

МИНИМАЛЬНАЯ ДЕТЕКТИРУЕМАЯ АКТИВНОСТЬ. ОСНОВНЫЕ ПОНЯТИЯ И ОПРЕДЕЛЕНИЯ

А. Г. Исаев, В. В. Бабенко, А. С. Казимиров, С. Н. Гришин, С. М. Иевлев

НПП «АтомКомплексПрибор», Киев

Рассмотрены основные понятия минимальной детектируемой активности (МДА), которые используются в низкоуровневой радиометрии ионизирующих излучений. Приведены выводы основных формул для расчета МДА и даны определения характеристик МДА, которые применяются на практике при измерениях.

Ключевые слова: доверительная вероятность, минимальная детектируемая активность, предел детектирования, скорость счета импульсов детектора, стандартная неопределенность.

Основные понятия минимальной детектируемой активности

В прикладной спектрометрии ионизирующих излучений особое место занимает проблема обнаружения, идентификации и количественной оценки радионуклидов, когда их содержание в анализируемой пробе мало. Эту проблему условно можно разделить на две части: обнаружение интересующих радионуклидов в пробе с низкой суммарной активностью и определение радионуклидов на примесном уровне в пробе с достаточно высокой активностью. Первую задачу можно сформулировать как измерение малых количеств радиоактивности на слабом фоне, а вторую задачу определить как измерение слабых активностей на сильном фоне [1]. В качестве критерия оценки чувствительности радиометрической аппаратуры (пределов обнаружения и измерения малых активностей) используют минимальную детектируемую активность (МДА^{*}).

Из многих математических выражений для МДА, являющейся метрологической характеристикой измерительной установки, можно выделить, по крайней мере, четыре разных типа МДА [2]. Для упрощения рассмотрим эти понятия МДА в выражении скоростей счета импульсов детектора и назовем их:

критический уровень или порог распознавания L_c ;

предел детектирования L_d ;

уровень не больше L_{l-t} ;

предел количественного определения L_q .

Критический уровень или порог распознавания L_c

Критический уровень или порог распознавания (Critical Level, Decision Threshold [7, 8]) применяют для анализа энергетического спектра пробы в тех случаях, когда требуется ответить на вопрос: присутствует ли в измеряемой пробе такое количество радиоактивного вещества, которое при регистрации детектором создает чистую скорость счета (за вычетом вклада фона, т. е. полезный сигнал), среднее значение которой превышает заданный уровень флуктуации фона? Критический уровень определяют как величину, кратную стандартной неопределенности фоновой скорости счета. Вероятно, такой подход является наиболее общим при определении понятия МДА.

* В данной работе выражение МДА мы будем использовать в качестве обобщенного понятия и как метрологическую характеристику измерительной установки, величина которой вычисляется по установленной формуле.

На рис. 1 показано нормальное распределение скорости счета нулевой пробы, для которой среднее значение чистой скорости счета равно нулю ($R_s = 0$), в присутствии фона со скоростью счета R_b . Величина критического уровня L_c определяется выражением

$$L_c = k\sigma_0, \quad (1)$$

где k - односторонний коэффициент, который определяет уровень доверительной вероятности для измеряемой скорости счета, и σ_0 - стандартная неопределенность (среднее квадратическое отклонение - СКО) чистой скорости счета нулевой пробы. Если выбрать $k = 1,65$, то при $R_s > L_c$ вероятность ошибки первого рода не превысит 0,05 (ошибка первого рода - принятие флуктуации фона в качестве полезного сигнала с вероятностью α ; ошибка второго рода - пропуск полезного сигнала, который принимается за флуктуацию фона с вероятностью, равной β). Если $R_s < L_c$, то можно говорить лишь о том, что общая скорость счета измеряемой пробы R_t статистически не отличается от фоновой скорости счета на уровне 0,05. Ниже приведен вывод формулы для уровня L_c через стандартную неопределенность фоновой скорости счета σ_b .

