

Новый подход к обработке гамма спектров

Дрёмин Геннадий Иванович, инженер, индивидуальный предприниматель

Предлагается при обработке гамма спектров использовать разложение спектра пробы на спектр фона, полные спектры определяемых нуклидов, спектры пиков определяемых нуклидов и сплайн, аппроксимирующий спектр непрерывного рассеяния (комптоновское рассеяние гамма квантов и тормозное рентгеновское бета частиц) для той части нуклидов, которые представлены в модели спектрами пиков.

Подход реализован в программном пакете «СПЕКТРРАД».

Гамма спектрометрия, сцинтилляционные гамма спектры

Проблема обработки сложных сцинтилляционных спектров стала особенно актуальной после введенных санкций на поставку охлаждаемых полупроводниковых детекторов (особо чистый германий, Ge(Li), Si).

Начнем с необходимого уточнения. Термин «сцинтилляционный» в данной работе применен условно и будет использован для обозначения всех плохо разрешенных гамма-спектров (они могут быть получены и не на сцинтилляционном детекторе).

И с определения некоторых не широко распространенных терминов:

- Полный спектр нуклида – отклик спектрометра на излучение нуклида при одном распаде нуклида. Отклик спектрометра – функция распределения плотности вероятности регистрации в каналах спектрометра излучения нуклида при одном распаде нуклида. В нашем случае мы говорим об отклике гамма спектрометра. Полный гамма спектр нуклида состоит из спектра пиков (пики полного поглощения, пики утечки, аннигиляционный пик и пики сложения каскадных гамма квантов) и спектра непрерывного рассеяния (спектр комптоновского рассеяния гамма квантов и тормозного рентгеновского бета частиц).
- Спектр пиков нуклида, в соответствии с предшествующим определением – функция распределения плотности вероятности регистрации излучения в пиках полного поглощения, пиках утечки, аннигиляционном пике и пиках сложения каскадных гамма квантов в каналах спектрометра при одном распаде нуклида. В других словах – полный спектр нуклида за вычетом спектра непрерывного рассеяния.

На рисунке 1 приведен пример полного спектра и спектра пиков Cs-137.

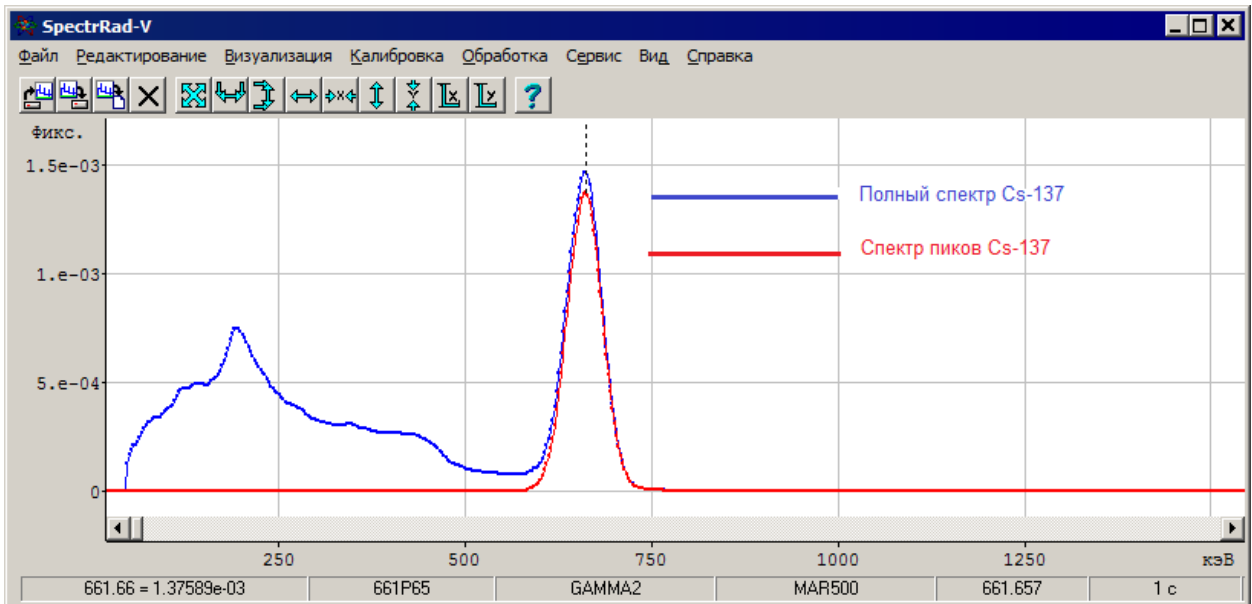


Рис. 1. Полный спектр и спектр пиков Cs-137.

Дискриминатор нижнего уровня (ДНУ) на плохоньком отечественном спектрометре установлен в районе 50 кэВ, поэтому мягких линий Cs-137 мы не видим.

Стандартный для сцинтилляционной спектрометрии подход – разложение спектра на предполагаемые в измеренном спектре компоненты, включающие и спектр непрерывного рассеяния (комптоновского рассеяния гамма-квантов и тормозного рентгеновского бета-частиц). В первом приближении используется линейная модель $s = A \cdot x + b$ (1). Здесь: s – измеренный спектр, A – матрица компонентов (полных откликов спектрометра на излучение одного нуклида или смеси нуклидов), x – искомый вектор вкладов компонентов, b – спектр фона. Часто этот метод называют матричным, поскольку все спектры отдельных нуклидов (или смесей нуклидов) интерферируют между собой за счёт спектра непрерывного рассеяния и требуется формировать матрицу декомпозиции для разложения спектра пробы на компоненты. Нередко, для упрощения вычислений (уменьшения числа уравнений) каналы спектра, которые также являются энергетическими окнами, объединяют в более крупные интегральные окна. И в этом случае к названию «матричный» добавляют термин «оконный». Но такое преобразование спектра нарушает требование теоремы Гаусса-Маркова о наиболее эффективных оценках, не позволяя корректно оценивать невязку разложения и параметры энергетического дрейфа спектрометра. В пакете «СПЕКТРАД» реализован и вариант с предварительным интегрированием спектра («оконный» метод), но стандартным является подход с разложением спектра на полные спектры компонент без предварительного интегрирования с оценкой и коррекцией энергетического дрейфа. Пример результатов обработки таким методом приведён на рис. 2.

