

Метод обработки спектра при измерении детектором NaI(Tl) малых уровней удельной активности ^{137}Cs в присутствии природных радионуклидов

В.С. Репин, К.А. Седнев

Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева, Федеральная служба по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

При измерении малых уровней содержания ^{137}Cs в пробах почвы на спектрометрах с детектором NaI(Tl) идентификация пика ^{137m}Ba (662 кэВ гамма-линия этого дочернего радионуклида) затрудняется за счет влияния природных радионуклидов, пики которых попадают в область регистрации ^{137m}Ba . Для идентификации и оценки площади под пиком ^{137m}Ba необходимо знать вклад в данную область фоновой составляющей и отдельный вклад каждого природного радионуклида. При использовании данного подхода точность оценки площади фотопика ^{137m}Ba зависит от точности, с которой будут определены уровни природных радионуклидов. В статье предложен метод обработки спектра, основанный на учете индивидуальных параметров спектрометра и более точном определении удельных активностей природных радионуклидов. Метод включает моделирование участков спектра каждого природного радионуклида в области пика ^{137m}Ba и вычитание моделируемых участков и фонового спектра из суммарного спектра под пиком ^{137m}Ba . Использование данного подхода позволяет измерять с детектором NaI(Tl) размером 63×63 удельные активности ^{137}Cs в геометрии Маринелли объемом 1 л на уровне 0,7–1 Бк/кг с неопределенностью 30–50% при времени измерений 6 ч.

Ключевые слова: гамма-спектрометрия, декомпозиция спектра, цезий-137, природные радионуклиды, градуировка спектрометра.

Введение

Задача измерения малых уровней содержания ^{137}Cs в объектах окружающей среды возникает при изучении радиологических характеристик территорий, не подвергшихся аварийному радиоактивному загрязнению, но содержащих данный радионуклид за счет глобальных выпадений при испытаниях ядерного оружия в атмосфере. Такого рода задача возникает, например, при определении наличия дополнительного радиоактивного загрязнения ^{137}Cs вблизи мест проведения мирных ядерных взрывов [1, 2]. В последнем случае необходимо сравнивать уровни данного радионуклида в пробах, полученных на контрольной и исследуемой территории. Методы гамма-спектрометрии с использованием детекторов на основе NaI(Tl) нашли широкое применение при измерении радионуклидов в пробах окружающей среды в силу высокой эффективности регистрации гамма-излучений и низкой стоимости, однако детекторы данного типа обладают низким энергетическим разрешением, приводящим к необходимости привлекать методы математической обработки спектров [3–6]. Развитие и совершенствование

методов обработки спектров, полученных с детекторами NaI(Tl), продолжается до настоящего времени, несмотря на появление ППД-спектрометров [7–16], а практическая реализация методов обработки воплощается в коммерческих компьютерных программах [3–6]. Типовой задачей в области гамма-спектрометрии на основе NaI(Tl) является декомпозиция гамма-спектра с целью количественного определения содержания радионуклидов в пробе. Упрощенный вариант этой задачи – определение активности отдельных радионуклидов для заведомо известного радионуклидного состава, в частности, для проб почвы – определение содержания природных радионуклидов и ^{137}Cs .

Существуют различные алгоритмы декомпозиции гамма-спектров [8, 10, 11, 12, 14]. Оконный метод, несмотря на простоту, дает большие погрешности оценок даже при сравнительно длительных измерениях, поскольку к ошибке статистики набора числа импульсов под фотопиками полного поглощения добавляется ошибка, связанная с учетом взаимных вкладов: ^{232}Th в окна ^{40}K и ^{226}Ra , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K в окно ^{137}Cs . Более надежные оценки

Репин Виктор Степанович

Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева.

Адрес для переписки: 197101, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: v.repin@mail.ru

дает анализ полного спектра [14], однако при малых уровнях содержания ^{137}Cs в пробе данный метод не позволяет с приемлемой точностью оценивать его активность.

Цель исследования – разработка методики обработки спектра, полученного с детектором NaI(Tl), позволяющей дать более точную оценку малых уровней ^{137}Cs в пробах почвы с использованием метода анализа всего спектра.

