

Минимальная измеряемая активность на гамма-спектрометрах

Г. А. ФЕДОРОВ, О. Н. ЗУБОВА

Рассмотрено и использовано понятие минимальной измеряемой активности, широко применяемое в радиометрии, для сравнения сцинтилляционных и полупроводниковых γ -спектрометров, которые предназначены для определения активности смеси естественных и искусственных радионуклидов в образцах внешней среды, например строительных материалах.

The notion «a minimum measured activity» used wide in radiometry was considered and put into practice for a comparison of the scintillation and semiconductor gamma-spectrometers employing for a determination of the natural and man-made activity in the samples of an environment, for example, in the building materials.

Понятие минимальной измеряемой активности (МИА) широко используется при регистрации ионизирующих излучений и характеризует возможность применения радиометрической аппаратуры для радиэкологического мониторинга объектов внешней среды и дозиметрического контроля [1]. В [2, 3] рассмотрен вариант стандартизованного задания МИА для радиометрических установок (радиометров), реализуемый с 1994 г. при их государственной сертификации (метрологической аттестации) во ВНИИФТРИ и ВНИИМ им. Д. И. Менделеева. Стандартные условия при определении МИА выбраны следующим образом: коэффициент p , приводящий результат к доверительной вероятности $P=0,95$, равен 1,96; относительная доверительная случайная (статистическая) погрешность измерения $\delta=50\%$ (0,5) и время измерения образца и фона $t=1$ ч (3600 с). Для расчета МИА использовали два очевидных соотношения:

$$A = n_x / \varepsilon, \quad (1)$$

$$\delta = p \sqrt{(n_0 + n_\phi) t} / (n_0 - n_\phi), \quad (2)$$

где A — измеряемая активность радионуклида в образце; n_0 и n_ϕ — скорости счета радиометра (спектрометра) при измерении образца и фона соответственно; $n_x = n_0 - n_\phi$; ε — чувствительность (эффективность, групповая чувствительность) установки.

Приняв $n_x = \beta \sqrt{n_\phi / t}$, авторы [2, 3] получили приближенное выражение для $\beta = \beta(p, \delta, n_\phi)$ и, сделав еще одно приближение, вывели формулу для определения МИА при приведенных выше стандартных условиях измерения:

$$A(1,50) = 0,1 \sqrt{n_\phi / \varepsilon}. \quad (3)$$

Удобство и целесообразность такого единого подхода к определению МИА как стандартизованного параметра радиометра (спектрометра) несомненны. При этом можно убедиться, что (3) справедлива для γ -радиометров, сцинтилляционных γ -спектрометров, большинства β -радиометров и других установок.

Однако приведенные в [2, 3] математические выкладки не являются обязательными, так как, с одной стороны, не позволяют получить точную формулу для МИА, а с другой, — при их осуществлении четко не оговорена область применения формулы (3) из-за сделанных приближений.

Точную формулу для расчета МИА можно получить из (1) и (2) решением квадратного уравнения относительно A :

$$A = p(p + \sqrt{p^2 + 8n_\phi t \delta^2}) / (2\varepsilon t \delta^2). \quad (4)$$

При $p=1$ стандартное отклонение S нормального распределения измеряемой величины отождествляется с погрешностью однократного измерения. Вероятность отклонения результата измерения от истинного значения не более чем на одно стандартное отклонение равна 68,2%. Поскольку вероятность 68,2% представляется достаточно низкой, стандартное отклонение умножают на более или менее произвольный множитель, например 2 или 3, соответственно увеличивая вероятность P до 95,4 или 99,8%.

Приняв $p=2$ ($P \approx 95\%$), получим известную формулу для МИА [4]

$$A = 2(1 + \sqrt{1 + 2n_\phi \delta^2 t}) / (\varepsilon t \delta^2). \quad (5)$$

При условии $n_\phi \gg (2t\delta^2)^{-1}$ находим

$$A = 3\sqrt{n_\phi / t} / (\varepsilon \delta). \quad (6)$$

При стандартизованных условиях, приведенных выше, (6) совпадает с (3). Применение этих двух формул для α -радиометров, β -спектрометров и полупроводниковых γ -спектрометров может приводить к занижению МИА. Если в (6) принять $\delta=1$, то получим другую хорошо известную формулу для определения МИА [1] через утроенное стандартное отклонение фоновых отсчетов при погрешности 100% и доверительной вероятности 95%. Недостаток формул (3) и (6) кроме их приближенности состоит в том, что они дают нулевое значение МИА на низкофоновых (бесфоновых) установках, а это противоречит статистической природе возникновения ионизирующих излучений и процесса их регистрации.

