^{40}K 和 ^{232}Th 的含量，以匹配本底数据。模拟中的 ^{232}U含量也根据 2614.5 keV光电峰的高度进行了调整。在适用情况下，对归一化进行了细微调节，以匹配容器材料和厚度。模拟模型采用泊松统计运行，并与从能谱中扣除陆地本底贡献后的数据进行比较。模拟能谱与实验能谱的比较结果见图 1–6。

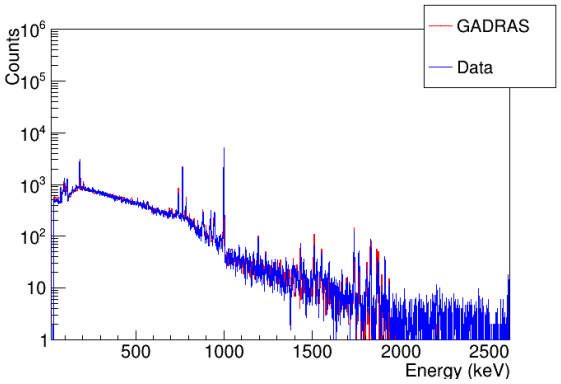


图3：铀源 A1127 的8倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱的比较。

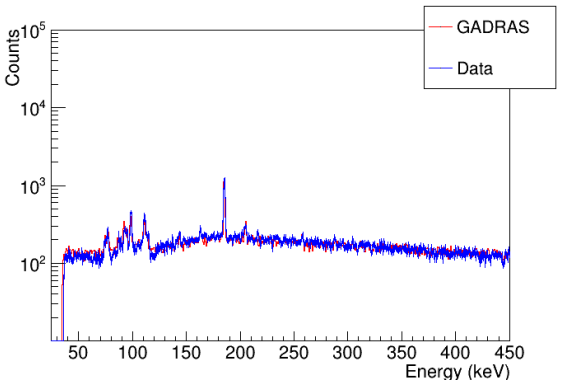


图4：铀源 A1127 的2倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱的比较。

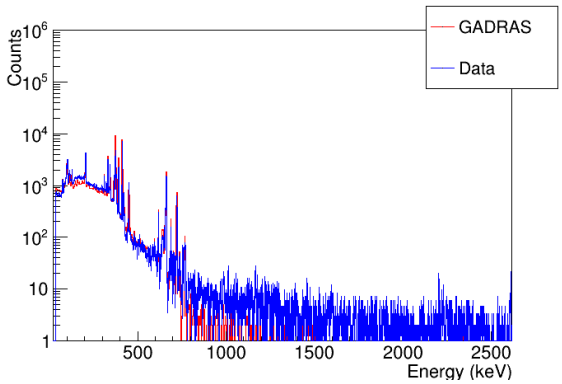


图5：钚源 CBNMPu84 的 8倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱对比。

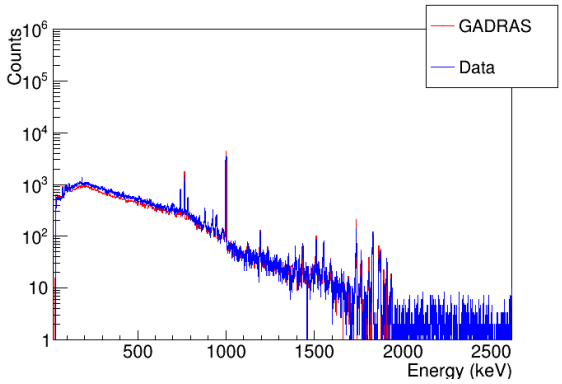


图6：Du-Shell 的 8倍分箱模拟能谱与扣除本底能谱对比。

6. 预处理与特征提取

高纯锗探测器系统获得的实验模拟数据脉冲在转换为数字脉冲后，以离散道的计数单位记录。 γ GADRAS 模拟获得的能谱也以每道计数为单位。无论哪种情况，都可以选择对计数进行预处理，以去除连续本底。第6.1节将详细讨论连续谱扣除。此外，对于存在陆地本底的实验数据，还会估算这类本底源的贡献，并从前景计数中扣除。经过可选的连续谱扣除和陆地本底扣除后，再对净计数在感兴趣全能峰周围的感兴趣区内积分，以估算与各全能峰相关的计数。感兴趣区根据本研究所考察的铀和钚两种同位素的预期全能峰选定。这些全能峰对应的能量均值及其相关净计数构成机器学习训练所用的特征。第9.2节将探讨特征数量的影响，以及监督式机器学习训练中降低特征维度的方法。对于训练样本，特征还附有答案“标签”，即 ^{235}铀（^{239}钚）相对于 ^{235}铀和 ^{238}铀（^{239}钚和 ^{240}钚）总分数的相对分数。下文为简便起见，将这些量统称为同位素比，或分别称为 ^{235}铀分数和 ^{239}钚分数。

6.1. 连续谱扣除

为了解散射产生的连续本底对同位素测定的影响，我们研究了连续本底的扣除。因此，采用 ROOT 框架 [58, 59, 60]中 TSpectrum 类实现的敏感非线性迭代峰值（SNIP）裁剪算法进行一维本底估计。我们考察了估计连续谱时的迭代次数。根据该算法在充分去除连续谱且不导致扣除后能谱出现负计数的能力，选择 20 次作为最佳迭代次数。图 7 给出了采用此方法估计连续本底的一个能谱示例。

7. 使用模拟数据进行研究

铀或钚的同位素含量测定是许多因素共同作用下的复杂函数，

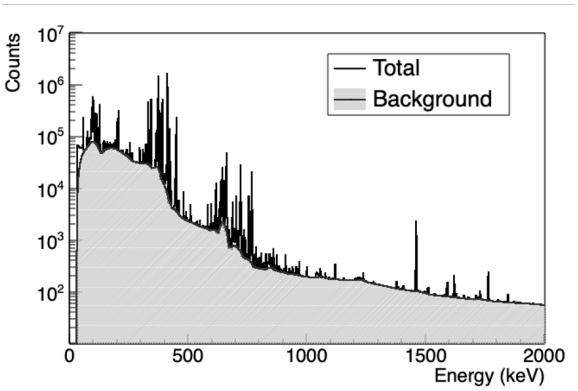


图 7：对钚源的 γ 能谱进行连续谱估计的示例。

这些因素包括：源几何形状、源厚度、屏蔽材料组成、屏蔽厚度、可能存在的固有杂质（例如 ^{232}U），以及相关同位素的同位素比，即 ^{235}U 或 ^{239}Pu。此外，同位素分数测定的准确性取决于能否在训练集中充分采样这些变量、训练数据对测试数据的代表性、用于学习的训练数据量，以及能否充分训练给定的机器学习算法。

