

Стандартная неопределенность измерения объемной активности методом деконволюции β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с кусочно-линейной аппроксимацией их параметров

Представлен способ вычисления стандартной неопределенности измерения объемной β -активности методом деконволюции β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с кусочно-линейной аппроксимацией их параметров. Метод с описанным способом вычисления стандартной неопределенности предназначен для определения β -излучающих радионуклидов в пробах окружающей среды, в пробах биосубстратов, в технологических пробах с использованием жидкостного сцинтилляционного спектрометра с автоматическим определением параметра спектрального гашения внешнего стандарта SQP(E). Метод относится к области радиоэкологического мониторинга, охране окружающей среды, индивидуального дозиметрического контроля работников. На метод интерпретации β -спектра выдан патент Российской Федерации RU 2746412 от 04.12.2019. На основе представленного метода идентификации β -излучающих радионуклидов в пробах с описанным способом вычисления стандартной неопределенности было создано программное обеспечение Aspect-SUBI.

Ключевые слова:

стандартная неопределенность, жидкостной сцинтилляционный счетчик, программное обеспечение Aspect-SUBI, спектр, библиотека модельных спектров, радиоэкологический мониторинг, охрана окружающей среды.

В.Э.Введенский

(Южно-Уральский Институт Биофизики, Челябинская область, г. Озерск)

Результат измерения является только аппроксимацией или оценкой значения измеряемой величины и, таким образом, будет полным только в том случае, если он сопровождается указанием неопределенности этой оценки [1]. В данной статье представлен способ вычисления стандартной неопределенности измерения объемной β -активности (далее – активности) методом деконволюции β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с кусочно-линейной аппроксимацией их параметров. Метод разложения β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с полиномиальной или кусочно-линейной аппроксимацией их параметров подробно описан в [2,3]. Метод с полиномиальной аппроксимацией не рассматривается в этой статье, поскольку показал,

в среднем, большие значения стандартной неопределенности, чем метод с кусочно-линейной аппроксимацией.

В практике специалистов ЮУрИБФ существуют задачи интерпретации непрерывного β -спектра, полученного на установке Quantulus-1220: при измерении проб мочи профессиональных работников ПО «Маяк» и жителей г. Озерска, содержащих ^3H и ^{40}K , без пробоподготовки; при измерении проб воды оз. Кызылташ (промышленный водоем В-2 ПО «Маяк»), содержащих ^3H и $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, после исключения примесей и взвесей на бумажном фильтре «Синяя лента» [2].

Материалы и методы

В жидкостном сцинтилляционном препарате могут происходить процессы, приводящие к снижению доли энергии ионизирующей частицы, затрачиваемой на собственно сцинтилляционный процесс, т. е. к уменьшению квантового выхода флуоресценции, или гашению. Величина параметра спектрального гашения внешнего стандарта SQP(E) (Spectral Quench Parameter of the External Standard) характеризует гашение. Подробнее о SQP(E) (см. [4]).

Схема измерения объемной активности представлена на рис. 1. В [2,3] подробно описано построение библиотеки модельных спектров и процесс измерения объемной активности смеси радионуклидов. Цель данной работы – вычислить стандартную неопределенность объемной активности (блоки со штриховыми линиями на рис. 1).

В библиотеке спектров хранится аппроксимация функции изменения модельного спектра в зависимости от уровня гашения в виде непрерывной кусочно-линейной функции [5].

