



ЛАБОРАТОРИЯ
спектрометрии
и радиометрии

IAEA Research Contract No: 14900

**DEVELOPMENT AND TEST OF FIELD USEABLE SOFTWARE
FOR THE ANALYSIS OF GAMMA SPECTRA OF SEIZED
SOURCES.**

Final Report

LSRM Ltd.
1a Lyalovskoe highway, office 315
141570 Mendeleevo, Moskovskaya Oblast
Russian Federation.

Danilenko Vladimir
Chief Scientific Investigator

2009 г.

Содержание

СОДЕРЖАНИЕ	2
1 ВВЕДЕНИЕ	3
2 ОПРЕДЕЛЕНИЕ	3
3 ОБЩИЕ ПРИНЦИПЫ	4
3.1 СРАВНЕНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ	4
3.2 СРАВНЕНИЕ АППАРАТУРНЫХ СПЕКТРОВ	5
4 ПЕРВИЧНАЯ ИДЕНТИФИКАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ	5
5 КРИТЕРИИ ИДЕНТИФИКАЦИИ	6
5.1 СТАТИСТИЧЕСКАЯ ДОСТОВЕРНОСТЬ	6
5.2 ПОЛНОТА.....	7
5.3 ОДНОЗНАЧНОСТЬ	8
5.4 ПРИНЦИП НАИМЕНЬШЕГО ДЕЙСТВИЯ.....	9
6 ОСОБЕННОСТИ РАБОТЫ ЭКСПЕРТА ПО АНАЛИЗУ СПЕКТРОВ	9
7 ТРЕБОВАНИЯ К ЭКСПЕРТНОМУ ПРОГРАММНОМУ ОБЕСПЕЧЕНИЮ ПО ИДЕНТИФИКАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ	10
7.1 КОНВЕРТОР.....	10
7.2 ПАРАМЕТРЫ РАДИОАКТИВНОГО РАСПАДА	10
7.3 ПРОГРАММА ГЕНЕРАЦИИ СПЕКТРОВ.....	11
7.4 ИДЕНТИФИКАЦИЯ	11
8 АНАЛИЗ СПЕКТРА LINEID НА СООТВЕТСТВИЕ ТРЕБОВАНИЯМ К ЭКСПЕРТНОМУ ПО ..	12
8.1 КОНФИГУРАЦИИ ПАРАМЕТРОВ	12
8.2 ФОРМАТЫ СПЕКТРОВ	12
8.3 АЛГОРИТМЫ РАЗМЕТКИ СПЕКТРА	13
8.3.1 Быстрый поиск – «свертка»	13
8.3.2 Сканирование спектра- разрешение мультиплетов	13
8.3.3 Интерактивный режим	14
8.3.4 Линии из библиотеки.....	14
8.4 АЛГОРИТМЫ ИДЕНТИФИКАЦИИ	15
8.4.1 Анализ энергетического распределения	15
8.4.2 Метод эталонных спектров	15
8.4.3 Метод «квазиэталонных» спектров	15
8.5 УЧЕТ ФОНА.....	16
8.5.1 Поканальное вычитание фона	16
8.5.2 Вычитание фоновых вкладов в пики	17
8.6 УЧЕТ ПОГЛОЩЕНИЯ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ В ЗАЩИТНЫХ СЛОЯХ	17
8.6.1 Уточнение толщины слоя.....	19
8.7 КАЛИБРОВКА ПО ЭНЕРГИИ	19
8.8 БИБЛИОТЕКИ РАДИОНУКЛИДОВ. ИДЕНТИФИКАЦИЯ ПО ПОЛНОЙ БАЗЕ РАДИОНУКЛИДОВ	19
8.8.1 Фильтр по значениям интенсивности	19
8.8.2 Фильтр по периоду полураспада	20
8.8.3 Проверка энергетического спектра нуклида	20
8.8.4 Совместная идентификация нескольких линий.....	20
8.9 ВИЗУАЛЬНОЕ СРАВНЕНИЕ СПЕКТРОВ	20
9 ВЫВОДЫ	22
10 ЛИТЕРАТУРА	22

1 Введение

Проблемы идентификации ядерных и радиоактивных материалов при их нелегальном перемещении связаны в основном с двумя обстоятельствами:

- недостаточная квалификация персонала (офицеры пограничных, таможенных служб и т.д.), непосредственно проводящего измерения в полевых условиях;
- не всегда корректное программное обеспечение, используемое в портативных спектрометрах – идентификаторах.

Одним из возможных решений проблемы является экспертная поддержка таких измерений. Суть экспертной поддержки состоит в следующем:

Офицер, проводящий измерения, в случаях, когда он сомневается в результатах идентификации, направляет спектр измеренного образца эксперту для более тщательной экспертизы.

Эксперт с использованием специального – **экспертного программного обеспечения** проводит обработку спектра и делает заключение о наличии или отсутствии запрещенных радиационных объектов.

Целью настоящей работы являлась разработка соответствующего экспертного программного обеспечения по идентификации ядерных и радиоактивных материалов. В ходе работы стало ясно, что, несмотря на большое количество программ по идентификации, нет ясного единого представления о критериях идентификации. Мы сочли целесообразным включить в отчет разделы о различных подходах к процедуре идентификации и возможных критериях, позволяющих оценить ее успешность.

2 Определение

Хотя понятие идентификации интуитивно понятно, однозначного определения идентификации нам найти не удалось. Это объясняется большим количеством задач, которые решаются с использованием этой процедуры.

Хотя большинство задач спектрометрического анализа предполагают использование процедуры идентификации, мы не нашли литературы, описывающей общие подходы и методологию этой процедуры. Как правило, имеющиеся статьи посвящены реализации конкретных алгоритмов. При этом они чаще всего опираются на допущения, хотя и интуитивно понятные, но неформализованные и зачастую необоснованные. Не претендуя на основополагающий труд, тем не менее, мы посвятим несколько разделов нашему пониманию принципов идентификации.

Часто под идентификацией понимают установление наличия (или отсутствия) в измеряемом образце тех или иных радионуклидов. Сразу отметим, что это изначально некорректная задача, если не задано каких-то количественных пределов, например активности. Строго говоря, утверждать об отсутствии какого-то радионуклида без указания предела обнаружения некорректно. Тем более, если речь идет о контроле при нелегальном перемещении радиоактивных и ядерных материалов. На наш взгляд, идентификация является только частью процедуры, обеспечивающей такой контроль. Контроль, безусловно, должен сопровождаться количественной оценкой содержания радионуклидов. Отсутствие процедуры такой количественной оценки в соответствующих регламентирующих документах можно объяснить только сложностью такой оценки и неразвитостью программных и методических средств.

Еще раз подчеркнем, что говорить об отсутствии тех или иных радионуклидов некорректно. Правильнее делать утверждение, что радионуклид не обнаружен. В то же время в большинстве программных средств процедура идентификации выделена в виде самостоятельной, поэтому целесообразно ее сформулировать как отдельную. Мы предлагаем следующую, наиболее общую формулировку идентификации:

Идентификация - это процедура определения радионуклидов, объясняющих (описывающих) аппаратный спектр.

Глубина и полнота идентификации зависит от решаемой задачи. Так иногда достаточно сказать, что в спектре имеются две линии, чтобы утверждать, что это спектр Co-60, если речь идет о выборе между Co-60 и Cs-137.

Однако чаще всего для успешной идентификации необходим детальный анализ энергетического распределения.

3 Общие принципы

В основе идентификации лежит сравнение энергетического распределения измеренного спектра $G(E)$ с энергетическим распределением отдельных радионуклидов $g_i(E)$.

Энергетическое распределение определяет количество испускаемых радионуклидом гамма-квантов в зависимости от энергии. Энергетическое распределение гамма-излучения носит дискретный характер и представляется обычно в виде набора E_i и соответствующих интенсивностей I_i . Интенсивности излучения обычно выражают в количестве гамма-квантов, испускаемых ядром на 100 актов распада.

Тогда энергетическое распределение анализируемого образца можно представить в виде суммы распределений, присутствующих в образце радионуклидов:

$$G(E) = \sum a_i \cdot g_i(E), \quad (1)$$

где коэффициенты a_i – коэффициенты, определяющие вклад радионуклидов, пропорциональные активности.