Материалы и методы

Для разработки алгоритма проведена серия градуировочных измерений ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K с известной удельной активностью (УА). Счетные образцы данных радионуклидов готовили на основе кварцевого песка и помещали в сосуды «Маринелли», используемые в качестве одной из стандартных емкостей для измерения проб. Счетные образцы ^{226}Ra и ^{232}Th герметично закрывали и выдерживали 2 недели с целью предотвращения выхода радона и торона и обеспечения равновесия дочерних радионуклидов. Измерения спектров выполнены на спектрометре с детектором NaI(Tl) размером 63×63 мм, помещенном в свинцовую защиту. Измерение спектра фонового образца кварцевого песка длилось 24 ч с целью получения более гладкой формы всех участков спектра, используемых для декомпозиции спектров природных радионуклидов. Измерения счетных образцов ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K длилось 6 ч, что также обеспечивало более высокую гладкость спектров. Измерения градуировочных образцов ^{137}Cs выполняли для определения эффективности регистрации данного радионуклида по пику полного поглощения, то есть коэффициента связи между активностью данного радионуклида и скоростью счета импульсов в окне под пиком ^{137m}Ba . Интенсивность счета в каналах спектров приводили к имп/с на 1 Бк активности градуировочного образца. Используемые для последующего применения градуировочные спектры ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K были получены путем вычитания из аппаратурных спектров экспериментально определенного спектра фона.

Выполненные измерения позволили создать библиотеку спектров, необходимых для дальнейшего их применения при измерении проб почвы на данном детекторе. Полученные спектры адекватны спектрометрическим характеристикам конкретного детектора и фоновым характеристикам помещения, в котором расположен спектрометр (рис. 1).

Алгоритм обработки спектров проб почвы, полученных при измерении на данном детекторе, включает следующие шаги:

- выделение участка спектра, обусловленного только природными радионуклидами, содержащимися в пробе, и фоновой составляющей;

- подбор методом наименьших квадратов весовых коэффициентов к библиотечным спектрам ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , при которых наблюдается минимальное расхождение между исходным спектром и суммарным спектром, полученным на основе расчета весовых коэффициентов;

- на основе полученных весовых коэффициентов производится теоретический расчет участков спектров ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K под пиком ^{137m}Ba и расчет площади пьедестала, формируемого фоном и природными радионуклидами.

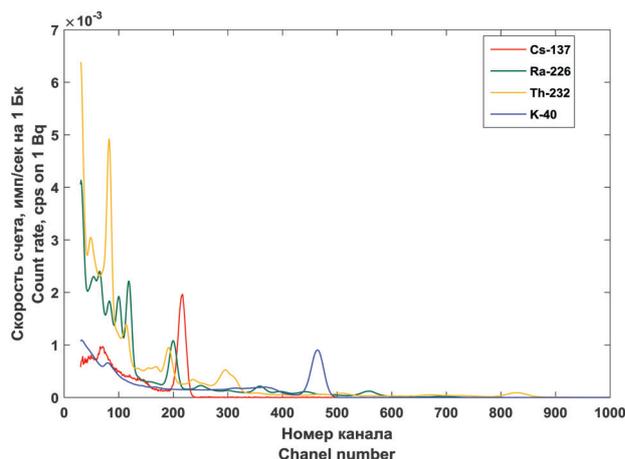


Рис. 1. Форма библиотечных спектров ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , полученных на спектрометре с кристаллом NaI(Tl) 63×63 мм [Fig. 1. The shape of the library spectra of ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K with activity of 1 Bq measured on the spectrometer with a 63×63 mm NaI(Tl) crystal]

Расчет площади пика ^{137m}Ba и оценка активности и УА ^{137}Cs сводятся на заключительном этапе расчета к вычислению разницы площадей фактического и расчетного спектра.

Расчет весовых коэффициентов природных радионуклидов с минимизацией методом наименьших квадратов разности между расчетным суммарным спектром и фактическим спектром выполнялся средствами Matlab R2020 посредством функции «fminsearch».

Пояснения и графическая иллюстрация метода

Типичная форма спектра ^{137}Cs высокой интенсивности, в котором наличие природных радионуклидов в счетном образце не оказывает существенного влияния на площадь пика ^{137m}Ba (энергия гамма-квантов 661,6 кэВ), показана на рисунке 2. Как видно из рисунка 2, при вы-

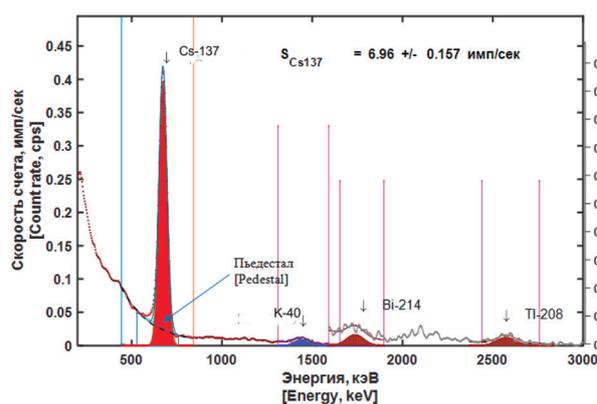


Рис. 2. Пример типичной формы спектра ^{137}Cs , полученного с детектором NaI(Tl), при котором форма пьедестала не оказывает существенного влияния на ошибку расчета площади пика ^{137}Cs . Шкала справа – скорость счета для пиков малой интенсивности [Fig. 2. An example of typical shape of the ^{137}Cs spectrum measured with the NaI(Tl) detector, in which the shape of the pedestal does not significantly affect the error in calculating the area of the ^{137}Cs peak. (The scale on the right is the count rate for low-intensity peaks)]

сокой интенсивности счета ^{137}Cs форма пьедестала (трапецеидальная или иной формы), вычитаемого при определении площади пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$, мало влияет на величину данной площади.