Как справедливо отмечено в [2, 3], расчет МИА по одному радионуклиду является идеализированным и применимым для интегральных радиометров. Однако практический интерес представляет расчет МИА для γ -спектрометров, предназначенных для определения активности смеси радионуклидов в образцах окружающей среды, и их сравнение по этому параметру. Например, согласно ГОСТ 30108—94 [5] стационарные γ -спектрометры должны иметь нижний предел удельной измеряемой активности каждого из естественных радионуклидов (ЕРН) ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th не более 50 Бк/кг при $\delta \leq 20\%$ и $P=0,95$.

Для расчета действительных МИА на γ -спектрометрах необходимо выразить аналитически погрешность измерений активностей всех радионуклидов в пробе, причем МИА будут зависеть от состава и активности радионуклидов в конкретной пробе. Получить аналитические выражения для расчета погрешностей удается не всегда. Например, для нахождения активности n нуклидов иногда используют m энергетических окон ($m > n$) и решают переопределенную систему линейных уравнений [6]. Лучшие результаты обеспечивают программы решения обратных задач, позволяющие включить в них априорную информацию о неотрицательности составляющих вектора решения (активностей радионуклидов) [7], например, модифицированный метод наименьших квадратов [8], метод статистической регуляризации [9] и др. Для оценки случайной погрешности разыгрывают на ЭВМ несколько (обычно 10) генераций чисел со случайными импульсами в выбранных энергетических окнах, принятая экспериментальный спектр за среднее значение в распределении Пуассона и (или) Гаусса [8]. Тогда случайная погрешность определяется обычными методами математической статистики, а результаты измерений и расчетов можно использовать для оценки МИА.

Значительная часть эксплуатируемых в настоящее время γ -спектрометров метрологически аттестована для измерения в пробах активности четырех-пяти радионуклидов, на-

пример, активности ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th в Межвузовской учебно-научно-производственной лаборатории радиационного контроля «МУНП ЛРК-1 Саратов» Саратовского государственного университета и Саратовского государственного медицинского университета и активности тех же радионуклидов и ^{134}Cs в лаборатории «ЛРК-1 МИФИ» Московского государственного инженерно-физического института (обе лаборатории имеют аттестаты аккредитации Госстандарта России). В этих лабораториях при обработке результатов измерений предусмотрено в частности выделение n энергетических диапазонов в спектре, равное числу исследуемых радионуклидов в пробе. Такой подход позволяет получить аналитические выражения для случайной и систематической погрешностей измерений для каждого радионуклида и обрабатывать результаты измерений без использования ЭВМ. Формулы соответственно для доверительных границ случайной и систематической погрешностей результатов однократного измерения имеют в этом случае вид

$${}^{0,95}\sigma(\tilde{A}_i) = (2/\varepsilon_{ii}) \sqrt{[(n_i + 2n_{\phi i})/t + \sum_{j=i+1}^n \varepsilon_{ij}^2 D(A_j)]} \quad (7)$$

$$\theta(\tilde{A}_i) = (k/\varepsilon_{ii}) \sqrt{\sum_{j=i}^n (\delta_j A_j \varepsilon_{ij})^2}, \quad (8)$$

где $i, j = 1, 2, \dots, n$; A_j — активность j -го радионуклида; n_i и $n_{\phi i}$ — скорости счета образца и фона соответственно в i -м окне регистрации; ε_{ij} — групповая чувствительность спектрометра для i -го окна от j -го радионуклида; D — символ дисперсии; $k = 1,1$ при доверительной вероятности 0,95; δ_j — систематическая погрешность определения активности калибровочного источника или расчетного значения ε_{ij} ; t — время измерения образца и фона.

Формулы (7) и (8) справедливы, если $\varepsilon_{ij} (i > j) = 0$, причем с ростом i увеличиваются граничные значения энергии окон. В данной работе исследовали параметры спектрометров, ориентированных на определение в пробах активности ^{137}Cs и ЕРН. Будем полагать что $i = 1$ соответствует диапазон энергий для нахождения активности ^{137}Cs 0,54—0,78 МэВ; $i = 2$ — активности ^{40}K 1,30—1,65 МэВ; $i = 3$ — активности ^{226}Ra 1,65—2,0 МэВ и $i = 4$ — активности ^{232}Th 2,4—2,85 МэВ. Значения энергетических диапазонов приведены для сцинтилляционных спектрометров. Для полупроводникового спектрометра энергетические диапазоны соответствовали областям фотоликов. При расчете погрешности вклада излучения ^{226}Ra в энергетический диапазон ^{232}Th можно пренебречь.