由于本研究的最终目标是将机器学习算法应用于实验数据，而实验数据在多个方面可能与训练样本存在显著差异，例如屏蔽量、源的几何形状、本底能谱等，因此算法需要具备抵抗过拟合的能力。

7.1. 裸露：无屏蔽

作为初步测试，我们使用了两个模拟数据集（球体和圆柱体），考察不同机器学习算法在没有任何屏蔽材料的情况下预测钚和铀同位素比的能力。该测试代表了能够学习到的从能谱映射到同位素比的最简单情形。也就是说，无需学习屏蔽对谱线强度造成的改变。表 3 展示了一个样例结果，其中列出了使用圆柱几何形状生成的数据集进行训练和测试时的绝对平均误差（$|$真实值 $-$预测值$|$）和误差标准差。

对无屏蔽几何形状的结果进行考察（示例见表 3 ）表明，采用所选参数设置的所有机器学习方法都能出色地预测同位素组成。这是

方法	^{235}铀 frac	^{239}钚 frac
最近邻	0.0012 ± 0.0041	0.0052 ± 0.0044
决策	0.0014 ± 0.0016	0.0021 ± 0.0027
随机	0.0009 ± 0.0009	0.0012 ± 0.0016
GB	0.0023 ± 0.0018	0.0027 ± 0.0025
高斯*	0.0007 ± 0.0007	0.0009 ± 0.0007
全连接神经网络*	0.0007 ± 0.0006	0.0006 ± 0.0006

表 3：使用无屏蔽材料的圆柱体模拟得到的同位素比平均误差和误差标准差。标记为“*”的结果由 Mathematica 中实现的算法生成。

方法	^{235}铀 分数	^{239}钚 分数
最近邻	0.0013 ± 0.0042	0.0051 ± 0.0045
决策	0.0020 ± 0.0028	0.0031 ± 0.0030
随机	0.0011 ± 0.0012	0.0017 ± 0.0016
GB	0.0024 ± 0.0022	0.0033 ± 0.0036
高斯*	0.0010 ± 0.0016	0.0020 ± 0.0019
全连接神经网络*	0.0011 ± 0.0009	0.0012 ± 0.0013

表4：在模拟经过预处理以减去连续谱后，使用无屏蔽材料的模拟计算同位素比所得的平均误差和误差标准差。标有“*”的结果由 Mathematica 中实现的算法生成。

预料之中的，因为谱线强度之比仅取决于放射性同位素的厚度。对这些数据集进行分析还发现，机器学习算法能够充分处理连续谱，因此可以省去耗时的连续谱扣除步骤。不过，为了量化机器学习算法执行这一功能的能力，我们采用了第6.1节所述的连续谱扣除算法。示例结果见表4。有关超参数考察的更多信息，请参见第8节。

对表 3 和表 4 的考察表明，机器学习算法确实能够很好地去除连续谱。单独进行连续谱扣除后性能略有下降，这可能是由于统计量减少，以及连续谱扣除过程中的不确定性所致。

7.2. 测试屏蔽的影响

先前的研究未包括任何屏蔽。考察学习算法学习更复杂的多维函数的能力是有益的，即在存在不同厚度的不同屏蔽材料时，确定 ^{235}铀和 ^{239}钚的同位素比。事实上，正如

方法	^{235}铀 frac	^{239}钚 frac
最近邻	0.0636 ± 0.0684	0.0253 ± 0.0256
决策	0.0370 ± 0.0492	0.0060 ± 0.0078
随机	0.0248 ± 0.0322	0.0032 ± 0.0040
GB	0.0264 ± 0.0317	0.0054 ± 0.0056
高斯*	0.0290 ± 0.0290	0.0012 ± 0.0012
全连接神经网络*	0.0310 ± 0.0290	0.0083 ± 0.0084

表5：使用屏蔽材料进行模拟时同位素比的平均误差和误差标准差。标记为“*”的结果采用 Mathematica 实现的算法得出。

方法	^{235}铀 分数	^{239}钚 分数
最近邻	0.0503 ± 0.0539	0.0237 ± 0.0255
决策	0.0200 ± 0.0222	0.0075 ± 0.0082
随机	0.0134 ± 0.0161	0.0039 ± 0.0043
GB	0.0148 ± 0.0141	0.0064 ± 0.0052
高斯*	0.0148 ± 0.0145	0.0026 ± 0.0023
FCNN*	0.0120 ± 0.0110	0.0035 ± 0.0032

表6：使用屏蔽材料进行模拟，并在模拟经过预处理以去除连续本底后，所得同位素比的误差平均值和标准差。标有“*”的结果由 Mathematica 中实现的算法生成。

从表5可以看出，与未进行屏蔽时获得的结果相比，6个误差有所增加。

检查表5和表6还可发现，本底扣除对误差的影响极小。除最近邻方法可能例外外，所有机器学习方法的表现似乎都相当。最后，我们观察到，在应用了屏蔽的数据集中，钚的预测结果显著优于铀。屏蔽会在观测能谱中增加额外的散射本底，使光峰计数与散射本底之比减小。用于测定铀浓缩度的大多数全能峰特征在能量上相距较远，峰下的散射本底量也各不相同。此外，这些全能峰通常也处于低能区，该区域的全能峰与连续本底之比已经低于中能区全能峰的相应比值，而中能区的全能峰对钚同位素测定更有用。因此，无论是在预处理过程中通过单独步骤确定连续本底，还是由机器学习算法自动完成，连续本底测定的准确性对铀浓缩度估计的影响，都与其对钚同位素测定的影响不对称。