При невысокой интенсивности счета ^{137}Cs в энергетическую область пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ попадают импульсы фонового излучения, импульсы комптоновского рассеяния от природных радионуклидов и пики полного поглощения ^{214}Bi и ^{208}Tl – дочерних радионуклидов ^{226}Ra и ^{232}Th (рис. 3). Площадь пьедестала при этом может быть сопоставима или даже больше площади пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Упрощенное представление формы пьедестала в форме трапеции может привести к существенной ошибке расчета площади пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$, поскольку истинная форма суммарного спектра от всех попадающих в данную энергетическую область рассеянных излучений и пиков полного поглощения, включая $^{137\text{m}}\text{Ba}$, сложнее (рис. 4). Расчет пьедестала в окне

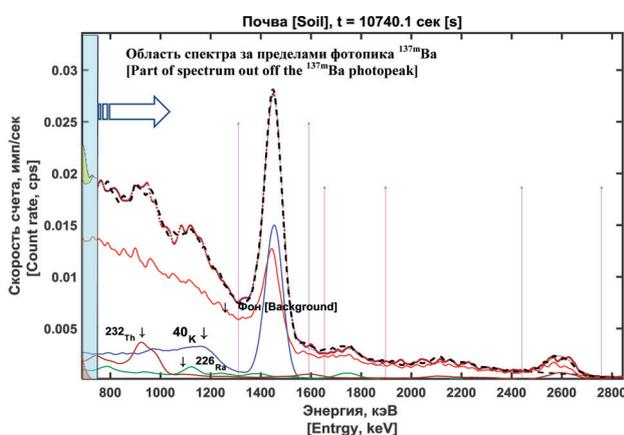


Рис. 3. Разложение измеренного спектра (пунктирная линия) на составные части с оценкой вкладов природных радионуклидов с использованием метода анализа всего спектра

[Fig. 3. Decomposition of the measured spectrum (dotted line) into its constituent parts with the assessment of the contributions of natural radionuclides using the whole spectrum analysis method]

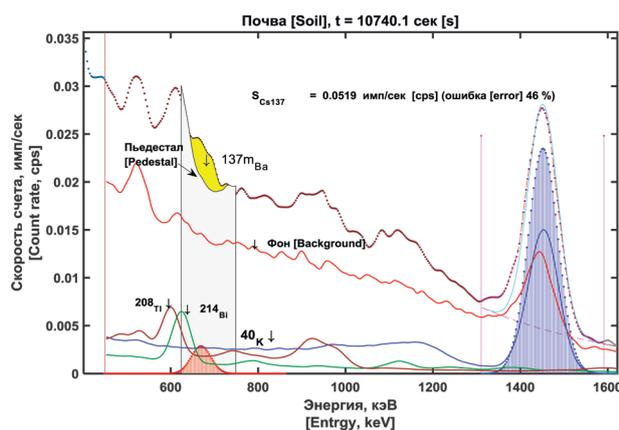


Рис. 4. Иллюстрация расчета площади пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (желтая область) на основе оценки весовых коэффициентов вклада природных радионуклидов в суммарный спектр методом его декомпозиции и последующей оценки площади пьедестала

[Fig. 4. Illustration of the calculation of the $^{137\text{m}}\text{Ba}$ peak area (yellow area) based on assessment of the weight coefficients of natural radionuclides contribution to the total spectrum by the decomposition method and subsequent assessment of the pedestal area]

пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ на основе вкладов отдельных радионуклидов и фона в данную область требует точной оценки активности содержащихся в пробе природных радионуклидов. Поскольку оконный метод анализа сопряжен с большими ошибками определения площади фотопиков ^{226}Ra и ^{132}Th , связанными с их низкой интенсивностью и взаимным перекрестным вкладом, предлагаемый метод основан на анализе полного спектра за пределами фотопика $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Данный подход позволяет включить в расчет существенно большее число импульсов, что приводит к уменьшению ошибки расчета активности природных радионуклидов и более точной оценке площади пьедестала под пиком $^{137\text{m}}\text{Ba}$.

Пример разложения спектра с использованием данного подхода показан на рисунке 3.

Полученные описанным выше способом весовые коэффициенты вклада природных радионуклидов в суммарный спектр позволяют рассчитать форму и площадь пьедестала под пиком $^{137\text{m}}\text{Ba}$, а также площадь фотопика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ путем вычитания расчетного пьедестала из полного спектра (см. рис. 4).