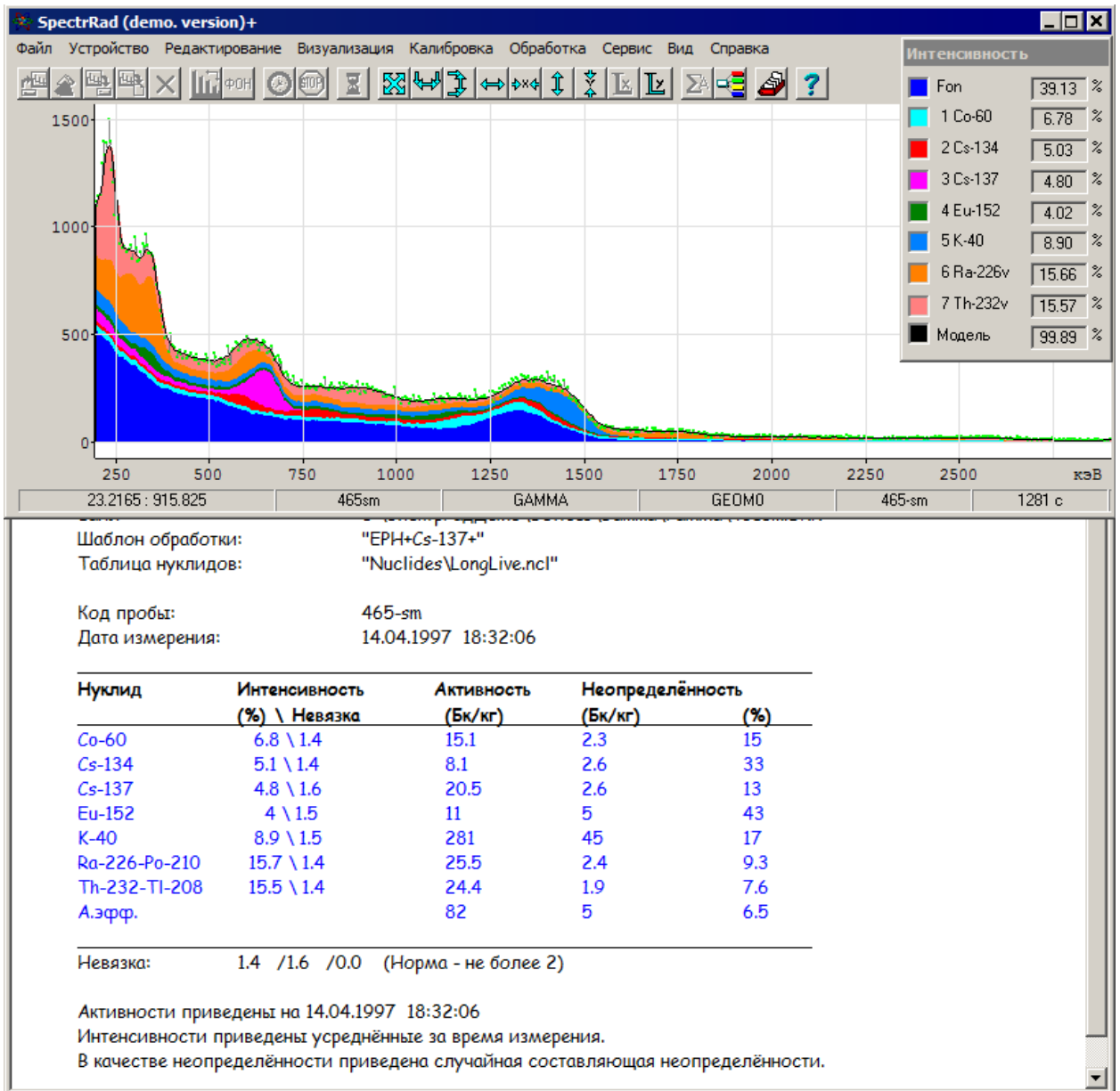


Рис. 2. Разложение сцинтилляционного спектра на спектры компонент, включающих и спектр непрерывного рассеяния.

Метод позволяет получать наиболее эффективные оценки активностей (в качестве неопределённостей приведены случайные составляющие неопределённостей), оценить и скорректировать энергетический дрейф спектрометра, корректно оценить достоверность оценок.

Однако этот метод имеет и много недостатков.

Так, в этом случае мы не можем ограничиться каким-то одним, интересующим нас коротким энергетическим диапазоном. Мы должны учитывать и вклады спектров от всех линий с энергиями больше левой границы интересующего нас энергетического окна, в том числе и вклады от спектров непрерывного рассеяния. В действительности мы должны учитывать вклад всех нуклидов, чьё излучение зарегистрировано в спектре, в том числе и тормозное рентгеновское чистых бета излучателей. Спектры непрерывного рассеяния от разных линий в нашем коротком окне могут быть очень похожи по форме и, соответственно, делать нашу систему уравнений вырожденной. Поэтому использование короткого энергетического диапазона при этом методе невозможно.

Стандартный вариант калибровки спектрометра для обработки спектров таким методом - расчёт полных откликов спектрометра по спектрам стандартных образцов (эталонов). Хорошо, если в спектре исследуемой пробы могут присутствовать только три

или четыре нуклида (равновесной цепочки нуклидов). В этом случае можно обойтись четырьмя, или пятью эталонами (для измерения фона, как правило, требуется эталон фоновой пробы). Для учёта хотя бы плотности счётного образца потребуется уже восемь или десять таких эталонов (про учёт химического состава счётного образца можно забыть – нет возможности его учитывать). А если у нас не четыре нуклида могут формировать спектр, а сто или двести. А такой вариант может быть, например, при анализе концентрации U-235 в отработанном ядерном топливе, при анализе РАО.

При этом полные отклики спектрометра (включающие и спектр непрерывного рассеяния) некоторых нуклидов мы не можем рассчитать по спектрам эталонов либо из-за их малого времени жизни (например, Pb-212, Bi-212, Pb-214, Bi-214), либо из-за трудностей с изготовлением таких эталонов (большая бочка, геометрия 2л или 4л).

Кроме того, нет возможности пересчитать полные отклики спектрометра, рассчитанные по эталонам, на другой химический состав счётного образца. Перерасчёт на другую плотность требует предварительного расчёта полных откликов спектрометра по эталонам различной плотности и высокой точности, что, как показала практика, изготовители эталонов не обеспечивают.

Существует альтернативный метод расчёта полных откликов спектрометра по процедурам, использующим разработанный в Los Alamos National Laboratory метод для расчёта траекторий нейтронов и гамма квантов в веществе, называемым Monte Carlo N-Particles Transport Code (в принятом сокращении почему-то без двух последних слов – MCNP).

Расчёт MCNP методом требует знаний химического состава материалов и конструкции детектора и защиты, которых пользователь программного пакета нередко не имеет.

В возможность оперативного расчёта полных спектров нуклидов, учитывающих химический состав счётного образца с приемлемой точностью и за приемлемое время MCNP методом, я верю слабо, поскольку в этом случае нам пришлось бы рассчитать порядка 1000 каналов спектра со статистикой минимум 100 отсчетов в канале (при 10% эффективности регистрации – 1000 000 родившихся квантов), при приличном объеме счетного образца – порядка 1000 точек распада нуклида в объеме образца. При автоматическом анализе нуклидного состава реализованном в пакете «СПЕКТРРАД» придётся рассчитать отклики спектрометра на все нуклиды, включённые в рабочую библиотеку – около двухсот нуклидов и более 10 000 линий. Необходимо будет учесть комптоновское рассеяние гамма квантов, внутреннее и внешнее тормозное рентгеновское излучение, детально знать состав и геометрию счетного образца, детектора, защиты и среды. Поскольку спектр тормозного рентгеновского непрерывный, необходимо рассчитать судьбу квантов для всего энергетического диапазона спектра с достаточной плотностью и для внутреннего и для внешнего тормозного излучения. Вклад в формирование итогового спектра всей электроники спектрометра (ФЭУ, усилитель, источник высокого напряжения) MCNP методами рассчитать нельзя. В общем, потребуется колоссальный объем расчетов и доскональное знание всей системы, что делает этот подход трудно реализуемым. И если расчёт 200 моделей спектров пиков нуклидов в моём пакете происходит за секунды, боюсь, что расчёт 200 полных моделей спектров нуклидов MCNP методом потребует часов расчётов.

Второй метод обработки гамма спектров называют, как правило, методом пиков. При этом измеренный спектр разделяется на спектр пиков и спектр непрерывного рассеяния под пиками. И расчёт активностей нуклидов производится уже по спектру пиков (по площадям пиков). При этом интерференция компонентов, конечно, уменьшается, но не исчезает и для корректной оценки активностей точно так же как в первом методе требуется формировать матрицу декомпозиции для разделения компонентов.

Рассчитать спектры пиков нуклидов по калибровкам эффективности регистрации, моделям пиков и таблицам нуклидов, требуемых для этого метода, намного проще. При этом легко рассчитывается и поглощение гамма-квантов во всех трёх средах (материал

счётного образца, контейнер и среда между источником и детектором). Корректно осуществляется расчёт для объёмной эффективности регистрации по точечной геометрии, корректно учитываются проблемы каскадных переходов и линий утечки. Модель в этом случае можно записать как $s = A_{\cdot} \cdot x + b + s_{sc}$ (2). Здесь A_{\cdot} - матрица спектров пиков компонентов (нуклидов), s_{sc} - спектр непрерывного рассеяния.

Обычный подход – поиск пиков и построение спектра непрерывного рассеяния на этапе предварительной обработки спектра. Спектр непрерывного рассеяния вычитается из спектра пробы, и мы получаем систему уравнений $s_{\cdot} = A_{\cdot} \cdot x + b_{\cdot}$ (2a). Здесь $s_{\cdot} = s - s_{sc}$ - модифицированный спектр пробы, $b_{\cdot} = b - b_{sc}$ - модифицированный спектр фона.

Необходимо отметить, что модифицировать объект (в нашем случае – измеренный спектр) не рекомендуется, поскольку в этом случае мы будем искать решение для модифицированного объекта. Мы не сможем корректно оценить достоверность оценивания, поскольку рассчитывать будем расстояние от модифицированного объекта до модели (единственный параметр оценки достоверности), а не от объекта до модели. Не сможем корректно оценить неопределённость оценивания, поскольку не просто учесть изменения в ковариационной матрице объекта при его модификации.

Основная трудность при разложении спектра на модели пиков – корректное разделение измеренного спектра на спектр пиков и спектр непрерывного рассеяния в случае сложных спектров.