7.3. 机器学习算法的泛化

在核保障应用中，许多现场参数（如源几何形状和屏蔽材料特性）都是未知的。此前的研究报告了这样一些情况的结果：训练集和测试数据集取自同一总体，例如使用圆柱体或其他常见几何形状进行训练和测试；或者使用相同的屏蔽材料和厚度，并采用固定的几何形状。机器学习中的一个常见问题是，给定机器学习算法在给定训练集下的泛化能力，例如，能否利用测试数据进行预测，而测试数据可能以已知或未知的方式与训练数据不同。使用在源几何形状或屏蔽材料方面与训练样本不同的数据，检验机器学习算法性能的有效性，可以识别并量化可能的不确定性来源。最初的研究考察了使用一种几何形状进行训练、用另一种进行测试的情况。研究发现，使用裸球体训练、用裸圆柱体测试，所得表现显著差于上述结果；大多数算法的平均误差约为0.10–0.15。另一项研究使用屏蔽壳体进行训练、用屏蔽圆柱体进行测试，结果表明，由于训练样品与测试样品的相空间差异增大、复杂度提高，所有机器学习算法的性能均进一步下降。为说明第二个问题，研究人员最初使用未包含屏蔽材料的圆柱几何形状模拟数据训练机器学习算法，再使用包含屏蔽材料的模拟数据进行测试。机器学习算法的预测能力和泛化能力均有所下降，体现为钚的平均误差为0.05–0.10，铀的平均误差为0.10–0.15。之后，研究人员交换了训练总体和测试总体，重复了这一过程。大多数机器学习算法得到的平均绝对误差为 <0.01。使用由包含不同材料类型和厚度的屏蔽材料所产生的样品进行训练时，平均绝对误差较低，这表明，增加训练样本的异质性以拓宽物理相空间，可以提高算法的整体泛化能力，正如预测的那样。

为解决存在多种几何形状时性能下降的问题，我们合并了所有训练数据。这些研究结果分别列于表 7 和表 8，分别对应进行了和未进行连续谱扣除的情况。

检查表7和表8可见，机器学习算法在不进行连续谱扣除的情况下，仍能出色地确定钚的同位素含量。

方法	^{235}铀 frac	^{239}钚 frac
最近邻	0.0120 ± 0.0310	0.0190 ± 0.0270
决策	0.0073 ± 0.0140	0.0087 ± 0.0240
随机	0.0038 ± 0.0080	0.0056 ± 0.0160
GB	0.0170 ± 0.0160	0.0150 ± 0.0200
高斯*	0.1300 ± 0.1100	0.0093 ± 0.0095
全连接神经网络*	0.1500 ± 0.1300	0.0350 ± 0.0250
CNN*	0.2300 ± 0.1600	0.0300 ± 0.0230

表7：使用所有模拟得到的同位素比的平均误差和误差标准差。标记为“*”的结果由 Mathematica 中实现的算法生成。

方法	^{235}铀 frac	^{239}钚 frac
最近邻	0.0130 ± 0.0330	0.0190 ± 0.0290
决策	0.0076 ± 0.0190	0.0085 ± 0.0210
随机	0.0041 ± 0.0081	0.0048 ± 0.0150
GB	0.0180 ± 0.0170	0.0130 ± 0.0180
高斯*	0.0050 ± 0.0060	0.0050 ± 0.0090
全连接神经网络*	0.0270 ± 0.0210	0.0090 ± 0.0070
CNN*	0.0540 ± 0.0460	0.0140 ± 0.0110

表8：从连续谱中减去贡献后，使用所有模拟计算得到的同位素比值的平均误差和误差标准差。标记为“*”的结果采用 Mathematica 中实现的算法获得。

然而，对于铀的同位素含量，结果发现高斯过程和神经网络的表现不够理想。检查采用所有机器学习算法得到的同位素含量预测结果后发现，在预处理阶段单独进行连续谱扣除时，算法表现出色。

最后，使用 FRAM 对钚和铀的所有模拟数据的同位素组成进行了评估。所得结果明显差于通过机器学习算法获得的结果：钚为 0.074，铀为 0.11。

8. 超参数考察

在训练机器学习算法之前需要预先定义的参数通常称为超参数。目前尚无已知方法能够在训练前确定哪些超参数会影响模型性能。因此，针对每种相应的方法，均探索了一系列超参数。此外，由于本研究旨在使用仿真数据训练模型，并使用实验数据进行测试，因此采取了预防措施以避免过拟合。所考察的超参数以及随后

方法	参数	范围/ 方法 已探索	值/ 范围 已选择
最近邻 邻居	邻居: 方法: 距离:	1–32000 KD 树/ 暴力搜索/自动 均匀/ 切比雪夫距离/ 欧几里得/ 曼哈顿/ 闵可夫斯基	1 Auto 闵可夫斯基 (欧几里得)
决策 Tree	最大深度: 分裂器: 损失: 特征 比例:	10–100 Best MSE 0.05–1	50 Best MSE 1
随机 森林	树的数量: 叶节点大小: 最大深度: 损失: 特征 分数:	10–100 无限制 10–100/无 MSE 0.05–1	100 无限制 50 MSE 1
梯度 提升 树	树的数量: 叶节点数量: 最大深度: 最小样本数 用于分裂: 损失: 学习 率: 特征 比例:	10–300 5–50/None 2–25 2–10 MSE 0.01–0.4 0.1–1	200 None 4 5 MSE 0.1 1
全 连接 神经 网络	连接层: 激活函数: 参数数量: 随机失活: 训练轮数: 优化 方法: 学习 学习率:	2–10 SELU/双曲正切 15250–100000 0–0.1 100–1000 Adam优化器/随 机梯度下降 0.001–0.1	2 Tanh 10250 0.01 100 MSE ADAM 0.01
卷积 层 神经网络 网络	层数: 参数数量: 随机失活: 激活函数: 训练轮数: 优化 方法: L2: 学习 率:	2–10 10250–100000 0–0.1 SELU/ 双曲正切 100–1000 Adam优化器/随机梯度下降/ 逻辑 sigmoid 0–0.1 0.001–0.1	2 35324 0.1937 SELU 100 逻辑回归 Sigmoid 函数 0.01 0.001

表9：不同机器学习算法所测试和选用的超参数。

针对各相应方法开展研究时所采用的参数汇总见表9。

9. 实验数据与结果

前面的分析使用 GADRAS 生成的模拟能谱进行训练和测试。本节将探讨使用模拟数据进行训练、使用实验数据进行测试。实验配置的详情见第9.1节，机器学习算法的应用见第9.3节。不过，在介绍这些细节之前，我们注意到，采集实验数据时，会在与实验数据完全相同的设置下采集陆地本底数据。本底文件的采集时间通常长于实验数据，以尽量减小从前景计数中扣除陆地本底计数时统计涨落的影响。在从前景计数中扣除本底计数之前，会根据本底文件与实验数据的相对计数时间对本底计数进行相应缩放。