Коэффициенты разложения a_i и их погрешности Δa_i находят методом наименьших квадратов и если

$$a_i > \Delta a_i,$$

то делают вывод об обнаружении радионуклида в спектре.

При таком подходе, даже если радионуклид не обнаружен, можно сделать вывод о верхнем пределе его активности.

Приведенное выше рассмотрение опиралось на сравнение энергетических распределений гамма-излучения. В то же время, прямым результатом измерения является аппаратный спектр $S(n)$, представляющий зависимость числа зарегистрированных импульсов от номера канала анализатора n . Другой возможностью идентификации является сравнение *аппаратурных* спектров анализируемого образца и *аппаратурных* спектров отдельных радионуклидов $s_i(n)$. Такой метод принято называть *методом эталонных спектров* или *методом шаблонов (Templates)*.

Аппаратурные спектры радионуклидов, как правило, измеряются в тех же условиях, что и спектр образца. Обычно их нормируют на значения активности и тогда коэффициенты разложения b_i

$$S(n) = \sum b_i \cdot s_i(n) \quad (2)$$

будут также пропорциональны активности радионуклидов.

Подводя итог вышесказанному, можно выделить два метода идентификации:

- сравнение энергетических распределений
- сравнение аппаратурных спектров.

Остановимся подробнее на каждом из них.

3.1 Сравнение энергетических распределений

На первом этапе производится преобразование аппаратного спектра $S(n)$ в энергетическое распределение $G(E)$. Такая процедура обычно называется *деконволюцией*. Она включает преобразование шкалы анализатора в шкалу энергий и получение из

аппаратного спектра зарегистрированных импульсов спектр гамма-квантов. Наиболее простой и употребительный способ такого преобразования – это поиск пиков. В этом случае в качестве информативной части спектра рассматривают только пики полного поглощения, положения которых сопоставляют энергии гамма-линий, а площади интенсивностям этих линий. При этом для получения истинного энергетического распределения необходимо учесть эффективность регистрации и самопоглощение гамма-излучения в материале образца. Если эффективность детектора и параметры образца известны, то учет этих факторов не представляет труда. Кроме того, погрешности этих параметров без проблем трансформируются в погрешности энергетического распределения. И задача разложения спектра может решаться строго со статистической точки зрения.

3.2 Сравнение аппаратных спектров

В этом случае сначала получают аппаратные спектры возможных присутствующих в образце. Это либо измеренные экспериментально спектры, либо, если известна функция отклика детектора в зависимости от энергии – рассчитанные спектры.

Такая схема вряд ли может быть применена для переносных спектрометров тем более для измерения разнообразных объектов, т.к. функция отклика сильно зависит от измеряемого образца и окружения. Даже если известны параметры образца расчет функции отклика предполагает довольно длительные расчеты, как правило, с использованием метода Монте-Карло. Мы предлагаем проводить сравнение не всей функции отклика, а только части ее, связанной с пиком полного поглощения. Этот метод, названный нами *методом квазиэталонных спектров* описан в разделе 8.4.3 .

Формулы (???) предполагают полноту используемой библиотеки радионуклидов. Хотя большинство нормативных документов определяют достаточно ограниченный перечень радионуклидов, это не исключает наличия в образце других радионуклидов. Наиболее полный набор радионуклидов содержится в ENSDF-файле. Он содержит около 3тыс.500 радионуклидов, включая метастабильные состояния, большинство из которых являются гамма-излучающими. Очевидно, что прямое разложение по всему набору радионуклидов не представляется возможным. Этот набор на практике всегда пытаются сократить, исходя из какой-то априорной информации и упрощенных алгоритмов, сокращающих число возможных радионуклидов, используемых для анализа. Эти упрощенные алгоритмы мы будем называть первичной идентификацией.

4 Первичная идентификация радионуклидов

Первичная идентификация радионуклидов производится сравнением энергий пиков, обнаруженных в спектре, с табличными значениями энергий линий из списка радионуклидов. В качестве области поиска может использоваться как весь набор нуклидов из базы данных, так и его подмножество, то есть список нуклидов, задаваемый пользователем, или определенный на предыдущих этапах идентификации.

Поиск проводится в пределах некоторого энергетического интервала, называемого обычно «**окном идентификации**». Этот параметр устанавливается в параметрах конфигурации и может изменяться пользователем. Значение окна идентификации ΔE может быть как фиксированным, так и изменяющимся от энергии. Значение его зависит от погрешности определения энергии, а также разрешающей способности, и различно для разных спектрометров. Характерное значение $\Delta E \sim 1$ кэВ для ППД-спектрометров и ~ 10 -20 кэВ для сцинтилляционных.

Окно идентификации может быть фиксированным, а может быть связано с энергией E , например, следующим соотношением:

$$\Delta E = \frac{\Delta_0 E}{\sqrt{E_0}} \times \sqrt{E}; \quad (3)$$

Здесь:

$\Delta_0 E$ - значение окна идентификации для линии с энергией E_0 . Здесь подразумевается, что разрешающая способность зависит от энергии как \sqrt{E} .

Решающими факторами успешности процедуры идентификации являются правильность градуировочной характеристики спектрометра по энергии и полнота библиотеки радионуклидов.

Очевидно, что чем меньше перечень радионуклидов, тем надежнее процедура идентификации и точнее расчет активности. Если есть какая-то информация, позволяющая уменьшить число анализируемых радионуклидов, ее желательно использовать. Например, можно ограничить область поиска только нуклидами, обнаруженными на предыдущих этапах идентификации, или любым другим списком нуклидов.

Тем не менее, на практике мы чаще всего сталкиваемся с неоднозначной идентификацией, когда две или более линий попадают в одно окно идентификации. Радионуклиды, линии которых претендуют на один и тот же пик в спектре, мы будем называть *интерферирующими*. Для однозначной идентификации интерферирующих радионуклидов необходим детальный анализ энергетического распределения, который проводится по процедурам, описанным выше.

5 Критерии идентификации

Что же такое успешная идентификация, каковы ее критерии?

5.1 Статистическая достоверность

Статистическая достоверность связана с расчетом погрешности измерения. В качестве параметра, отвечающего за идентификацию радионуклидов целесообразно выбрать коэффициенты разложения измеренного энергетического распределения a_i или коэффициенты разложения измеренного спектра b_i . Тогда относительные погрешности этих величин $\delta a_i, \delta b_i$ могут характеризовать достоверность идентификации.

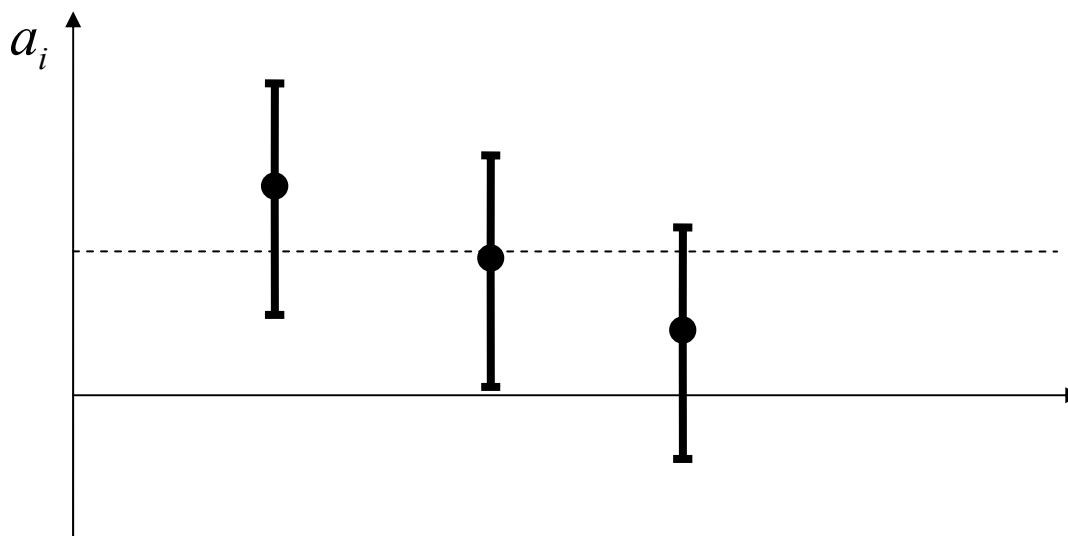


Рис.1 Значения активности и погрешности, как характеристика достоверности идентификации

Рисунок иллюстрирует случаи $\delta a_i < 1$, $\delta a_i = 1$, $\delta a_i > 1$, соответствующие все менее уверенной идентификации. Т.к. погрешность рассчитывается для определенной доверительной вероятности, то использование такого критерия допускает вероятностную трактовку.