Вот так выглядит спектр пиков (спектр непрерывного рассеяния вычтен) природного урана с дочерними, измеренный на сцинтилляционном детекторе с 8% разрешением по линии 662 кэВ (рис. 3):

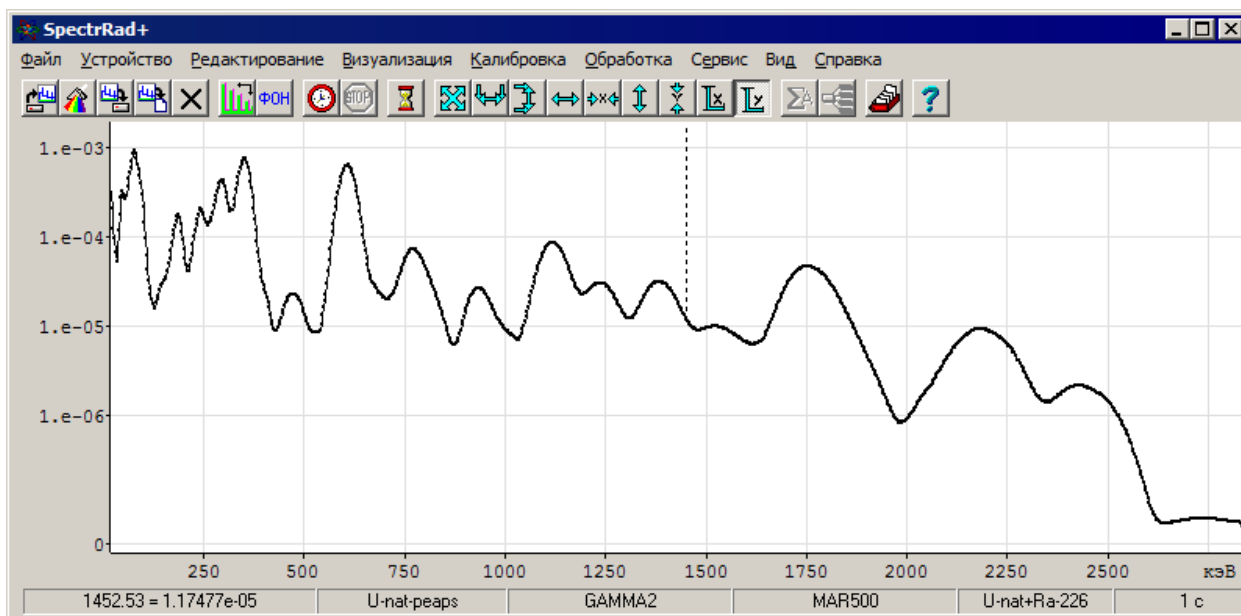


Рис. 3. Спектр пиков природного урана, измеренный на сцинтилляционном спектрометре с 8% разрешением по линии 662 кэВ.

Спектры проб, содержащих естественные радиоактивные нуклиды, кроме природного урана (32 нуклида в цепочке распада, около 2000 заметных линий) содержат ещё и не менее богатую пиками цепочку распада Th-232 (12 нуклидов в цепочке распада и более 350 значимых гамма-линий, не считая линий сложения каскадных и линий утечки).

Как выделяют пики в методе с поиском пиков? Два наиболее распространённых метода: аппроксимация интегральной ступенькой Филиппотта или полиномом (иногда сочетанием двух методов). В пакете «СПЕКТРРАД» реализованы все три метода (включая сочетание двух основных методов). Аппроксимация интегральной ступенькой замечательно подходит только для пика, сформированного одной линией. Полином годится только для короткого отрезка спектра – слишком жёсткая структура не может

корректно описать форму спектра непрерывного рассеяния на длинном энергетическом интервале. Естественный шаг – замена полинома сплайном.

Сплайн (функция из отрезков полиномов, сшитых по значениям и первым производным) – структура намного более гибкая и, при необходимости, превращается в полином (полином – частный случай сплайна). Вследствие этой гибкости существует, однако, опасность некорректного построения сплайна при задании излишней гибкости. Поэтому сплайн приходится настраивать на конкретную задачу. Кроме того, включение дополнительных неизвестных в систему уравнений (коэффициентов сплайна) делает её менее обусловленной и, в итоге, увеличивает неопределённость оценивания. Но это та цена, которую придётся заплатить за использование сплайна.

Чтобы не увеличивать неопределённости системы, разложение спектра будет производиться не на неизвестные пики и полином, а на заранее рассчитанные спектры пиков предполагаемых нуклидов и сплайн, аппроксимирующий спектр непрерывного рассеяния.

Проблема фона решается просто – мы не ищем пики в фоне, а просто вычитаем спектр фона из спектра пробы вместе со всем комптоновским и тормозным рентгеновским излучением.

Поскольку при варианте построения спектра непрерывного рассеяния на этапе предварительной обработки, спектр непрерывного рассеяния жёстко привязан к спектру пробы и включает, соответственно, и спектр непрерывного рассеяния фона, спектр непрерывного рассеяния необходимо вычесть и из спектра фона. При аппроксимации сплайном такой привязки нет – сплайн будет аппроксимировать только спектр непрерывного рассеяния для компонентов, которые представлены в матрице компонентов спектрами пиков. И первый полный компонент – спектр фона. Понятно, что в систему, точно так же как фон, можно включать полные спектры и других компонентов (нуклидов). Поэтому новый подход – аппроксимация спектра непрерывного рассеяния сплайном, это не новый подход конструирования спектра непрерывного рассеяния, а новый подход к обработке гамма спектров. В этом подходе мы можем смешивать в системе и полные спектры нуклидов и спектры пиков нуклидов.

Поскольку сплайн встраивается в линейную систему линейно, полученную систему уравнений можно записать в виде $s = A_-^+ \cdot x^+ + b$ (3). Здесь A_-^+ - матрица спектров пиков компонентов и полных компонентов, дополненная сплайном, x^+ - расширенный вектор определяемых параметров.

Насколько успешно будет решаться итоговая система, определяется обусловленностью матрицы A_-^+ . И ответ может быть получен только после реализации процедуры решения системы (3).

Посмотрим на результаты обработки пробы гранитного щебня, измеренного на стандартном сцинтилляционном спектрометре с разрешением 8% по линии 662 кэВ различными методами (рис.4, рис 5):

