

Амплитудно-временной анализ в альфа, бета, гамма спектрометрии

Дрёмин Геннадий Иванович, инженер

Учёт процессов распада, накопления нуклидов в процессе исследования пробы позволяет разделять нуклиды со слабо отличающимися (или совсем не различающимися) энергетическими спектрами и получать эффективные оценки активностей нуклидов.

Альфа, бета, гамма спектрометрия, обработка спектров

Метод, который я назвал амплитудно-временным анализом, заключается в том, что две оси в представлении измеренных данных обычного амплитудного анализа спектров: число отсчётов (интенсивность излучения) и энергия импульсов я дополняю осью даты набора спектра. И все набранные спектры обрабатываются в общей системе уравнений. Дополнение системы уравнений данными о процессах распада и накопления (накопления активности дочерних нуклидов в цепочках распада) повышает обусловленность общей системы уравнений и позволяет решать задачи, которые при обычном подходе (обработке только одного спектра) не решаются.

Трудностей в реализации метода немало. Начиная с названия – название метода «амплитудно-временной анализ» встречается нередко в самых разных областях науки и техники и к моему подходу отношения не имеет. Да и принятое название «амплитудный анализ» в нашем случае было бы правильнее называть анализом энергетического распределения регистрируемых квантов излучения. Но термин «амплитудный» уже прижился. Предлагаемый метод корректнее было бы назвать «амплитудно датый» или «амплитудно датный», поскольку третья ось – дата набора спектра, но звучит плохо, да и ненужные ассоциации вызывает. Так что оставим названием – «амплитудно-временной».

Вторая сложность – большие объёмы перерабатываемой информации. В актуальной версии пакета «СпектрРад» в совместную обработку можно включить до сотни спектров, длина спектров не ограничена, но спектры длиннее 32000 каналов пока не встречаются. Но и при 32 000 каналов на спектр получаем 3 200 000 уравнений, а поскольку систему уравнений надо ещё дополнить уравнениями сшивки для сотен сплайнов, десятков тысяч уравнений дополнят систему. Неизвестных активностей может быть до сотни, неизвестных коэффициентов сплайнов до десятков тысяч, да и неизвестных коэффициентов деформации спектров, вследствие энергетического дрейфа, - до 300. В максимальном варианте даже современные компьютеры будут решать эту задачу многие часы. Но, слава богу, сплошь и рядом мы можем ограничиться всего лишь двумя спектрами, измеренными в разное время, да и 2048 каналов для сцинтилляционных спектров – вполне достаточное число. Так что в реальности всё считается за единицы минут и даже секунд.

Третья сложность – не простая в реализации математика. При дополнении системы третьим измерением матрица оператора преобразования превращается в тензор третьего ранга, спектр – в матрицу спектров (в тензорных терминах – тензор второго ранга). И проблем бы не было, если бы не было энергетического дрейфа – добавилась бы свёртка тензоров ещё по одному индексу и только. Но энергетический дрейф всё жутко осложняет – нужно учитывать, что спектры измерены в разное время и их энергетическая калибровка может быть смещена и отличаться от реальной. Кроме того – для расчёта актуальных квантовых выходов нуклидов на определённую дату набора спектра и продолжительность измерения мы должны решать систему неоднородных дифференциальных уравнений, описывающих этот процесс. (используемая математика подробно приведена в описании пакета <https://spectrrad.ru/sites/default/files/spectrrad.pdf>)

Но в итоге всё решено и замечательно работает. Посмотрим на использование этого подхода на примере исследования пробы содержащем неизвестный нуклид на сцинтилляционном гамма спектрометре.