需要注意的是，GADRAS模拟中的能谱不包含陆地本底的贡献，因此这一处理不适用于模拟。

9.1. 实验描述

使用包含多种源和屏蔽配置、源几何形状及源形态的实验数据集，对机器学习算法进行测试。配置包括裸露和屏蔽的铀、氧化钚罐，其同位素组成范围广泛；贫铀球体和壳体（包括裸露和屏蔽的）；以及采用各种屏蔽材料和厚度的钚球体。

9.1.1. 铀和氧化钚源

分析的铀（U_3O_8）和钚（PuO_2）氧化物数据集分别由 ORTEC Detective X 和 LANL Detector S 采集。Detective X 是一款手持式、机械制冷的高纯锗探测器，相对效率为 50%。Detective X 的能量范围为 8 MeV，具有 2^{14} 个道。LANL Detector S 是一款 ORTEC poptop 液氮冷却高纯锗探测器，相对效率约为 140%。该探测器的能量范围为 12 MeV，具有 2^{15} 个道。按照第5节所述，Detector S 的响应函数已纳入 GADRAS模拟。在

%U234	%U235	%U236	%U238
0.005–0.910	0.716–91.340	0.002–0.335	7.417–99.277

表10：1988年9月6日标定的铀$_3O_8$ 圆柱形源中，相对于总铀的报告同位素重量百分比范围。

%钚-238	%钚-241	%钚-242	%镅-241
0.002–1.177	0.014–5.693	0.003–4.239	0.009–2.510

表11：1990年1月1日测定的 PuO_2 圆柱形源中杂项同位素相对于总钚的重量百分比范围。

数据采集期间，Detector S 配备了铋侧屏蔽层，以减少本底辐射对测量能谱的影响。此外，还安装了一块锡制薄前置滤波器，用于滤除低能光子。

针对氧化铀源和氧化钚源，分别采集了14个数据集，其中7个未屏蔽，7个使用了屏蔽材料。铀浓缩度和钚同位素组成的范围分别为0.7–91.3%和63.2(25.7)–98.0(2.0)% ^{239}Pu (^{240}Pu)。其他报告的同位素列于表10和表11。氧化铀样品的质量约为1 kg，而钚样品的质量为1.6–5.8 g。屏蔽测量使用薄铅片，铀样品的厚度为3.175 mm，钚样品为4 mm。完整的一组氧化钚测量是在源探测器距离为50 cm的条件下进行的，采集时间为300秒。氧化铀测量的计数统计更好：采集时间为600秒，源探测器距离为25 cm；但有一个例外，即未屏蔽的91%浓缩度氧化物测量，其源探测器距离为50 cm，以确保探测器的死时间处于可接受范围。

9.1.2. 贫铀壳体数据

贫化铀（DU）测量使用上述 LANL Detector S 进行，配备铋准直器和锡前置滤波器。共采集了 54 个数据集，在 9 种不同配置下各采集 6 个，源与探测器之间的距离为 1 m。这些配置采用了三层堆叠贫铀壳体的不同组合，每层厚度为 6.35 mm，同时贫铀壳体的外径保持为 15.24 cm。部分配置未使用任何屏蔽，另一些则使用一层或两层堆叠铝壳体进行屏蔽。铝壳体厚度为 1.27 cm。

*9.1.3. BeRP*球数据

BeRP（铍反射钚）球 [61]数据由探测器 K 收集，使用的是一台相对效率为 140% 的液氮冷却高纯锗探测器，

该探测器与内华达国家安全区的探测器 S 类似。BeRP球是一个直径为 7.59 cm 的球体，由α相钚制成，外覆厚度为 0.3 mm 的氧化层 f SS304不锈钢，重量为 4.48 kg [62]。虽然该物体的名称中提到了原始铍反射体，但这些配置中并未使用它。所收集的数据集是在源探测器距离为 50 cm 的条件下获取的，包括未屏蔽情况，以及采用厚度为 2.54-10.16 cm 的聚乙烯进行屏蔽的情况；此外，还结合使用镍、钢、模拟高能炸药和铝等其他屏蔽材料，总厚度为 1.27-7.62 cm。

9.2. 降维

这些研究中使用的高纯锗探测器分别具有 16384（探测器 X）和 32768（探测器 S）个通道。为降低机器学习算法训练所用特征的维度，我们根据所研究同位素的发射线，共选取了 172 个特征。进行降维的原因是已有研究观察到，在高维空间中训练机器学习算法时，往往会出现冗余特征，给数据集引入噪声，却无法提升算法性能。为进一步提升机器学习算法的性能，我们采用两种方法进行额外降维研究：1）基于物理的特征降维；2）主成分分析（PCA）。

对于基于物理的特征降维，我们分别为铀和钚数据/模拟选择了9个和10个显著的峰。这些峰是根据钚和铀能谱学中最常用的全能峰选出的。比较这种降维方法的结果后发现，它并未改善仿真测试数据集上的平均绝对误差和标准差。同样，基于PCA的方法也未能系统性地降低绝对误差。

如第5.1节所述，由于我们使用模拟模型构建训练数据集，模型依赖性可能导致结果存在偏差。为考察这种潜在偏差，我们检查了使用已知参数的实验数据集样本通过GADRAS模型生成的能谱。观察到低能量范围和高能量范围内存在较大差异后，我们减少了特征数量，仅纳入100–1000千电子伏范围内的特征。尽管这改善了平均绝对误差，但这种临时性的降维方法无法——在不了解数据与模拟之间差异来源的情况下推广。

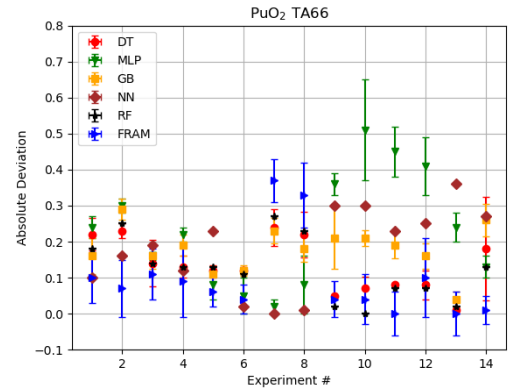
9.3. 结果

为研究第9.1节所述实验数据上机器学习算法的性能，我们考察了五种算法：决策树、多层感知机、梯度提升树、最近邻和随机森林。并将所得结果与使用FRAM软件获得的结果进行了比较。对于铀数据集，比较分别采用“高浓缩铀”和“低浓缩铀”模型进行。