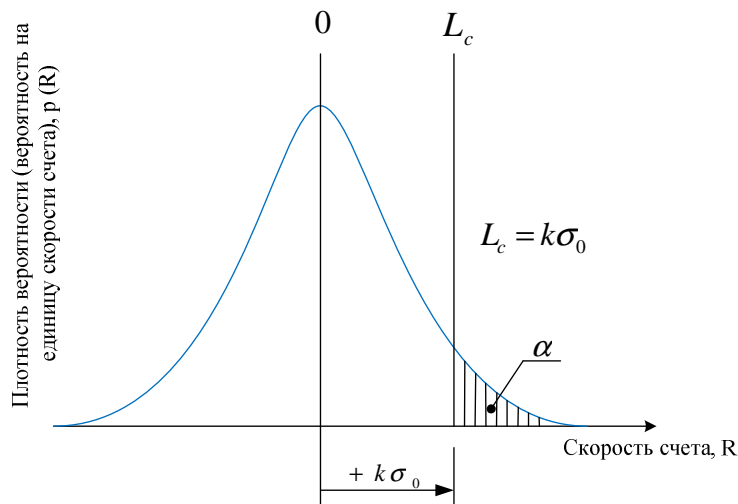


Рис. 1. Критический уровень.

Поскольку

$$R_s = R_0 = R_t - R_b = 0, \text{ то}$$

$$\sigma_0^2 = \sigma_t^2 + \sigma_b^2,$$

$$\sigma_t^2 = \frac{R_t}{T_t} = \frac{R_b}{T_t}, \quad \sigma_b^2 = \frac{R_b}{T_b},$$

$$L_c^2 = k^2 \sigma_0^2 = k^2 \left(\frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right) = k^2 R_b \frac{T_t + T_b}{T_t \cdot T_b} = k^2 \sigma_b^2 \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right),$$

$$L_c = k \sigma_b \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right)^{1/2} = k \left[\frac{R_b}{T_b} \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2},$$

где T_t и T_b - время измерения пробы и фона соответственно.

При $T_b = T_t = T$

$$L_c = k \left(\frac{2R_b}{T} \right)^{1/2}. \quad (2)$$

При $k = 1.65$

$$L_c = 2.33 \left(\frac{R_b}{T} \right)^{1/2} = 2.33 \sigma_b. \quad (3)$$

При времени измерения $T = 3600$ с $L_c \approx 0.04 \sqrt{R_b}$.

Таким образом, критический уровень применяют для качественного анализа, т. е. для проверки превышения полезным сигналом заданного уровня флуктуации фона. При этом активность интересующего радионуклида может быть обнаружена только в 50 % случаев, когда чистая скорость счета превышает критический уровень.

Предел детектирования L_d

Предел детектирования (Detection Limit [8]) используется для того, чтобы в случае его превышения чистой скоростью счета гарантировать обнаружение радионуклида в пробе с доверительной вероятностью не ниже 0,95. На рис. 2 показана связь предела детектирования с критическим уровнем, который можно представить выражением

$$L_d = L_c + k \sigma_d, \quad (4)$$

где k - снова односторонний коэффициент, определяющий уровень доверительной вероятности для чистой скорости счета; σ_d - стандартная неопределенность чистой скорости счета L_d .

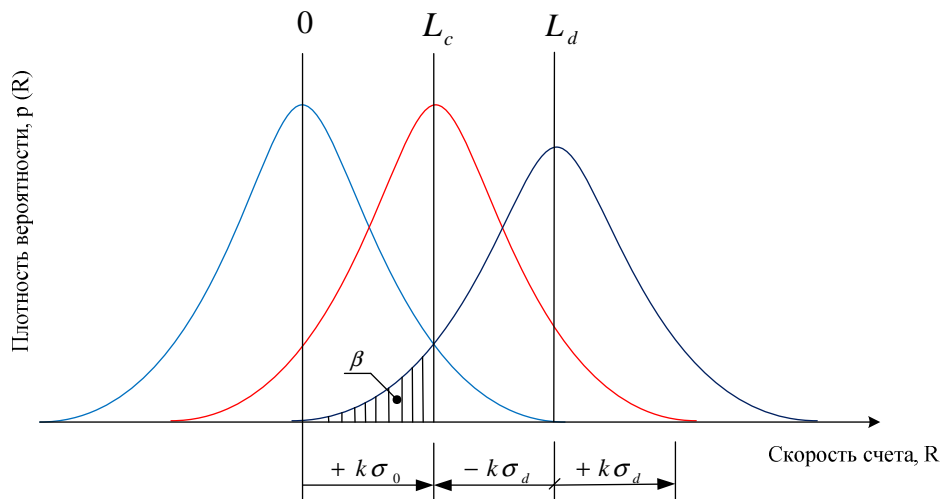


Рис. 2. Предел детектирования.