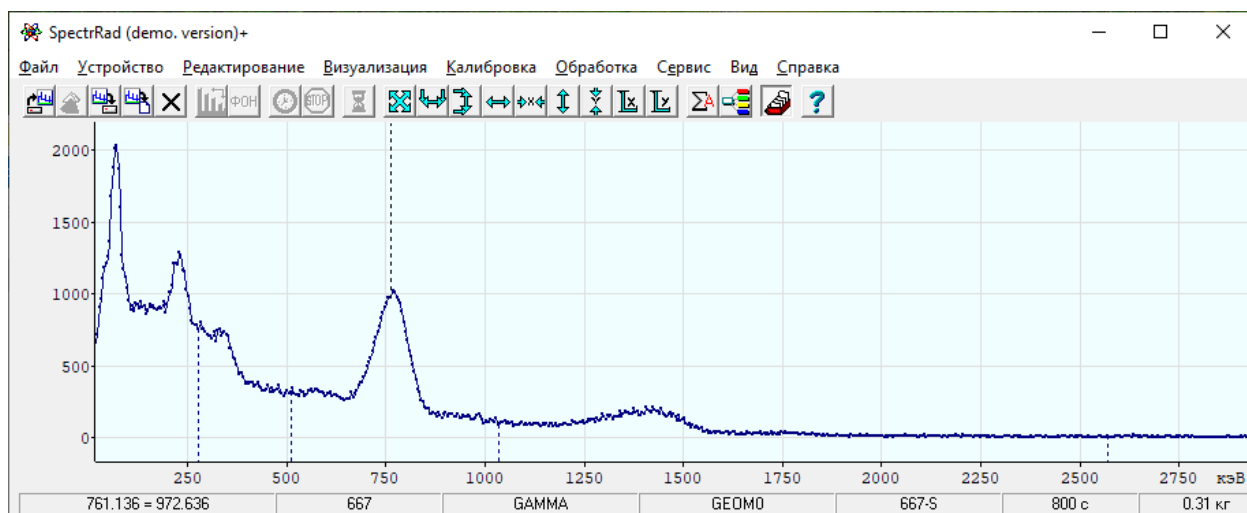


Рис. 1 Спектр пробы 667-S

На рис.1 представлен спектр пробы грунта, загрязнённый неизвестным нуклидом, измеренный на сцинтилляционном гамма спектрометре. Детектор NaI(Tl) 150x150 с колодцем 200 мл. Соответственно, разрешение не ахти - около 10% для указанного пика. Нуклид не известен, поэтому используем библиотеку с достаточно большим количеством нуклидов - Nuclides\ScintSpec.ncl, (171 цепочка нуклидов и одиночных нуклидов, 6619 заметных гамма линий) и процедуру идентификации неизвестного пика «Неизвестный пик spline». Процедура использует сплайн для аппроксимации спектра непрерывного рассеяния, поскольку рассчитать с требуемой точностью полные спектры нуклидов для пробы почвы затруднительно.

Процедура предварительного анализа нуклидного состава предполагает возможным формирование выбранного (достаточно короткого участка спектра, при заданном уровне коэффициента корреляции для отбраковки нуклидов в 50%) 8-ю нуклидами (рис.2):

Выбор дополнительных компонент					
<input checked="" type="button" value="Ввод"/> Отмена Справка					
Компонент	↑ Тест 1 %	Тест 2 %	Тест 3 %	Тест 4 %	Период полура
Nb-95	98.96	100	100	99.95	34.99 дней
Tc-95	98.91	100	100	99.95	20 час.
Eu-152	85.42	100	100	97.61	13.52 лет
Pm-146	84.35	100	100	96.73	5.53 лет
Pm-143	76.18	100	100	95.79	265 дней
Zr-95	75.66	100	100	98.43	64.03 дней
Ra-226	65.9	100	100	93.91	1600 лет
La-138	59.45	100	100	95.85	1.03E11 лет
Tc-95m	47.92	100	100	87.56	61 дней
Co-124	41.65	100	100	82.40	3.06E ---
Всего компонент: 38, можно выбрать: 38, выбрано: 8					

Рис.2 Список подозреваемых нуклидов

Самый высокий коэффициент корреляции спектров нуклидов с измеренным спектром имеют спектры Nb-95 и Tc-95. Посмотрим на эти спектры (рис.3, рис.4):