使用小型氧化钚源获得的结果见图8。图8所示结果的误差棒涵盖了所有方法的统计不确定度和系统不确定度合成值，但决策树和最近邻除外（由于缺少系统不确定度，而系统不确定度被发现是主要误差来源，因此这两种方法的误差非常小）。统计不确定度通过使用泊松模型改变光峰计数，并对每次变化重新运行机器学习算法来估算。系统不确定度则反映在相同条件和参数下重复训练和测试、并在算法初始化时采用不同随机种子时，机器学习结果的变化。图8（上）显示，在考察的14次实验中，没有一种机器学习算法始终优于其他算法；不过，在若干实验中，多层感知机和最近邻方法的表现优于传统方法。对数据进行预处理以去除连续谱后，总体而言，多层感知机算法的表现与传统方法相当，且两种方法的结果均在各自的不确定度范围内，如图8（下）所示。

图9（上）所示的氧化铀结果表明，与其他机器学习算法相比，多层感知机的绝对偏差始终较小。图9下方显示，尽管多层感知机方法的结果与FRAM 的结果相当，但在某些情况下（实验编号：6、8、10、12 和 13），机器学习方法估算的不确定度远小于传统方法。

图10（上）所示的贫化铀壳结果表明，基于决策树的方法不如最近邻和多层感知机方法。对于大多数实验，最近邻方法的绝对偏差与传统方法相当。最近邻方法表现良好，或许是因为其中纳入了大量富集度接近



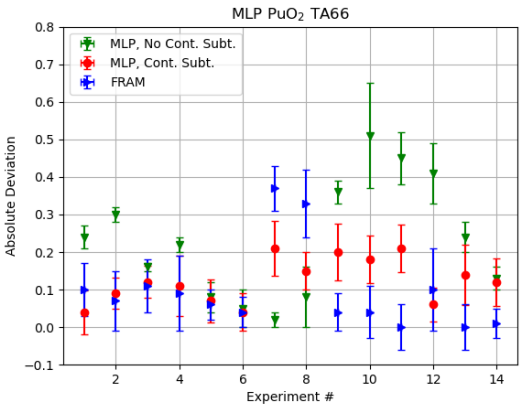
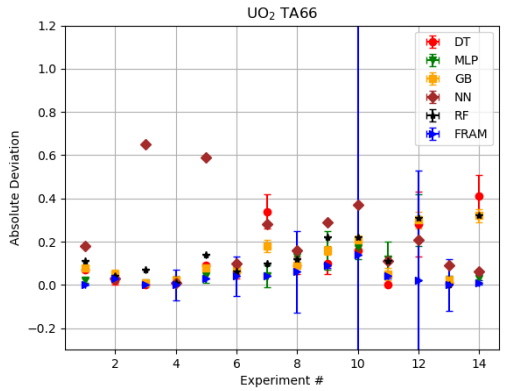


图8：不同机器学习算法与 FRAM（上图），以及进行和未进行连续谱扣除的多层感知机与 FRAM（下图）对氧化钚数据真实同位素比绝对偏差的比较。除随机森林和最近邻外，所有算法的统计与系统不确定度合并后均报告为 $1\,\sigma$。FRAM 结果中的误差棒为 FRAM 软件返回的“sigma”值。



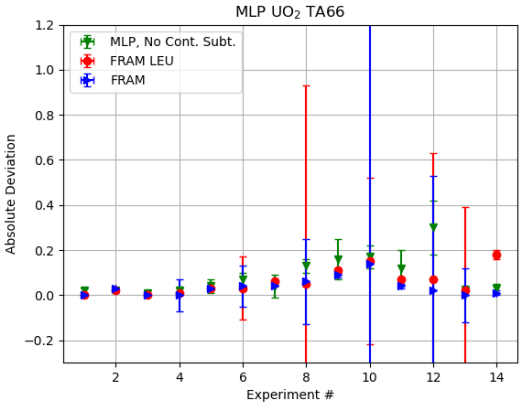
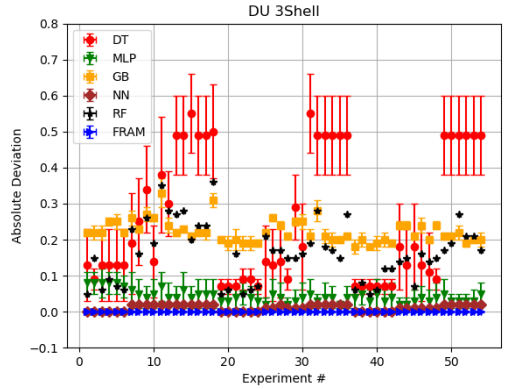


图9：不同机器学习算法与 FRAM 高浓铀模型（上图）、多层感知机与 FRAM 低浓铀模型（下图，红色）以及 FRAM 高浓铀模型（下图，蓝色）对氧化铀数据真实同位素比绝对偏差的比较。除随机森林和最近邻外，所有算法的统计与系统不确定度合并后均报告为 $1\,\sigma$。FRAM 结果中的误差棒为 FRAM 软件返回的“sigma”值。



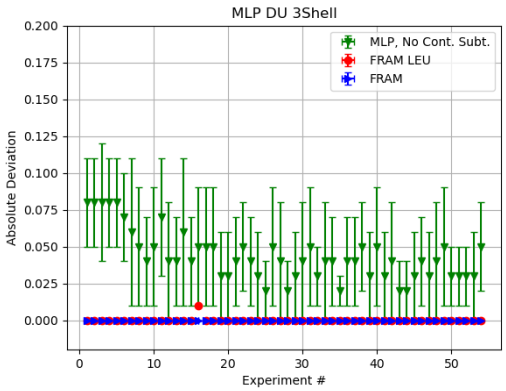
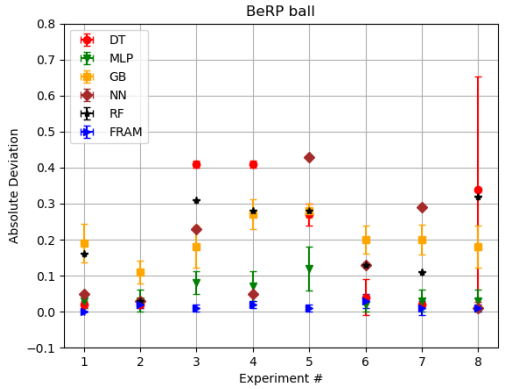


