

Методика определения выходов ядерных реакций по спектрам гамма-активности

НИИЯФ МГУ, ОЭПВАЯ, 2010 г.

30 марта 2010 г.

В этом руководстве описывается процесс обработки результатов эксперимента по гамма-активации на примере реакций (γ, n) , (γ, p) , происходящих на ядрах естественной смеси изотопов палладия. Эксперимент по облучению образца палладия проводился в НИИ-ЯФ. Облучение тормозными фотонами производилось на разрезном микротроне РТМ-70, на выходной трубе которого была закреплена свинцовая тормозная мишень с алюминиевым поглотителем. Толщина свинца — 3 мм, толщина поглотителя — 32 мм. Образец был прикреплен к задней кромке поглотителя так, что он располагался в области, перекрываемой пучком электронов. Размеры этой области были установлены с помощью стеклянной пластинки, перед экспериментом облученной в пучке. Важно отметить, что поперечный размер пучка был в несколько раз больше площади образца, из чего следует, что образец полностью находился в пучке генерируемых фотонов. Облучение на энергии электронов 30 МэВ продолжалось около 3 часов, причем за это время пучок несколько раз прерывался. Чтобы учесть изменение интенсивности пучка электронов, записывался средний ток пучка, для чего во время облучения со встроенной в тормозную мишень ионизационной камеры снималось напряжение и с помощью АЦП записывалось на ПК в пультовой комнате. Приблизительно через 10 минут после облучения образец был перенесен в камеру детектора, и началось измерение спектров. Поскольку активность в образце была невелика, в камере он находился вплотную к окну детектора. Измерение спектров продолжалось в течение примерно 3-х недель. Затем через месяц была проведена повторная серия измерений спектров распадов долгоживущих ядер, образовавшихся в образце. Всего было измерено 1609 спектров. В первые 20 минут каждое измерение продолжалось 60 секунд, следующие 20 минут каждое измерение продолжалось по 300 секунд, далее в течение 80 минут измерения по 600 секунд, затем в течение 2 часов измерения по 900 секунд, а все последующие измерения делались с периодом 1800 секунд, то есть 0,5 часа. Как уже было сказано, активность облученного образца даже в первое время после облучения была небольшой. Живое время в первом спектре 59,53 сек (из 60), и в дальнейшем оно только увеличивалось.

Определение параметров образца

Для анализа полученных из опыта данных необходимо прежде всего определить свойства изучаемого образца палладия. Образец представлял собой тонкую пластинку неправильной формы. С помощью лабораторных весов была измерена масса образца, ее значение — 0,214 г. Для того, чтобы определить площадь образца, было сделано изображение на фоне миллиметровой бумаги (рис. 1).

По шкале была найдена полная площадь изображения — 616 ± 7 мм². Образец занимает на картинке 0,0766 всей площади, из чего следует, что его площадь равна $47,1 \pm 0,5$ мм².

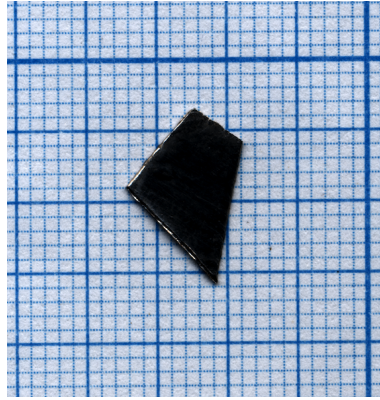


Рис. 1. Облученный образец Pd.

Табличное значение плотности палладия $12,05 \text{ г/см}^3$. Используя это значение, можно получить толщину образца — $377 \pm 4 \text{ мкм}$.

Ядерные реакции и распады в образце

Для того, чтобы определить, какие ядра образуются в образце в результате фотоядерных реакций, была создана программа *Photonuclear process threshold*, которая доступна через интернет по адресу <http://depni.sinp.msu.ru/~hatta/activation-beta>. Задав состав облучаемого образца и энергию пучка электронов, с ее помощью можно получить список фотоядерных реакций с вылетом одного или нескольких нуклонов, пороги этих реакций и оценочные значения их выходов. Кроме этого программой строится схема распадов образовавшихся ядер, в которой отражены также метастабильные состояния.

Если выбрать в качестве исходного ядра все изотопы природного палладия (см. табл. 1), то при энергии верхней границы тормозного спектра 30 МэВ возможны десятки разных реакций. В частности на ядрах ^{102}Pd и ^{104}Pd происходят фотонуклонные реакции с образованием ^{101}Rh . Пики от распада ядер этой цепочки являются наиболее интенсивными в первые дни измерения спектров, и анализ сложной схемы распадов будет поучительным примером, на котором видны особенности методики обработки данных.

Изотоп	Процентное содержание	Реакция	Порог, МэВ
^{102}Pd	1,02%	$^{102}\text{Pd}(\gamma, n)^{101}\text{Pd}$	10,57
^{104}Pd	11,14%	$^{102}\text{Pd}(\gamma, p)^{101}\text{Rh}$	7,81
^{105}Pd	22,33%	$^{104}\text{Pd}(\gamma, 3n)^{101}\text{Pd}$	24,92
^{106}Pd	27,33%	$^{104}\text{Pd}(\gamma, 2n1p)^{101}\text{Rh}$	25,41
^{108}Pd	26,46%		
^{110}Pd	11,72%		

Таблица 1. Состав естественной смеси изотопов палладия. Реакции на ^{102}Pd и ^{104}Pd , приводящие к образованию ядер с $A = 101$.

В спектре возбужденных состояний ^{101}Rh есть уровень 157,32 кэВ ($J^P = \frac{9}{2}^+$), период полураспада которого равен 4,34 дня. Часть схемы распадов, которые приводят к образованию этого состояния, показана на рис. 2. Это изомерное состояние может образовываться тремя способами: из распада ^{101}Pd , из реакции $^{102}\text{Pd}(\gamma, p)^{101m}\text{Rh}$ и из реакции $^{104}\text{Pd}(\gamma, 2n1p)^{101m}\text{Rh}$. На схеме приведены также периоды полураспада ядер, и реакции, в результате которых эти ядра образуются в эксперименте.

Pd 100 3,7 d	Pd 101 8,47 h	Pd 102 1,020	Pd 103 16,96 d	Pd 104 11,14	Pd 105 22,33	Pd 106 27,33	Pd 107 21,3 s	Pd 108 26,46	Pd 109 4,69 m	Pd 110 11,72	P
Rh 99 4,7 h	Rh 100 16 d	Rh 101 4,4 d	Rh 102 3,3 a	Rh 103 2,9 a	Rh 104 206 d	Rh 105 56,1 m	Rh 106 100	Rh 107 4,4 m	Rh 108 42 s	Rh 109 45 s	R
Ru 98 1,88	Ru 99 12,7	Ru 100 12,6	Ru 101 17,0	Ru 102 31,6	Ru 103 39,35 d	Ru 104 18,7	Ru 105 4,4 h	Ru 106 368 d	Ru 107 3,8 m	Ru 108 4,5 m	R
Tc 97 91 d	Tc 98 4,2 · 10 ⁶ a	Tc 99 6,0 h	Tc 100 15,8 s	Tc 101 14,2 m	Tc 102 4,3 m	Tc 103 54,2 s	Tc 104 18,2 m	Tc 105 7,6 m	Tc 106 36 s	Tc 107 21 s	T
Mo 96 16,68	Mo 97 9,55	Mo 98 24,13	Mo 99 66,0 h	Mo 100 9,63	Mo 101 14,6 m	Mo 102 11,2 m	Mo 103 67,5 s	Mo 104 1,0 m	Mo 105 36,7 s	Mo 106 8,2 s	M
Nb 95	Nb 96	Nb 97	Nb 98	Nb 99	Nb 100	Nb 101	Nb 102	Nb 103	Nb 104	Nb 105	N