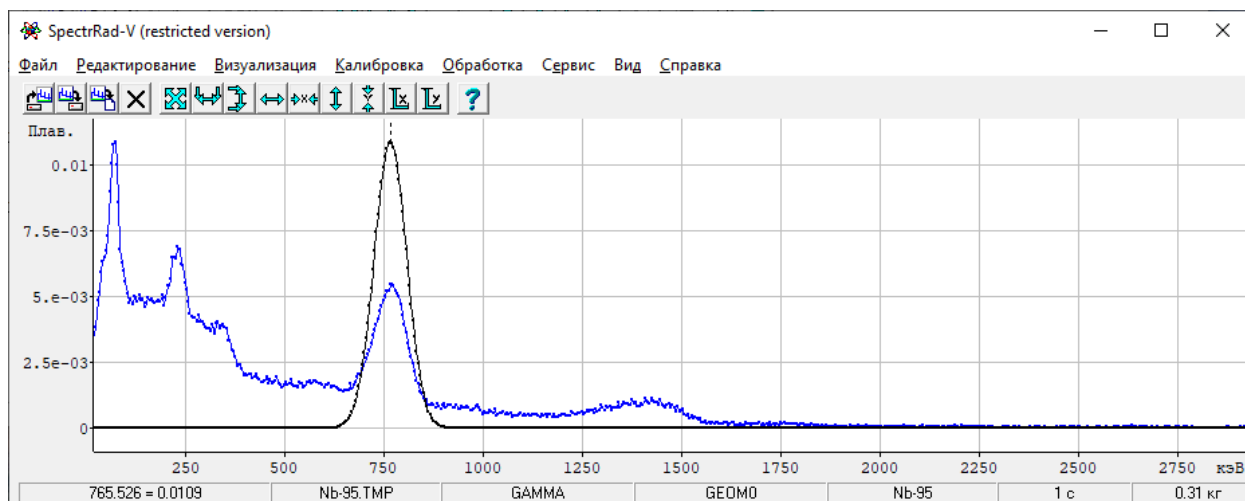


Рис.3 Спектр пробы 667-S и спектр Nb-95

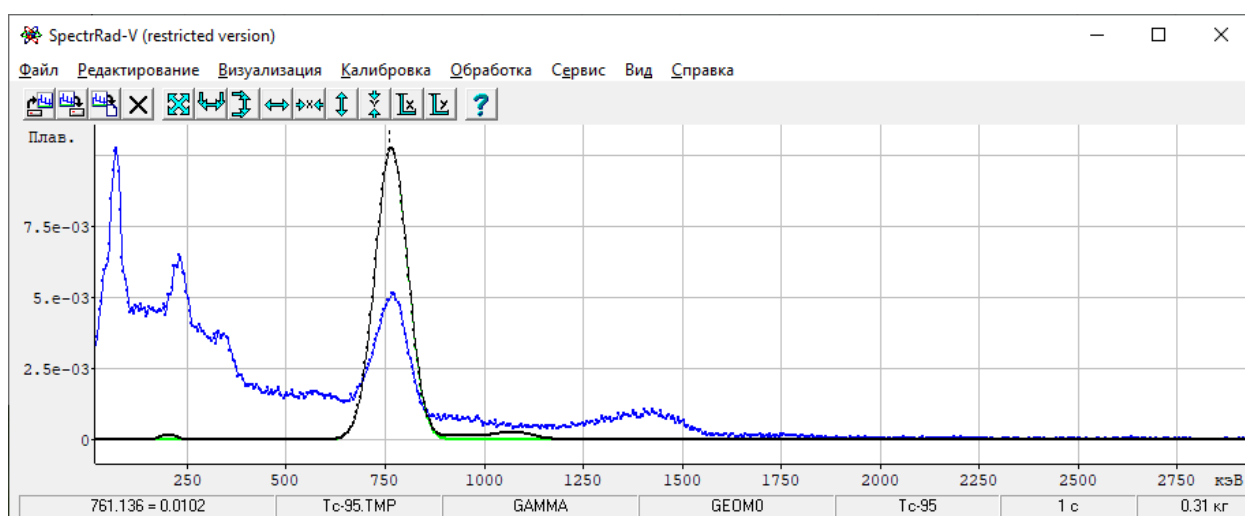


Рис.4 Спектр пробы 667-S, спектры Nb-95 и Tc-95

Спектры Nb-95 и Tc-95 практически не отличаются по форме. В выбранном масштабе на рис. 4 рисунок спектра Tc-95 (чёрный цвет) перекрыл рисунок спектра Nb-95 (зелёный цвет). Nb-95 виден только в области 200 кэВ и 1000 кэВ.

Результат обработки на рис.5:

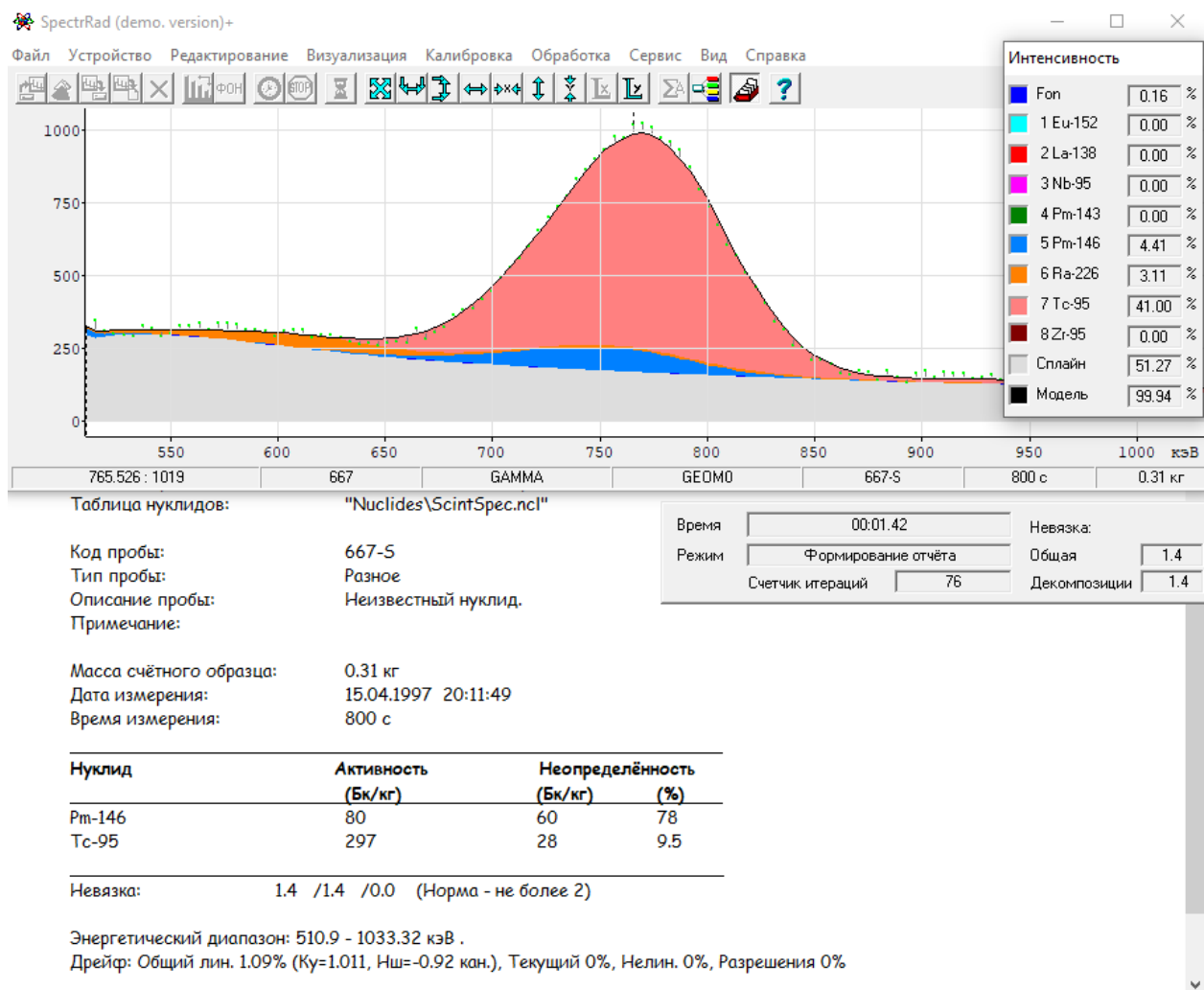


Рис.5 Результаты обработки одного спектра.

Процедура декомпозиции некорректно определила нуклид формирующий спектр. Стандартная процедура обработки удаляет нуклиды с оценками активностей меньше неопределённостей, а поскольку Nb-95 с Tc-95 формируют матрицу близкую к вырожденной, погрешности определения активностей и Nb-95 и Tc-95 превышают 100%. И что удалит программа из системы уравнений – дело случая (может запросить ответ у оператора). Если оставить в системе оба нуклида, результаты нас не удовлетворят – неопределённости оценивания будут очень большими.

Совместная обработка двух спектров (второй спектр в демоверсии создан искусственно с датой измерения на день позже набора первого), приводит к однозначному решению, поскольку Tc-95 распадается значительно быстрее Nb-95.

Процедура декомпозиции в этом случае запускается из архива измерений. Обработываемые записи надо предварительно выделить (рис.6).