Если результатом идентификации считать $a_i > 0$, то при $\delta a_i = 1$ мы можем говорить о вероятности в 70% присутствия радионуклида, если погрешность рассчитывалась для $P=0.7$.

5.2 Полнота

Как правило, не все линии спектра удается сопоставить каким-то радионуклидам. Это связано, как со статистическим характером спектра, вследствие чего в спектре всегда присутствуют ложные пики, так и с другими факторами, например:

- отсутствием в библиотеке каких-то радионуклидов, или их линий,
- появлением аппаратных пиков, которые не анализируются программой – пики сумм, пики вылета, пики обратного рассеяния и т.д.
- неточным знанием параметров образца и эффективности регистрации

Зачастую необходимо идентифицировать лишь основные линии спектра. Таким образом, мы можем констатировать практически всегда некоторое количество неидентифицированных линий. Для количественной характеристики полноты идентификации необходимо ввести параметр (*completeness*), связанный с количеством неидентифицированных линий. Таким параметром могут быть, например, процентное содержание площадей неидентифицированных линий, или процентное содержание гамма-квантов. Нам кажется наиболее удачным следующий параметр DC (Dose Contribution):

$$DC = \frac{D_{unident}}{D_{total}} \cdot 100, \quad (4)$$

здесь

$$D = \sum_i \frac{S_i \cdot E_i}{\varepsilon(E_i)}, \quad (5)$$

$S_i \cdot E_i$ - площадь и энергия линии,

$\varepsilon(E_i)$ - соответствующая эффективность регистрации

Этот параметр мы назовем *дозовым вкладом* ^{*)} неидентифицированных линий. В разделе 8.6.1 мы продемонстрируем практическую ценность введенного параметра для решения задачи идентификации.

^{*)} В пренебрежении зависимостью $\mu_{\text{en}}(E)/\rho$ - массовый коэффициент истинного поглощения в воздухе

5.3 Однозначность

Даже если идентифицированы все линии – это не гарантия правильной идентификации. Можно выделить две основные причины неправильной идентификации:

- неоднозначность идентификации
 - неправильное преобразование аппаратного спектра в энергетическое распределение
- Неоднозначность идентификации, связанная наличием большого числа линий разных нуклидов в заданном энергетическом диапазоне. Это приводит к тому, что измеренному энергетическому распределению может соответствовать несколько решений. Естественно, чем выше точность измерения, тем меньше неоднозначность. Точность измерений связана как с характеристиками аппаратуры, так и со статистической обеспеченностью спектра. Неоднозначность зависит также от степени использования информации в энергетическом распределении. Большинство экспресс-методов используют лишь информацию об энергии линий, что приводит к большой неоднозначности при использовании большой библиотеки радионуклидов.

Неправильное преобразование аппаратного спектра в энергетическое распределение может быть связано со многими причинами: неправильная энергетическая калибровка, некорректный учет поглощения в материале образца, неправильная эффективность и т.д. Для характеристики степени доверия к результатам идентификации в документе [1] было предложено ввести параметр индекс доверия. Индекс доверия меняется от 1 до 10 и чем он больше, тем больше доверия к результатам идентификации. В документе не приводится способа расчета индекса доверия. В тоже время у опытного спектрометриста существует интуитивное представление об индексе доверия. Например, если в спектре NaI имеется линия с энергией 660 ± 10 кэВ, то он скажет что, скорее всего это линия Cs-137, если 661.6 ± 1 кэВ, то уверенности прибавится. Если есть две линии 1173 и 1332 кэВ, то почти наверняка это линии Co-60, особенно если у них близкие интенсивности. Если имеются линии 121, 244, 344, 1408 кэВ, то это, безусловно, Eu-152. Как нам кажется, это интуитивное понятие уверенности в правильности идентификации можно формализовать, если рассмотреть вероятность случайного появления анализируемого распределения. Если предположить, что появление случайных гамма-квантов равновероятно для любой энергии, то вероятность появления линии в интервале энергий $[E - \Delta E/2, E + \Delta E/2]$ будет пропорционально $\delta E = \frac{\Delta E}{E}$. Если у нас имеется несколько линий, то вероятность их случайного появления будет пропорциональна $\delta E_1 \cdot \delta E_2 \cdot \delta E_3 \dots$. Если у нас заданы соотношения интенсивностей между линиями, то появятся еще множители $\delta I_2 \cdot \delta I_3 \dots$. Имеет смысл ввести в качестве индекса доверия следующую величину

$$CI = \log\left(\frac{1}{\delta E_1 \cdot \delta E_2 \cdot \delta E_3 \dots \delta I_2 \cdot \delta I_3 \dots}\right). \quad (6)$$

В таблице приведены значения индекса доверия для разных типов детекторов, рассчитанные с помощью программы SpectraLineID по спектрам различных радионуклидов.

Таблица 1 Индекс доверия -CI

	HPGe	NaI	LaBr3
Cs-137	2.8	1.8	2.0
K-40	3.2	2.2	2.4
Na-22	6.7	3.8	4.1
Co-60	7.3	5.9	4.8
Cs-134	6.8	4.4	-
Ba-133	25.4	8.5	12.7
Eu-152	67.4	18.3	27.2
Th-232	97.9	16.6	17.9

Безусловно, введенный таким образом индекс доверия носит эвристический характер, но как нам кажется, имеет вполне определенный смысл:

чем уникальнее энергетическое распределение радионуклида и чем точнее оно измерено, тем больше доверия вызывают результаты идентификации.

Кроме того, он соответствует нашим интуитивным представлениям о доверии к результатам идентификации.

5.4 Принцип наименьшего действия.

Остановимся еще на одном принципе, который мы условно назвали *принципом наименьшего действия*, и который неявно используется в процедуре идентификации. Как правило, конкретная реализация процедуры опирается на ограниченную библиотеку радионуклидов. Если измеренное энергетическое распределение соответствует какому-то набору радионуклидов, то в качестве идентифицированных радионуклидов принимается этот набор. С другой стороны, как правило, бывает возможно описание этого распределения другим набором радионуклидов, не входящих в используемую библиотеку. Тем не менее, такую возможность игнорируют и считают задачу решенной.

В то же время, если не удалось решить задачу идентификации с данной библиотекой радионуклидов, то привлекают данные из другой, более полной библиотеки.

Такой подход не очень последователен, т.к. в принципе предполагается возможность присутствия других радионуклидов, но в одном случае – при успешной идентификации – эта возможность игнорируется, в другом – используется.

Как нам кажется, одним из путей снятия противоречия в таком подходе является использования индекса доверия в понимании раздела 5.3. Если индекс доверия низкий, то даже при удовлетворительной идентификации спектра, не следует принимать однозначного решения. Возможно, что следует провести измерения с более высокой точностью.

6 Особенности работы эксперта по анализу спектров.

Сформулируем основные особенности работы эксперта по сравнению с оператором, использующим программное обеспечение для экспрессной идентификации:

- Квалификация эксперта, безусловно, выше квалификации оператора. Это относится как к использованию конкретного программного обеспечения, так и к опыту работы в области контроля ядерных и радиоактивных материалов

- Анализируются спектры от большого количества приборов с различными техническими характеристиками, такими как разрешение, эффективность, нестабильность, число каналов и т.д.
- Спектры могут быть предоставлены в различных форматах
- Может быть произвольный набор радионуклидов, не соответствующий установленному в используемом приборе.
- Эксперт имеет большее время для анализа спектра.
- Эксперт может подключать для анализа другое программное обеспечение, и использовать разнообразную информацию, включая интернет
- Эксперт, как правило, не может провести дополнительных, повторных измерений, допустим с целью уточнения энергетической калибровки.