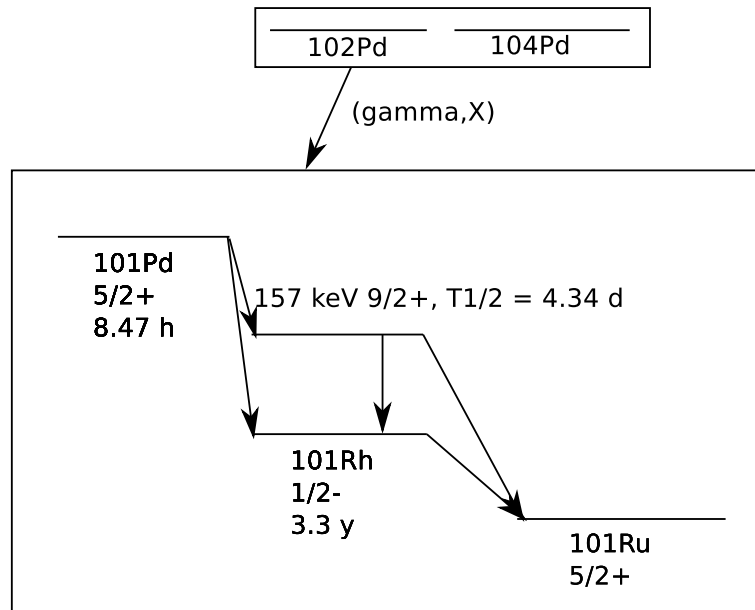


Рис. 2. Схема распадов ядер, образуемых в реакциях на ^{102}Pd и ^{104}Pd .

Введем обозначения, которыми будем пользоваться в дальнейшем. Число ядер ^{101}Pd в образце обозначим N_1 , число ядер ^{101}Rh в основном состоянии обозначим N_2 , наконец, число ядер ^{101}Rh в изомерном состоянии 157,32 кэВ обозначим N_3 . Сделав это, мы можем записать систему уравнений, описывающих изменение количества ядер трех типов во время и после облучения.

$$\begin{cases} dN_1 = -\lambda_1 N_1 dt + Y_1 dt \\ dN_2 = -\lambda_2 N_2 dt + k_1 \lambda_1 N_1 dt + k_3 \lambda_3 N_3 dt + Y_2 dt \\ dN_3 = -\lambda_3 N_3 dt + k'_1 \lambda_1 N_1 dt + Y_3 dt \end{cases} \quad (1)$$

Здесь $\lambda_{1,2,3}$ — постоянные распада, $k_1 = 0,72\%$ — вероятность распада ^{101}Pd в основное состояние ^{101}Rh , $k'_1 = 1 - k_1$ — вероятность распада ^{101}Pd в изомерное состояние ^{101}Rh , $k_3 = 7,2\%$ — вероятность перехода изомерного состояния ^{101}Rh в основное (с вероятностью 92,8% изомерное состояние распадается в ^{101}Ru посредством бета-распада), а $Y_{1,2,3}$ — суммарные выходы ядерных реакций, в которых образуются эти ядра. Выход реакции с сечением $\sigma(E)$ будет определяться следующей формулой:

$$Y(t) = f \frac{d\rho}{\mu} N_A \frac{I_e(t)}{e} N_\gamma \int_0^{E_{max}} \sigma(E) \nu(E) dE. \quad (2)$$

Здесь d — толщина образца,

f — процентное содержание ядер данного изотопа в веществе,

ρ — его плотность,

N_A — число Авогадро,

μ — молярная масса,

I_e — ток пучка электронов в момент времени t ,

N_γ — среднее число тормозных фотонов, попадающих на образец, в пересчете на один электрон,

$\nu(E)$ — нормированный на единицу спектр тормозных фотонов (приходящихся на образец).

Каждое уравнение системы 1 может быть решено отдельно, если его записать в общем виде:

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i N_i(t) + f(t). \quad (3)$$

В этом случае решение записывается в виде

$$N_i(t) = e^{-\lambda_i t} \left(\int f(t) e^{\lambda_i t} dt + C_i \right). \quad (4)$$

Приведем здесь решения каждого из уравнений системы 1 в двух случаях: первый соответствует периоду облучения образца, когда $Y_i > 0$, второй соответствует второму этапу эксперимента, то есть измерению спектров, когда выходы реакций отсутствуют.

При этом мы зафиксируем момент времени T_0 , который соответствует моменту окончания облучения. С точностью до 1 секунды в шкале MJD TT $T_0 = 55176,603004$. Все времена в последующем анализе отсчитываются от этого момента.

а) Накопление и распад ^{101}Pd . Накопление ядер ^{101}Pd во время облучения будет описываться следующей формулой:

$$N_1(t) = e^{-\lambda_1 t} \int_0^t I_e(\tau) y_1 e^{\lambda_1 \tau} d\tau. \quad (5)$$

Распадается ^{101}Pd по обычному экспоненциальному закону:

$$N_1(t) = N_{10} e^{-\lambda_1 t}. \quad (6)$$

б) Накопление и распад ^{101}Rh в изомерном состоянии. Во время облучения:

$$N_3(t) = e^{-\lambda_3 t} \int_0^t (I_e(\tau) y_3 + k'_1 \lambda_1 N_1(\tau)) e^{\lambda_3 \tau} d\tau. \quad (7)$$

Во время измерения:

$$N_3(t) = \left(N_{30} - \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1} \right) e^{-\lambda_3 t} + \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t}. \quad (8)$$

в) Накопление и распад ^{101}Rh в основном состоянии. Во время облучения:

$$N_2(t) = e^{-\lambda_2 t} \int_0^t (I_e(\tau) y_2 + k_1 \lambda_1 N_1(\tau) + k_3 \lambda_3 N_3(\tau)) e^{\lambda_2 \tau} d\tau. \quad (9)$$

Во время измерения:

$$N_2(t) = \frac{C_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{C_3}{\lambda_2 - \lambda_3} e^{-\lambda_3 t} + \left(N_{20} - \frac{C_1}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{C_3}{\lambda_2 - \lambda_3} \right) e^{-\lambda_2 t}, \quad (10)$$

где $C_1 = k_1 \lambda_1 N_{10} + \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1}$, а $C_3 = N_{30} - \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1}$.