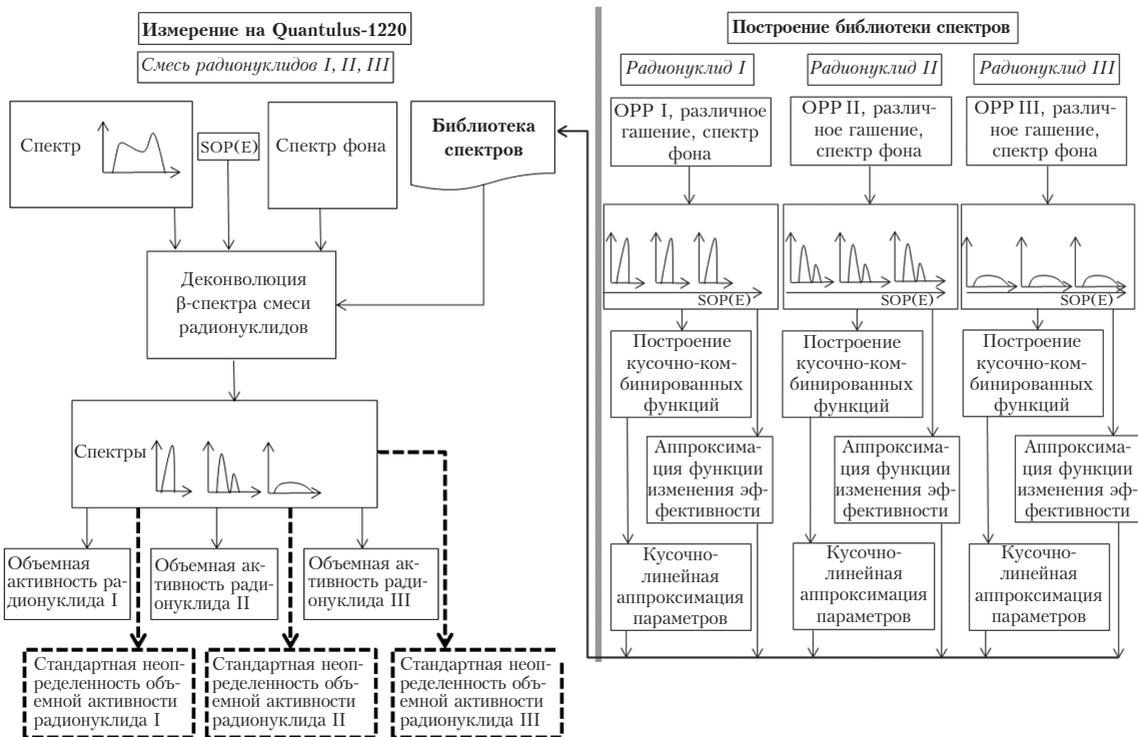


Рис. 1. Схема измерения объемной активности методом деконволюции β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с кусочно-линейной аппроксимацией их параметров. OPP – это образцовые радионуклидные растворы.

Модельный спектр для j -го радионуклида для известного гашения $g = const$ из библиотеки, хранящейся в БД, имеет вид:

$$M_{i,j}(g) = M_j(i, g) = \sum_{l=1}^L f_j^l(i, g), \quad (1)$$

$$f_j^l(i, g) = \begin{cases} \frac{S_j^l(g)\sqrt{2}}{\sqrt{\pi(\sigma_{1,j}^l(g) + \sigma_{2,j}^l(g))}} e^{\frac{-(i-\xi_j^l(g))^2}{2(\sigma_{1,j}^l(g))^2}}, & i \leq \xi_j^l(g), \\ \frac{S^{k,l}\sqrt{2}}{\sqrt{\pi(\sigma_{1,j}^l(g) + \sigma_{2,j}^l(g))}} e^{\frac{-(i-\xi_j^l(g))^2}{2(\sigma_{2,j}^l(g))^2}}, & i > \xi_j^l(g) \end{cases} \quad (2)$$

Параметры $S_j^l(g)$, $\xi_j^l(g)$, $\sigma_{1,j}^l(g)$, $\sigma_{2,j}^l(g)$ для i -й энергетической линии j -го радионуклида аппроксимируются кусочно-линейными функциями:

$$\begin{aligned} S_j^l(g) &= S_j^k \frac{g_{k+1} - g}{g_{k+1} - g_k} + S_j^{k+1} \frac{g - g_k}{g_{k+1} - g_k}, \quad g_k \leq g \leq g_{k+1}, \quad 1 \leq k < K, \\ \xi_j^l(g) &= \xi_j^k \frac{g_{k+1} - g}{g_{k+1} - g_k} + \xi_j^{k+1} \frac{g - g_k}{g_{k+1} - g_k}, \quad g_k \leq g \leq g_{k+1}, \quad 1 \leq k < K, \\ \sigma_{1j}^l(g) &= (\sigma_1)_l^k \frac{g_{k+1} - g}{g_{k+1} - g_k} + (\sigma_1)_l^{k+1} \frac{g - g_k}{g_{k+1} - g_k}, \quad g_k \leq g \leq g_{k+1}, \quad 1 \leq k < K, \\ \sigma_2(g) &= (\sigma_2)_l^k \frac{g_{k+1} - g}{g_{k+1} - g_k} + (\sigma_2)_l^{k+1} \frac{g - g_k}{g_{k+1} - g_k}, \quad g_k \leq g \leq g_{k+1}, \quad 1 \leq k < K, \end{aligned} \quad (3)$$

где: J – множество всех радионуклидов; I – множество всех каналов жидкостного сцинтилляционного спектрометра; L – множество всех энергетических линий j -го радионуклида; j – номер радионуклида; i – номер канала жидкостного сцинтилляционного спектрометра; l – номер энергетической линии j -го радионуклида; k – номер уровня гашения; g_k – уровень гашения; $S^{k,l}$ – площадь пика, [имп.]; $\xi^{k,l}$ – абсцисса центра пика; $\sigma_1^{k,l}$, $\sigma_2^{k,l}$ – параметры, определяющие форму пика; B^k – модельный спектр для спектра ОРР R^k для гашения g_k , $k \in K$.