7 Требования к экспертному программному обеспечению по идентификации радионуклидов.

На сегодняшний день, а впрочем, по-видимому, и в будущем будет существовать несколько программ по идентификации, использующие различные подходы. В случае работы эксперта, по-видимому, это должен быть программный комплекс, который может включать несколько программ. По функциональности их можно разбить на четыре группы:

- Конвертор – программа обеспечивающая чтение любых форматов спектров и конвертацию их в один(или несколько) общепринятых форматов.
- Программа получения ядерных данных по параметрам радиоактивного распада произвольных радионуклидов и соответствующая база ядерных данных
- Программа генерации спектров произвольного радионуклидного состава от произвольных детекторов
- Непосредственно программа идентификации

Такое разбиение условно и связано с наличием на сегодняшний день тех или иных программ, обеспечивающих такую функциональность.

7.1 Конвертор

Необходимость такой программы очевидна, т.к. на сегодняшний день не существует единого формата спектральных данных.

Существующая на сегодняшний день программа **Cambio** в основном решает задачи конвертации спектров. Отметим несколько замечаний, которые желательно устранить:

- Нет запуска программы из командной строки с передачей имени файла спектра с автоматическим сохранением спектра в нужном формате. Такая возможность упростила бы пользовательский интерфейс для программы идентификации.
- Нет конвертации некоторых форматов широко известных производителей, например, «Атомтех».
- Желателен режим линеаризации энергетической характеристики

7.2 Параметры радиоактивного распада

Программа должна обеспечивать получение значений энергий, интенсивностей и их погрешностей гамма-линий, периодов полураспада любых радионуклидов. Наиболее полный и современный набор ядерных данных содержит ENSDF-файл [2], поэтому программа должна поддерживать работу с этим набором данных.

На наш взгляд, программа **NuclideMaster** может быть использована для этих целей. http://www.lsrn.ru/products/nuclide_master/

Ниже мы приводим возможности программы, которые, на наш взгляд, совпадают с требованиями к аналогичному программному обеспечению. Такое совпадение не

случайно, т.к. программа разрабатывалась для этих целей. Выделены обязательные требования.

Программа позволяет:

- **создавать и дополнять библиотеки гамма-линий от произвольных радионуклидов;**
- **просматривать цепочку распада выбранного нуклида с формированием списка гамма- линий;**
- **осуществлять поиск радионуклидов, содержащих одну или несколько гамма-линии данной энергии**
- производить расчет активности нуклидов по цепочке распада на заданное время;
- динамически отображать изменение активности нуклидов по цепочке распада для заданного промежутка времени;
- получать гамма- спектры для выбранного нуклида на заданное время с учетом дочерних нуклидов по всей цепочке распада для спектрометра с заданными параметрами. При подключении базы данных по транспортным контейнерам можно получить гамма-спектр источника, находящегося в контейнере с учетом поглощения;
- просматривать схемы распада интересующего нуклида;
- сервисные функции, заложенные в программе, позволяют упорядочивать данные по энергии, интенсивности и т.д., а также исключать какие-то данные, например, линии с маленькой интенсивностью;
- программа полностью совместима с пакетом SpectraLine по форматам данных. Она позволяет создавать и дополнять библиотеки радионуклидов, а также образовывать файлы спектров интересующих радионуклидов в этом формате;
- использовать оригинальные файлы оцененных данных по структуре ядра ENSDF/2 (более компактного варианта представления данных ENSDF - Evaluated Nuclear Structure Data File) при создании библиотеки радионуклидов;

7.3 Программа генерации спектров

Наличие такой программы возможно не обязательно, но желательно. Она может быть использована для создания библиотеки эталонных спектров, которые тяжело получить экспериментально, например короткоживущие радионуклиды. Наличие такой библиотеки желательно, как для возможностей визуальной идентификации, см. ниже, так и для идентификации методом эталонных спектров (*Templates*).

Программа должна иметь возможность генерировать спектры произвольного радионуклидного состава от произвольных детекторов HPGe, NaI, LaBr. При этом должны учитываться все радионуклиды, находящиеся в цепочке распада.

Программа должна позволять моделировать защитные экраны и матрицу образца.

Таковыми возможностями обладают программы:

- Вебприложение **Gamma-Spectrum Generator** http://www.nucleonica.net:81/wiki/index.php/Help:Gamma_Spectrum_Generator, которая является вебприложением и позволяющая проводить on-line расчет спектра, заданного детектора по методу Монте-Карло.
- Программа **GammaLab** http://www.lsrn.ru/products/virtual_lab/lsrn_gammalab/ близка по функциональности к Gamma-Spectrum Generator и также построена на методе Монте-Карло.

В ряде случаев, для получения примерного вида спектра может быть использована программа **NuclideMaster**, которая позволяет экспрессно генерировать спектры по упрощенному алгоритму.

7.4 Идентификация

Программа должна обеспечивать:

- Возможность обработки спектров от детекторов различных типов и размеров (HPGe, NaI, LaBr). Для каждого конкретного детектора должны быть создана конфигурация параметров, включающая зависимости разрешения, эффективности регистрации от энергии, библиотеку радионуклидов, а также другие параметры необходимые для расчетов.
- Возможность считывания спектров в наиболее распространенных форматах.
- Желательно наличие нескольких альтернативных алгоритмов идентификации.
- Расчет и вывод одного или нескольких критериев, характеризующих достоверность идентификации.
- При задании корректных параметров измерения – расстоянии, поглощающих слоев, возможность оценки значений активности идентифицированных радионуклидов.
- Учет внешнего и собственного (в случае LaBr – детекторов) фона спектрометра.
- Учет поглощения гамма-излучения в защитных слоях. Возможности оценки толщины слоя в случае неизвестных объектов.
- Возможность коррекции энергетической калибровки в интерактивном режиме, например, по фоновым линиям спектра. Перенос энергетической калибровки из одного спектра в другой.
- Изменение библиотеки радионуклидов. Подключение полной базы радионуклидов. Анализ цепочек распада.
- Интерактивный режим с программой, позволяющий проводить визуальное сравнение спектров для анализа присутствия какого-либо радионуклида.

В следующем разделе мы рассмотрим, как удовлетворяет сформулированным выше требованиям программа **SpectraLineID**, разработанная в рамках настоящего проекта.

8 Анализ SpectraLineID на соответствие требованиям к экспертному ПО.

8.1 Конфигурации параметров

Конфигурация - одно из основных понятий, необходимых для правильной работы с программой SpectraLine. Конфигурация определяет набор и значения параметров программы, необходимых для решения той или иной задачи. Т.к. программа позволяет работать с несколькими устройствами одновременно, то число конфигураций должно быть не меньше числа устройств, связанных с данным компьютером. Зачастую с помощью одного устройства решается несколько разных задач, каждая из которых требует установки своих параметров, настроек. Целесообразно с каждой задачей связать свою конфигурацию. Таким образом, с одним устройством может быть связано несколько конфигураций. При инсталляции программы для облегчения работы на начальном этапе ознакомления создается несколько демонстрационных конфигураций, которые могут быть в дальнейшем удалены. С каждой конфигурацией связана своя папка, в которой содержится конфигурационный файл Lsrn.cnf с набором параметров. В этой же папке хранятся файлы с эффективностью регистрации, библиотеки радионуклидов и т.д. Список доступных конфигураций и пути к ним хранятся в служебном файле Lsrn.ini. Там же хранятся глобальные для программы параметры, действующие во всех конфигурациях. С помощью конфигураций легко организовать работу по обработке спектров от различных детекторов.

8.2 Форматы спектров

Основной формат спектра для программы SpectraLineID – формат Lsrn (*.spe).

Формат позволяет сохранять кроме общепринятых данных (даты, времени набора, калибровок и т.д.) информацию о геометрии измерений: расстояние до объекта, параметры защитных слоев.

Формат Lsrn (*.spe) поддерживается программой Cambio.