Формулы 6, 8 и 10 описывают изменение числа интересующих нас ядер во время измерения, то есть, когда $I_e = 0$. Однако сами эти величины непосредственно не наблюдаются, поскольку площадь пиков в спектрах пропорциональна числу распадов за период измерения спектра, то есть величине

$$A_i(t_1, t_2) = \int_{t_1}^{t_2} \lambda_i N_i(t) dt. \quad (11)$$

Запишем, чему будет равна эта величина для распада всех трех ядер:

$$A_1(t_1, t_2) = N_{10}(e^{-\lambda_1 t_1} - e^{-\lambda_1 t_2}),$$

$$A_2(t_1, t_2) = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{C_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t_1} - e^{-\lambda_1 t_2}) + \frac{\lambda_3}{\lambda_1} \frac{C_3}{\lambda_2 - \lambda_3} (e^{-\lambda_3 t_1} - e^{-\lambda_3 t_2}) + \left(N_{20} - \frac{C_1}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{C_3}{\lambda_2 - \lambda_3} \right) (e^{-\lambda_2 t_1} - e^{-\lambda_2 t_2}), \quad (12)$$

$$A_3(t_1, t_2) = \left(N_{30} - \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1} \right) (e^{-\lambda_3 t_1} - e^{-\lambda_3 t_2}) + \frac{\lambda_1}{\lambda_3} \frac{k'_1 \lambda_1 N_{10}}{\lambda_3 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t_1} - e^{-\lambda_1 t_2}). \quad (13)$$

Именно величины $A_{1,2,3}$ (с поправкой на эффективность детектора) измеряются в опыте при наблюдении за гамма-спектрами распадов. Каждое из этих уравнений содержит три параметра N_{10}, N_{20}, N_{30} — число ядер в момент времени T_0 . Определив значение этих параметров и решив уравнения 5, 7 и 9 относительно величин $y_{1,2,3}$, мы получим относительные выходы реакций, в которых образуются эти ядра.

Определение выхода реакции с образованием ^{101}Pd

Для того, чтобы определить выход изотопа ^{101}Pd , нам достаточно рассчитать, чему равна величина N_{10} . В принципе, как это видно из полученных в предыдущем разделе уравнений, эту величину можно получить из всех трех распадов, т. к. она входит в качестве параметра во все уравнения. Поскольку в первом из них N_{10} является единственным параметром, то по всей видимости надежнее всего будет находить ее именно из первого распада, то есть из распада ^{101}Pd в ^{101}Rh . База данных Лундского университета (<http://nucldata.nuclear.lu.se/nucldata/toi/nuclide.asp?iZA=460101>), включающая в себя данные ENSDF, дает следующие основные данные об этом распаде:

период полураспада — $8,47 \pm 0,06$ часов,

основные гамма-линии:

269,67 кэВ ($6,43 \pm 0,12\%$)

296,29 кэВ (19%)

565,98 кэВ ($3,44 \pm 0,08\%$)

590,44 кэВ ($12,06 \pm 0,19\%$)

723,75 кэВ ($1,96 \pm 0,12\%$).

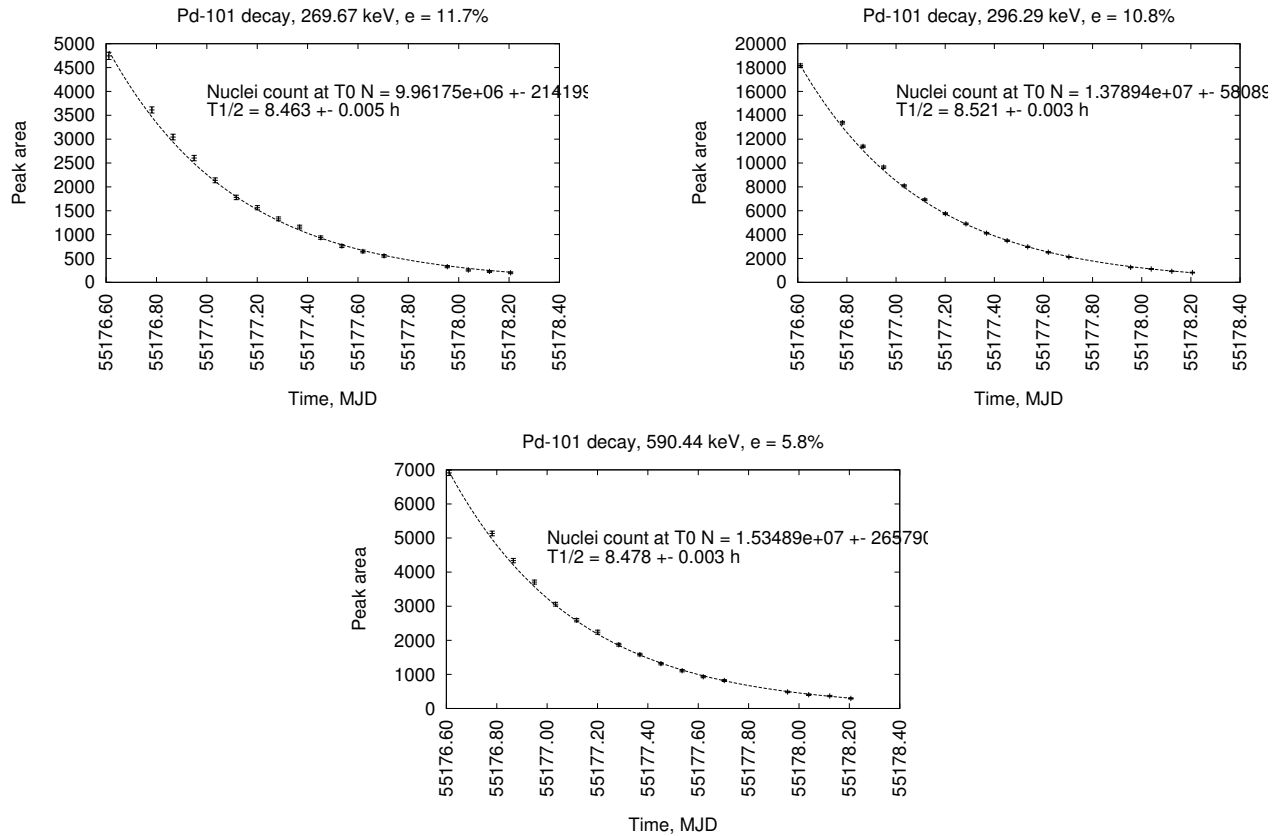


Рис. 3. Распад ^{101}Pd .

Определим N_{10} из трех самых интенсивных линий данного распада: 269,67, 296,29 и 590,44 кэВ, используя также рассчитанную на GEANT4 таблицу эффективности детектора (график, на котором показана зависимость эффективности применяемого детектора Canberra 3090 от энергии гамма-квантов, приведен в приложении). Для этого выберем в базе данных спектры с шагом в 2 часа и используем метод наименьших квадратов для определения параметра N_{10} из уравнения 6, которое должно описывать поведение этих линий. При этом наблюдаемую величину площади пика необходимо разделить на значение средней интенсивности данной спектральной линии и на значение эффективности детектора, чтобы получить величину $A_1(t_1, t_2)$.