Поскольку

$$L_d = R_d = R_t - R_b, \quad \text{то}$$

$$\sigma_d^2 = \sigma_t^2 + \sigma_b^2,$$

$$\sigma_d^2 = \frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} = \frac{R_d + R_b}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} = \frac{L_d}{T_t} + \frac{R_b(T_t + T_b)}{T_t \cdot T_b},$$

$$L_d = L_c + k \left[\frac{L_d}{T_t} + \sigma_b^2 \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2},$$

$$(L_d - L_c)^2 = k^2 \left[\frac{L_d}{T_t} + \sigma_b^2 \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right],$$

$$\begin{aligned}
 L_d^2 - 2L_d \cdot L_c + L_c^2 &= k^2 \frac{L_d}{T_t} + k^2 \sigma_b^2 \left(1 + \frac{T_b}{T_t}\right) = k^2 \frac{L_d}{T_t} + L_c^2, \\
 L_d - 2L_c &= k^2 \frac{1}{T_t}, \\
 L_d &= \frac{k^2}{T_t} + 2L_c, \\
 L_d &= \frac{k^2}{T_t} + 2k\sigma_b \left(1 + \frac{T_b}{T_t}\right)^{1/2}, \\
 L_d &= \frac{k^2}{T_t} + 2k \left[\frac{R_b}{T_b} \left(1 + \frac{T_b}{T_t}\right) \right]^{1/2}. \tag{5}
 \end{aligned}$$

При $T_t = T_b = T$

$$L_d = \frac{k^2}{T} + 2k \left(2 \frac{R_b}{T}\right)^{1/2}. \tag{6}$$

При $k=1,65$

$$L_d = \frac{2.72}{T} + 4.66 \left(\frac{R_b}{T}\right)^{1/2}. \tag{7}$$

Заметим, что даже если $\sigma_b = 0$, т. е. при $R_b = 0$, предел детектирования L_d имеет ненулевое значение.

Обычно первым членом в правой части выражения (7) можно пренебречь и в упрощенном виде записать выражение для предела детектирования, которое в литературе известно под названием *нижний предел детектирования LLD* (Lower Limit of Detection [9]).

$$L_d = 4.66 \left(\frac{R_b}{T}\right)^{1/2} = 4.66 \sigma_b. \tag{8}$$

При $T = 3600$ с $L_d \approx 0.08 \sqrt{R_b}$.

Уровень не больше L_{l-t}

Мы рассмотрели *критический уровень* для ответа на вопрос, имеется ли статистическое отличие измеренной чистой скорости счета от фона, и определили *предел детектирования*, который нужно превзойти, чтобы гарантировать с вероятностью 0,95 наличие радионуклида в пробе. Однако не сказали о количестве радиоактивного вещества, которое могло бы присутствовать в пробе, но в результате измерений осталось необнаруженным. Другими словами, измеренная скорость счета оказалась меньше критического уровня L_c . Уровень *не больше* L_{l-t} (Less-Than Level [2]) определяется как *максимальная* чистая скорость счета импульсов детектора, которую мог бы создать радионуклид, находящийся в пробе, если измеренная скорость счета R_s оказалась меньше критического уровня.

Математическое выражение для L_{l-t} выглядит следующим образом:

$$L_{l-t} = R_s + k\sigma_s. \tag{9}$$

В отдельном случае, когда мы измеряем нулевую пробу, т.е. когда чистая скорость счета равна нулю,

$$L_{l-t} = k\sigma_0 = L_c.$$

В общем случае L_{l-t} находится где-то между значениями L_c и L_d . Заметим, что из-за статистической природы регистрируемых событий возможен вариант, когда $R_s < 0$. При этом L_{l-t} будет меньше L_c , а при достаточно большом отрицательном значении R_s может стать даже меньше нуля.