Насыпные калибровочные источники типа СИГИ-С, представляемые ВНИИФТРИ, имеют следующие погрешности активности (по свидетельствам): $\delta(^{137}\text{Cs}) = 6\%$, $\delta(^{40}\text{K}) = 7\%$, $\delta(^{226}\text{Ra}) = \delta(^{232}\text{Th}) = 10\%$. Погрешность расчетных значений ε_{ij} составляет примерно 15% [10]. Погрешности, обусловленные самопоглощением излучения в образцах и нестабильностью спектрометрического тракта, можно сделать достаточно малыми и в (8) их не учитывать.

Единой методики суммирования случайных и неслучайных систематических погрешностей результата измерений не существует [11—16]. В [16] описана методика определения доверительных границ погрешности результата измерения по формуле

$$\Delta(\tilde{A}) = K_{0,95} [{}^{0,95}\sigma(\tilde{A}) + \theta(\tilde{A})], \quad (9)$$

где $\theta(\tilde{A})$ — доверительная граница неслучайной систематической погрешности результата измерения, имеющая вид

Минимальная измеряемая активность одного радионуклида и смеси радионуклидов, Бк/л, и доверительные границы неслучайной систематической погрешности результатов измерения при экспериментальной и расчетной калибровках, Бк/л, на спектрометрах при $t_{изм} = t_{\phi} = 1$ ч и $\delta = 50\%$ при доверительной вероятности 0,95

Номер спектрометра	Детектор	Характеристики	Значения МИА $\pm \theta(\tilde{A})$ для радионуклидов с энергией, МэВ			
			^{137}Cs ; 0,662	^{40}K ; 1,461	^{226}Ra ; 1,765	^{232}Th ; 2,615
1	ДГДК-50	МИА $\pm \theta(\tilde{A})$	5; 12	72; 80	47; 48	25; 25
2	NaI(Tl); $\varnothing 70 \times 50$ мм	МИА $\pm \theta(\tilde{A})$	1; 2 8; 20	39; 83 63; 95	6; 8,5 13; 18	5,5; 8 10; 10
3	NaI(Tl); $\varnothing 140 \times 100$ мм	МИА $\pm \theta(\tilde{A})$	7; 11 2; 7 5; 10	46; 91 17; 31 44; 88	7; 11 4; 6 6; 9,5	5,5; 8 4; 4 5,5; 8

(8); ${}^{0,95}\sigma(\tilde{A}) = 2S(\tilde{A})$ — доверительная граница случайной погрешности результата однократного измерения, отвечающая доверительной вероятности 0,95; $S(\tilde{A})$ — среднее квадратическое отклонение результата однократного измерения. В приведенных выше формулах (5) и (6) $\delta = {}^{0,95}\sigma(\tilde{A})/(\tilde{A})$.

Если $\theta(\tilde{A})/S(\tilde{A}) < 0,8$, то неисключенными систематическими погрешностями пренебрегают; если $\theta(\tilde{A})/S(\tilde{A}) > 8$, то случайными погрешностями пренебрегают; если $0,8 < \theta(\tilde{A})/S(\tilde{A}) < 8$, то доверительную границу погрешности результатов измерений вычисляют по (9). Коэффициенты $K_{0,95}$ зависят от отношения $\theta(\tilde{A})/S(\tilde{A})$ и находятся в пределах 0,71—0,81.

Формулы (5)—(9) позволили рассчитать погрешности измерений и МИА на γ -спектрометрах. При расчетах МИА не принято учитывать вклад $\theta(\tilde{A})$ в погрешность измерений. Однако при анализе смесей радионуклидов $\theta(\tilde{A})$ влияет на МИА. Поэтому в таблице наряду с результатами расчетов МИА с учетом только случайной погрешности указаны доверительные границы неслучайной систематической погрешности результата измерения $\theta(\tilde{A})$ для приведенной ниже смеси ЕРН в образце.