Расчеты интенсивности счета радионуклидов и ошибок измерений

Взаимное наложение спектров ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs ($^{137\text{m}}\text{Ba}$) приводит к необходимости учитывать весь набор неопределенностей оценки активности или УА отдельного радионуклида, поэтому от выбора положения (границ) окна, в пределах которого расположен пик $^{137\text{m}}\text{Ba}$, зависит степень влияния остальных радионуклидов. Для получения более выгодного соотношения между числом регистрируемых импульсов $^{137\text{m}}\text{Ba}$ и вкладом в суммарный счет остальных радионуклидов положение окна выбрано таким образом, чтобы правая ветвь фотопика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ целиком попадала в данное окно, а левая граница окна выбрана так, чтобы фотопики высокой интенсивности ^{214}Bi (дочернего радионуклида ^{226}Ra) и ^{208}Tl (дочернего радионуклида ^{232}Th) вносили по возможности меньший вклад в суммарный счет в каналах, в которых находится левая ветвь $^{137\text{m}}\text{Ba}$, характеризующаяся невысокой интенсивностью счета (см. рис. 3). Опытным путем установлено, что оптимальным является окно, ограниченное каналами 200 и 240 (600–720 кэВ), при которых достигается выгодное соотношение интенсивностей и минимальная ошибка.

Как показано выше, интенсивность счета, а также активность и удельная активность ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th рассчитываются путем подбора оптимального сочетания весовых коэффициентов, с учетом фонового спектра получить минимальные различия между расчетным (на основе эталонных спектров) и измеренным спектром за пределами фотопика $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Эти же коэффициенты могут быть применены и при расчете пьедестала в окне регистрации $^{137\text{m}}\text{Ba}$, то есть рассчитать число импульсов ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th , попадающих в данное окно:

$$\left. \begin{aligned} N_K &= K_K \cdot \sum_{200}^{240} \frac{SP_{K,Cs}}{t_{sp}} \\ N_{Ra} &= K_{Ra} \cdot \sum_{200}^{240} \frac{SP_{Ra,Cs}}{t_{sp}} \\ N_{Th} &= K_{Th} \cdot \sum_{200}^{240} \frac{SP_{Th,Cs}}{t_{sp}} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

где $SP_{K,Cs}$, $SP_{Ra,Cs}$ и $SP_{Th,Cs}$ – эталонные спектры ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th в окне регистрации ^{137}Cs соответственно; K_K , K_{Ra} и K_{Th} – рассчитанные значения весовых коэффициентов для эталонных спектров ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th соответственно; N_K , N_{Ra} и N_{Th} – интенсивность счета ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th в окне ^{137}Cs ; t_{sp} – продолжительность измерений счетного образца. Интенсивность счета ^{137}Cs – N_{Cs} в окне может быть определена следующим образом:

$$N_{Cs} = \sum_{200}^{240} \frac{SP_{smp}}{t_{smp}} - \left(N_K + N_{Ra} + N_{Th} + \sum_{200}^{240} \frac{SP_{bkg}}{t_{bkg}} \right) = \quad (2)$$

$$N_{smp} - (N_K + N_{Ra} + N_{Th} + N_{bkg})$$

где SP_{smp} и SP_{bkg} – спектры счетного образца и фона соответственно; t_{smp} и t_{bkg} – время измерений счетного образца и фона соответственно.

Ошибка определения интенсивности счета ^{137}Cs для 95% доверительного интервала может быть рассчитана с помощью следующего соотношения:

$$Er_{Cs} = 2 \cdot \sqrt{\frac{\frac{N_{Cs}}{t_{smp}} + \frac{N_K}{t_{smp}} + \frac{N_{Ra}}{t_{smp}} + \frac{N_{Th}}{t_{smp}} + \frac{N_{bkg}}{t_{bkg}}}{N_{Cs}}} \quad (3)$$

Ошибки измерений и расчета интенсивности ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th зависят только от взаимного влияния данных радионуклидов и фона и рассчитываются следующим образом:

$$\left. \begin{aligned} Er_K &= 2 \cdot \sqrt{\frac{\frac{N_K}{t_{smp}} + \frac{N_{Ra}}{t_{smp}} + \frac{N_{Th}}{t_{smp}} + \frac{N_{bkg}}{t_{bkg}}}{N_K}}, \\ Er_{Ra} &= 2 \cdot \sqrt{\frac{\frac{N_K}{t_{smp}} + \frac{N_{Ra}}{t_{smp}} + \frac{N_{Th}}{t_{smp}} + \frac{N_{bkg}}{t_{bkg}}}{N_{Ra}}}, \\ Er_{Th} &= 2 \cdot \sqrt{\frac{\frac{N_K}{t_{smp}} + \frac{N_{Ra}}{t_{smp}} + \frac{N_{Th}}{t_{smp}} + \frac{N_{bkg}}{t_{bkg}}}{N_{Th}}} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Верификация метода и алгоритма расчета