SpectraLineID поддерживает самостоятельно чтение несколько распространенных форматов спектров:

- ORTEC CHN
- IAEA SPE
- ASCII ASC
- CANBERRA CNF
- ATOMTEX SPE

Кроме того поддерживаются форматы спектров Российских производителей переносных спектрометров, которые не поддерживаются программой Cambio:

- GREEN STAR SPS
- ASPECT SPC

8.3 Алгоритмы разметки спектра

Под разметкой спектра понимается установление положений пиков, которые будут использоваться на последующих этапах обработки. Пики могут быть отмечены различными способами. Основной способ разметки -автоматический поиск пиков

В этом режиме сканируется интересующий участок спектра, и на основе статистических критериев определяются положения пиков в спектре. Реализовано два способа сканирования, описанные ниже.

8.3.1 Быстрый поиск – «свертка»

В основе этой процедуры поиска пиков лежит анализ значения «свертки» спектра с фильтром, параметры которого определяются полушириной пика. Фильтр рассчитывается для каждого участка спектра, исходя из калибровки по полуширине. Результаты поиска будут правильными, если используемая калибровка по полуширине соответствует реальной.

Процедура поиска пиков ведется автоматически. Результатом поиска являются положения пиков, интенсивность которых превышает заданный *уровень обнаружения*.

Уровень обнаружения задается в файле конфигураций и может быть изменен администратором. При этом следует иметь в виду, что увеличение уровня обнаружения будет приводить к пропуску истинных пиков, с другой стороны уменьшение будет приводить к появлению ложных пиков, обусловленных статистическими флуктуациями в спектре. Рекомендуемое значение уровня обнаружения - 3.

8.3.2 Сканирование спектра- разрешение мультиплетов.

В этом методе для каждого канала спектра рассчитывается величина $\frac{\Delta S}{S}$, где $S, \Delta S$ - значения площади и ее погрешности, найденные в предположении пика в этом канале. Оценки находятся в результате аппроксимации соответствующего участка спектра.

Ищутся точки с локальным минимумом величины $\frac{\Delta S}{S}$. Вблизи минимума зависимость

$\frac{\Delta S}{S}(N)$ аппроксимируют параболой и находят точное положение минимума N_m и, если

$\frac{\Delta S}{S}(N_m)$ больше заданного уровня обнаружения, N_m сопоставляют с положением

максимума пика. Затем проводят повторное сканирование с учетом найденных на первом проходе пиков. На этом этапе могут быть обнаружены пики, не найденные на

первом этапе, если их положения были близки. Сканирование будет продолжаться до тех пор, пока после очередного прохода перестанут обнаруживаться новые пики.

Этот метод может быть использован лишь тогда, когда спектрометр откалиброван по форме пика. В случае неадекватной модели процедура может привести к обнаружению заведомо ложных пиков вблизи истинных.

Достоинством метода является высокая разрешающая способность при разделении мультиплетов. Рисунок 2 иллюстрирует эту возможность.

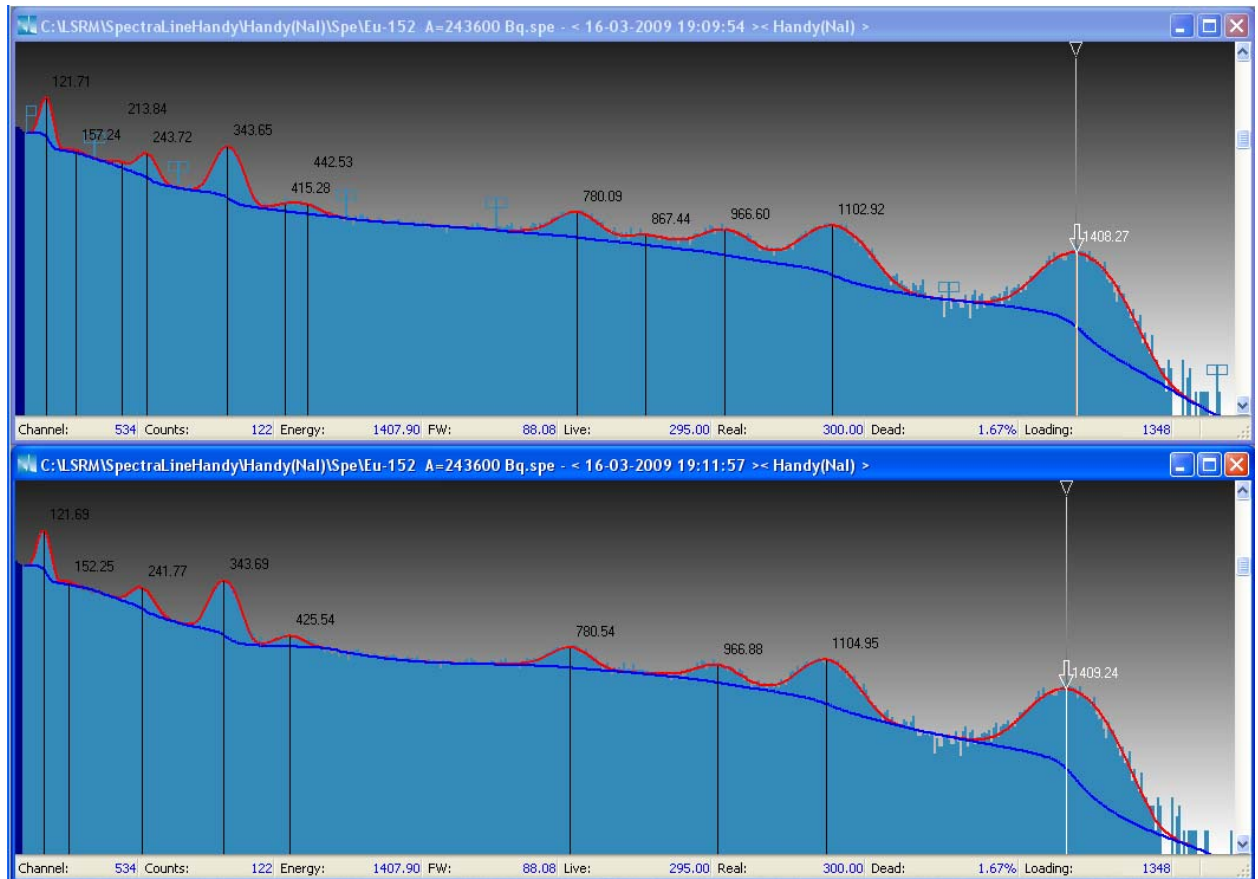


Рис.2. Спектр Eu-152 измеренный с помощью NaI-детектора. Внизу, поиск пиков традиционным методом(свертка), сверху –сканирование спектра

8.3.3 Интерактивный режим

В этом режиме оператор отмечает пики вручную, пользуясь какими-то своими соображениями. Они могут быть установлены оператором с использованием опции «Вставить пики». Этот режим обычно используется, когда процедура поиска дает неверные результаты. Это происходит при первичной настройке системы, когда не проведены калибровки и параметры поиска не соответствуют реальным; при наличии у оператора априорной информации о наличии каких-то линий, например, не разрешенных процедурой поиска

8.3.4 Линии из библиотеки

В этом случае пики устанавливаются в соответствии с предполагаемым спектром данной пробы. Этот спектр задается выбранной пользователем библиотекой радионуклидов и перечнем радионуклидов из этой библиотеки. Такой режим обладает наибольшей чувствительностью и надежностью, т.к. позволяет выделить пики, не

разделенные процедурой автоматического поиска. Кроме того, при расчете площадей пиков используется информация о соотношении интенсивностей гамма - линий одного радионуклида. Очевидно, что в этом режиме обязательна правильная энергетическая градуировка.

8.4 Алгоритмы идентификации

Реализованы методы идентификации, как путем анализа энергетического распределения 3.1, так и путем сравнения аппаратурных спектров 3.2.