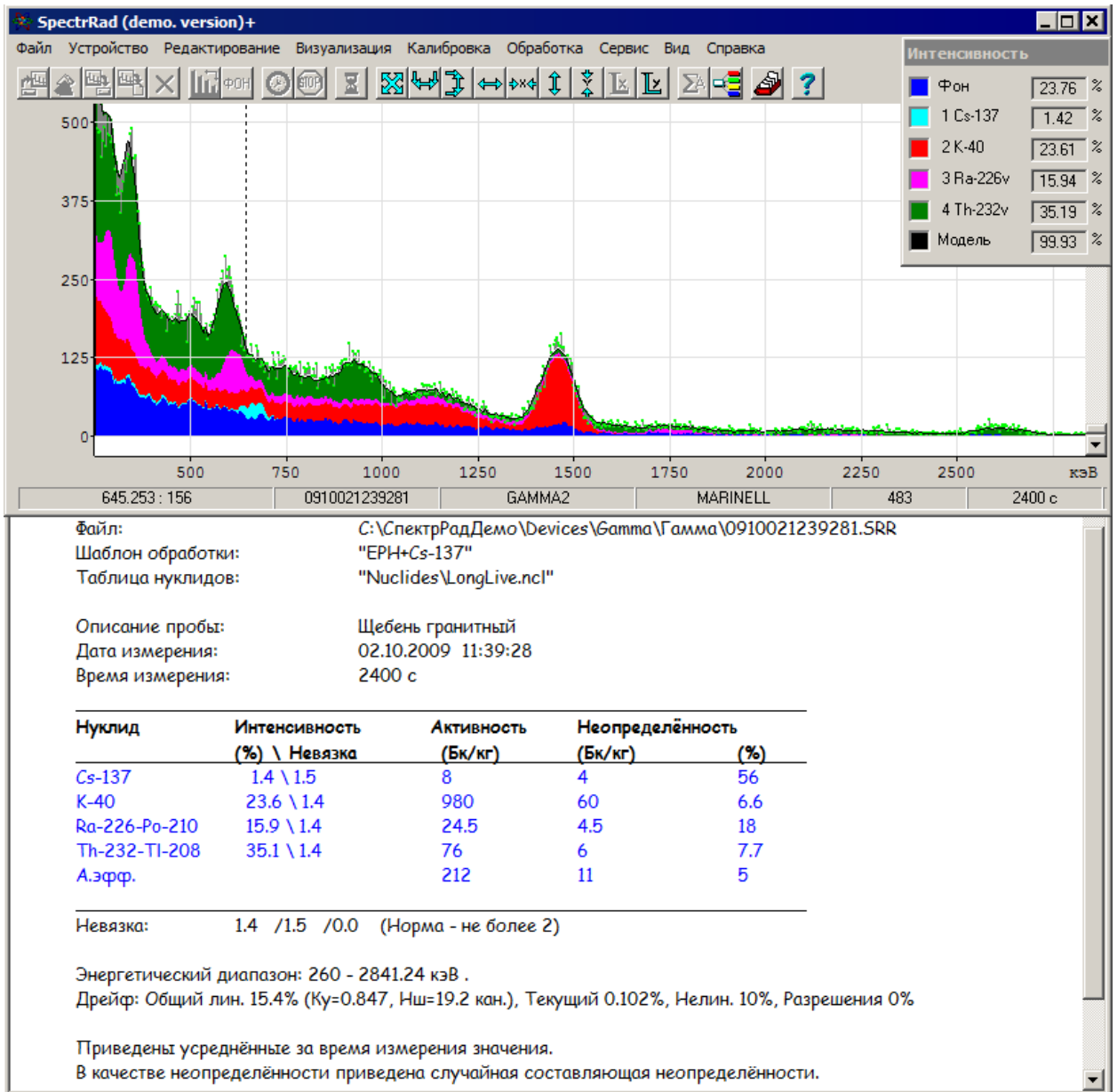


Рис. 4. Разложение спектра пробы на компоненты, включающие и спектр непрерывного рассеяния.

Результаты обработки на рисунке 4 можно считать эталонными, поскольку выполнены все требования для получения наиболее достоверных и эффективных оценок активностей:

- Не было предварительной обработки спектра, поэтому ковариационную матрицу рассчитать нетрудно и, соответственно, привести систему уравнений в соответствии с требованиями теоремы Гаусса-Маркова.
- Мы используем линейную модель и метод наименьших квадратов для получения оценок.

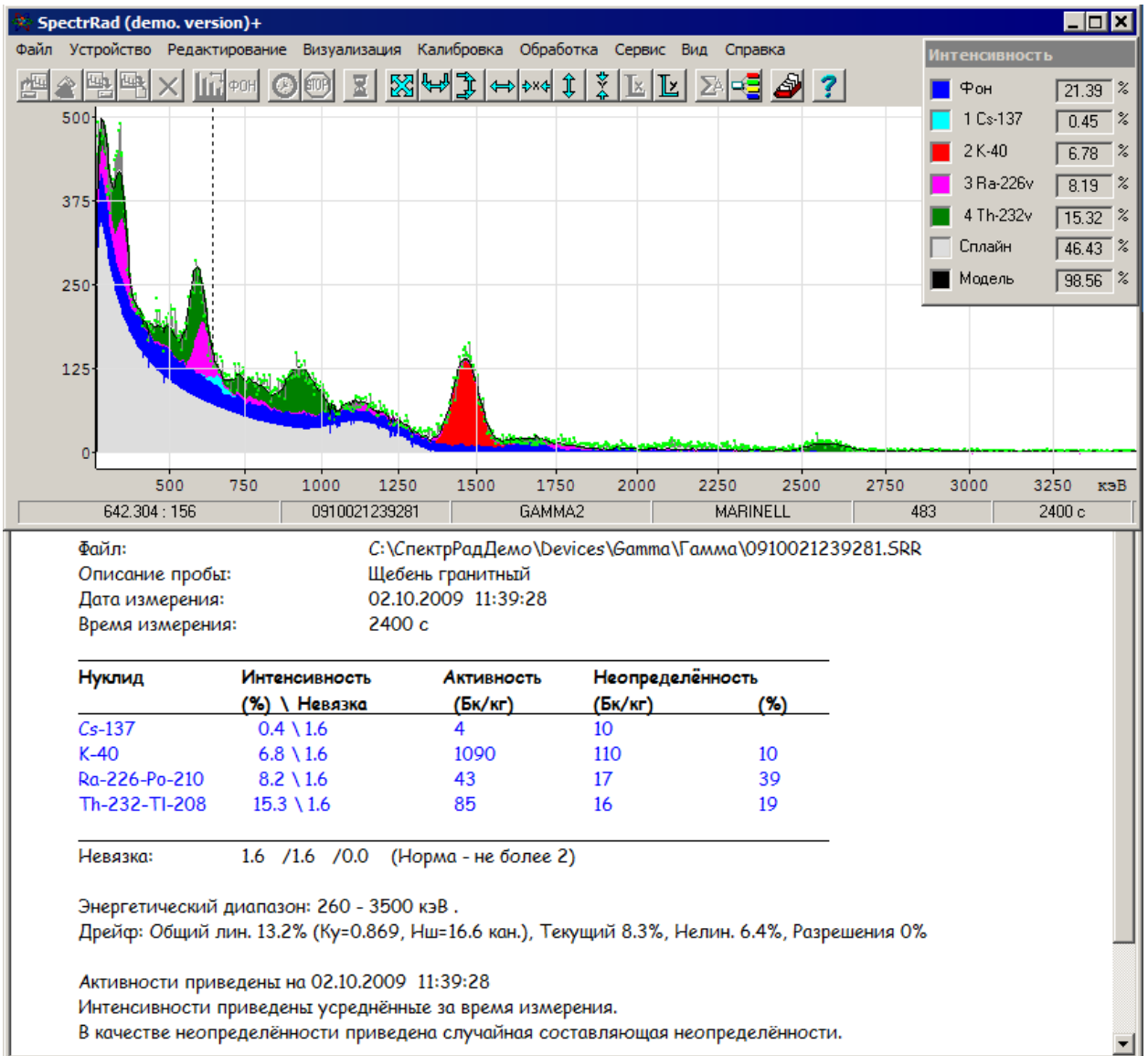


Рис. 5. Разложение спектра пробы на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном.

Результаты обработки с использованием сплайна вполне удовлетворительны - оценки активностей корректны (доверительные интервалы значений пересекаются со значениями, полученными при разложении на полные отклики спектрометра). Неопределённости оценивания, естественно, выше, поскольку мы внесли в систему немало дополнительных неизвестных (коэффициентов сплайна). Но это та цена, которую придётся платить за использование сплайна.

Как уже было сказано, при таком подходе мы вполне можем смешивать в модели и полные отклики спектрометра (включающие и спектр непрерывного рассеяния), и спектры пиков дополнительных нуклидов, которые отсутствуют в нашем списке полных откликов спектрометра. Сплайн в этом случае будет аппроксимировать только спектры непрерывного рассеяния от дополнительно включённых нуклидов (рис. 6).