图10：不同机器学习算法和 FRAM 高浓铀模型（上）、MLP 与 FRAM 低浓铀模型（下，红色）以及 FRAM 高浓铀模型（下，蓝色）对贫化铀数据相对于真实富集度值的绝对偏差比较。对于 MLP、决策树和梯度提升树，报告了合并后的统计不确定度和系统不确定度，数值为 $1\,\sigma$。FRAM 结果中的误差棒为 FRAM 软件返回的“sigma”值。



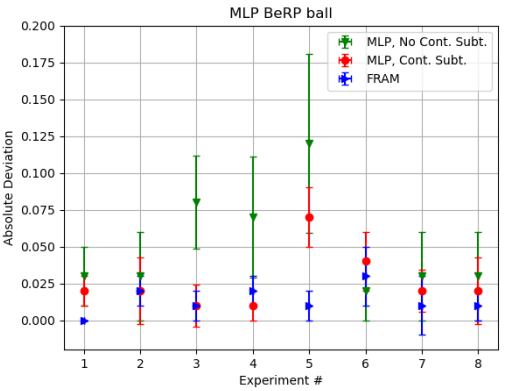


图11：不同机器学习算法和 FRAM（上），以及采用和未采用连续谱扣除的 MLP 与 FRAM（下）对 BeRP 球数据相对于真实同位素比的绝对偏差比较。对于除决策树和最近邻之外的所有算法，报告了合并后的统计不确定度和系统不确定度，数值为 $1\,\sigma$。FRAM 结果中的误差棒为 FRAM 软件返回的“sigma”值。

与壳层构型中的贫化铀数据相比。由于该方法依赖于找出与查询距离最近的训练数据点集合，并对最近的解取平均值，因此，具有良好代表性的训练样本预计能够提升性能。尽管与传统方法相比，MLP 方法的估计不确定性较大，但如图10（下）所示，在大多数实验中，其平均绝对偏差较小，为 < 0.05。

BeRP球的结果见图 11 和图 12。前者展示了在不同屏蔽材料组合和厚度条件下，实验结果相对于真实同位素比的绝对偏差；后者则展示了采用 2.52 cm 聚乙烯屏蔽时的类似结果。如前所见，多层感知机的结果与 FRAM 的结果相当。下方两幅图显示，多层感知机方法在进行连续谱扣除后性能有所提升，这与此前钚氧化物结果中的观察一致。

综合考虑所有经过分析的实验数据后，多层感知机算法的表现优于所评估的其他机器学习算法。与其他机器学习算法相比，多层感知机性能更佳，可能是因为全连接神经网络具有大量互连结构，能够更容易地学习高度非线性行为。在应用机器学习之前进行连续谱扣除后，钚数据集的多层感知机预测结果有所改善。尽管改善幅度因实验而异，但绝对偏差的最大改善出现在氧化钚数据中，约为 0.3。

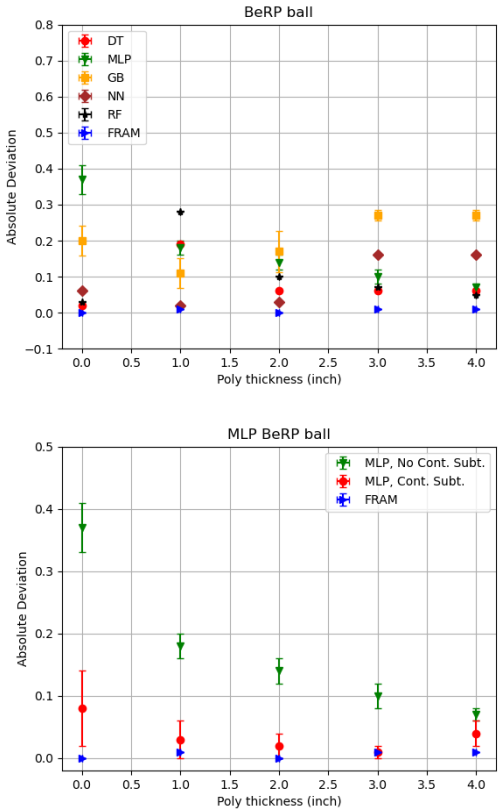


图 12：各种机器学习算法与 FRAM（上图），以及采用和未采用连续谱扣除的多层感知机与 FRAM（下图）对 BeRP 球数据中同位素比绝对偏差的比较，横轴为聚乙烯（屏蔽材料）厚度，单位为英寸。除决策树和最近邻算法外，所有算法的统计不确定度与系统不确定度合并结果均报告为 $1\,\sigma$。FRAM 结果中的误差棒为 FRAM 软件返回的“sigma”值。

10. 结论

研究了几种基于机器学习的回归算法，用于利用高纯锗探测器采集的γ射线能谱数据，对铀和钚的同位素组成进行定量测定。为满足应急响应领域的需求，研究人员使用 GADRAS 模拟数据训练这些算法；模拟数据涵盖不同的源几何形状和厚度，以及不同类型和厚度的屏蔽材料。研究利用模拟数据和实验数据集检验了这些算法的性能，其中实验数据集包含氧化物和金属形式的铀源与钚源。

与传统方法通常需要耗时的预处理不同，研究发现，在使用仿真数据时，所有受测算法均表现出色。随着复杂度增加（例如源厚度范围更宽、屏蔽条件更多样等），性能略有下降。在预处理阶段额外扣除连续本底对性能的影响极小，这表明机器学习算法能够在连续本底较强的情况下，充分学习特征之间的关系。

对于实验数据集，与所研究的其他算法相比，采用全连接神经网络（或多层感知机）算法始终能获得更好的结果。将这些结果与传统方法（FRAM软件）所得结果进行比较后发现，同位素比估算误差相当。最后，我们的结果表明，只需进行最低限度的预处理，机器学习算法便可成为同位素测定传统方法的一种良好替代方案。通过大幅增加训练数据量及其覆盖的物理相空间，可以提升机器学习算法的性能，从而改善对未知配置的机器学习插值。

参考文献

[1] R. Walton, T. Reilly, J. Parker, J. Menzel, E. Marshall, L. Fields, 《便携式仪器测量六氟化铀气瓶》, 《核技术》 21 (2) (1974) 133–148。 [2] R. Gunnink, MGAU：用于测量任意样品中铀-235富集度的新分析代码，劳伦斯利弗莫尔国家实验室，技术报告，UCRL-LR-114713 (1994)。 [3] R. Gunnink, MGA（多群分析）：用于测定钚同位素丰度的伽马射线能谱分析代码，技术报告，劳伦斯利弗莫尔国家实验室，加利福尼亚州（美国）(1990)。