Функция изменения эффективности измерения в зависимости от гашения библиотечного спектра j для k -го уровня гашения имеет вид:

$$E^k = \frac{1}{A_{ОРР}^k} \frac{1}{t_k} \sum_{l=1}^L S^{k,l}, \quad (4)$$

где: t_k – время набора спектра для k -го уровня гашения, [с]; S^k – площадь спектра ОРР для k -го уровня гашения, [имп.]; $A_{ОРР}^k$ – активность ОРР, введенная в пробу k -го уровня гашения, [Бк].

Аппроксимация функции эффективности измерения от уровня гашения в виде экспоненциальной функции:

$$E(g) = a \cdot e^{\left[\frac{b(g-512)+c(g-512)^2}{1} \right]}. \quad (5)$$

При измерении пробы: 1) получаем спектр $P \equiv P_i$, $i \in I$, где i – номер канала анализатора; 2) автоматически измеряется гашение $g = const$.

Из измеренного спектра P необходимо вычесть предварительно измеренный спектр фона $F \equiv F_i$, $i \in I$.

Имея модельные спектры j -го радионуклида $M_{i,j}(g)$, $i \in I, j \in J$, и минимизируя функционал (6), получаем коэффициенты θ_j , $j \in J$ вклада j -го радионуклида в спектр P' .

$$F = \sum_{i=1}^I \left(P'_i - \sum_{j=1}^J \theta_j M_{i,j}(g) \right)^2 \xrightarrow{\theta_j, j \in J, g = \text{const}} \min. \quad (6)$$

Продифференцируем $\partial F / \partial \theta_j$. После дифференцирования получим в матричном виде:

$$B \times \theta = M. \quad (7)$$

Решение:

$$\theta = B^{-1} \times M. \quad (8)$$

Активность j -го радионуклида вычисляется по формуле:

$$A_j = \frac{1}{E_j(g)} \frac{\theta_j}{t} \sum_{i=1}^I M_{i,j}(g), \quad (9)$$

где: A_j – активность j -го радионуклида в пробе, Бк; t – время набора спектра пробы, [с]; θ_j – вклад j -го радионуклида в спектр P' ; $E_j(g)$ – библиотечная эффективность измерения j -го радионуклида в зависимости от гашения g ; $M_{i,j}(g)$ – модельный спектр j -го радионуклида в i -м канале в зависимости от гашения g , [имп.].

Результаты и обсуждения

Неопределенность

Неопределенность модельного спектра. Вычислим неопределенность модельного спектра, используя [6]. Зафиксируем индексы: радионуклида – $j = \text{const}$, уровня гашения – $k = \text{const}$ (далее индексы j и k будем опускать). Индекс k соответствует серии точек для различных гашений, которые получены непосредственными измерениями при построении библиотечного спектра j .

Входной величиной являются спектры ОРР (I – множество всех каналов жидкостного сцинтилляционного спектрометра):

$$X = \{P_1, \dots, P_I\}. \quad (10)$$

Выходная величина в общем виде определяет модельные спектры $M_i(g)|_{g=g_k} \equiv B_i^k$ для соответствующих спектров ОРР (L – множество всех энергетических линий):

$$Y = \{S^1, \xi^1, \sigma_1^1, \sigma_2^1, \dots, S^L, \xi^L, \sigma_1^L, \sigma_2^L\}. \quad (11)$$

Неявный вид функциональной зависимости:

$$h(Y, X) = \begin{cases} \sum_{i=1, 1+L, 4 \cdot L, \dots, 1+L \cdot 4 \cdot n} (P_i - B_i)^2 = 0 \\ \sum_{i=2, 2+L, 4 \cdot L, \dots, 2+L \cdot 4 \cdot n} (P_i - B_i)^2 = 0 \\ \dots \\ \sum_{i=L \cdot 4, L \cdot 4+L \cdot 4 \cdot L, \dots, L \cdot 4+L \cdot 4 \cdot n} (P_i - B_i)^2 = 0 \end{cases}, \quad 4 \cdot L \cdot (n+1) \leq I, \quad i = 1, \dots, I. \quad (12)$$

где: I – множество всех каналов жидкостного сцинтилляционного спектрометра; L – множество всех энергетических линий j -го радионуклида; i – номер канала жидкостного сцинтилляционного спектрометра; l – номер энергетической линии j -го радионуклида; S^l – площадь пика l -й энерге-

тической линии, [имп.]; ξ^l – абсцисса центра пика l -й энергетической линии; σ_1^l, σ_2^l – параметры, определяющие форму пика l -й энергетической линии; B_i – модельный спектр в i -м канале; P_i – спектр ООР в i -м канале, [имп.].