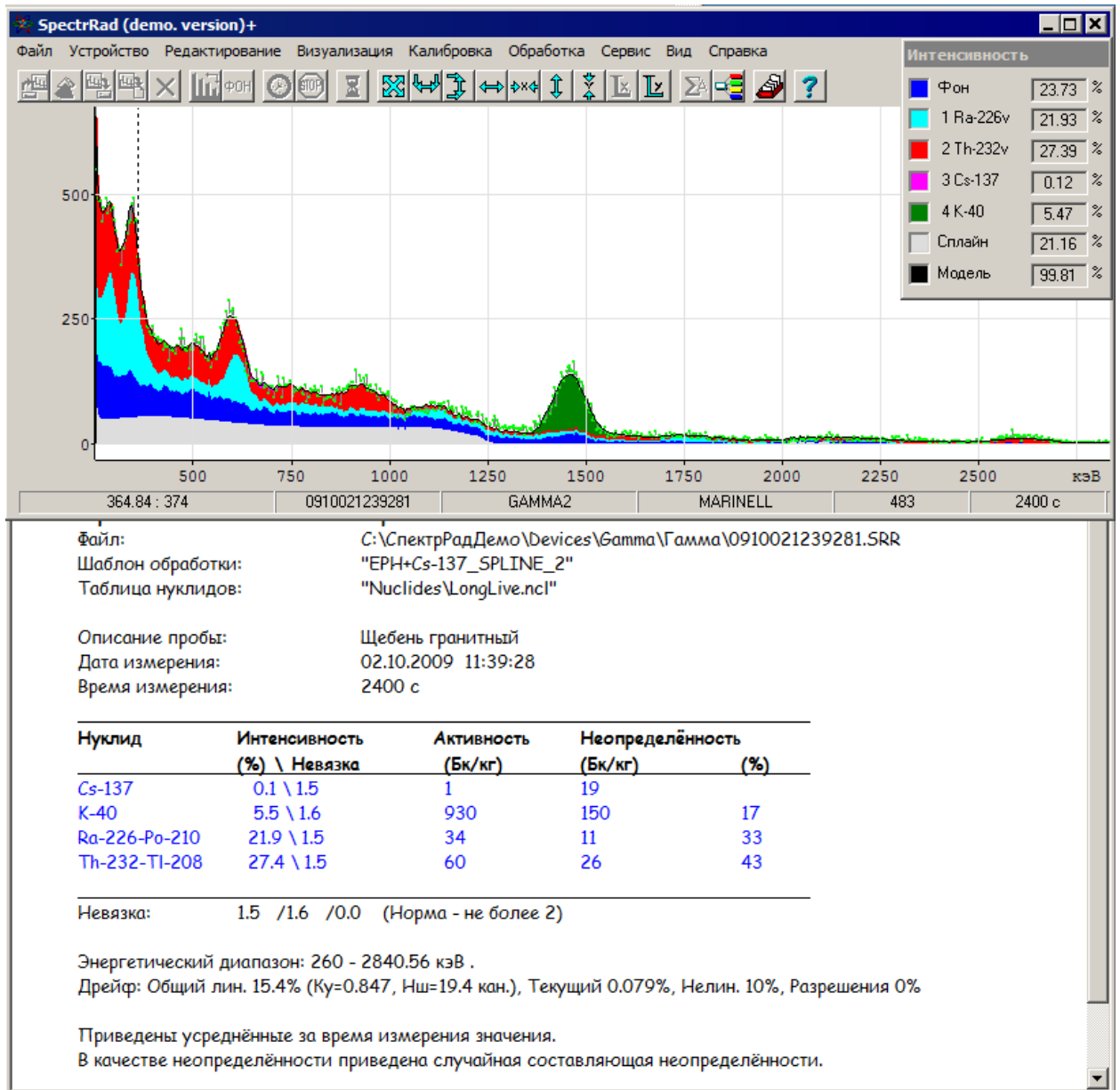


Рис. 6. Разложение спектра пробы на полные спектры Ra-226, Th-232 и спектр пиков Cs-137 и K-40.

В некоторых случаях, например, при исследовании радионуклидного состава воздуха методом прокачки его через фильтр и измерении активности нуклидов, осевших на фильтре, равновесие в рядах распада радона и торона будет нарушено. Мы должны раскладывать спектр на более короткие цепочки распада дочерних радона и торона. В нашем случае (в спектре щебня) все эти короткие цепочки должны быть в радиоактивном равновесии с материнским. На рис. 7 представлены результаты разложения спектра пробы гранитного щебня на такие короткие цепочки и отдельные нуклиды с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном:

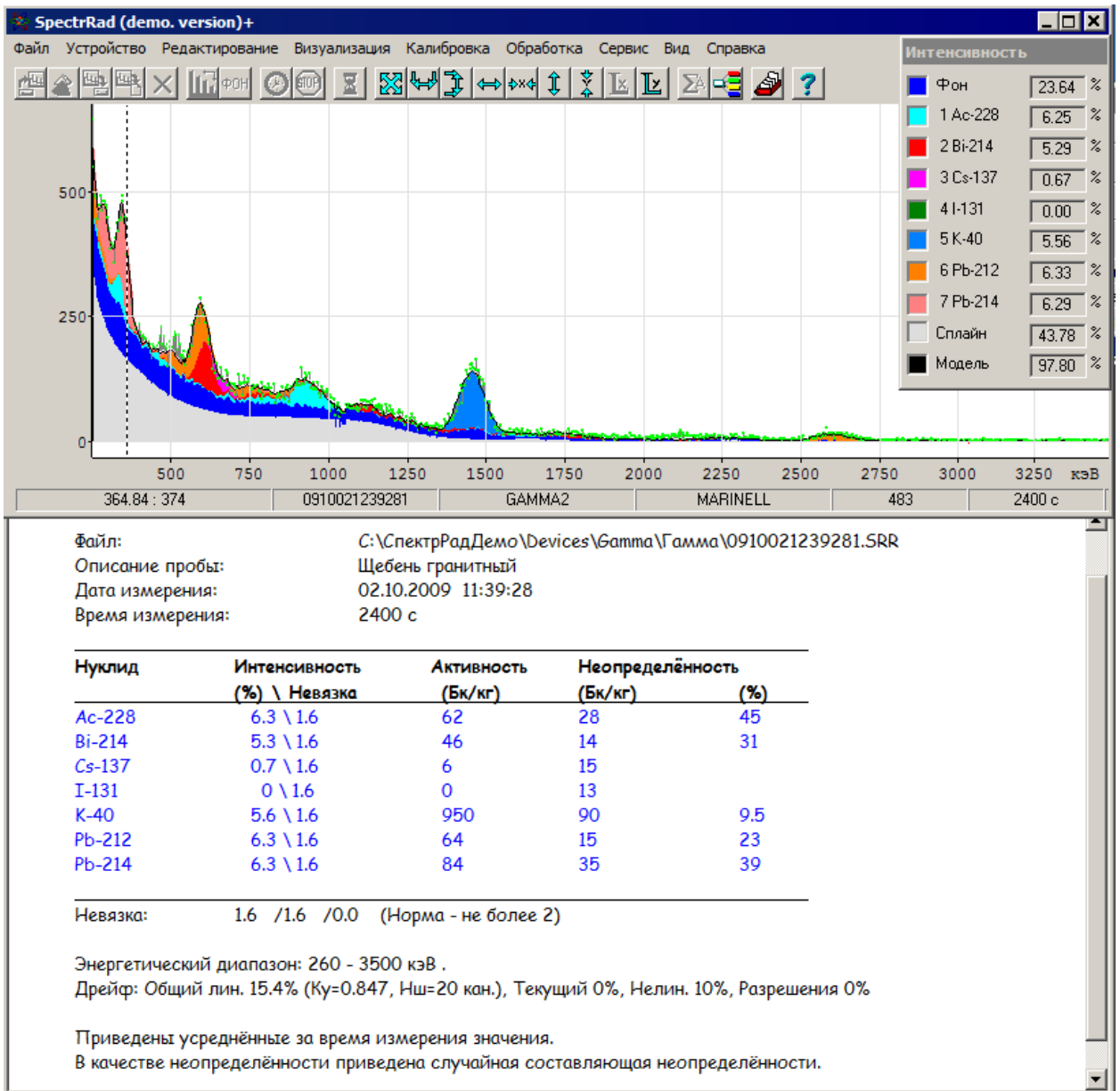


Рис. 7. Разложение спектра пробы гранитного щебня на спектры нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном

Pb-212, Bi-212 и Tl-208 объединены в равновесную цепочку Pb-212, поскольку радиоактивное равновесие в этой цепочке наступит через 6 часов из любого начального состояния, которое может быть на фильтре.

Ещё несколько иллюстрирующих картинок того же разложения в другом масштабе (рис. 8, рис. 9):

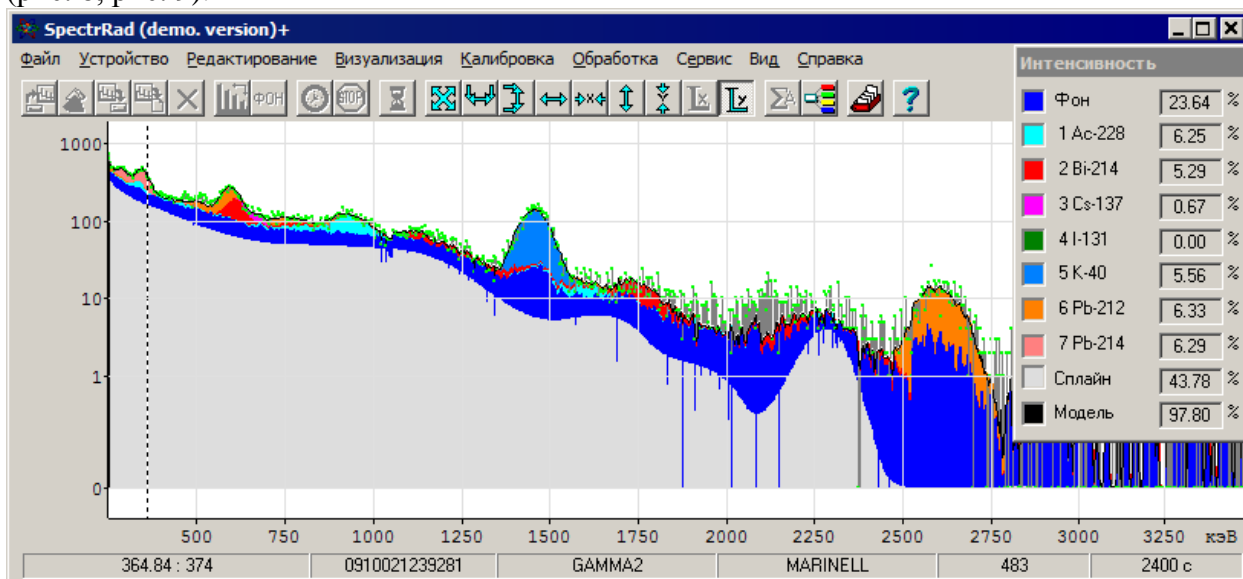


Рис. 8. Разложение спектра пробы на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном в квазилогарифмическом масштабе.