Для верификации предлагаемого метода оценки малых уровней активности в счетном образце выбрана проба почвы, в которой удельная активность по результатам измерений в геометрии «Маринелли» составляла 0,35 Бк/кг. Измерения проводились в течение 6 ч. Ошибка измерений составила 91,3%. Процедура верификации включала постепенную добавку к данной почве небольших навесок эталонной сыпучей смеси ^{137}Cs на основе кварцевого песка, позволяющих увеличить удельную активность почвы на 0,5 или 1 Бк/кг. Каждый раз после внесения добавочной активности проба почвы измерялась в течение 3 ч. Таким образом был получен ряд измерительных образцов почвы

с удельными активностями 0,35; 1, 35; 1, 85; 2,35; 2,85; 3,85; 4,85 и 5,85 Бк/кг. Результаты сопоставления уровней удельной активности в счетных образцах и результатов измерений и расчета удельной активности предлагаемым методом представлены на рисунке 5.

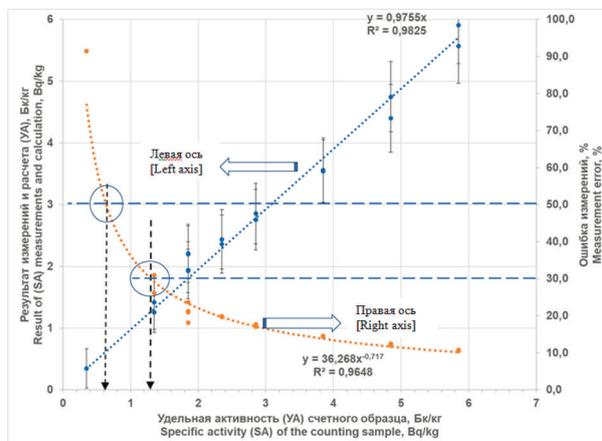


Рис. 5. Результаты сопоставления известных уровней удельной активности ^{137}Cs в счетных образцах (ось X) с результатами, полученными на основе измерений (ось Y). Ось слева – результат измерений удельной активности. Ось справа – погрешность измерений ($p=0,95$)

[Fig. 5.] Results of comparing the known specific activity of ^{137}Cs in counting samples (axis X) with the results obtained on the basis of measurements (axis Y). The axis to the left is the result of measurements and calculation of specific activity. The axis to the right is the measurement error ($p=0.95$)

Из рисунка 5 видно вполне удовлетворительное согласие между активностью счетных образцов и результатами измерений и расчета удельной активности предлагаемым методом ($R^2=0.98$). Из рисунка 5 также следует, что предлагаемый метод декомпозиции спектра позволяет измерять с ошибкой 50% удельную активность ^{137}Cs в почве с детектором NaI(Tl) с размером кристалла 63×63 мм в геометрии «Маринелли» объемом 1 л и времени измерений 6 ч на уровне 0,7 Бк/кг при доверительной вероятности 95%, а при значениях удельной активности 3 Бк/кг (минимально-детектируемая удельная активность большинства сходных по характеристикам спектрометров [3–6]) неопределенность измерений составляет 20%.

Следует отметить, что значение МДА ^{137}Cs получено в настоящем исследовании при значениях удельной активности ^{40}K – 200 Бк/кг; ^{226}Ra – 5 Бк/кг и ^{232}Th – 6 Бк/кг (формула 5).

$$MDA_{Cs} = 3.3 \cdot \sqrt{2 \cdot \left(\frac{N_K}{t_{smp}} + \frac{N_{Ra}}{t_{smp}} + \frac{N_{Th}}{t_{smp}} + \frac{N_{bkg}}{t_{bkg}} \right) \cdot KN_{Cs}} \quad (5)$$

Где $N_K=0,22$; $N_{Ra}=0,13$; $N_{Th}=0,14$; $N_{bkg}=0,57$ – скорость счета в окне цезия за счет ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th и фона соответственно, имп/с;

$T_{smp} = 21479$ – время измерений счетного образца, с;

$T_{bkg} = 85136$ – время измерений фонового образца, с;

$K_{NCS} = 27,72$ – эффективность регистрации ^{137}Cs в геометрии Маринелли, Бк на имп/с.

При более высоких значениях удельной активности природных радионуклидов МДА ^{137}Cs возрастает. Расчеты по формуле (5) показывают, что десятикратное увеличе-

ние удельной активности отдельных радионуклидов повышает МДА в 1,7–2 раза, а 10-кратное увеличение УА всех природных радионуклидов повышает МДА в 2,8 раза.