Результат такого анализа приводится на рисунке 3. Видно, что разные оценки числа N_{10} отличаются в полтора раза, и особенно выделяется линия 269,67 кэВ. Недостаточное количество точек на кривых распада, конечно оказывает влияние на погрешность получаемых результатов, но одним этим обстоятельством такое расхождение объяснить нельзя. Его причиной является искажение спектральных линий вследствие истинного сложения гамма-квантов. Суть этого явления заключается в том, что в бета-распадах фотоны испускаются сериями, которые соответствуют каскадам гамма-переходов. Время жизни ядерных уровней обычно слишком мало, чтобы разрешить эти фотоны в случае их одновременной регистрации в детекторе. В результате детектор регистрирует энергию, которая соответствует сумме энерговыделения сразу нескольких фотонов. При этом наблюдаемая площадь пика спектральной линии может как увеличиться, так и уменьшиться. Рассмотрим схему распада ^{101}Pd , приведенную на рис. 4. Фотон с энергией 269,67 кэВ испускается при переходе с уровня 747,86 на 478,15 кэВ, с которого затем с вероятностью, близкой к 1, испускаются последовательно фотоны 296,29 и 24,46 кэВ. Когда эти фотоны выделяют энергию в кристалле детектора, полное энерговыделение превышает энергию одного фо-

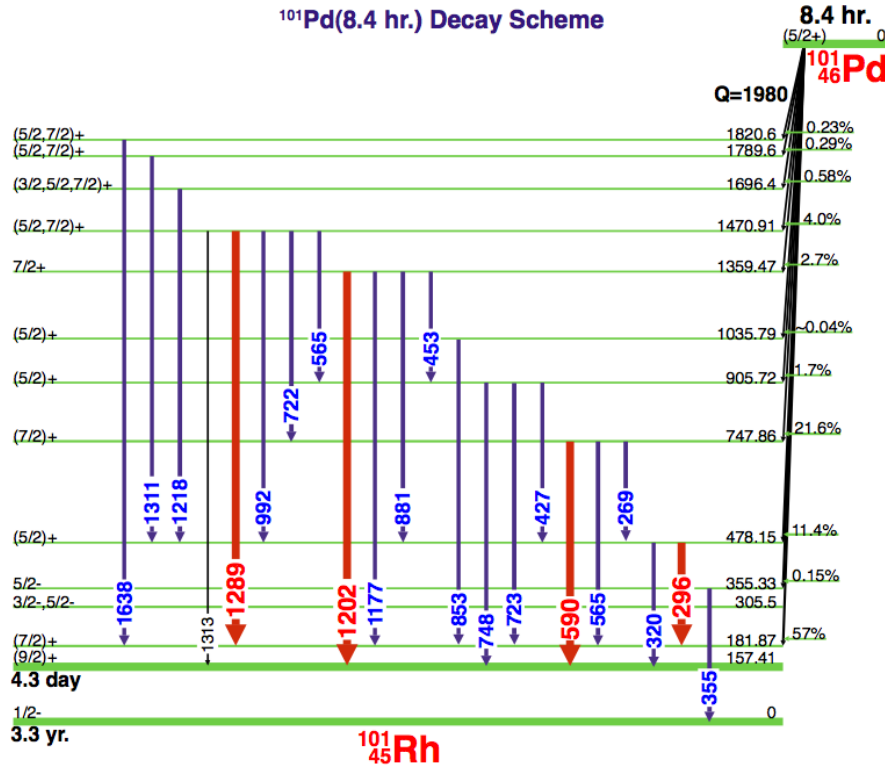


Рис. 4. Схема распада ¹⁰¹Pd.

тона, что приводит к уменьшению наблюдаемой площади всех трех пиков. Если при этом несколько фотонов испытывают полное поглощение в детекторе, то выделяется в одном случае 269, 67 + 296, 29 = 565, 96 кэВ, в другом 269, 67 + 296, 29 + 24, 46 = 590, 42 кэВ, что соответствует энергиям других спектральных линий. Площадь этих пиков таким образом будет увеличиваться. Необходимо отметить, что на рис. 4 показана упрощенная схема распада, в реальности переходов гораздо больше, что сильно усложняет задачу учета эффекта сложения фотонов. Например, не показанные на схеме переходы могут одновременно приводить не только к уменьшению, но и к увеличению пика 269,67 кэВ.

Вся информация, необходимая для расчета поправок, которые нужно внести в экспериментальные данные, чтобы учесть описанный эффект, содержится в спектроскопической базе данных ENSDF. Обозначим $P_{reg}(E)$ вероятность того, что излученный в случайном направлении фотон с энергией E будет полностью зарегистрирован в детекторе, а $P_{dep}(E)$ — вероятность того, что он будет поглощен хотя бы частично. Тогда, если P_i — вероятность бета-распада на i -ый уровень конечного ядра, $G_{i,j} = \gamma_{i,j,1}, \gamma_{i,j,2}, \dots, \gamma_{i,j,n}$ — все множества фотонов, излучаемых одновременно при переходе с i -того уровня конечного ядра в основное или метастабильное состояние (то есть все варианты каскадов гамма-квантов), $S_{\alpha_{i,j}}$ — это все множества фотонов γ_i из одного из множеств $G_{i,j}$, такие, что $\sum_{i \in S_{\alpha_{i,j}}} E_{\gamma_i} = E_{\gamma}$, а p_{γ} — вероятность ядерного перехода, при котором происходит испускание данного фотона, то вероятность получить в детекторе энерговыделение равное E_{γ} дается формулой:

$$P = \sum_i P_i \left(\sum_j \left(\sum_{\alpha_{i,j}} p_{\gamma_{i,j,k}} \left(\prod_{k \in S_{\alpha_{i,j}}} P_{reg}(\gamma_{i,j,k}) \prod_{k \notin S_{\alpha_{i,j}}} (1 - P_{dep}(\gamma_{i,j,k})) \right) \right) \right). \quad (14)$$

Рассчитаем интенсивность линий в спектре распада ¹⁰¹Pd с помощью этого соотношения. Величина P_{reg} и P_{dep} могут быть получены с помощью программы расчета эффективности детектора на GEANT4. Результат расчета приведен в таблице 2 для двух случаев:

Линия, кэВ	$d = 0$ мм	$d = 4$ мм	$d = 141$ мм	N_{10} ($d = 0$ мм)
269,67	4,98%	5,31%	6,72%	$(1,1 \pm 0,01) \cdot 10^7$
296,29	17,87%	18,27%	19,95%	$(1,215 \pm 0,008) \cdot 10^7$
590,44	12,78%	12,78%	12,8%	$(1,184 \pm 0,009) \cdot 10^7$

Таблица 2. Изменение интенсивности линий при каскадном сложении в зависимости от расстояния до детектора.

когда образец находится вплотную к окну детектора и когда расстояние до образца равно 4 мм. Кроме того, был сделан расчет при условии, что поглощения в образце нет вообще, а расстояние от образца до детектора 141 мм.

Если использовать интенсивности линий из первой колонки таблицы 2, то N_{10} , определенные из различных линий спектра практически совпадают в пределах погрешностей. Исключение здесь снова представляет линия 269,67 кэВ, которая дает результат, на несколько процентов меньше остальных. Это связано с неполнотой выражения 14, в котором не учитывается возможность сложения гамма-квантов с рентгеновскими фотонами, возникающими при e -захвате.

Подытоживая результаты этого раздела, можно сказать, что в обработке спектрометрических данных необходимо учитывать искажения в величине линий, которые вносятся за счет истинного сложения, особенно в том случае, если образец приходится размещать близко к детектору. Полностью учесть этот эффект достаточно сложно, поэтому следует исключить саму возможность его возникновения, размещая образец на большом расстоянии от детектора. В дальнейшем будет видно, что выход данной реакции можно с большой точностью определить из распада ядер ^{101}Rh в изомерном состоянии, причем выходы двух разных реакций будут определяться из анализа одного пика. Так как эффекты каскадного сложения в случае одного единственного пика не имеют значения (если извлекаются относительные величины выходов), то лучше всего принимать в качестве окончательных именно те результаты.