Входная величина: вектор заданного спектра ООР для гашения k .

$$x = \{\hat{P}_1, \dots, \hat{P}_I\}. \quad (13)$$

Со стандартной неопределенностью:

$$u(x) = \{u(\hat{P}_1), \dots, u(\hat{P}_I)\}. \quad (14)$$

Решая уравнение (12) численным методом, получаем модельный спектр для ООР для гашения k :

$$y = \left\{ \hat{S}^1, \hat{\xi}^1, \hat{\sigma}_1^1, \hat{\sigma}_2^1, \dots, \hat{S}^L, \hat{\xi}^L, \hat{\sigma}_1^L, \hat{\sigma}_2^L \right\}. \quad (15)$$

Ковариационную матрицу U_y вычисляем по формуле (все производные вычисляются в точках $X = x$ и $Y = y$) [6]:

$$C_y U_y C_y^T = C_x U_x C_x^T, \quad (16)$$

где: C_y – матрица чувствительности размерности $4L \times 4L$, соответствующая выходной величине y ; C_x – матрица чувствительности размерности $4L \times I$, соответствующая входной величине x ; U_x – ковариационная матрица размерности $I \times I$, соответствующая входной величине x .

C_y – матрица чувствительности размерности $4L \times 4L$ имеет вид:

$$C_y = \begin{bmatrix} \partial h_1 / \partial S^1 & \dots & \partial h_1 / \partial \sigma_2^1 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \partial h_{L.4} / \partial S^1 & \dots & \partial h_{L.4} / \partial \sigma_2^L \end{bmatrix}. \quad (17)$$

C_x – матрица чувствительности размерности $4L \times I$ имеет вид:

$$C_x = \begin{bmatrix} \partial h_1 / \partial P_1 & \dots & \partial h_1 / \partial P_I \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \partial h_{L.4} / \partial P_1 & \dots & \partial h_{L.4} / \partial P_I \end{bmatrix}. \quad (18)$$

После дифференцирования матрица чувствительности C_x будет иметь вид:

$$C_x = \begin{bmatrix} 2P_1 - 2B_1 & 0 & 0 & 0 & 2P_{L.4+1} - 2B_{L.4+1} & \dots \\ 0 & 2P_2 - 2B_2 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 2P_3 - 2B_3 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & 2P_{L.4} - 2B_{L.4} & 0 & \dots \end{bmatrix}. \quad (19)$$

U_x – ковариационная матрица размерности $I \times I$, соответствующая x , имеет вид:

$$U_x = \begin{bmatrix} r(P_1, P_1)u(P_1)u(P_1) & \dots & r(P_1, P_I)u(P_1)u(P_I) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ r(P_I, P_1)u(P_I)u(P_1) & \dots & r(P_I, P_I)u(P_I)u(P_I) \end{bmatrix}, \quad (20)$$

где: $u(x)$ – стандартная неопределенность; $r(P_i, P_j)$ – корреляция между P_i и P_j .

Из принципа построения жидкостного сцинтилляционного спектрометра значения, набранные в одном канале, не влияют на соседние каналы. Это является следствием того, что один сигнал не может быть зарегистрирован в двух разных каналах, следовательно $r(P_i, P_j) = 0, i \neq j$. По определению $r(P_i, P_i) \equiv 1$. Ковариационная матрица (20) будет иметь вид:

$$U_x = \begin{bmatrix} u^2(P_1) & 0 \\ & \ddots \\ 0 & & u^2(P_l) \end{bmatrix}. \quad (21)$$

Ковариационную матрицу U_y вычисляем согласно (16) (все производные вычисляются в точках $X = x$ и $Y = y$):

$$U_y = CU_xC^T. \\ C = C_y^{-1}C_x. \quad (22)$$

Для вычисления ковариационной матрицы U_y можно использовать численные методы или воспользоваться вычислительно-устойчивым алгоритмом [6].