В выражении скоростей счета

$$L_{l-t} = R_s + k \left(\frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right)^{1/2}. \quad (10)$$

Если $T_t = T_b = T$, то можно записать практическое выражение для L_{l-t} :

$$L_{l-t} = R_s + k \left(\frac{R_t + R_b}{T} \right)^{1/2}. \quad (11)$$

Предел количественного определения L_q

В соответствии с принятой концепцией в литературных источниках [3 - 6] МДА определяется наименьшей чистой скоростью счета, обусловленной присутствием радионуклида в пробе, которая может быть измерена с установленной пользователем относительной статистической неопределенностью (статистической составляющей погрешности измерения). Такой подход к МДА можно назвать пределом количественного определения (Determination Limit) и представить как

$$L_q = f_q k \sigma_q, \quad (12)$$

где k - двухсторонний доверительный коэффициент, приводящий результат измерения к определенной доверительной вероятности; f_q - величина, обратная относительной статистической неопределенности δ_{st} , которую пользователь устанавливает по своему усмотрению. Наличие данного коэффициента позволяет при анализе спектра гамма-излучения регулировать чувствительность к поиску пиков полного поглощения (ППП). ППП отдельных радионуклидов, для которых статистическая неопределенность выше установленной пользователем величины, в расчете активности не участвуют, и для данных радионуклидов рассчитывается МДА [10].

Ниже представлен вывод формулы для предела количественного определения L_q :

$$L_q = f_q k \sigma_q = f_q k \left(\frac{R_q + R_b}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right)^{1/2}.$$

Поскольку $R_q = L_q$, то

$$\begin{aligned} L_q &= f_q k \left[\frac{L_q}{T_t} + \frac{R_b(T_t + T_b)}{T_t \cdot T_b} \right]^{1/2}, \\ L_q &= f_q k \left[\frac{L_q}{T_t} + \sigma_b^2 \left(1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2}. \end{aligned} \quad (13)$$

Решая уравнение (13) относительно L_q , имеем

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T_t} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{4T_t \sigma_b^2 (T_t + T_b)}{k^2 f_q^2} \right]^{1/2} \right\} \quad (14)$$

или в выражении скорости счета

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T_t} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{4T_t R_b (T_t + T_b)}{k^2 f_q^2 T_b} \right]^{1/2} \right\}. \quad (15)$$

На практике $T_t = T_b = T$, поэтому выражение (15) приобретает вид

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T} \left[1 + \left(1 + \frac{8R_b T}{k^2 f_q^2} \right)^{1/2} \right]. \quad (16)$$

Если выбрать $k = 2$, что соответствует доверительной вероятности 0,95, задаться $f_q = 2$ (это соответствует значению относительной статистической неопределенности, равному 0,5) и пренебречь единицами в правой части выражения (16), получим упрощенное выражение для предела количественного определения

$$L_q = 4 \left(\frac{2R_b}{T} \right)^{1/2} \approx 5.66 \left(\frac{R_b}{T} \right)^{1/2} = 5.66 \sigma_b.$$

При $T = 3600$ с $L_q \approx 0.1 \sqrt{R_b}$.

Определения МДА

В практической спектрометрии ионизирующих излучений для оценки нижнего предела измеряемой активности используют следующие величины:

1. *Минимальная измеряемая активность (МИА)* – это наименьшая активность радионуклида в измеряемой пробе (объекте), которую на данной установке с помощью данного метода анализа аппаратного спектра энергий излучения можно определить за установленное время так, чтобы статистическая неопределенность чистой скорости счета в установленном доверительном интервале (обычно 95 %) не превышала заданного значения. Систематическую погрешность МИА, как правило, не учитывает. В зависимости от условий и параметров измерения МИА представляет собой, по существу, нижнюю динамическую границу диапазона измерения активности, для которой должны выполняться требования к допускаемой погрешности измерения.