8.4.1 Анализ энергетического распределения

Обработка спектра в этом случае идет по следующему сценарию

- Поиск пиков в спектре и подгонка информативных участков спектра
- Сравнение энергий найденных пиков с наиболее значимыми линиями радионуклидов из пользовательской библиотеки радионуклидов и установление списка возможных радионуклидов
- Выставление значимых для данного спектра линий всех возможных радионуклидов.
- Переразметка информативных участков и новая подгонка спектра. Расчет активности всех возможных радионуклидов и анализ их на значимость для данного спектра. Критерием идентификации радионуклидов является условие $\delta a_i < 1$, см. 5.1.
- Оператор может повторить расчет, исключив незначимые радионуклиды.

Для каждого радионуклида рассчитываются значения активности, дозовый вклад 5.2, и индекс доверия 5.3.

Значения активности будут соответствовать истинным, если правильно заданы параметры измерения – расстояние, параметры контейнера.

Выводится дозовый вклад неидентифицированных линий. Оператор может перейти к анализу неидентифицированных линий с использованием полной базы радионуклидов, см. ниже.

8.4.2 Метод эталонных спектров

Методы эталонных спектров используются в основном для измерений в определенной геометрии.

Стандартный метод эталонных спектров для идентификации образцов в произвольной геометрии по причинам, изложенным в 3.2, вряд ли применим. Нами был разработан метод «квазиэталонных» спектров.

8.4.3 Метод «квазиэталонных» спектров

Метод «квазиэталонных» спектров был разработан в «ЛСРМ» для анализа сложных сцинтилляционных спектров для тех случаев, когда получение эталонных спектров интересующих радионуклидов затруднено.

В отличие от метода эталонных спектров, эталонный спектр каждого радионуклида представляется в виде суммы пиков полного поглощения всех линий этого радионуклида. Разложение спектра анализируемого образца осуществляется по спектрам полного поглощения отдельных радионуклидов и общей комптоновской подложке, которая рассчитывается для спектра анализируемого образца. Спектры полного поглощения рассчитываются из библиотечных линий радионуклида с учетом эффективности регистрации и формы пика, заданной в файле пик-образа. Таким образом, набор возможных радионуклидов определяется только библиотекой. Следует иметь в виду, что библиотека должна содержать все линии радионуклида в используемом для расчета энергетическом диапазоне.

Рисунок 3 иллюстрирует расчет методом квазиэталонных спектров: каждый нуклид отображается своим цветом, серым цветом отображена комптоновская подложка, красным цветом суммарная огибающая, включающая сумму фотопиков всех радионуклидов, комптоновской подложки и фона.

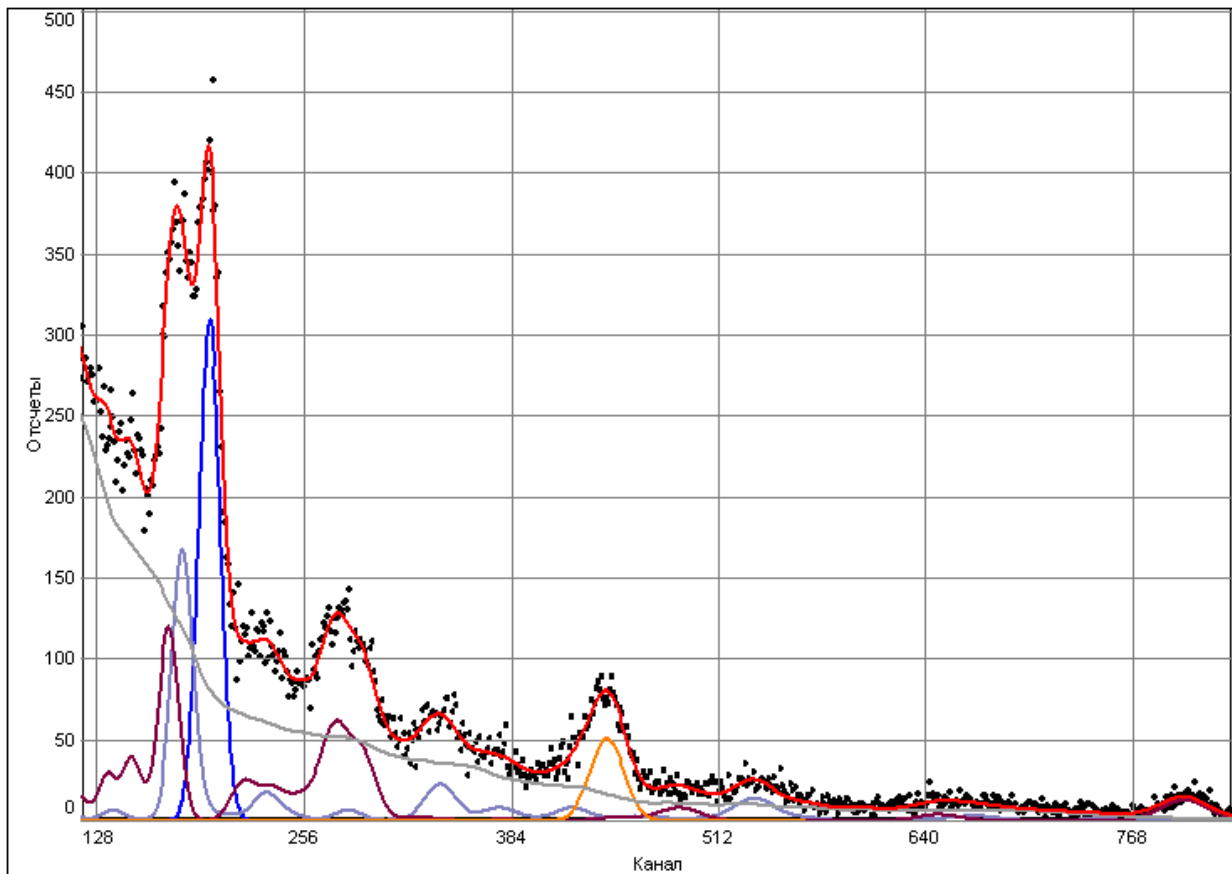


Рис.3 Расчет методом квазиэталонных спектров

8.5 Учет фона

Реализованы две процедуры вычитания фона. Естественно, что фон должен быть предварительно измерен и сохранен.

8.5.1 Поканальное вычитание фона.

Процедура заключается в коррекции отсчетов спектра пробы в каждом канале:

$$N'_i = N_i - N_i^f \cdot (t/t^f) \quad (7)$$

где

N_i - отсчеты в i -ом канале,

N'_i - скорректированные отсчеты,

N_i^f - отсчеты в фоновом спектре, пересчитанном на энергетическую градуировку пробы, т.е. предусматривается учет отличия градуировочных коэффициентов по энергии в фоновом спектре и спектре измеряемого образца,

t, t^f - времена набора спектра пробы и фонового спектра, соответственно.

Одновременно рассчитывается погрешность скорректированных отсчетов

$$(\Delta N'_i)^2 = \sqrt{N_i + N_i^f \cdot (t/t^f)}, \quad (8)$$

необходимая для корректной дальнейшей обработки спектра образца.

8.5.2 Вычитание фоновых вкладов в пики.

В этом случае проводится обработка фонового спектра. Результаты обработки, т.е. энергии фоновых линий, их площади и погрешности, сохраняются.

При расчете активности площади пиков измеряемой пробы, энергии которых совпадают в пределах *окна идентификации* с какими-то пиками фонового спектра, корректируются по формуле:

$$S'_i = S_i - S_i^f \cdot (t/t^f), \quad (9)$$

где:

S_i - площадь пика,

S'_i - скорректированная площадь пика,

S_i^f - площадь соответствующего пика в фоновом спектре,

t, t^f - времена набора спектра пробы и фонового спектра, соответственно.

Аналогично корректируются их погрешности

$$\Delta S'_i = \sqrt{(\Delta S_i)^2 + (\Delta S_i^f)^2 \cdot (t/t^f)^2}. \quad (10)$$

Как правило, процедура поканального вычитание фона используется в сцинтиляционной спектрометрии, в случае HPGe-спектрометров используется вычитание фоновых вкладов в пики. Особенно важна процедура вычитания фона в случае детекторов на основе LaBr.