После вычисления матрицы U_y получаем:

$$u(\hat{S}^l, \hat{\xi}^l, \hat{\sigma}_1^l, \hat{\sigma}_2^l, \dots, \hat{S}^L, \hat{\xi}^L, \hat{\sigma}_1^L, \hat{\sigma}_2^L) \equiv (\sqrt{U_{y,1,1}}, \sqrt{U_{y,2,2}}, \dots, \sqrt{U_{y,L,4,L,4}}). \quad (23)$$

Следовательно, из (1) с учетом $M_i(g)|_{g=g_k} \equiv B_i^k$:

$$u(B_i) = \sqrt{\left(\frac{\partial \sum_{l=1}^L f^l(i)}{\partial S^l}\right)^2 u^2(\hat{S}^l) + \left(\frac{\partial \sum_{l=1}^L f^l(i)}{\partial \xi^l}\right)^2 u^2(\hat{\xi}^l) + \dots + \left(\frac{\partial \sum_{l=1}^L f^l(i)}{\partial \sigma_2^l}\right)^2 u^2(\hat{\sigma}_2^l)}, \quad (24)$$

где

$$f^l(i) = \begin{cases} \frac{\hat{S}^l \sqrt{2}}{\sqrt{\pi}(\hat{\sigma}_1^l + \hat{\sigma}_2^l)} e^{-\frac{(i-\hat{\xi}^l)^2}{2(\hat{\sigma}_1^l)^2}}, & i \leq \hat{\xi}^l \\ \frac{\hat{S}^l \sqrt{2}}{\sqrt{\pi}(\hat{\sigma}_1^l + \hat{\sigma}_2^l)} e^{-\frac{(i-\hat{\xi}^l)^2}{2(\hat{\sigma}_2^l)^2}}, & i > \hat{\xi}^l \end{cases}, l \in L. \quad (25)$$

Вычисление стандартной неопределенности для произвольной точки библиотечного спектра при использовании аппроксимации в виде непрерывной кусочно-линейной функции

Вычисленная неопределенность модельного спектра для i -го канала $u(B_i)$ на самом деле есть $u(B_i^k)$ для индекса гашения k (j и k были зафиксированы в начале параграфа), и реально мы получаем множество $\{u(B_i^k)\}, k \in K$, что соответствует значению гашения $\{g_k\}, k \in K$. Значение гашения g при измерении реального (не библиотечного спектра) не обязательно совпадет со значением гашения, взятого для построения библиотечного спектра. Поэтому необходимо использовать аппроксимацию стандартной неопределенности $u(M_i(g))$. Вид аппроксимации $u(M_i(g))$ зависит от вида аппроксимации функции изменения модельного спектра от уровня гашения. Если используется аппроксимация в виде непрерывных кусочно-линейных функций и, учитывая, что следствием $M_i(g)|_{g=g_k} \equiv B_i^k$ является $u(M_i(g))|_{g=g_k} \equiv u(B_i^k)$, можно записать:

$$u(M_i(g)) = u(M_i^m) \frac{g_{m+1} - g}{g_{m+1} - g_m} + u(M_i^{m+1}) \frac{g - g_m}{g_{m+1} - g_m}, \quad g_m \leq g \leq g_{m+1}, \quad 1 \leq m < K. \quad (26)$$

Аналогичные вычисления проводятся для всех библиотечных изотопов $j \in J$.

Неопределенность функции эффективности измерения

Стандартная неопределенность эффективности измерения в точках, которые получены непосредственными измерениями при построении библиотечного спектра j из (4):

$$u(E^k) = \sqrt{\left(\frac{\partial E^k}{\partial A_{OPP}^k} \right)^2 u^2(A_{OPP}^k) + \left(\frac{\partial E^k}{\partial t_k} \right)^2 u^2(t_k) + \sum_{l=1}^L \left[\left(\frac{\partial E^k}{\partial S^{k,l}} \right)^2 u^2(S^{k,l}) \right]}. \quad (27)$$

То же, после дифференцирования:

$$u(E^k) = \sqrt{\left(\frac{1}{(A_{OPP}^k)^2 t_k} \sum_{l=1}^L S^{k,l} \right)^2 u^2(A_{OPP}^k) + \left(\frac{1}{A_{OPP}^k t_k^2} \sum_{l=1}^L S^{k,l} \right)^2 u^2(t_k) + \sum_{l=1}^L \left[\left(\frac{1}{A_{OPP}^k t_k} \right)^2 u^2(S^{k,l}) \right]}, \quad (28)$$

где: k – индекс, соответствующий серии точек, которые получены непосредственными измерениями при построении библиотечного спектра j (опущен индекс радионуклида j), $k \in K$; $u(t_k)$ – стандартная неопределенность времени набора спектра для k -го уровня гашения (из паспорта Quantulus-1220), [с]; $S^{k,l}$ – стандартная неопределенность площади спектра *OPP* для k -го уровня гашения (из паспорта Quantulus-1220), [имп.]; A_{OPP}^k – стандартная неопределенность активности *OPP*, введенная в пробу k -го уровня гашения, [Бк].

Аппроксимация функции изменения эффективности измерения от уровня гашения представлена в виде экспоненциальной функции (5). Для вычисления неопределенности эффективности измерения для произвольного уровня гашения g необходимо вычислить стандартную неопределенность параметров экспоненциальной функции (a, b, c) из (5).