Определение выхода реакции с образованием ^{101m}Rh

В спектре гамма-квантов распада ^{101m}Rh всего две линии имеют достаточно большую интенсивность: 306,857 кэВ (81%) и 545,117 кэВ (4,3%). Период полураспада этого изомера 4,34 дня, и обе линии прекрасно видны в спектрах в течение всего времени измерения. Однако использовать наиболее интенсивную линию 306,857 кэВ непосредственно нельзя — дело в том, что энергию, примерно равную 306 кэВ, имеет линия другого распада: ^{105}Rh . Рассмотрим сначала анализ выхода данного изотопа по хорошо различимой линии 545,117 кэВ. Периоды полураспада, определяющие ожидаемое поведение данной линии равны 8,47 часа и 4,34 дня, поэтому для определения параметра N_{30} нужно сложить спектры с характерным шагом по времени, определяемым меньшим из периодов, чтобы поймать детали изменения этой линии. Для примера на рисунке 5 показаны три разных набора данных, полученных сложением спектров с шагом 3 часа, 4 часа и 24 часа.

Результаты расчета N_{10} и N_{30} , в котором учитывалась возможность истинного сложения фотонов в данной линии, приведены на графиках. Полученные из этих данных значения N_{10} с учетом погрешностей в принципе находятся в согласии с результатами, приведенными в табл. 2, но ввиду слабой интенсивности линии 545,117 кэВ параметры определяются с большими погрешностями: в частности неопределенность в значении N_{30} превышает 10%.

Более точный результат можно было бы получить из анализа линии 306,857 кэВ, одна-

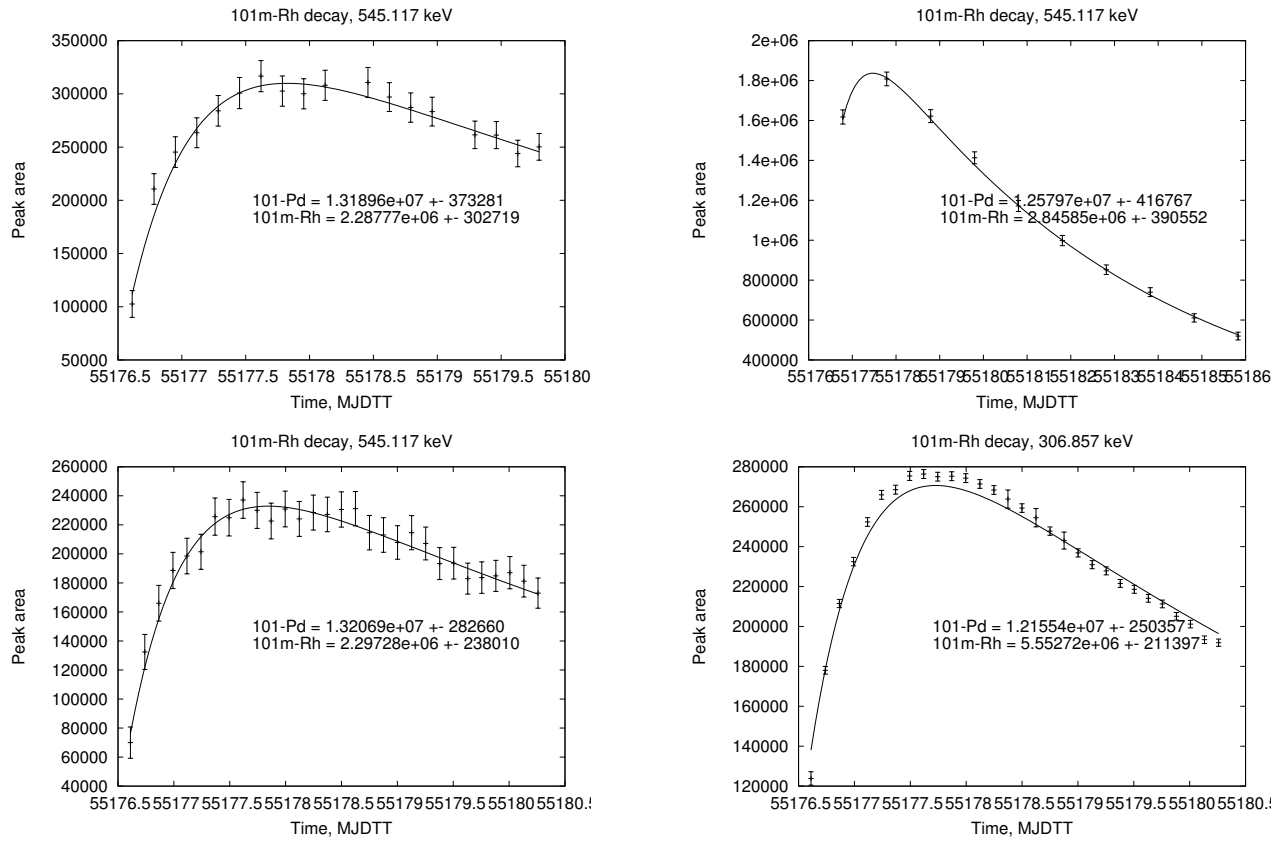


Рис. 5. Эволюция во времени линии 545,117 кэВ распада ^{101m}Rh с шагом по времени 3, 4 и 24 часа. Последний график — линия 306,857 кэВ.

ко поиск по энергии в уже упоминавшейся базе данных показывает, что примерно такая же линия есть и у другого распада, который наблюдается в данном эксперименте. Линия 306,25 кэВ с относительной интенсивностью 5,1% присутствует в спектре распада ^{105}Rh . Это приводит к ситуации, проиллюстрированной 4-м графиком на рис. 5, где попытка определения параметра N_{30} дает результат, противоречащий трем остальным. Если обратиться к схеме распадов, то можно убедиться, что за накопление ядер ^{105}Rh отвечают реакции $^{106}\text{Pd}(\gamma, p)^{105}\text{Rh}$, $^{108}\text{Pd}(\gamma, 2n1p)^{105}\text{Rh}$, а также распады ядер ^{105}Tc и ^{105}Ru , что делало бы возможность достаточно аккуратного учета этого распада весьма затруднительной. Однако, ни одна из линий распадов ^{105}Tc и ^{105}Ru не наблюдается в спектрах из-за низкого выхода соответствующих реакций, поэтому можно пренебречь их распадами в ^{105}Rh и считать, что он распадается по экспоненциальному закону.

В спектре распада ^{105}Rh наиболее интенсивными линиями являются линия 306,25 кэВ (5,1%) и линия 319,14 кэВ (19%), которая не перекрывается с другими. По ней мы и определим число ядер ^{105}Rh в начальный момент времени, чтобы затем вычесть рассчитанную поправку из площади пика 306,857 кэВ в распаде ^{101m}Rh . Благодаря тому, что интенсивность этой линии достаточно велика, а период полураспада 35,36 часов удобен для анализа, поправку удастся рассчитать с большой точностью¹. Результат этой процедуры показан на следующем рисунке.