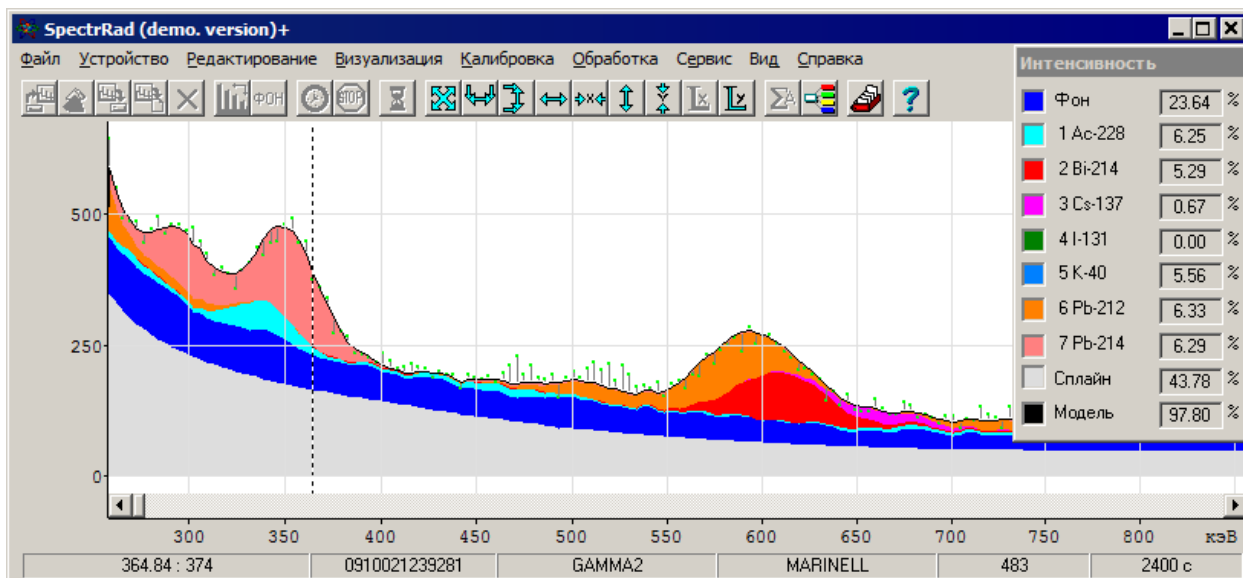


Рис. 9. Разложение спектра пробы на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном в растянутом по оси абсцисс масштабе.

Посмотрим на результаты обработки того же спектра процедурой с поиском пиков (рис. 10):

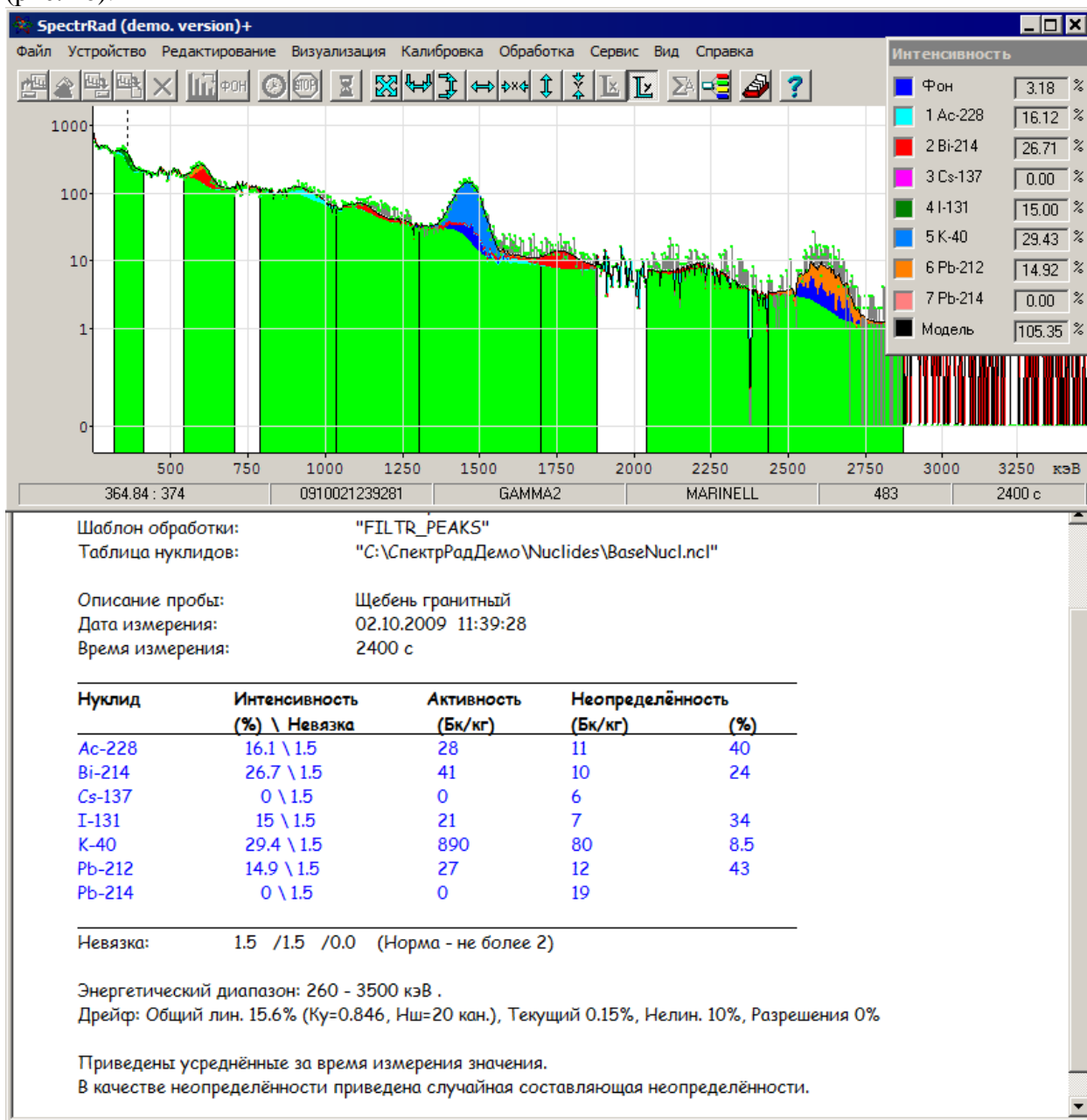


Рис. 10. Разложение спектра пробы на спектры пиков нуклидов с поиском пиков

Как и предполагалось, значения активностей занижены (метод срезает верхушки пиков). Pb-214 совсем потерялся, а должен быть в равновесии с Bi-214. Метод нашёл I-131 в щебне, где его быть не может. Это, в числе всех недостатков поиска пиков, связано и с некорректной формой спектра непрерывного рассеяния под пиком (рис. 11).