Входной величиной являются эффективности измерения в точках, которые получены непосредственными измерениями при построении библиотечного спектра j (K – множество всех точек):

$$X = \{E^1, \dots, E^k\}. \quad (29)$$

Выходной величиной являются параметры экспоненциальной функции (a, b, c) из (5):

$$Y = \{a, b, c\}. \quad (30)$$

Неявный вид функциональной зависимости:

$$h(Y, X) = \begin{cases} \sum_{k=1,4,\dots} \left(E^k - E(g) \Big|_{g=g_k} \right)^2 = 0 \\ \sum_{k=2,5,\dots} \left(E^k - E(g) \Big|_{g=g_k} \right)^2 = 0, \quad k \in K, \\ \sum_{k=3,6,\dots} \left(E^k - E(g) \Big|_{g=g_k} \right)^2 = 0 \end{cases} \quad (31)$$

где: K – множество всех точек, которые получены непосредственными измерениями при построении библиотечного спектра j ; k – индекс точки $k \in K$; $E(g)$ – аппроксимация функции изменения эффективности измерения от уровня гашения (5); g_k – измеренный уровень гашения для точки k при построении библиотечного спектра j .

Входная величина: измеренные эффективности при построении библиотечного спектра j .

$$x = \{\widehat{E}^1, \dots, \widehat{E}^K\}. \quad (32)$$

Со стандартной неопределенностью:

$$u(x) = \{u(\widehat{E}^1), \dots, u(\widehat{E}^K)\}. \quad (33)$$

Значения стандартной неопределенности для (33) получены в (28).

Решая уравнение (31) численным методом, получаем параметры конкретной экспоненциальной функции (a, b, c) :

$$y = \{\hat{a}, \hat{b}, \hat{c}\}. \quad (34)$$

Ковариационную матрицу U_y вычисляем по формуле (все производные вычисляются в точках $X=x$ и $Y=y$) [6]:

$$C_y U_y C_y^T = C_x U_x C_x^T, \quad (35)$$

где: C_y – матрица чувствительности размерности 3×3 , соответствующая выходной величине y ;

C_x – матрица чувствительности размерности $3 \times K$, соответствующая входной величине x ;

U_x – ковариационная матрица размерности $K \times K$, соответствующая входной величине x .

C_y – матрица чувствительности размерности $K \times K$ имеет вид:

$$C_y = \begin{bmatrix} \partial h_1 / \partial a & \partial h_1 / \partial b & \partial h_1 / \partial c \\ \partial h_2 / \partial a & \partial h_2 / \partial b & \partial h_2 / \partial c \\ \partial h_3 / \partial a & \partial h_3 / \partial b & \partial h_3 / \partial c \end{bmatrix}. \quad (36)$$

C_x – матрица чувствительности размерности $3 \times K$ имеет вид:

$$C_x = \begin{bmatrix} \partial h_1 / \partial E^1 \dots \partial h_1 / \partial E^K \\ \partial h_2 / \partial E^1 \dots \partial h_2 / \partial E^K \\ \partial h_3 / \partial E^1 \dots \partial h_3 / \partial E^K \end{bmatrix}. \quad (37)$$

После дифференцирования матрица чувствительности C_x будет иметь вид:

$$C_x = \begin{bmatrix} 2\widehat{E}^1 - 2t(g) & 0 & 0 & 2\widehat{E}^4 - 2t(g) & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 2\widehat{E}^2 - 2t(g) & 0 & 0 & 2\widehat{E}^5 - 2t(g) & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 2\widehat{E}^3 - 2t(g) & 0 & 0 & 2\widehat{E}^6 - 2t(g) & \dots \end{bmatrix}, \quad (38)$$

где:

$$t(g) \equiv \hat{a} \cdot e^{\left[\hat{b}(g-512) + \hat{c}(g-512)^2 \right]}. \quad (39)$$

U_x – ковариационная матрица размерности $K \times K$, соответствующая x , имеет вид:

$$U_x = \begin{bmatrix} r(E^1, E^1)u(E^1)u(E^1) & \dots & r(E^1, E^K)u(E^1)u(E^K) \\ \dots & \ddots & \dots \\ r(E^K, E^1)u(E^K)u(E^1) & \dots & r(E^K, E^K)u(E^K)u(E^K) \end{bmatrix}, \quad (40)$$

где: $u(x)$ – стандартная неопределенность; $r(E^i, E^j)$ – корреляция между E^i и E^j .