Таким образом, определив параметры N_{10} и N_{30} по двум разным линиям и с тремя разными наборами спектров, мы получили результаты, которые с одной стороны примерно

¹В этом расчете также учитывалась связь между этими тремя линиями, возникающая при истинном сложении. Расчет коэффициентов здесь не отличается большой точностью, поэтому все же к этой коррекции следует подходить с долей сомнения.

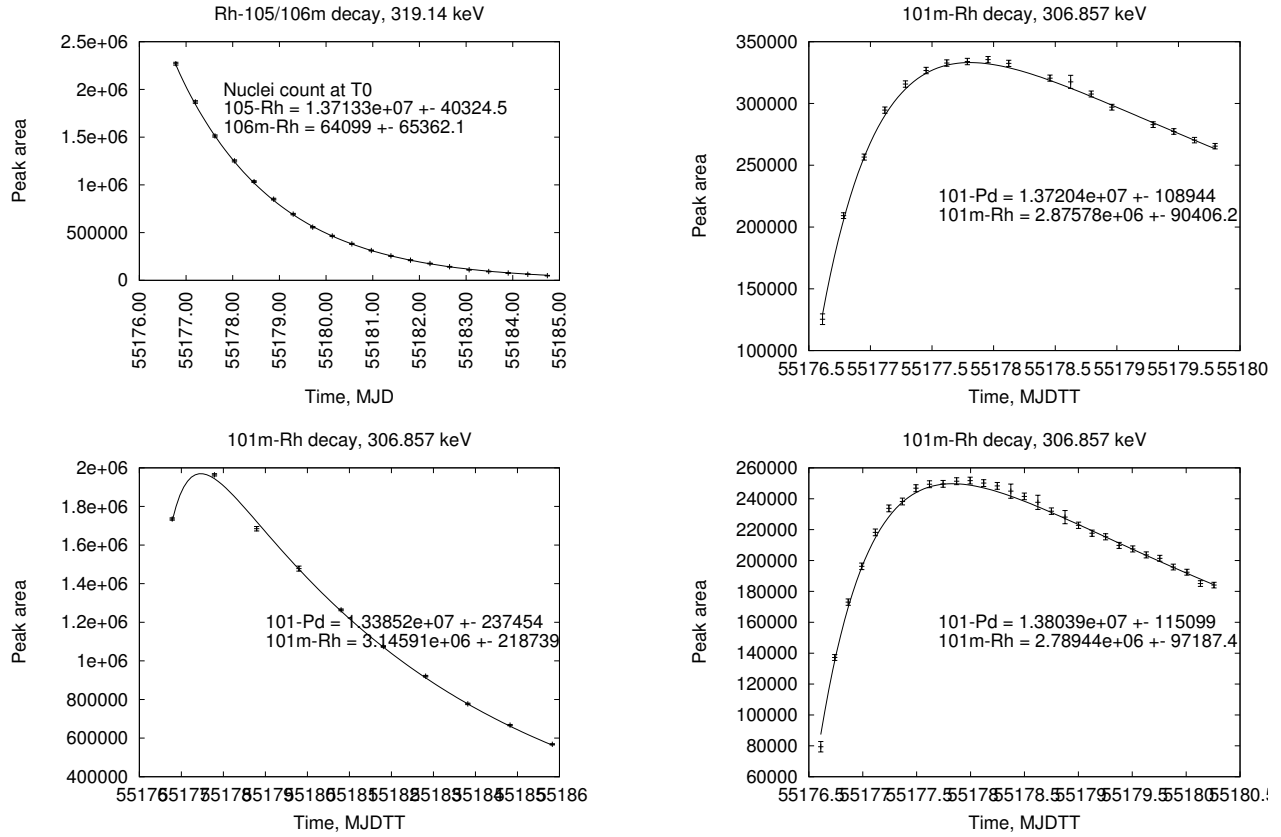


Рис. 6. Определение N_{30} по линии 306,857 кэВ с поправкой на распад ^{105}Rh .

сходятся со значениями N_{10} , определенными по линиям распада ^{101}Pd , но с другой стороны противоречат друг другу: пик 545,117 кэВ дает $N_{30} \approx 2,3 \cdot 10^6$, а пик 306,857 кэВ дает $N_{30} \approx 3 \cdot 10^6$, то есть разница достигает одной четвертой. По всей видимости это расхождение связано опять-таки с искажением линий вследствие истинного сложения, которое не удастся исправить с помощью формулы 14, т. к. в ней не учитываются такие источники совпадений, как рентгеновские переходы в атомах и электроны конверсии.

Впрочем это не значит, что полученный результат не имеет никакой ценности, т. к. оба параметра могут быть получены из рассмотрения одной единственной линии, поэтому относительные выходы, не будут зависеть от фактора, вносимого истинным сложением.

Использование метода наибольшего правдоподобия для нахождения N_{30}

С учетом вышесказанного имеет смысл произвести анализ линий распада ^{101m}Rh методом, дающим наименьшую возможную погрешность. Расхождения при определении одних и тех же параметров из разных наборов спектров, продемонстрированные в предыдущем разделе, позволяют сделать вывод о том, что вместо сложения измеренных спектров необходимо производить анализ по всем имеющимся измерениям.

Скачаем из базы данных все имеющиеся спектры и построим зависимость высоты пиков 306,857 и 545,117 кэВ от времени. При этом не имеет смысла использовать для определения площади пика аппроксимацию функцией Гаусса методом МНК, т. к. статистика во многих случаях является недостаточной для надежного определения. Когда точно известно положение центра пика, проще определить его площадь простым суммированием отсчетов в достаточно большом интервале, скажем $\pm 5\sigma$ (за пределами этого интерва-

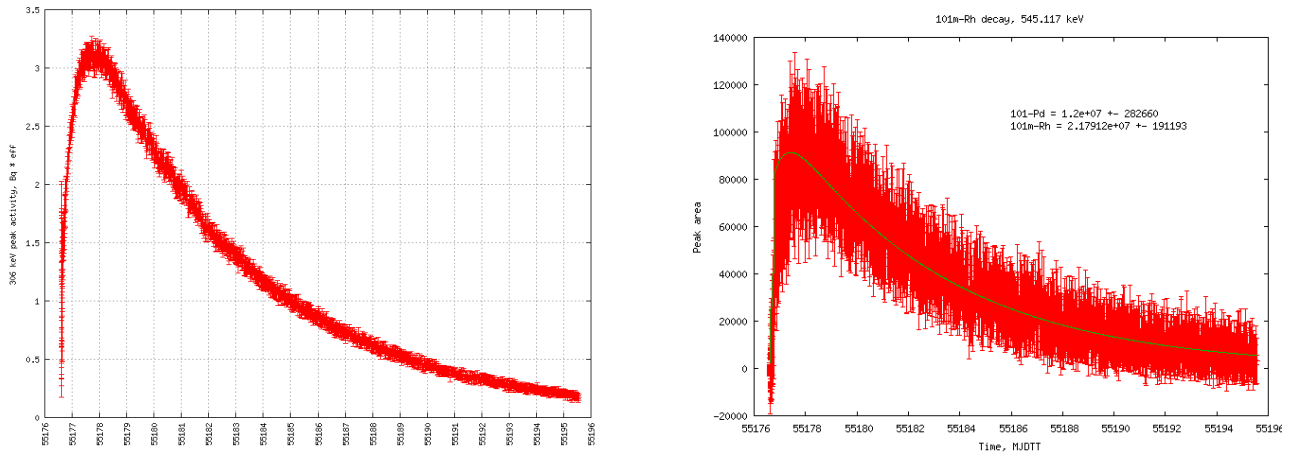


Рис. 7. Определение площади пиков 306,857 и 545,117 кэВ по всем измеренным данным.