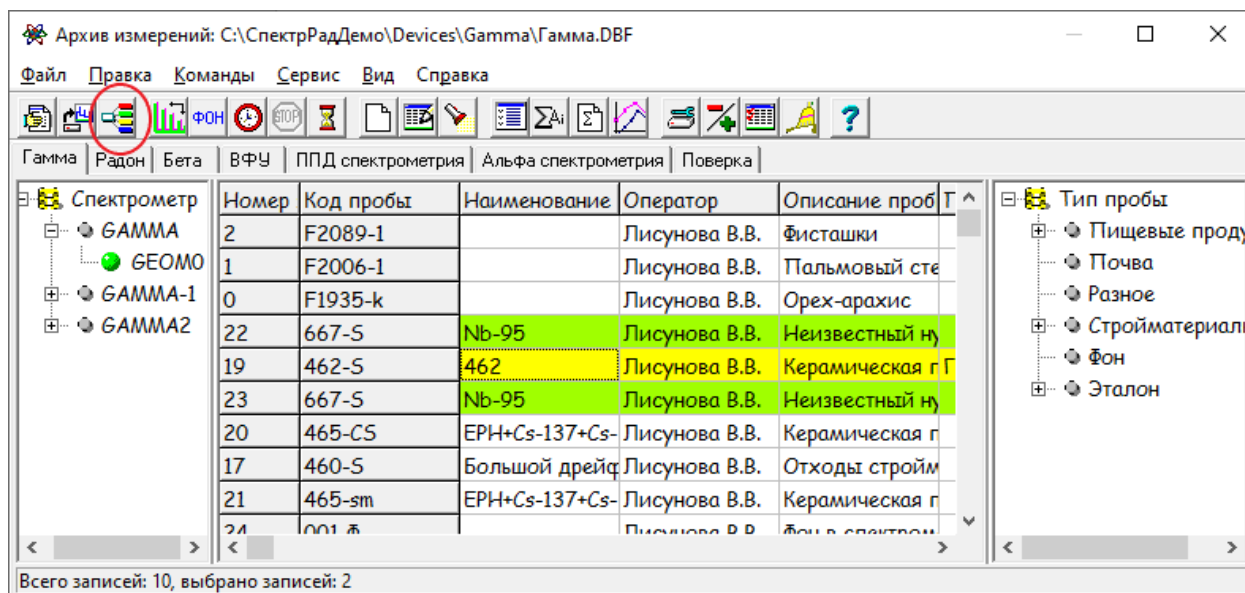


Рис. 6 Запуск процедуры декомпозиции из архива измерений

В появившемся, после запуска процедуры декомпозиции, окошке выбора режима обработки, выбрать режим совместной обработки спектров (рис.7):

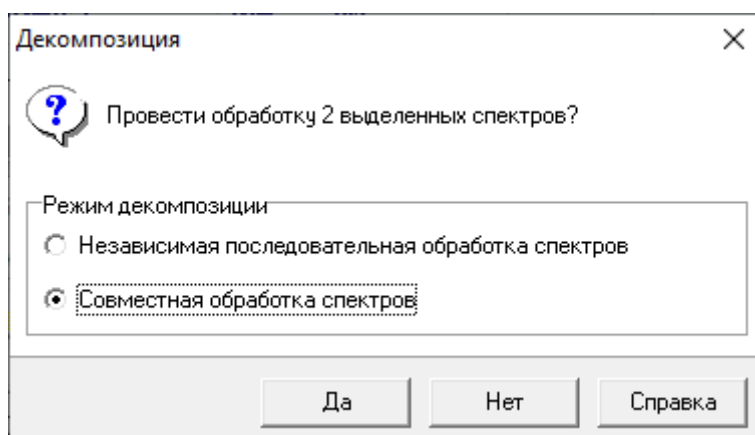


Рис. 7 Выбор режима декомпозиции

В итоге получим результат (рис.8):