Расчеты выполнены для четырех спектрометров, функционирующих в упомянутых выше лабораториях радиационного контроля. В таблице указаны тип и размеры детекторов (диаметр и высота). Защита спектрометров 1—4 соответственно выполнена из: 1 — свинца, 10 см; 2 — свинца, 5 см; 3 — свинца, 7,5 см и чугуна, 15 см; 4 — чугуна, 20 см и свинца, 3 см. Объем измеряемых проб составляет 1 л, геометрия измерений на спектрометрах: 1 и 2 — сосуды Маринелли, 3 — сосуд в виде диска, 4 — сосуд Маринелли с частичным охватом боковой поверхности кристалла. В таблице для каждого спектрометра приведены два значения МИА, первое рассчитано по (5) для одного радионуклида в образце при определении числа подсчитанных импульсов в указанных выше окнах регистрации и второе — для образца, содержащего 50 Бк/л ^{226}Ra , 50 Бк/л ^{232}Th и 500 Бк/л ^{40}K . Очевидно, что на МИА конкретного нуклида не влияет его собственная активность и при выбранном методе обработки результатов измерений активности других нуклидов в образце, имеющих более низкую энергию γ -излучения. Значения $\theta(\tilde{A})$ для каждого спектрометра рассчитаны с учетом систематических погрешностей определения активности калибровочных источников (первые числа в таблице) и погрешностей расчетных значений групповых чувствительностей, принятых равными 15% (вторые числа в таблице). Результаты вычислений для спектрометра 4 с кристаллом NaI(Tl) размером $\varnothing 120 \times 120$ мм практически совпадают с полученными для спектрометра 3 и в таблице не приведены.

Были рассчитаны также параметры спектрометра с ППД для γ -линий 0,609 МэВ (^{226}Ra) и 0,583 МэВ (^{232}Th); МИА ^{226}Ra для одного нуклида в пробе равна 11 Бк/л, а для смеси нуклидов — 21 Бк/л; аналогичные результаты для ^{232}Th равны 17 и 45 Бк/л. Доверительные границы неслучайных систематических погрешностей, аналогичные приведенным в таблице, для ^{226}Ra и ^{232}Th соответственно равны ± 6 и ± 9 Бк/л и $\pm 5,5$ и ± 8 Бк/л. Эти значения МИА и $\theta(\tilde{A})$, в отличие от приведенных в таблице, возрастут при наличии в образце ^{137}Cs .

Следует отметить, что в области энергий фотонов, равных или меньших энергии γ -излучения ^{40}K , на МИА при использовании сцинтилляционных спектрометров существенно влияет радиационная чистота ФЭУ и упаковки кристалла. В спектрометрах 3 и 4 использованы ФЭУ-49 и кристаллы с

кварцевыми окнами. Недостаточная радиационная чистота кристалла или (и) толщина защиты обусловили завышение фона, и, следовательно, МИА ^{137}Cs и ^{40}K на спектрометре 2. На спектрометре [17] с радиационно чистым кристаллом, аналогичным примененному в спектрометре 2, при толщине защиты 20 см из чугуна МИА ^{137}Cs составляла 3 Бк/л и МИА ^{40}K — менее 50 Бк/л (без использования техники антисовпадений, которая позволяет еще уменьшить МИА). Применение формулы (3) вместо (5) занижит МИА на ППД по сравнению с действительными, приведенными в таблице. Отношения МИА ^{40}K , ^{137}Cs , ^{226}Ra и ^{232}Th , рассчитанные по (5) и (3), соответственно составят 1,2; 1,3; 1,5 и 1,9. При использовании сцинтилляционных детекторов МИА, рассчитанные по (3) и (5), практически совпадают.

Минимальная измеряемая активность также зависит от метода обработки результатов измерений: выбранного числа энергетических окон, программы решения обратной задачи и способа определения числа сосчитанных импульсов в области фотопиков.

Полученные результаты и опыт работы [18—20] позволяют сделать следующие выводы:

1. Для расчета МИА предпочтительнее пользоваться формулами (4) и (5). Для многих практических случаев можно применять формулы (3) и (6) при проверке условия их выполнимости. Это же условие необходимо проверять при переходе от значений A (1,50), рассчитанных по (3), к другим значениям A (t , δ) или вычисления времени измерений t по формулам, приведенным в [2, 3].

2. Сцинтилляционные γ -спектрометры, особенно с большими радиационно чистыми детекторами, предпочтительнее полупроводниковых для анализа ЕРН и ^{137}Cs в образцах внешней среды.

3. Расчетные методы определения эффективности регистрации могут быть приемлемы для полупроводниковых спектрометров. Для сцинтилляционных спектрометров предпочтительнее калибровка по образцовым объемным источникам, причем погрешность определения активности ^{226}Ra и ^{232}Th в последних целесообразно снизить до 5—7%.