ла находится лишь примерно $\approx 3 \cdot 10^{-7}$ площади пика). При этом, конечно, необходимо учитывать фон, который в случае двух рассматриваемых линий вполне можно аппроксимировать прямой линией. Для обработки всех 937 спектров таким способом была написана программа, которая загружает спектр и вычисляет сумму всех отсчетов в указанном интервале, затем находит оценку погрешности как корень из этой суммы, затем вычитает площадь под прямой, аппроксимирующей фон. Эту прямую легко провести методом линейной интерполяции по нескольким каналам за пределами интервала, в котором находится пик. Результат такой обработки данных приведен на рис. 7.

Важное замечание, которое необходимо здесь сделать, заключается в том, что если не применять метод МНК для определения площади пика, то необходимо с максимальной возможной точностью знать положение центра пика в спектре. Это сложнее, чем кажется, потому что коэффициенты усилителя МКА меняются случайным образом в небольших пределах, и неопределенность в положении одного и того же пика составляет 1 кэВ, то есть примерна равна его ширине. Поэтому дрейф калибровки необходимо учитывать, грубо определив положение центра анализируемого пика в каждом спектре по формуле

$$M = \frac{\sum_i E_i n_i}{\sum_i E_i}, \quad (15)$$

где E_i и n_i — энергия и число отсчетов в i -ом канале спектра, а суммирование производится по диапазону, в котором данный пик находится с хорошей достоверностью. Получив такую зависимость положения центра пика от времени, ее необходимо аппроксимировать полиномом и уже аппроксимацию использовать при расчете площади пика.

Вместо того, чтобы определять площадь пика в каждом спектре можно использовать метод наибольшего правдоподобия для непосредственного определения искомых параметров. Метод наибольшего правдоподобия позволяет найти эффективные оценки параметров некоторой модели путем поиска максимума функции правдоподобия, являющейся вероятностью получить экспериментально измеренные данные с конкретным набором параметров. Модель в нашем случае — это представление пика в форме функции Гаусса с фоном:

$$m_i = \varepsilon \frac{A_3(t_1, t_2)}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(E_i - M)^2}{2\sigma^2}} + \alpha E_i + \beta. \quad (16)$$

Здесь коэффициент ε отвечает за эффективность детектора, интенсивность линии и эффекты сложения. Счет фотонов в детекторе подчиняется закону Пуассона, то есть ве-

роятность получить за промежуток времени от t_1 до t_2 n отсчетов равна $p_i(n) = \frac{m_i^n e^{-m_i}}{n!}$. Величина A_3 зависит от параметров N_{10} и N_{30} (см. выражение 13), поэтому при данных значениях параметров вероятность наблюдения всей совокупности измеренных данных определяется соотношением

$$L' = \prod_j \prod_i p_{ij}(n_{ij}), \quad (17)$$

где произведение подразумевается по всем каналам всех спектров в окрестности анализируемого пика. Величина L' даже с абсолютно точными значениями параметров модели очень мала и не представима в памяти компьютера, поэтому обычно используется логарифм этой величины, взятый со знаком минус:

$$L = -\ln L' = \sum_j \sum_i (-m_{ij}[N_{10}, N_{30}, t_{j1}, t_{j2}] + n_{ij} \ln(m_{ij}[N_{10}, N_{30}, t_{j1}, t_{j2}]) - \ln n_{ij}!). \quad (18)$$

Эта функция обычно и называется функцией правдоподобия. Для нахождения решения методом наибольшего правдоподобия необходимо найти ее минимум относительно параметров N_{10} и N_{30} . Эта задача может быть решена различными способами. Есть несколько популярных пакетов для минимизации произвольных функций. Алгоритм минимизации включен в библиотеку Gnu Scientific Library (язык C), в состав CERNLIB входит пакет MINUIT (язык Fortran). В этом случае использовался пакет MINUIT2, входящий в систему ROOT, который является аналогом более старого MINUIT'а для языка C++. Алгоритм минимизации MINUIT позволяет проделать также анализ несимметричных ошибок. Результат минимизации MINUIT2 таков:

пик 545,117 кэВ:

$$N_{10} = (1,316 \pm 0,028) \cdot 10^7, \quad N_{30} = (2,33 \pm 0,26) \cdot 10^6;$$

пик 306,857 кэВ с учетом распада ^{105}Rh :

$$N_{10} = (1,405 \pm 0,005) \cdot 10^7, \quad N_{30} = (2,57 \pm 0,05) \cdot 10^6.$$

С учетом погрешностей результаты находятся в согласии, причем точность определения N_{10} выше, чем из распада ^{101}Pd , поэтому будем считать эти значения параметров окончательными.

Анализ распада основного состояния ^{101}Rh

Последний этап анализа распадов ядер рассматриваемой цепочки — это β -распад ^{101}Rh . Это ядро в основном состоянии имеет период полураспада около 3,3 лет, что объясняет низкую интенсивность максимумов в его спектре. Лишь один из них виден в спектрах — это пик 197,99 кэВ (относительная интенсивность 73%). Остальные пики либо не видны, либо плохо различимы на фоне более интенсивных линий. Анализ методом наибольшего правдоподобия в этом случае применить не удастся, т. к. каждый отдельный спектр содержит лишь единичные отсчеты данного пика, поэтому спектры необходимо суммировать. Результат суммирования (по 100 спектров) и фитирования соотношения 12 методом МНК приведен на рис. 8.

На этом рисунке хорошо видно две группы точек. Первая соответствует спектрам, измеренным сразу после облучения. В ходе анализа данных выяснилось, что этих точек не хватает для определения параметра N_{20} , и образец был снова помещен в камеру детектора для продолжения измерений. Из анализа этих данных получена оценка параметра $N_{20} = (1,6 \pm 0,13) \cdot 10^6$.