Неопределенность измерения эффективности не коррелирует попарно для различных уровней гашения $r(P_i, P_j) = 0, i \neq j$. По определению $r(E^i, E^i) \equiv 1$. Ковариационная матрица (40) будет иметь вид:

$$U_x = \begin{bmatrix} u^2(E^I) & & 0 \\ & \ddots & \\ 0 & & u^2(E^K) \end{bmatrix}. \quad (41)$$

Из формулы (35) ковариационную матрицу U_y вычисляем по формуле (все производные вычисляются в точках $X = x$ и $Y = y$):

$$\begin{aligned} U_y &= C U_x C^T \\ C &= C_y^{-1} C_x \end{aligned} \quad (42)$$

Для вычисления ковариационной матрицы U_y можно использовать численные методы или воспользоваться вычислительно устойчивым алгоритмом [6].

После вычисления матрицы U_y получаем:

$$u(\hat{a}, \hat{b}, \hat{c}) \equiv (\sqrt{U_{y,1,1}}, \sqrt{U_{y,2,2}}, \sqrt{U_{y,3,3}}). \quad (43)$$

Следовательно, из (5):

$$u(E(g)) = \sqrt{\left(\frac{\partial E(g)}{\partial a}\right)^2 u^2(\hat{a}) + \left(\frac{\partial E(g)}{\partial b}\right)^2 u^2(\hat{b}) + \dots + \left(\frac{\partial E(g)}{\partial c}\right)^2 u^2(\hat{c})}. \quad (44)$$

Продифференцировав (44), получим:

$$u(E(g)) = t(g) \sqrt{u^2(\hat{a}) + (\hat{a}(g-512))^2 u^2(\hat{b}) + (\hat{a}(g-512))^2 u^2(\hat{c})}, \quad (45)$$

где: $t(g) \equiv e^{\left[\hat{b}(g-512) + \hat{c}(g-512)^2\right]}$.

Аналогичные вычисления проводятся для всех библиотечных изотопов $j \in J$.

Неопределенность параметров θ_j

Ковариационная матрица из (8):

$$\text{cov}(\theta(g)) = \frac{\sum_{i=1}^I \left(P_i - \sum_{j=1}^J \theta_j M_{i,j}(g)\right)^2}{1024 - J} \times B^{-1}. \quad (46)$$

Стандартная неопределенность параметров θ_j , $j \in J$ типа В:

$$u(\theta_j(g)) = \sqrt{\text{cov}(\theta(g))_{j,j}}, j \in J. \quad (47)$$

Неопределенность измерения спектра

Стандартная неопределенность активности j -го радионуклида вычисляется из (9) по формуле:

$$u(A_j) = \sqrt{\left(\frac{\partial A_j}{\partial E_j}\right)^2 u^2(E_j) + \left(\frac{\partial A_j}{\partial t}\right)^2 u^2(t) + \left(\frac{\partial A_j}{\partial \theta_j}\right)^2 u^2(\theta_j) + \sum_{i=1}^I \left[\left(\frac{\partial A_j}{\partial M_{i,j}}\right)^2 u^2(M_{i,j})\right]}. \quad (48)$$

То же, после дифференцирования:

$$u(A_j(g)) = \sqrt{\left(\frac{\theta_j(g)}{(E_j(g))^2} \sum_{i=1}^I M_{i,j}(g) \right)^2 u^2(E_j(g)) + \left(\frac{\theta_j(g)}{E_j(g)t^2} \sum_{i=1}^I M_{i,j}(g) \right)^2 u^2(t) + \left(\frac{I}{E_j(g)t} \sum_{i=1}^I M_{i,j}(g) \right)^2 u^2(\theta_j(g)) + \sum_{i=1}^I \left[\left(\frac{\theta_j(g)}{E_j(g)t} \right)^2 u^2(M_{i,j}(g)) \right]} \quad (49)$$

Пример измерения пробы воды из озера Кызылташ с вычислением стандартной неопределенности методом, предложенным в данной статье, приведен на рис.2.

На рис.2 относительная стандартная неопределенность для ^3H – 8,4%, для $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ – 1,1%.