[4] K. Wei, G. Xiong, Z. Xu, Y. Liu，遗传算法径向基函数神经网络算法在退役铀尾矿池环境修复及治理效果评估中的应用分析，《Computational Intelligence and Neuroscience》2021。[5] R. G. Peyvandi 等，使用人工神经网络测定钍矿样品中的铀和钍浓度，并与净峰面积法进行比较，《Radiochimica Acta》106 (8) (2018) 669–674。[6] D. Connor, P. G. Martin, T. B. Scott，机载辐射测绘：现有及未来航空系统概述与应用，《International Journal of Remote Sensing》37 (24) (2016) 5953–5987。[7] M. Hosoda, K. Inoue, M. Oka, Y. Omori, K. Iwaoka, S. Tokonami，福岛第一核电站事故后青森县的环境辐射监测与外照射剂量估算，《Health Physics》51 (1) (2016) 41–50。[8] R. Korob, G. B. Nu˜no，一种通过高分辨率 γ 能谱法绝对测定铀浓缩度的简易方法，《Applied Radiation and Isotopes》64 (5) (2006) 525–531。[9] A. Apostol, A. Pantelica, O. Sima, V. Fugaru，通过高分辨率伽马射线能谱法分析铀样品的同位素组成并进行年代测定，《核仪器与物理研究方法B辑：粒子束与材料及原子》383 (2016) 103–108。[10] M. J. Aitkenhead, M. Owen, D. M. Chambers，人工神经网络在军备控制中测量屏蔽钚特性方面的应用，《Journal of Analytical Atomic Spectrometry》27 (3) (2012) 432–439。[11] M. Rawool-Sullivan, J. Bounds, S. Brumby, L. Prasad, J. Sullivan，迈向自动化伽马能谱分析，技术报告，洛斯阿拉莫斯国家实验室 (2010)。[12] J. Parker, T. Reilly，通过伽马能谱法测定钚同位素，《核分析研究与开发计划状况报告》。[13] T. Reilly, R. Walton, J. Parker，进展报告 LA-4605-MS，洛斯阿拉莫斯国家实验室，NNM (197) 19。[14] D. Reilly, N. Ensslin, H. Smith Jr, S. Kreiner，核材料的被动无损分析，技术报告 LA-UR-90-732，核管理委员会办公室，华盛顿特区，美国 (1991)。[15] T. E. Sampson, G. W. Nelson, T. A. Kelley，FRAM：一种用于分析伽马射线脉冲高度谱中钚同位素组成的多功能代码，技术报告，洛斯阿拉莫斯国家实验室 (LANL)，洛斯阿拉莫斯，新墨西哥州（美国）(1989)。[16] P. Mortreau, R. Berndt，使用 NaIGEM代码测定铀浓缩度，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》530 (3) (2004) 559–567。[17] J. Sprinkle Jr, A. Christiansen, R. Cole, M. Collins, S.-T. Hsue, P. Knepper, T. McKown, R. Siebelist，低分辨率伽马射线测量铀浓缩度，《Applied Radiation and Isotopes》48 (10-12) (1997) 1525–1528。[18] S. Abousahl, A. Michiels, M. Bickel, R. Gunnink, J. Verplancke，MGAU代码在测定铀样品富集度方面的适用性与局限性，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》368 (2) (1996) 443–448。[19] R. Gunnink, W. Ruhter, P. Miller, J. Goerten, M. Swinhoe, H. Wagner, J. Verplancke, M. Bickel, S. Abousahl，MGAU：一种用于测量 ^{235}任意样品中铀富集度的新分析代码，技术报告，劳伦斯利弗莫尔国家实验室，加利福尼亚州（美国）(1994)。[20] J. Morel, H. Goenvec, J. Dalmazzone, G. Malet, 铀-235核燃料测定参考资料，IAEA Nuclear Safeguard Technology。[21] J. Morel, C. Hill, M. Bickel, A. Alonso-Munoz, S. Napier, B. Thaurel, E. S. Research, D. A. N.-W. Members, 铀浓缩测量国际评估演习的结果，《Applied Radiation and Isotopes》52 (3) (2000) 509–522。[22] T. E. Sampson, T. A. Kelley, D. T. Vo，使用FRAM软件进行伽马射线同位素分析的应用指南，LA- 14018。[23] M. Darweesh, S. Shawky，核保障活动中使用的不同铀同位素代码的性能研究，《Heliyon》5 (4) (2019) e01470。[24] P. Olmos, J. Diaz, J. Perez, G. Garcia-Belmonte, P. Gomez, V. Rodellar，神经网络技术在伽马能谱学中的应用，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》312 (1-2) (1992) 167–173。[25] E. Yoshida, K. Shizuma, S. Endo, T. Oka，神经网络在分析锗能谱仪测得的伽马射线能谱中的应用，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》484 (1-3) (2002) 557–563。[26] L. J. Kangas, P. E. Keller, E. R. Siciliano, R. T. Kouzes, J. H. Ely，人工神经网络在基于PVT的辐射门户监测器中的应用，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》587 (2-3) (2008) 398–412。[27] J. F. Briesmeister，MCNP——通用蒙特卡罗中子-粒子输运代码，技术报告 LA–13709–M，洛斯阿拉莫斯国家实验室（1993）。[28] D. Liang, P. Gong, X. Tang, P. Wang, L. Gao, Z. Wang, R. Zhang，基于卷积神经网络的快速核素识别算法，《Annals of Nuclear Energy》133 (2019) 483–490。[29] C. Bobin, O. Bichler, V. Lourenço, C. Thiam, M. Thévenin，基于脉冲神经网络的发射体混合物实时放射性核素识别，《Applied Radiation and Isotopes》109 (2016) 405–409。[30] S. Sharma, C. Bellinger, N. Japkowicz, R. Berg, K. Ungar，伽马射线能谱异常检测：机器学习视角，载于：2012年IEEE安全与国防应用计算智能研讨会，IEEE，2012，第1–8页。[31] J. He, X. Tang, P. Gong, P. Wang, L. Wen, X. Huang, Z. Han, W. Yan, L. Gao，基于离散余弦变换和BP神经网络的快速放射性核素识别算法，《Annals of Nuclear Energy》112 (2018) 1–8。[32] E. J. Hague, M. Kamuda, W. P. Ford, E. T. Moore, J. Turk，放射性同位素识别中自适应技术与模板匹配技术的比较，载于：Algorithms, Technologies, and Applications for Multispectral and Hyperspectral Imagery XXV，第10986卷，SPIE，2019，第62–73页。[33] M. M. Kamuda，使用人工神经网络自动识别和定量分析同位素，博士论文，伊利诺伊大学厄巴纳-香槟分校（2019）。[34] C. Zhang, G. Hu, F. Luo, Y. Xiang, G. Ding, C. Chu, J. Zeng, R. Ze, Q. Xiang，基于低分辨率伽马射线特征和神经网络的特殊核材料识别，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》927 (2019) 155–160。[35] K. J. Bilton, T. H. Joshi, M. S. Bandstra, J. C. Curtis, D. Hellfeld, K. Vetter，移动式能谱放射性伽马射线源探测的神经网络方法