Значение МИА на пробу для данного радионуклида в условиях постоянного фона при доверительной вероятности $P = 0,95$ рассчитывается по формуле [6]

$$МИА \text{ (Бк)} = \frac{3 \left(\frac{R_b}{T} \right)^{1/2}}{\varepsilon \cdot Y \cdot \delta_{st}}, \quad (17)$$

где ε - абсолютная эффективность регистрации для данного радионуклида в выбранной геометрии измерения; Y - выход данного вида излучения при каждом акте распада интересующего радионуклида; $\delta_{st} = \frac{1}{f_q}$ - заданная пользователем относительная статистическая неопределенность чистой скорости счета для данного радионуклида.

Расчет МИА обычно выполняют из фонового спектра для оценки чувствительности спектрометрической установки, поэтому такую характеристику можно отнести к задаче определения низких активностей на слабом фоне.

2. *Нижний предел детектирования LLD (Lower Limit of Detection)* – это наименьшая активность *одного* радионуклида в пробе [9, 11], создающая в детекторе такую чистую ско-

рость счета, которая позволяет определить активность данного радионуклида с доверительной вероятностью 0,95. Формула для вычисления LLD следующая:

$$LLD (Bк) = \frac{4.66 \sqrt{\frac{R_b}{T}}}{\varepsilon \cdot Y} . \quad (18)$$

Величина LLD должна указываться для тех радиометрических установок, с помощью которых выполняется контроль непревышения допустимых уровней содержания радионуклидов в объектах окружающей среды и продуктах питания.

Значение нижнего предела детектирования находят путем статистического анализа энергетического спектра фоновой пробы, поэтому LLD так же, как и MIA , относится к задаче определения низких активностей на слабом фоне.

3. *Минимальная детектируемая активность MDA (Minimum Detectable Activity)* - это максимальная активность данного радионуклида, который мог бы присутствовать в пробе, но в результате анализа спектра этой пробы при заданных параметрах анализа остался необнаруженным. Значение MDA определяется “мешающим” фоновым пьедесталом (включая комптоновский фон) в энергетическом интервале или зоне пика интересующего радионуклида и коэффициентами, устанавливающими доверительную вероятность и статистическую неопределенность полезного сигнала. Расчет MDA можно выполнить из спектра пробы с любой суммарной активностью, поэтому такая характеристика полезна при определении низких активностей на слабом и сильном фоне. В выходных протоколах MDA всегда сопровождается значком < (меньше). Формула для расчета MDA [9, 10] следующая:

$$MDA (Bк) = \frac{k \cdot f_q}{\varepsilon \cdot Y \cdot T} \left[\left(2R_b \cdot T + \frac{f_q^2}{4} \right)^{1/2} + \frac{f_q}{2} \right], \quad (19)$$

где k - коэффициент, устанавливающий доверительную вероятность ($k = 2$ для $P = 0,95$).

Если пренебречь членами в квадратных скобках, содержащими f_q , что допустимо в практике измерений, и выбрать $k = 2$ и $f_q = 2$ ($\delta_{st} = 0,5$), формула (19) для фонового спектра преобразуется к виду

$$MDA \approx \frac{4\sqrt{2}}{\varepsilon \cdot Y} \sqrt{\frac{R_b}{T}} . \quad (20)$$

Заключение

Все рассмотренные характеристики чувствительности радиометрических установок, позволяющие оценить их пригодность к измерению малых активностей, полезны для применения в практике радиометрии, поскольку каждая из них выполняет вполне определенную роль.

Минимальная измеряемая активность MIA означает наименьшую активность радионуклида в пробе, которая может быть измерена на данной спектрометрической установке за установленное время с заданной статистической погрешностью при доверительной вероятности 0.95. Вводимое значение случайной погрешности должно быть меньше предела допустимой погрешности измерения на данной установке, поскольку последняя дополнительно включает в себя погрешность градуировки и другие источники погрешности.