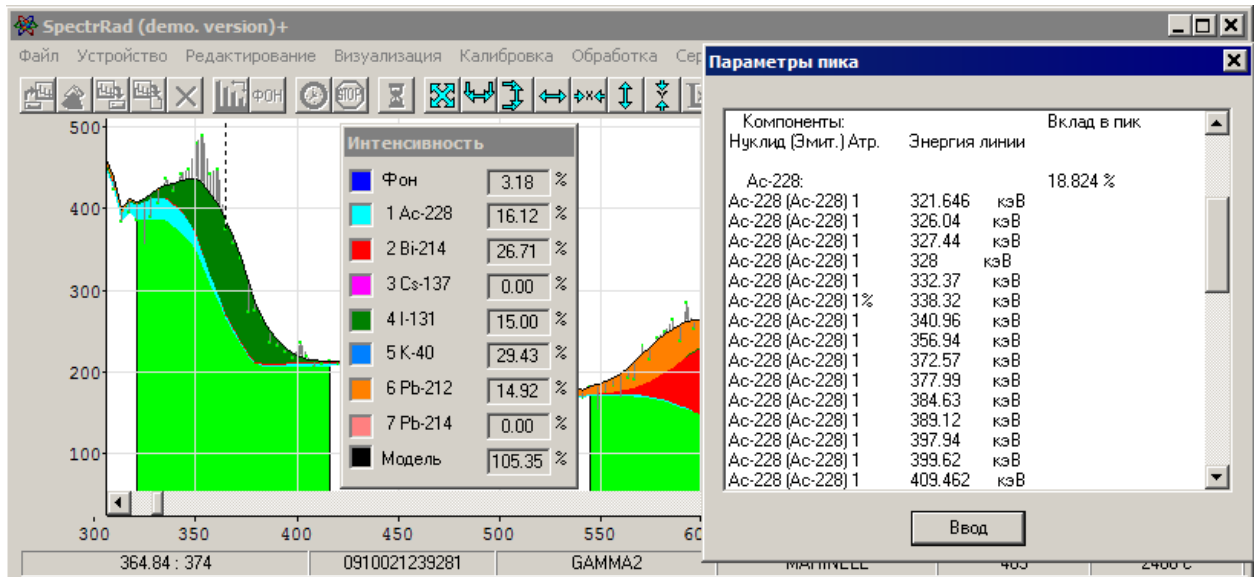


Рис. 11. Разложение пика в области I-131 (пик формируют 40 линий, принадлежащим 4 нуклидам).

Процедура построения спектра комптоновского рассеяния, наверное, была бы корректной, если бы мы раскладывали пик на 40 моделей линий и полином комптона. Но это не решаемая система – при сотне уравнений мы должны определить минимум 124 неизвестных (если в модели пика будем использовать только три параметра: положение, ширина и амплитуда и четыре неизвестных параметра на комптон). Система вырождена.

Надо заметить, что новый метод обработки работает тем лучше, чем лучше разрешение спектрометра. Замечательно он работает для спектрометров с охлаждаемыми ОЧГ детекторами. На рисунке 12 приведена обработка спектра эталонной смеси нуклидов измеренного на спектрометре с охлаждаемым ОЧГ детектором на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном. На рисунке 13 тот же спектр обработан традиционным для ППД спектрометрии методом с поиском пиков.

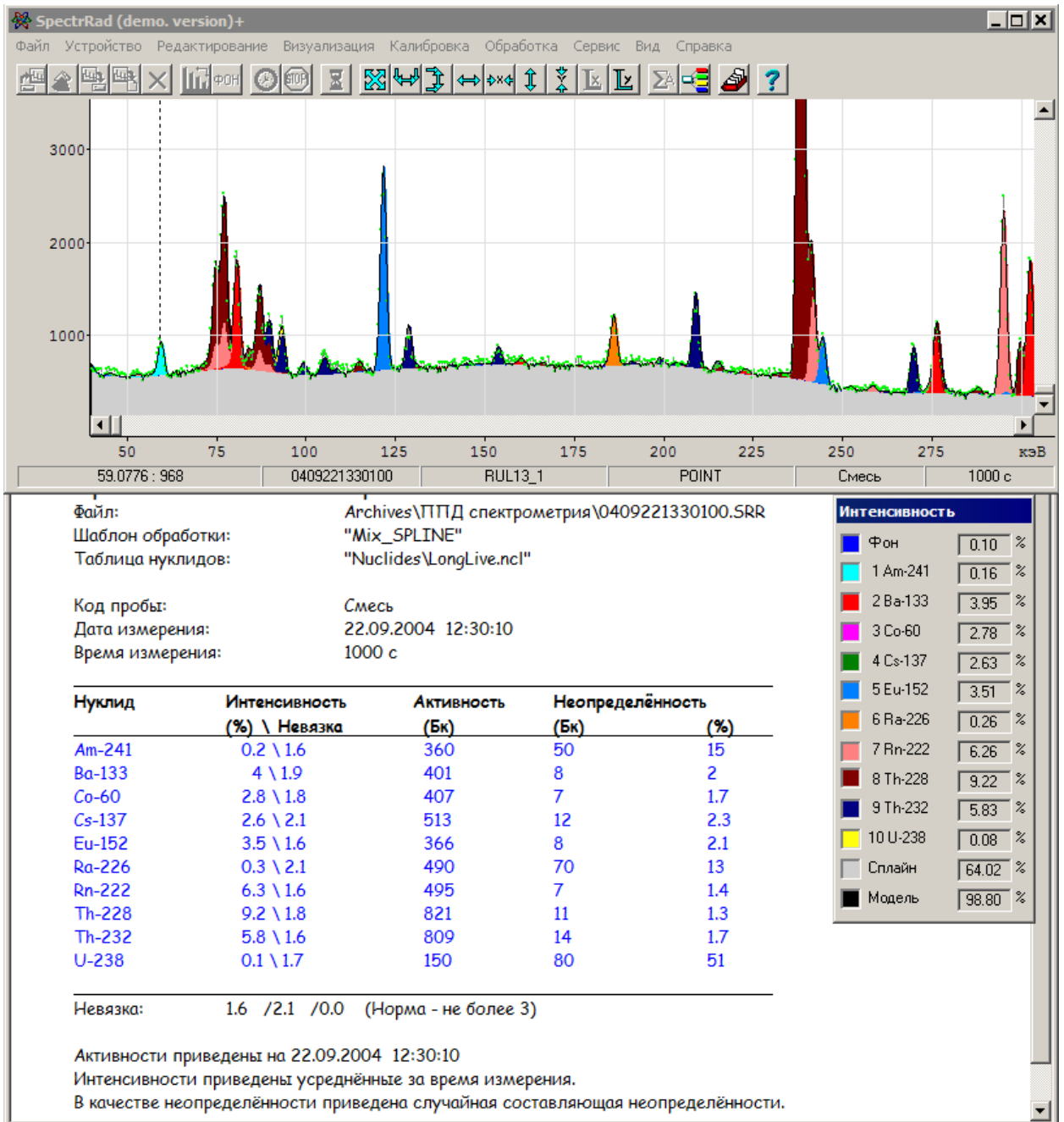


Рис. 12. Разложение спектра пробы измеренного на спектрометре с охлаждаемым ОЧГ детектором на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном.