Заключение

Разработан метод и алгоритм обработки спектра, полученного на сцинтилляционном спектрометре с кристаллом NaI(Tl), позволяющий измерять активность ^{137}Cs в пробах почвы (с содержанием ^{40}K менее 200 Бк/кг, ^{226}Ra и ^{232}Th – менее 10 Бк/кг) в геометрии Маринелли объемом 1 л на уровне 0,7 Бк/кг с неопределенностью не более 50% в 95% доверительном интервале. Метод основан на создании библиотеки градуировочных образцов ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , а также спектра фона и на моделировании на их основе расчетного спектра, близкого к измеренному спектру в диапазоне энергий за пределами пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Процесс создания модельного спектра включает расчет весовых коэффициентов вклада природных радионуклидов в суммарный спектр, полученный на основе измерений, и их использование для расчета формы и площади модельного спектра под пиком $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Тем самым повышается точность определения площади пика $^{137\text{m}}\text{Ba}$ и снижение минимально-детектируемой активности при измерении проб ^{137}Cs в присутствии природных радионуклидов. При десятикратном увеличении удельной активности природных радионуклидов МДА ^{137}Cs возрастает до 1,98 Бк/кг.

Сведения о личном вкладе авторов в работу над статьей

Репин В.С. разработал алгоритм и программу обработки спектра.

Седнев К.А. провел градуировку спектрометра, участвовал в создании библиотеки градуировочных спектров и выполнил верификационные измерения.

Благодарности

Авторы благодарны К.В. Варфоломеевой (Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева) за помощь при оформлении списка литературы.

Информация о конфликте интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Сведения об источнике финансирования

Работа выполнялась в рамках НИР по Отраслевой научно-исследовательской программе Роспотребнадзора на 2021–2025 гг. «Научное обоснование национальной системы обеспечения санитарно-эпидемиологического благополучия, управления рисками здоровью и повышения качества жизни населения России» Направление 7. Научное обеспечение радиационной безопасности населения России в целях минимизации рисков здоровью Раздел 7.2. Научное обоснование системы радиационной безопасности Российской Федерации.

Литература

- Храмцов Е.В., Репин В.С., Библин А.М. и др. Радиационно-гигиеническая характеристика охраняемых зон мирных ядерных взрывов в Архангельской области // Радиационная гигиена. 2021. Т. 14, № 1. С. 111–123. <https://doi.org/10.21514/1998-426X-2021-14-1-111-123>.
- Рамзаев В.П., Медведев А.Ю., Репин В.С., и др. Радиационно-гигиенический мониторинг в местах применения ядерно-взрывных технологий в мирных целях и расчет доз облучения критических групп населения // Радиационная гигиена. 2010. Т. 3, № 1. С. 33–39.
- Официальный сайт НПП Доза. Характеристика прибора «Прогресс-гамма»: описание. URL: <https://www.doza.ru/catalog/spectrometers/3/> (Дата обращения 30.08.2022).
- Официальный сайт НТЦ Радэк. Характеристика прибора МКГБ-01: описание. URL: <https://www.radek.ru/product/Spektrometry---radiometry-gamma---beta--i-alfazlucheniya/23/> (Дата обращения 30.08.2022).
- Официальный сайт НТЦ Амплитуда. Характеристика прибора МУЛЬТИРАД-гамма»: описание. URL: <https://amplituda.ru/catalog/radiatsionnyy-kontrol/oborudovanie-radiatsionnogo-kontrolya-2/spektrometry-i-radiometry/>. (Дата обращения 30.08.2022).
- Обзор отечественных радиометрических и спектрометрических систем, которые могут быть использованы для целей учета и контроля ядерных материалов. URL: <http://vniia.ru/rgamo/literat/obzor/doc/obzorrus.pdf> (Дата обращения 10.09.2022).
- He J-F, Yang Y-Z., Qu J-H., et al. An inversion decomposition method for better energy resolution of NaI (Tl) scintillation detectors based on a Gaussian response matrix // Journal of Nuclear Science and Technology. 2016. Vol. 27. P. 2–10.
- Alizadeh D., Ashrafi S. New hybrid metaheuristic algorithm for scintillator gamma ray spectrum analysis // Nuclear instruments and methods in physics research. Section A: Accelerators, spectrometers, detectors and associated equipment. 2019. Vol. A 915. P. 1–9.
- Арефьева Д.В., Фирсанов В.Б., Куруч Д.Д., и др. Градуировка сцинтилляционного спектрометра гамма-излучений с применением метода математического моделирования // Радиационная гигиена. 2020. Т. 13, № 4. С. 93–100. DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-93-100.
- Hendriks P.H.G.M., Limburg J., de Meijer R.J. full-spectrum analysis of natural g-ray spectra // Journal of Environmental Radioactivity. 2001. Vol. 53. P. 365–380.
- Alamaniotis M., Jevremovic T. Hybrid fuzzy-genetic approach integrating peak identification and spectrum fitting for complex gamma-ray spectra analysis // IEEE Transactions on Nuclear Science. 2015;62(3): 1262–1277. DOI:10.1109/tns.2015.2432098.
- Burr T, Hamada M. Radio-isotope identification algorithms for NaI γ spectra // Algorithms. 2009;2: 339–360. DOI: 10.3390/a201033.
- Liu B., Yang H., Lv H., et al. A deconvolution method for scintillator gamma-ray spectrum analysis based on convex optimization // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2020;A(957): 1–6.
- Shahabinejad H., Vosoughi N. SGSD: A novel sequential gamma-ray spectrum deconvolution algorithm // Annals of Nuclear Energy. 2019;132: 369–380.
- Дровников В.В., Егоров М.В. и др. Программа «Na Spectra Analysis System» – SAS Na M3 для обработки сложных NaI сцинтилляционных спектров. Доклад на XVII международном семинаре «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ». 15 – 19 ноября 2010 г. ФГОУ «ГЦИПК» г. Обнинск. URL: http://www.radiation.ru/publications/SAS_Na_M3_software_for_complex_NaI_gammaspectra.pdf (Дата обращения: 11.07.2022).
- Седнев К.А., Некрасов В.А., Репин В.С. Универсальная градуировка сцинтилляционного спектрометра с детектором NaI(Tl) при измерении активности ^{137}Cs в счетных образцах произвольной плотности и объема // Радиационная гигиена. 2021. Т. 14, № 4. С. 96–102. DOI: 10.21514/1998-426X-2021-14-4-96-102.