Нижний предел детектирования LLD определяется минимальной активностью, которая может быть обнаружена с доверительной вероятностью 0,95 при добавлении в пробу только одного интересующего радионуклида. Пользователь, выполняющий измерения на радиометрической установке, должен быть уверен, что полученные в результате анализа значения LLD будут ниже допустимых уровней, указанных в регулирующих документах.

Минимальная детектируемая активность *MDA* зависит от фоновой подставки в зоне интересующего радионуклида и от вводимой пользователем относительной статистической погрешности для расчета максимальной активности радионуклида, который мог бы присутствовать в пробе, но остался необнаруженным.

Для одной и той же радиометрической установки и одинаковой геометрии измерения при анализе спектров, приближающихся к фоновому, *MDA*, *LLD* и *MIA* будут иметь разные значения, поскольку подходы и формулы для их расчета отличаются.

Если для определения содержания какого-либо радионуклида в пробе используют несколько принадлежащих ему ППП (активность определяется как средневзвешенная величина), то расчет *MDA* для данного радионуклида выполняют только для одной гамма-линии с наилучшими показателями, такими как наибольший квантовый выход, высокая эффективность регистрации, наименьший вклад фона, надежная изолированность от мешающих линий и т. д.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Брегадзе Ю.И., Степанов Э.К., Ярына В.П. Прикладная метрология ионизирующих излучений. М.: Энергоатомиздат, 1990.
2. Lochamy J.C. The Minimum Detectable Activity Concept. EG&G ORTEC Systems Application Studies, PSD No. 17, September 1981.
3. Hartwell J.K. Detection Limits for Radioisotopic Counting Techniques. ARH-2537, June 22, 1972.
4. Currie L.A. Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination // Anal. Chem. - 1968. - Vol. 40, No. 3 - P. 586 - 693.
5. Altshuler B., Pasternak B. Statistical Measurements of the Lower Limit of Detection of a Radioactivity Counter // Health Physics. - 1963. - Vol. 9. - P. 293 - 298.
6. Бабенко В.В., Казимиров А.С., Рудык А.Ф. Проблемы определения малых активностей / НПП «АтомКомплексПрилад» АКП-2-98. - К., 1998.
7. Каденко Г.М., Мелешин А.Ю. Рівні детектування в ядерно-фізичному експерименті // Укр. фіз. журн. - 2001. - Т. 46, № 8.
8. International Standard ISO 11929-3. Determination of the detection limit and decision threshold for ionizing radiation measurements. – Part 3.
9. W. H. Zimmer. LLD versus MDA. EG&G ORTEC Systems Application Studies, PSD No. 14, March 1980.
10. W. H. Zimmer. Analytical Software – Minimum Detectable Activity and Peaked Background Correction. EG&G ORTEC Systems Application Studies, PSD No. 4, December 1977.
11. Spectrum Analysis / Canberra Industries, <http://www.canberra.com/literature/935.asp>.

МІНІМАЛЬНА АКТИВНІСТЬ, ЩО ДЕТЕКТУЄТЬСЯ. ОСНОВНІ ПОНЯТТЯ ТА ВИЗНАЧЕННЯ

А. Г. Исаев, **В. В. Бабенко**, О. С. Казимиров, С. М. Гришин, С. М. Иевлев

Розглянуто основні поняття мінімальної активності, що детектується (МДА), які використовують у низькорівневій радіометрії іонізуючих випромінювань. Наведено виведення основних формул для розрахунку МДА, а також надано визначення характеристик МДА, що застосовуються в практиці вимірювань.

Ключові слова: довірна ймовірність, мінімальна активність, що детектується, межа детектування, швидкість лічби імпульсів детектора, стандартна невизначеність.

THE MINIMUM DETECTABLE ACTIVITY. MAIN CONCEPTS AND DETERMINATIONS

A. G. Isayev, **V. V. Babenko**, O. S. Kazimirov, S. M. Grishin, S. M. Ievlev

Main concepts for minimum detectable activity (MDA) used in low-level radiation counting and spectrometry are viewed. Basic formulas derivation for counting MDA is represented and definitions for MDA applied in measurement practice are cited as example.

Keywords: confidence probability, minimum detectable activity, detection limit, count rate, standard uncertainty.

Поступила в редакцію 08.02.10