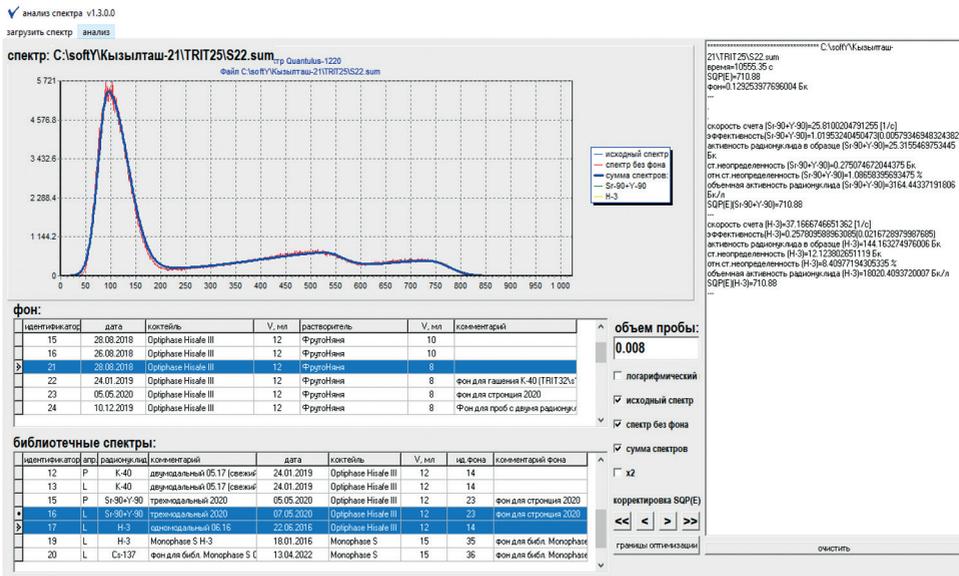


Рис.2. Пример измерения пробы воды из озера Кызылташ с вычислением стандартной неопределенности.

Заключение

В данной статье представлен способ вычисления стандартной неопределенности измерения объемной β -активности методом деконволюции β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с кусочно-линейной аппроксимацией их параметров.

Рассмотрен пример применения метода измерения β -излучающих радионуклидов в пробах с описанным способом вычисления стандартной неопределенности при измерении пробы воды оз. Кызылташ (промышленный водоем В-2 ПО «Маяк»), содержащей ^3H и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, после исключения примесей и взвесей на бумажном фильтре «Синяя лента». Относительная стандартная неопределенность для ^3H – 8,4%, для $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ – 1,1%.

Согласно представленному методу идентификации β -излучающих радионуклидов в пробах с описанным способом вычисления стандартной неопределенности было создано программное обеспечение Aspect-SUBI.

Литература

1. ГОСТ 34100.3.2-2017. Неопределенность измерения. Часть 3. Руководство по выражению неопределенности измерения.
2. Востротин В.В., Введенский В.Э. Разработка и верификация метода разложения β -спектра смеси радионуклидов на основе кусочно-комбинированных функций с полиномиальной или кусочно-линейной аппроксимацией их параметров // АНРИ. 2023. № 3(114). С. 26-44.
3. Введенский В.Э., Востротин В.В., Янов А.Ю., Финашов Л.В. Способ идентификации бета-излучающих радионуклидов в пробах с использованием жидкостного сцинтилляционного счетчика. Патент на изобретение RU 2746412.
4. L'Annunziata, F. Michael, *Handbook of radioactivity analysis*. Third edition. Imprint: Academic Press, 2012, 1379 p.
5. Джонсон Н.Л., Коц С., Балакришнан Н. Одномерные непрерывные распределения. В 2 ч., пер. 2-го англ. изд. М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2010. Ч.1. 703 с.
6. ГОСТ 34100.3.2-2017. Неопределенность измерения. Часть 3. Руководство по выражению неопределенности измерения. Дополнение 2. Обобщение на случай произвольного числа выходных величин.

Standard Uncertainty of Measurement of Volumetric β -activity
by the Method of Deconvolution of the β -spectrum of a Mixture of
Radionuclides Based on Piecewise Combined Functions with Piecewise
Linear Approximation of their Parameters

Vvedensky Vladimir (South Ural Institute of Biophysics, Chelyabinsk region, Ozersk, Russia)

Abstract. A method is presented for calculating the standard uncertainty of measuring volumetric β activity by deconvolution of the β -spectrum of a mixture of radionuclides based on piecewise combined functions with piecewise linear approximation of their parameters. The method with the described method for calculating the standard uncertainty is intended for the determination of β -emitting radionuclides in environmental samples, in biosubstrate samples, in technological samples using a liquid scintillation counter with automatic determination of the spectral attenuation parameter of the external standard SQP(E). The method relates to the field of radioecological monitoring, environmental protection, and individual radiation monitoring of workers. The method for interpreting the β -spectrum was issued a patent of the Russian Federation RU 2019139690 dated 12.04.2019. According to the presented method for identifying β -emitting radionuclides in samples with the described method for calculating the standard uncertainty, the Aspect-SUBI software was created.

Keywords: *standard uncertainty, liquid scintillation counter, Aspect-SUBI software, spectrum, library of model spectra, radioecological monitoring, environmental protection.*

В.Э.Введенский (вед. прогр.) – Южно-Уральский Институт Биофизики, Челябинская область, г. Озерск

Контакты: тел. +7 (351) 302-94-59; vvedensky@subi.su