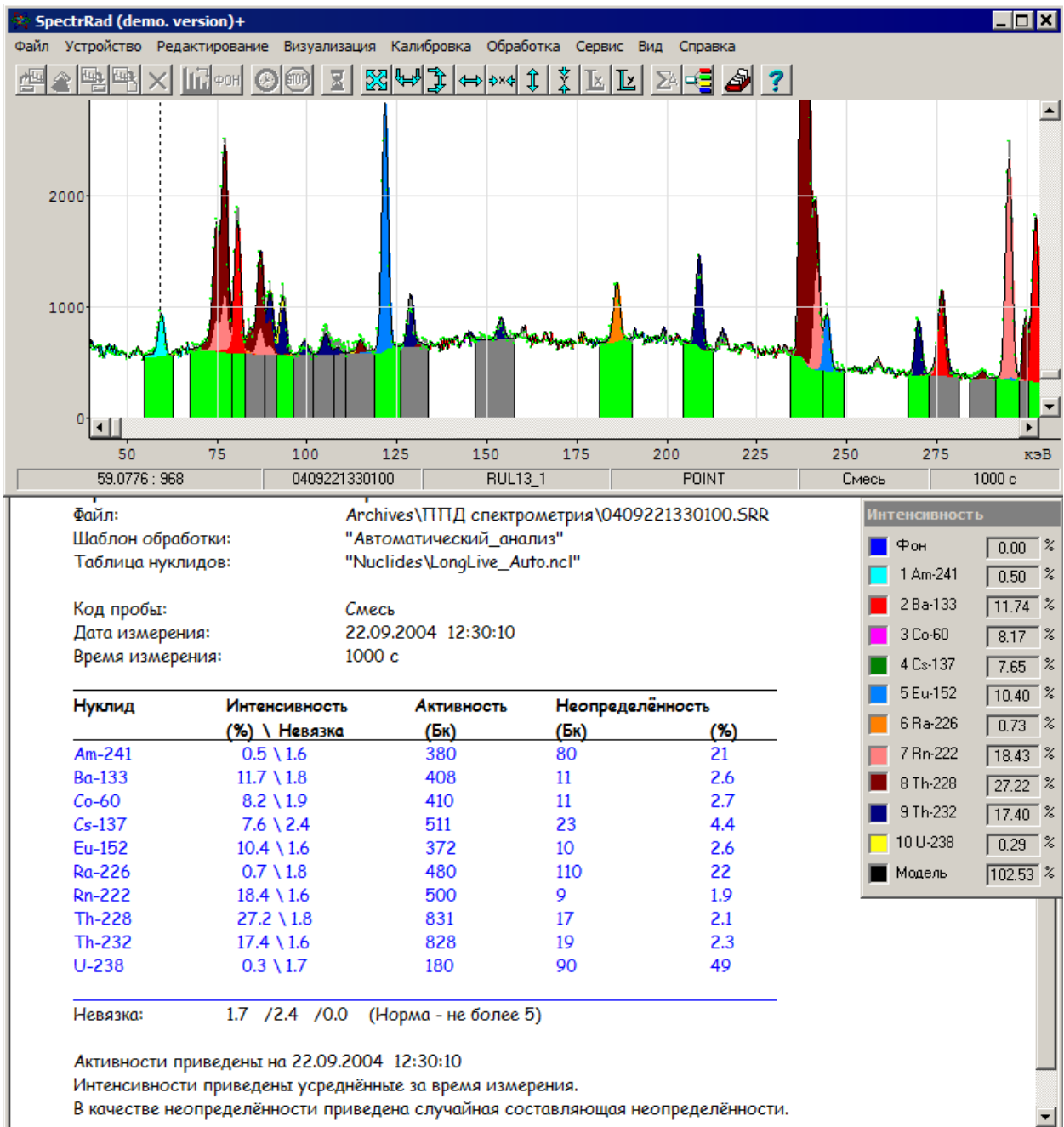


Рис. 13. Разложение спектра пробы измеренного на спектрометре с охлаждаемым ОЧГ детектором стандартным методом с поиском пиков.

Разница в результатах, практически отсутствует. И тот и другой подход использует разложение спектра на спектры пиков. Отличие в том, что при использовании сплайна мы не ищем пики в спектре. Но и традиционный подход с поиском пиков обычно прекрасно работает. Поэтому новый подход к обработке гамма спектров я рекомендую для плохо разрешённых (сцинтиляционных) спектров. Хотя, возможно, при очень сложных спектрах, и в ППД спектрометрии новый подход даст лучшие результаты. У данного подхода есть очевидное преимущество – для построения спектра непрерывного рассеяния под пиками ему не требуется привязка аппроксимирующего сплайна к левой и правой границам области пиков. Для аппроксимации спектра непрерывного рассеяния под пиками интегральной ступенькой – это обязательное условие (в противном случае её нельзя рассчитать), для аппроксимации полиномом – практически обязательное, поскольку в противном случае система будет близка к вырожденной.

На рисунке 14 представлено разложение того же спектра с левой границей обработки равной 76 кэВ, которая попадает в область пиков. Результаты замечательные.

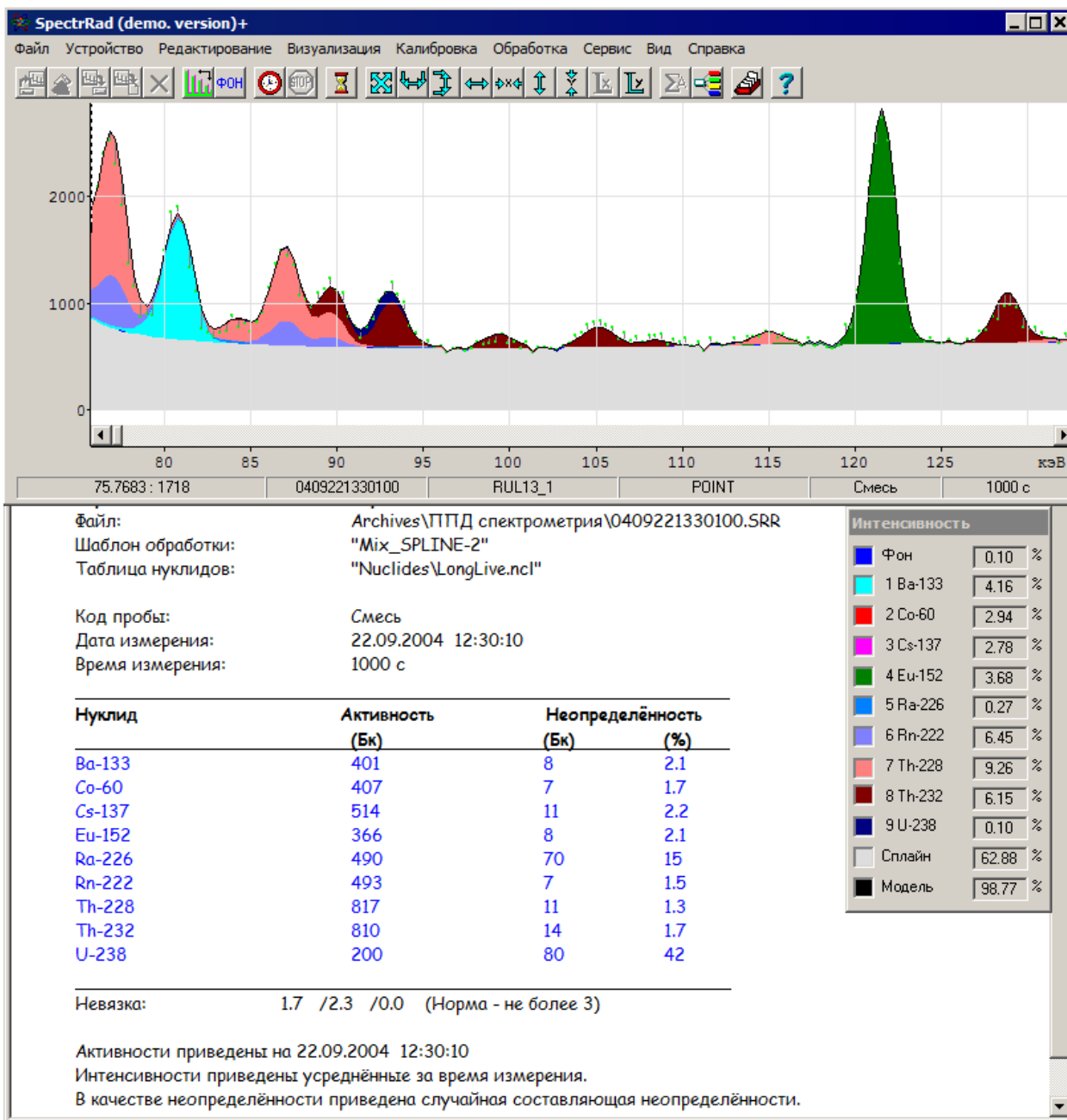


Рис. 14. Разложение спектра пробы измеренного на спектрометре с охлаждаемым ОЧГ детектором на спектры пиков нуклидов с аппроксимацией спектра непрерывного рассеяния сплайном при левой границе интервала обработки в области пиков.

Заключение: Подход прекрасно работает для хорошо разрешённых спектров. Сказывается сильное отличие формы спектра непрерывного рассеяния от формы спектров пиков. И даёт неэффективные оценки для плохо разрешённых (разрешение более 8% по линии 662 кэВ.) спектров. Сказывается включение в систему дополнительных неизвестных – коэффициентов сплайна. Но в случае сложных спектров нередко просто невозможно обеспечить расчёт полных откликов спектрометра, а построение спектра непрерывного рассеяния стандартным методом (с привязкой его к измеренному спектру) просто не работает – спектр пробы является мультиплетом от левой до правой границ области регистрации.

В настоящее время появились сцинтилляционные детекторы с разрешением значительно лучшим, чем разрешение стандартных сцинтилляционных детекторов

NaI(Tl). Для детекторов с хорошим разрешением лучше работает и подход с поиском пиков. На вопрос, какой метод лучше, ответ даст практика. Надо сравнить результаты для спектрометров с различным разрешением детекторов.

Очевидно одно – лучше та программа, в которой реализовано больше методов. Тогда эти методы можно сравнивать.

<https://spectrrad.ru/>

04.10.2023