《Journal of Nuclear Engineering》2 (2) (2021) 190–206。[36] M. Gomez-Fernandez, K. Higley, A. Tokuhiro, K. Welter, W.-K. Wong, H. Yang，核科学与工程中基于学习的方法的研究与开发现状：综述，《Nuclear Engineering and Design》359 (2020) 110479。[37] H. Hata, K. Yokoyama, Y. Ishimori, Y. Ohara, Y. Tanaka, N. Sugitsue，支持向量机在利用低分辨率伽马射线能谱快速分类铀废物桶中的应用，《Applied Radiation and Isotopes》104 (2015) 143–146。[38] L. Chen, Y.-X. Wei，基于K–L变换和神经网络的核素识别算法，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》598 (2) (2009) 450–453。[39] V. Pilato, F. Tola, J. Martinez, M. Huver，神经网络在定量能谱分析中的应用，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》422 (1-3) (1999) 423–427。[40] S. E. Shaban, M. Hazzaa, R. El-Tayebany，应用蒙特卡罗和人工智能技术预测不同富集度样品中的铀-235质量，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》916 (2019) 322–326。γ V. Vigneron, J. Morel, M.-C. Lepy, J.-M. Martinez，伽马能谱学中神经网络的统计建模，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》369 (2-3) (1996) 642–647。[42] J. Ryu, C. Park, J. Park, N. Cho, J. Park, G. Cho，开发用于测量铀浓缩度的可解释人工智能神经网络模型，《IEEE核科学汇刊》68 (11) (2021) 2670–2681。[43] E. K. Elmaghraby, M. Tohamy, M. Comsan，基于神经网络模型的伽马射线能谱学同位素活度比测定，《Applied Radiation and Isotopes》148 (2019) 19–26。[44] F. Pedregosa, G. Varoquaux, A. Gramfort, V. Michel, B. Thirion, O. Grisel, M. Blondel, P. Prettenhofer, R. Weiss, V. Dubourg, J. Vanderplas, A. Passos, D. Cournapeau, M. Brucher, M. Perrot, E. Duchesnay，Scikit-learn：Python中的机器学习，《机器学习研究杂志》12 (2011) 2825–2830。[45] S. Wolfram，《Mathematica之书》，第1卷，Wolfram Research, Inc., 2003。[46] L. Breiman, J. H. Friedman, C. J. Stone, R. A. Olshen，《分类与回归树》，Taylor & Francis，1984。[47] G. Biau, E. Scornet，随机森林导览，《TEST》25 (2) (2016) 197–227。doi:10.1007/s11749-016-0481-7。[48] A. Natekin, A. Knoll，梯度提升机教程，《神经机器人学前沿》7 (2013) 21。[49] E. Fix, J. L. Hodges，判别分析。非参数判别：一致性性质，《国际统计评论》/《国际统计评论》57 (3) (1989) 238–247。[50] N. S. Altman，核与最近邻非参数回归简介，《美国统计学家》46 (3) (1992) 175–185。[51] S. J. Gershman, D. M. Blei，贝叶斯非参数模型教程，《数学心理学杂志》56 (1) (2012) 1–12。[52] C. K. Williams, D. Barber，使用高斯过程进行贝叶斯分类，《IEEE模式分析与机器智能汇刊》《人工智能》20 (12) (1998) 1342–1351。[53] C. Williams、C. Rasmussen，用于回归的高斯过程，神经信息处理系统进展 8。[54] K. Fukushima，Neocognitron：一种用于模式识别的自组织神经网络模型，不受位置偏移影响，《生物控制论》36 (1980) 193–202。doi:10.1007/BF00344251。[55] Y. LeCun、Y. Bengio、G. Hinton，深度学习，《自然》521 (7553) (2015) 436–444。doi:10.1038/nature14539。[56] J. Schmidhuber，神经网络中的深度学习：综述，Neural Networks 61 (2015) 85–117。doi:10.1016/j.neunet.2014.09.003。[57] D. J. Mitchell、L. T. Harding，GADRAS 同位素识别用户手册：用于伽马射线测量分析，并提供 Linux 和 Android API，技术报告，桑迪亚国家实验室（2014年5月）。doi: 10.2172/1177049。[58] M. Morh´aˇc、J. Kliman、V. Matouˇsek、M. Veselsk´y、I. Turzo，多维符合伽马射线能谱的背景消除方法，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》401 (1) (1997) 113–132。doi:10.1016/S0168-9002(97)01023-1。[59] M. Morh´aˇc、J. Kliman、V. Matouˇsek、M. Veselsk´y、I. Turzo，高效的一维和二维 Gold 反卷积及其在伽马射线能谱分解中的应用，《核仪器与物理研究方法A辑：加速器、能谱仪、探测器及相关设备》401 (2) (1997) 385–408。doi:10.1016/S0168-9002(97)01058-9。[60] M. Morh´aˇc、J. Kliman、V. Matouˇsek、M. Veselsk´y、I. Turzo，多维符合伽马射线能谱中的峰识别，《核仪器与物理研究A辑》443 (1) (2000) 108–125。doi:10.1016/S0168-9002(99) 01005-0。[61] J. Hutchinson、T. Valentine，聚乙烯和丙烯酸树脂反射的钚球体的次临界测量，《核科学与工程》161 (3) (2009) 357–362。doi:10.13182/NSE161-357。[62] 核能机构，ICSBEP 2019年手册，《国际临界安全基准评估项目手册》（数据库）（2019年）。doi:10.1787/e2703cd5-en。