Поступила: 15.10.2022 г.

Репин Виктор Степанович – доктор биологических наук, заведующий лабораторией экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека. **Адрес для переписки:** 197101, Россия, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: V.Repin@mail.ru

Седнев Константин Андреевич – исполняющий обязанности младшего научного сотрудника лаборатории экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

Для цитирования: Репин В.С., Седнев К.А. Метод обработки спектра при измерении детектором NaI(Tl) малых уровней удельной активности ^{137}Cs в присутствии природных радионуклидов // Радиационная гигиена. 2022. Т. 15, № 4. С. 142-148. DOI: 10.21514/1998-426X-2022-15-4-142-148

Spectrum processing method for measuring low levels of specific activity of ^{137}Cs with a NaI(Tl) detector in the presence of natural radionuclides

Viktor S. Repin, Konstantin A. Sednev

Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

When measuring low levels of ^{137}Cs in soil samples using spectrometers with a NaI(Tl) detector, identification of the $^{137\text{m}}\text{Ba}$ peak (the 662 keV gamma line of the daughter radionuclide) is difficult due to the influence of natural radionuclides, the peaks of which fall within the $^{137\text{m}}\text{Ba}$ detection region. To identify and estimate the area under the peak of $^{137\text{m}}\text{Ba}$, it is necessary to know the contribution of the background component to this area and the contribution of each natural radionuclide. When using such approach, the accuracy of estimating the $^{137\text{m}}\text{Ba}$ photopeak area depends on the accuracy with which the levels of natural radionuclides are determined. The article proposes a method of spectrum decomposition based on the taking into account individual parameters of the spectrometer and a more accurate determination of specific activities of natural radionuclides. The method involves the modeling the spectral regions for each natural radionuclide in the area of $^{137\text{m}}\text{Ba}$ peak and subtracting the simulated regions and the background spectrum from the total spectrum under the peak of $^{137\text{m}}\text{Ba}$. The use of this approach allows to measure with a 63×63 NaI(Tl) detector the specific activity of ^{137}Cs at a level of 0.7–1 Bq/kg with an uncertainty of 30–50% in the Marinelly geometry with a volume of 1 liter and with the measurement time of 6 hours.

Key words: gamma spectrometry, spectrum decomposition, cesium-137, natural radionuclides, spectrometer calibration.

Personal contribution of authors

Repin V.S. developed the algorithm and spectra processing program.

Sednev K.A. calibrated the spectrometer, participated in the development of calibration spectra library and performed verification measurements.

Acknowledgements

Authors would like to thank K.V. Varfolomeeva (St-Petersburg Institute of Radiation Hygiene) for the help with the list of references.

Conflict of interests

Authors declare no conflict of interest.

Victor S. Repin

Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev

Address for correspondence: Mira Str., 8, Saint-Petersburg, 197101, Russia. E-mail: V.Repin@mail.ru

Sources of finance

The study was performed within the framework of Rospotrebnadzor scientific-research program for 2021-2025 “Scientific justification of the national system of provision of sanitary-epidemiologic well-being, health risk management and Russian population quality of life improvement”, Direction 7. Scientific Justification of Russian population to minimize health risks. Part 7.2. Scientific justification of radiation safety system in the Russian Federation.