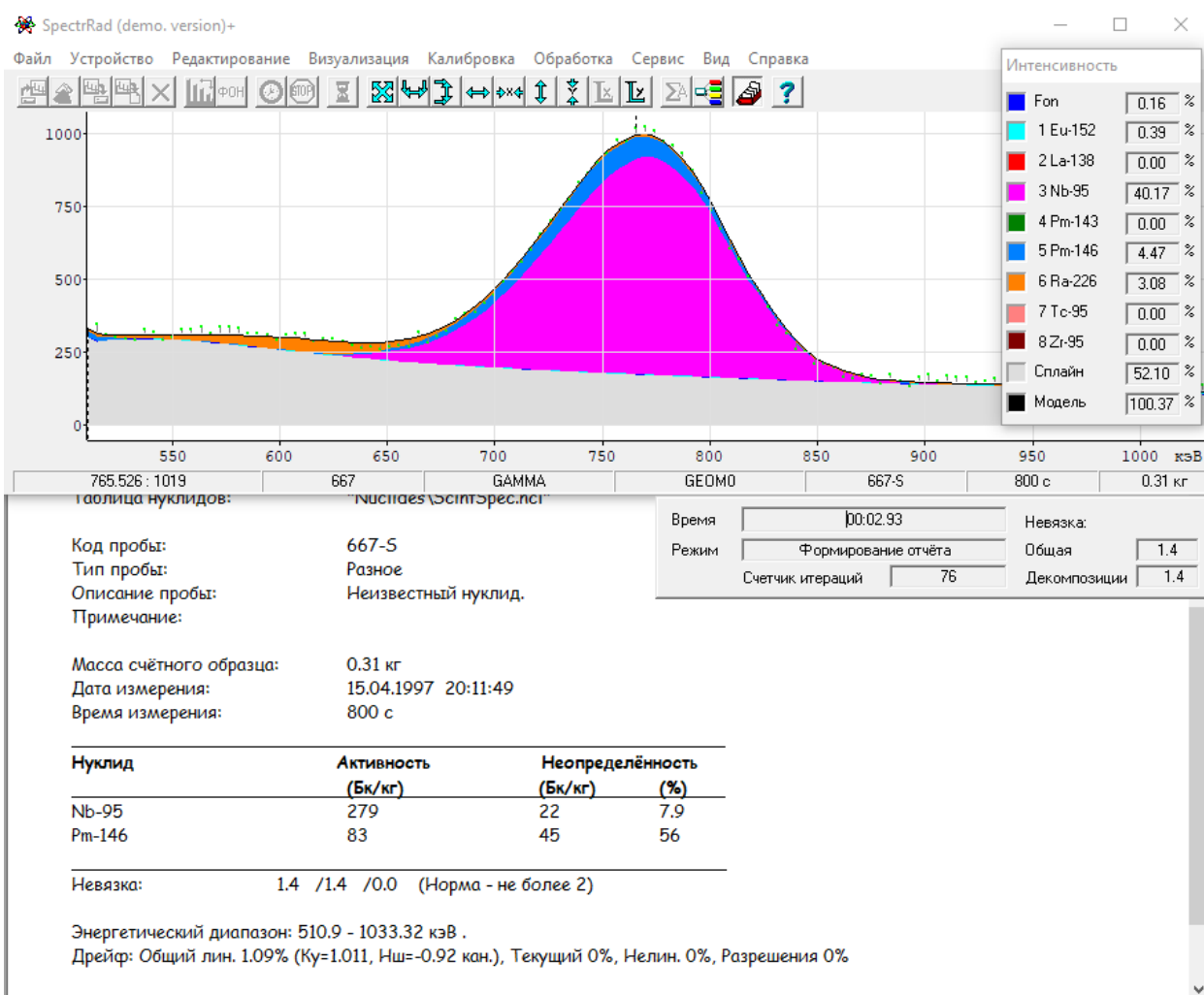


Рис.8 Результаты совместной обработки двух спектров.

Результаты совместной обработки двух спектров значительно корректнее. Но невозможно при обработке сцинтилляционных спектров рассчитывать на идеальный вариант – мы видим в таблице результатов Pm-146, который навряд ли присутствует в пробе. Плохое разрешение сцинтилляторов, энергетический дрейф тракта, погрешности в расчёте спектров нуклидов, всё это может приводить к ошибкам такого рода. Справедливости ради, надо заметить, что активности, оценённые с неопределённостями более 50%, считаются величинами ниже нижнего предела обнаружения. Поэтому результат корректнее представить в виде (рис.9):