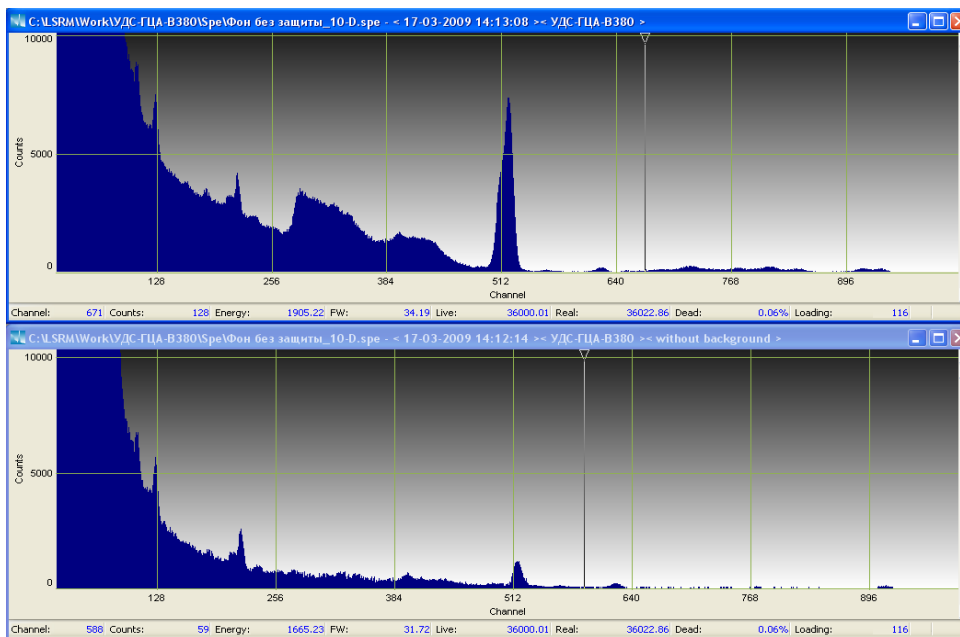


Рис 4. Фоновый спектр, измеренный на LaBr-детекторе. Внизу – вычтен собственный фон детектора.

8.6 Учет поглощения гамма-излучения в защитных слоях


Оператор имеет возможность выбрать материал и толщину защитных слоев.

Material	Width[sm]	Error[sm]
Lead	1.0	0
Iron	0.2	0
Polyethylene	3.0	0

Source is distributed in the layer

В этом случае при расчете будет автоматически учитываться поглощение в этих слоях. Может моделироваться ситуация, когда источник распределен в одном из слоев. Типичные расположения слоев могут быть сохранены в специальной базе данных по контейнерам. Оператор может создавать и редактировать базу данных.

Contol v3.0

Container mark:
 UKT-PM (container in package) 
 TK-DM (container without package)

Mark of set: UKT1V-0.5\0050
 Container mark: KT1-0.5\0050

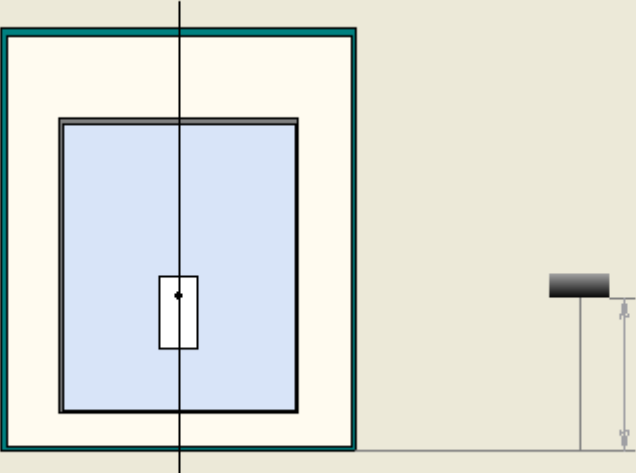
Detector position:
 9 - height from floor [cm]
 11.4 - distance from packing [cm]
 - from container
 - from axis
 0 - alfa angle[deg]

Source position:
 3 - height above cavity bottom [cm]
 4.3 - cavity height [cm]
 6 - height to cavity bottom [cm]

Container parameters:

Material	Width [cm]
Air	1.1
Lead	5.8
Non-corrosive steel	0.2
Fictitious air	3.1
Steel10	0.3

Dimensions [cm]
 R = 10.5 H = 25



Ok Cancel

8.6.1 Уточнение толщины слоя

Процедура определения толщины слоя построена на использовании критерия минимального дозового вклада неидентифицированных линий. В таблице 2 приведены значения толщины слоя, определенные с помощью этой процедуры по спектрам Eu-152 в свинцовых контейнерах типа КТ1-5,10.20.

При этом во всех случаях Eu-152 был идентифицирован.

Таблица 2 Определение толщины слоя

	КТ1-5 (t =5 мм)	КТ1-10 (t =10 мм)	КТ1-20 (t =20 мм)
HPGe	5	9	19
NaI	6	12	24

8.7 Калибровка по энергии

Реализованы процедуры калибровки по энергии полиномом до 5-й степени.

Режим копирования калибровок позволяет перенести калибровку из одного спектра в другой. Этот режим используется, если наряду со спектром неизвестного образца имеется спектр калибровочного источника известного радионуклидного состава.

Режим линеаризации энергетической шкалы позволяет преобразовать измеренный спектр в спектр с линейной калибровкой

8.8 Библиотеки радионуклидов. Идентификация по полной базе радионуклидов.

Для каждой конфигурации(8.1) может быть создана своя библиотека радионуклидов. Она может быть дополнена любым радионуклидом с использованием опций программы NuclideMaster 8.2 , поддерживающей опции работы с библиотеками радионуклидов.

При наличии в спектре неидентифицированных линий может быть подключена полная база радионуклидов и проведена дополнительная идентификация.

Дополнительная идентификация может быть проведена в следующих режимах:

- По списку идентифицированных радионуклидов. Очень часто неидентифицированные линии являются слабыми линиями радионуклидов, которых нет в пользовательской библиотеке, и которые есть в полной базе. Кроме этого, идентифицированные нуклиды анализируются на наличие дочерних радионуклидов, которые также участвуют в процедуре идентификации. На этом же этапе проводится анализ спектра на наличие пиков одиночного и двойного вылетов, пиков случайного и истинного суммирования.
- По пользовательскому списку радионуклидов. Пользовательский список радионуклидов создается на основе используемой библиотеки радионуклидов и дополняется радионуклидами, идентифицированными в процессе работы оператора.
- По полной базе данных.

Оператор, как правило, последовательно анализирует неидентифицированные линии в этих режимах.

Чтобы сократить число случаев неоднозначной идентификации, используются дополнительные критерии, такие как фильтр по значениям интенсивности, проверка энергетического спектра нуклида, фильтр по периоду полураспада и т.д.

8.8.1 Фильтр по значениям интенсивности

Фильтрация линий **по интенсивности** позволяет исключить из результатов идентификации слабые линии, интенсивность которых меньше задаваемого числа

процентов от интенсивности самой сильной линии нуклида. Могут быть использованы, как табличные значения интенсивности, так и интенсивности зарегистрированного излучения с учетом эффективности регистрации и поглощения в стенках контейнера.

8.8.2 Фильтр по периоду полураспада

Фильтр не означает простое отбрасывание радионуклидов с малым периодом полураспада. Такое отбрасывание может привести к ошибкам в идентификации, т.к. нуклид с малым периодом полураспада может находиться в цепочке долгоживущих радионуклидов. При такой фильтрации задается диапазон времен пробоотбора T_{\min} и T_{\max} и некоторое предельное значение активности A_{\max} .

Если нуклид N был идентифицирован по какой-то линии, то фильтр по периоду полураспада позволяет определить, может ли в результате распада цепочки образоваться нуклид с активностью A_N , которая определяется по найденной линии. Это позволяет убрать из анализа короткоживущие нуклиды, которые должны были распастись ко времени измерения. Проверка проводится для двух возможных периодов времени T_{\min} и T_{\max} , прошедших с момента аттестации до момента измерения. Предполагается, что если активность радионуклида на оба эти времени аттестации $A_N(T_{\min})$ и $A_N(T_{\max})$ больше A_{\max} , то нуклид N не может образоваться в результате распада такой цепочки.