4. При использовании сцинтилляционных γ -спектрометров необходимо соблюдать идентичность условий измерения (герметизация контейнеров и их необходимая выдержка) при анализе образцов на содержание ЕРН и ^{137}Cs . При невыполнении этих условий в радиационно чистых (за исключением наличия ЕРН) образцах после обработки результатов измерений «обнаруживается» ^{137}Cs , которого в действительности нет.

5. Рекомендуемая стандартом [5] МИА ^{40}K на стационарных γ -спектрометрах представляется заниженной, а МИА ^{226}Ra и ^{232}Th — завышенной. Учитывая разные выходы γ -квантов на распад у этих радионуклидов, различную радиационную опасность и активность в большинстве образцов внешней среды (стройматериалах), правильнее рекомендовать МИА ^{226}Ra и ^{232}Th не более 25 Бк/л и ^{40}K не более 100 Бк/л на этих спектрометрах.

Авторы благодарят В. С. Трошина и его сотрудников за предоставление экспериментальных параметров (групповые чувствительности, фон) полупроводникового спектрометра.

1. Радиоактивность. Сер. техн. докл. № 47. — Вена: МАГАТЭ, 1965. — С. 62.
2. Григорьев Е. И. и др. // Науч.-информ. бюл. ГП ВНИИФТРИ «АНРИ». — 1994. — Вып. 3. — С. 10.
3. Григорьев Е. И. и др. // Измерительная техника. — 1994. — № 12. — С. 52.
4. Методические указания. ГСИ. Радиометрические измерения радиоактивных препаратов: Сб. важнейших официальных материалов по санитарии и противозидемическим вопросам. — М., 1993. — Т. VI. — Ч. 3. — С. 51.
5. ГОСТ 30108—94. Межгосударственный стандарт. Материалы и изделия строительные. Определение удельной эффективной активности естественных радионуклидов.
6. Zvantsev A. A., Mogilenets N. N., Troshin V. S. // Proc. Intern. Symp. on Radiation Safety (ISRS-94), Moscow 5—9 Sept. 1994. — P. 165.
7. Константинов И. Е. и др. Восстановление количественного распределения гамма-нуклидов по глубине фантома из анализа спектра выходящего излучения / ИПМ АН СССР. — М., 1973. — Препринт № 54.
8. Parg R. M., Dudley R. A., Fedorov G. A. // Assessment of radioactive contamination in man. — Vienna: IAEA, 1972. — P. 215.
9. Турчин В. Ф., Туровцева Л. С. // Докл. АН СССР. — 1973. — Т. 212. — № 3. — С. 561.
10. Друязгин А. В. и др. // Науч.-информ. бюл. ГП ВНИИФТРИ «АНРИ». — 1994. — Вып. 3. — С. 12.
11. Методы обработки результатов наблюдений при измерениях / Тр. метролог. ин-тов СССР. — 1975. — Вып. 172 (232).
12. Методы обработки результатов наблюдений при измерениях / Тр. метролог. ин-тов СССР. — 1979. — Вып. 242 (302).
13. Исследования в области оценивания погрешностей измерений / Под ред. Ю. В. Тарбеева, Т. Н. Сирой. — Л.: Энергоатомиздат, 1986.
14. ГОСТ 8.011—72. ГСИ. Показатели точности измерений и формы представления результатов измерений.
15. ГОСТ 8.207—76. ГСИ. Прямые измерения с многократными наблюдениями. Методы обработки результатов наблюдений.
16. МИ 1552—86. ГСИ. Измерения прямые однократные. Оценка погрешностей результатов измерений.
17. Константинов И. Е., Федоров Г. А. // ПТЭ. — 1968. — № 1. — С. 36.
18. Федоров Г. А. Методы анализа и результаты исследований уровней загрязнения внешней среды продуктами ядерных испытаний на территории Советского Союза в 1962—1966 гг.: Автореф. дис. на соиск. учен. степ. канд. техн. наук. — М., 1968.
19. Dmitriev A. M. e. a. // Proc. Intern. Symp. on Radiation Safety (ISRS-94), Moscow 5—9 Sept. 1994. — P. 265.
20. Федоров Г. А., Зубова О. Н. // Тез. докл. Междунар. науч.-практ. конф. «Радиационная безопасность и защита населения». — Екатеринбург, 1995.