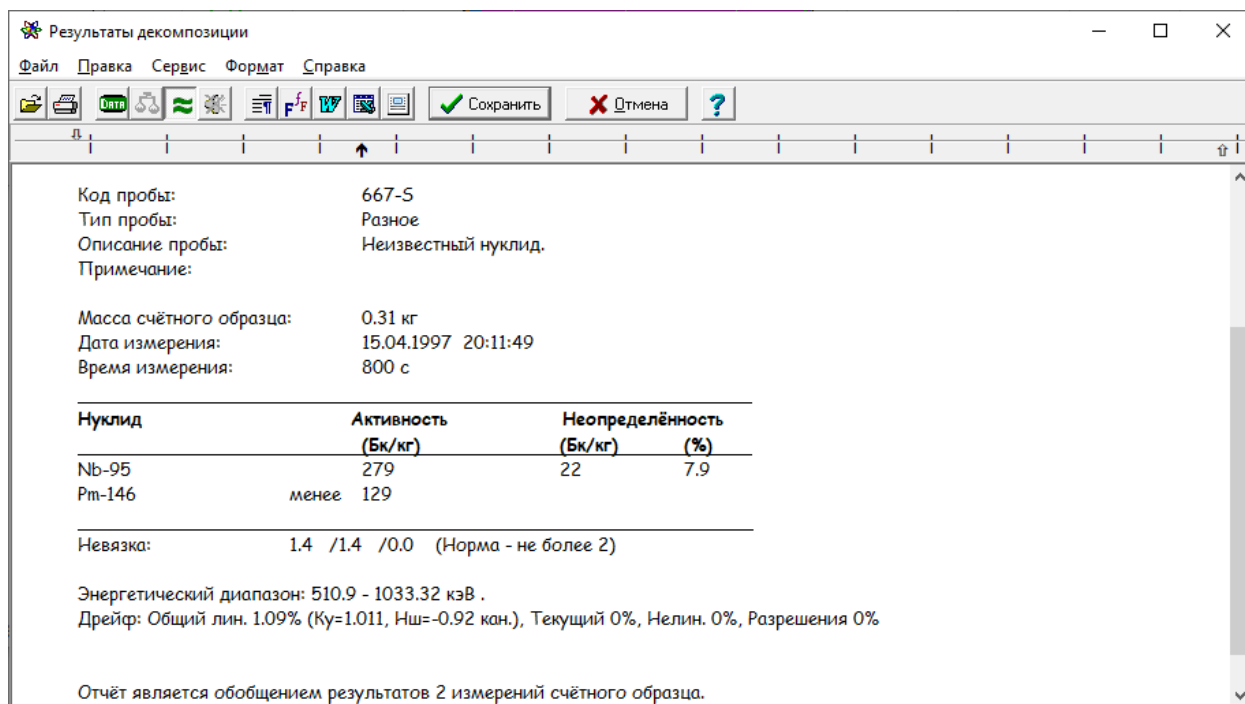


Рис.9 Альтернативная форма представления результатов

В примере амплитудно-временного анализа спектра использованы гамма спектры. Но точно такой же подход можно использовать и для альфа и для бета спектров. Естественно, для альфа и бета спектров сплайн не нужен – используются полные спектры нуклидов (отклики спектрометра на излучение нуклида).

К амплитудно-временному анализу с полным правом можно отнести и обработку одного только спектра, но с учётом априорных данных об активностях нуклидов, полученных при обработке спектра, измеренного в другое время или с априорными данными о соотношении активностей ряда нуклидов, присутствие которых предполагается в пробе, на дату отбора. В этом случае у нас будут две точки на оси времени и так же будут учитываться процессы распада нуклидов.

Учёт априорных данных о начальном соотношении активностей ряда нуклидов на дату отбора используется, если такое соотношение известно. А оно, как правило, известно после химического выделения элемента. Например, активность Ra-226, Ra-228, Ra-224 и их дочерних после химического выделения радия из воды ([задача определения радия в воде](#)). После окончания протяжки воздуха через фильтр - для относительно короткоживущих нуклидов через некоторое время после начала протяжки наступает равновесие между накоплением нуклида на фильтре и распадом нуклида ([активность нуклидов в воздухе](#)).

Учёт результатов измерения пробы в другое время является наиболее слабым подходом в амплитудно-временном анализе, поскольку обработка первого спектра производится без априорных данных и, в случае сложного спектра, результаты обработки могут быть не корректными. А учёт в качестве априорных некорректных данных приведёт к некорректным результатам. Этот подход предназначен, прежде всего, для учёта результатов обработки спектра пробы измеренного на другом спектрометре, позволяющим более точно определять активность ряда нуклидов, которые на используемом спектрометре определяются плохо – например, [гамма-бета спектрометрия](#).

Естественно, при использовании амплитудно-временного подхода к анализу спектров, спектрометрист должен исключить возможность изменения активности нуклидов вследствие каких-либо других процессов, кроме распада нуклидов. Наиболее, наверное, значимым из этих процессов является эманация радиоактивных газов из счётного образца, прежде всего Rn-222. Rn-222 при существенных активностях в счётном образце вылетает

из него значительно быстрее распада. Особенно при открытом относительно тонком слое счётного образца на подложке в бета спектрометрии.

Дополнительные возможности пакета в повышении эффективности оценивания опубликованы на сайте: <https://spectrad.ru/>

11.06.2025