8.8.3 Проверка энергетического спектра нуклида

Проверка энергетического спектра позволяет учитывать соотношения интенсивностей всех линий нуклида. Смысл проверки заключается в том, что если нуклид идентифицирован по какой-то линии, и в то же время не найдены другие, сильные линии, он исключается из списка идентифицированных нуклидов.

Реализация алгоритма состоит в следующем. Для каждой линии анализируемого радионуклида из данных спектра находится оценка площади и ее погрешности S_i , dS_i и рассчитывается нижний предел измеряемой активности

$$A_{\min} = \text{Min} \left(\frac{|S_i| + dS_i}{I_i \varepsilon(E_i)} \right) \quad (11)$$

Если для линии, соответствующей A_{\min} , в спектре существует пик, т.е. $S_{\min} > dS_{\min}$, то нуклид считается потенциально обнаруженным в спектре.

8.8.4 Совместная идентификация нескольких линий

Если предполагается, что две или более линий могут принадлежать одному нуклиду, можно использовать проверку нескольких линий одновременно или проверку любого подмножества из заданного списка линий.

8.9 Визуальное сравнение спектров

Реализовано визуальное сравнение спектров.

Спектры могут сравниваться как напрямую, так и с учетом энергетической калибровки. Предусмотрено масштабирование одного спектра относительно другого, как по вертикали, так и по горизонтали.

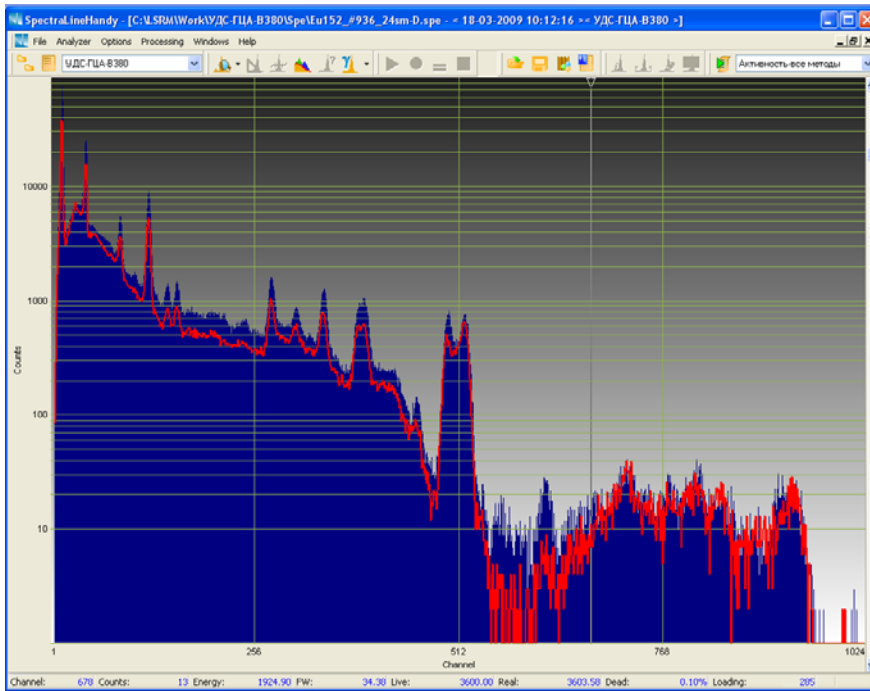


Рис.5. Сравнение двух Eu-152 спектров от LaBr-детектора.

Как правило, сравниваются спектры неизвестного образца с эталонными. Для визуального выбора эталонного спектра с использованием многооконного интерфейса может быть организован браузер.

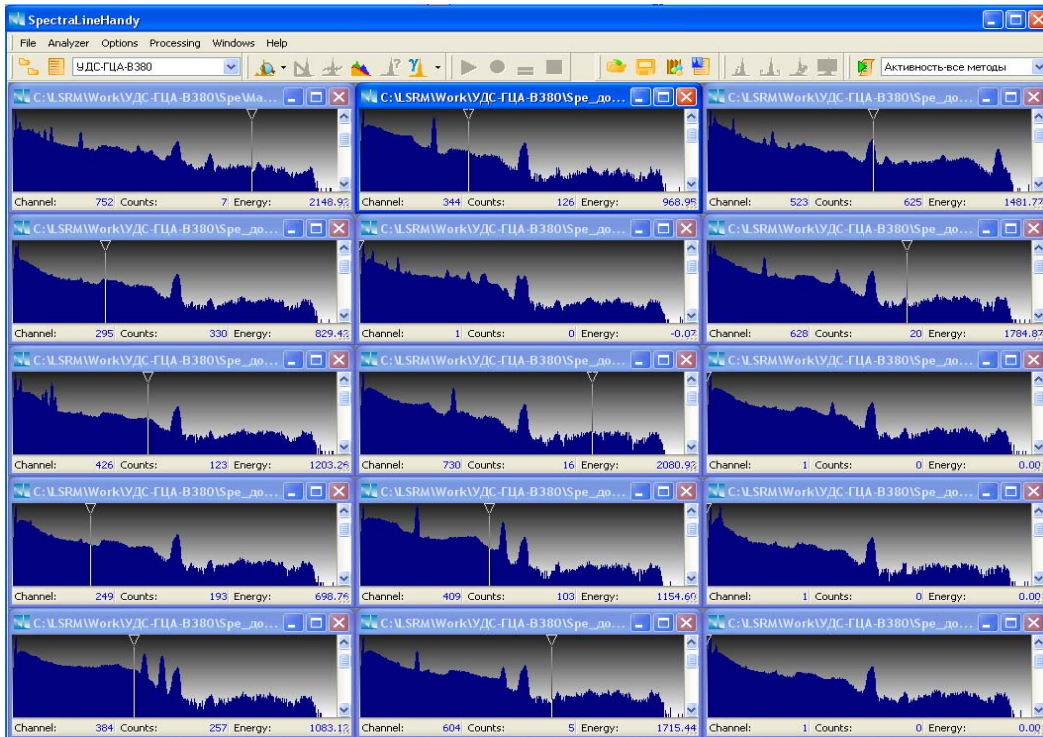


Рис 6. Браузер окна эталонных спектров.

9 Выводы

В рамках настоящей работы было разработано программное обеспечение для экспертной поддержки полевых измерений по идентификации ядерных и радиоактивных материалов **SpectraLineID**. Оно включает, как аналитические методы идентификации, так и эвристические приемы, основанные на визуальном сравнении спектров. Оно позволяет работать с детекторами различного типа как высокого, так и низкого разрешения. Разработаны количественные критерии, характеризующие успешность идентификации. Дополненное существующими продуктами

- по конвертации спектров из разных форматов (Cambio),
- по параметрам радиоактивного распада (NuclideMaster),
- по генерации спектров (GammaLab, Gamma-Spectrum Generator)

оно может быть включено в состав комплекса по экспертному программному обеспечению.

Результаты работы докладывались в [3].

Дальнейшее развитие работы связано с решением следующих задач:

- Дополнение методами определения изотопного состава урана и плутония. Наиболее актуально развитие этих методов для новых типов идентификаторов на основе HPGe-детекторов с электрическим охлаждением и LaBr, LaCl-детекторов;
- Оценка верхнего предела активности идентифицированных нуклидов в случае неизвестной матрицы источника и защитных слоев;

10 Литература

[1] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Technical and functional specifications for border monitoring equipment, Revision 1, IAEA Nuclear Security Series No1, IAEA, Vienna (2008).

[2] Tuli J. K., Evaluated Nuclear Structure Data File. A Manual for Preparation of Data Sets - National Nuclear Data Center Brookhaven National Laboratory P.O. Box 5000 Upton, New York 11973-5000 (2001).

[3] R. Arlt, M. Schrenk, A. Bacheller, G. Lasche, J. Brutscher, V. Danilenko
Field and Remote Use Identification Software for Expert Support to Law Enforcement Officers Performing Radiation Monitoring at Borders and in a Country, IEEE 2008, Dresden