References

1. Khrantsov EV, Repin VS, Biblin AM, Varfolomeeva KV, Ivanov SA. Radiation-hygienic characteristic of the protected zones of peaceful nuclear explosions in the Arkhangelsk region. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2021;14(1):111-123. (In Russian) <https://doi.org/10.21514/1998-426X-2021-14-1-111-123>.
2. Ramzaev VP, Medvedev AYu, Repin VS, Timofeeva MA, Khrantsov EV. Radiation monitoring the industrial nuclear explosion sites and evaluation of the doses to critical groups of population. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2010;3(1):33-39. (In Russian)
3. Official site of SPE “Doza”. Characteristics of the device “Progress-gamma”: description. URL: <https://www.doza.ru/catalog/spectrometers/3/>. (Accessed 30 August 2022) (In Russian).
4. Official site of STC «RADEK». Characteristics of the MKGB-01 device: description URL: <https://www.radek.ru/product/Spektrometry---radiometry-gamma---beta--i-alfa-izlucheniya/23/>. (Accessed 30 August 2022) (In Russian).
5. Official site of STC «AMPLITUDA». Characteristics of the MULTIRAD-gamma device: description. URL: <https://amplituda.ru/catalog/radiatsionnyy-kontrol/oborudovanie-radiatsionnogo-kontrolya-2/spektrometry-i-radiometry/>. (Accessed 30 August 2022). (In Russian).
6. Review of domestic radiometric and spectrometric systems that can be used for accounting and control of nuclear materials URL: <http://vniia.ru/rgamo/literat/obzor/doc/obzorruss.pdf> (Accessed 09 October 2022). (In Russian).
7. He J-F, Yang Y-Z, Qu J-H, et al. An inversion decomposition method for better energy resolution of NaI (TI) scintillation detectors based on a Gaussian response matrix. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2016;27: 2-10.
8. Alizadeh D, Ashrafi S. New hybrid metaheuristic algorithm for scintillator gamma ray spectrum analysis. *Nuclear instruments and methods in physics research. Section A: Accelerators, spectrometers, detectors and associated equipment*. 2019;A(915): 1–9.
9. Arefeva DV, Firsanov VB, Kuruch DD, Bryukhov RE, Tarita VA. Graduation of the scintillation spectrometer of gamma radiation using the method of mathematical modeling. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2020;13(4): 93-100. DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-93-100 (In Russian).
10. Hendriks PHGM, Limburg J, de Meijer RJ. Full-spectrum analysis of natural g-ray spectra. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2001;53: 365–380.
11. Alamaniotis M, Jevremovic T. Hybrid fuzzy-genetic approach integrating peak identification and spectrum fitting for complex gamma-ray spectra analysis. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2015;62(3): 1262–1277. DOI:10.1109/tns.2015.2432098.
12. Burr T, Hamada M. Radio-isotope identification algorithms for NaI spectra. *Algorithms*. 2009;2: 339-360. DOI: 10.3390/a201033.
13. Liu B, Yang H, Lv H, et al. A deconvolution method for scintillator gamma-ray spectrum analysis based on convex optimization. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2020;A(957): 1-6.
14. Shahabinejad H, Vosoughi N. SGSD: A novel sequential gamma-ray spectrum deconvolution algorithm. *Annals of Nuclear Energy*. 2019;132: 369–380.
15. Drovnikov VV, Egorov MV, et al. Na Spectra Analysis System – SAS Na M3 for processing complex NaI scintillation spectra. Report at the XVII International Seminar “Spectrometric Analysis. Equipment and data processing on a PC. November 15 – 19, 2010 FGOU “GCIPIK” Obninsk. URL: http://www.radiation.ru/publications/SAS_Na_M3_software_for_complex_NaI_gammaspectra.pdf (Accessed 07 November 2022). (In Russian).
16. Sednev KA, Nekrasov VA, Repin VS. Universal calibration of a scintillation spectrometer with a NaI(Tl) detector when measuring ¹³⁷Cs activity in counting samples of arbitrary density and volume. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2021;14(4): 96-102. DOI: 10.21514/1998-426X-2021-14-4-96-102 (In Russian).

Received: 15 October, 2022

For correspondence: Viktor S. Repin – Doctor of Biological Sciences, Head of Ecology Laboratory of Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being (Mira Str., 8, Saint-Petersburg, 197101, Russia; E-mail: V.Repin@mail.ru)

Konstantin A. Sednev – Acting Junior Researcher, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

For citation: Repin V.S., Sednev K.A. Spectrum processing method for measuring low levels of specific activity of ¹³⁷Cs with a NaI(Tl) detector in the presence of natural radionuclides. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2022. Vol. 15, No. 4, P. 142-148. (In Russian). DOI: 10.21514/1998-426X-2022-15-4-142-148