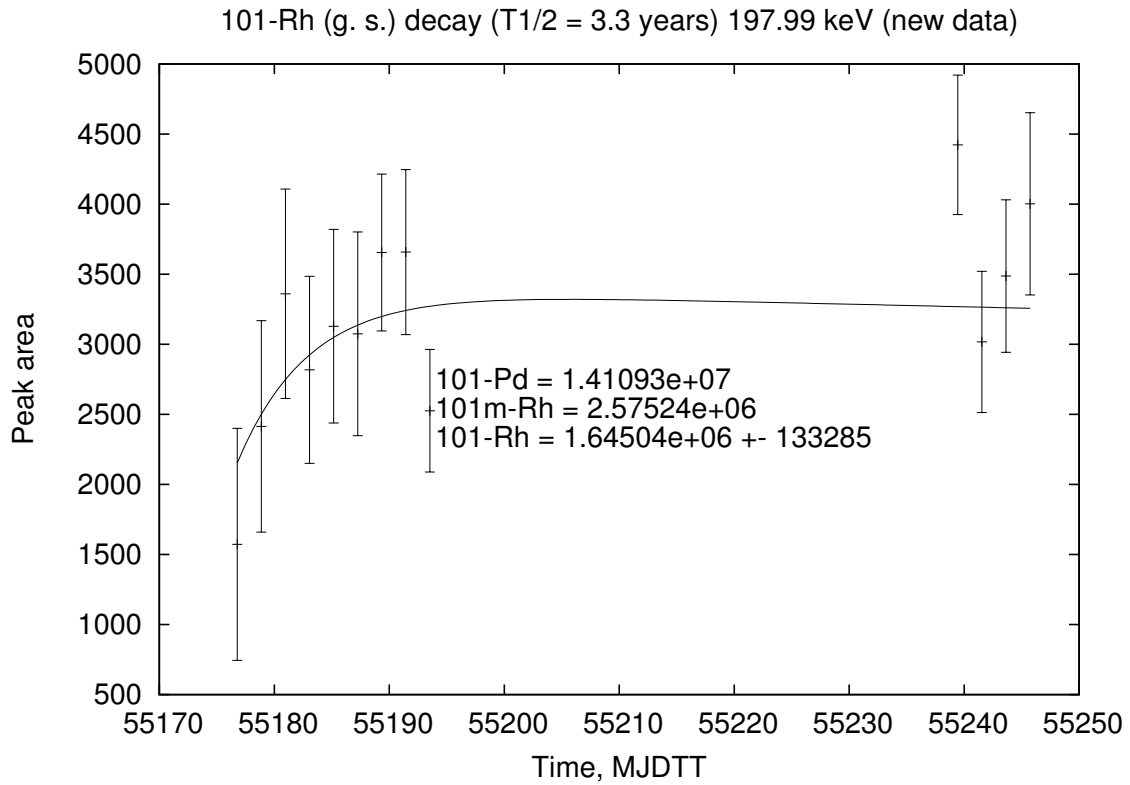


Рис. 8. Анализ распада ^{101}Rh .

Определение выходов реакций

Определение выходов реакций сводится численному решению нелинейных уравнений 5, 9 и 7, то есть $N_i(T_0) = N_{i0}$. Сделать это можно, написав программу, которая последовательно вычисляет интегралы произведения прочитанного из файла тока пучка и экспоненциального множителя, а затем определяет параметры y_1 , y_2 и y_3 , приводящие значение $N_i(T_0)$ к значению в момент времени T_0 , определенному на первом этапе обработки. Либо для численного решения уравнения можно воспользоваться любым математическим пакетом, таким как Matlab или Octave.

Определенные таким образом относительные выходы равны:

$$y_1 = (2,491 \pm 0,01) \cdot 10^{16};$$

$$y_2 = (2,3 \pm 0,2) \cdot 10^{15};$$

$$y_3 = (1,13 \pm 0,08) \cdot 10^{15}.$$

Ток измерялся неоткалиброванной ионизационной камерой, поэтому полученные значения выходов имеют смысл относительных величин. Для определения абсолютных значений выходов необходимо также определить величину N_γ из выражения 2.

Отметим одну важную особенность полученных нами значений выходов. Если взглянуть на рис. 9, на котором изображены смоделированные в процессе решения упомянутых выше уравнений кривые накопления продуктов рассмотренных нами реакций, то становится ясна чрезвычайная важность точности определения параметра N_{30} . Отдельной кривой на этом графике показано количество ядер ^{101}Rh в изомерном состоянии, которые образуются только в результате распада, то есть, когда выход соответствующей реакции равен нулю. Разница между этой кривой и между кривой, соответствующей обработанному нами случаю, весьма мала. Самая правая точка графика соответствует параметрам $N_{1,2,3}$, которые были определены в процессе обработки. Лишь уменьшение погрешности

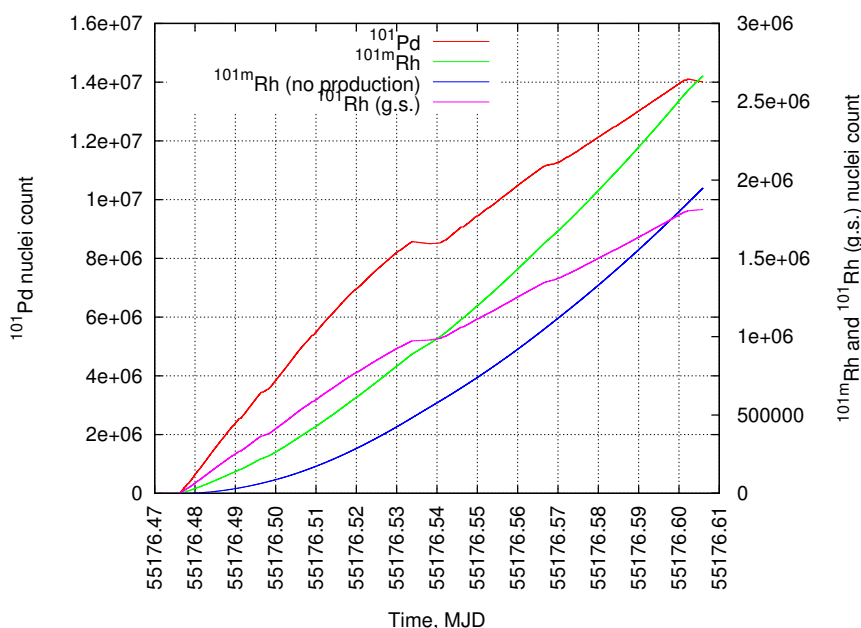


Рис. 9. Накопление ядер во время облучения (моделирование).

их определения позволяет установить, что выход реакции с образованием изомерного состояния не равен нулю.

Программы для анализа данных

Анализ данных выполняется на компьютере и для многих необходимых операций существуют или же были написаны сотрудниками ОЭПВАЯ программы, существенно упрощающие задачу обработки большого количества спектров. Перечислим эти программы.

База данных ENSDF (<http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>) и интерфейс к ENSDF, поддерживаемый в Лундском университете (<http://nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi/>) содержат информацию о распадах ядер и о спектральных линиях этих распадов.

Программа Photonuclear process threshold (<http://depni.sinp.msu.ru/~hatta/activation-beta/>) позволяет рассчитать пороги фотоядерных реакций идущих в образце и оценить значения выходов реакций и изменение во времени количества ядер с учетом их взаимных распадов. Также эта программа может построить схемы распадов ядер, образующихся во время облучения.

База данных облучений (<http://depni.sinp.msu.ru/~kuznets> и <http://depni.sinp.msu.ru/~irina/Spectrdata/>) содержит все измеренные спектры и информацию об условиях облучения. База данных позволяет суммировать несколько спектров, а также производить поиск пиков и выводить суммарную информацию о пиках и их изменении в виде таблицы и в виде графиков.

Программа PeakFit (коммерческая) позволяет более точно аппроксимировать пики. Последние версии программы PEAKDECO (<http://depni.sinp.msu.ru/~hatta>) не уступают ей в точности, однако PEAKDECO не имеет графического интерфейса. Аналогичные программы: Genie 2000 (в комплекте с детектором Canberra) и

Fityk (<http://www.unipress.waw.pl/fityk/>).

Журнал тока пучка во время облучения в графическом и текстовом виде доступен в интернете на сайте <http://depni.sinp.msu.ru/~hatta/cgi-bin/ebs.cgi>.

Для простых задач обработки данных и определения параметров чрезвычайно удобно пользоваться программой Gnuplot, которая доступна для всех популярных ОС.

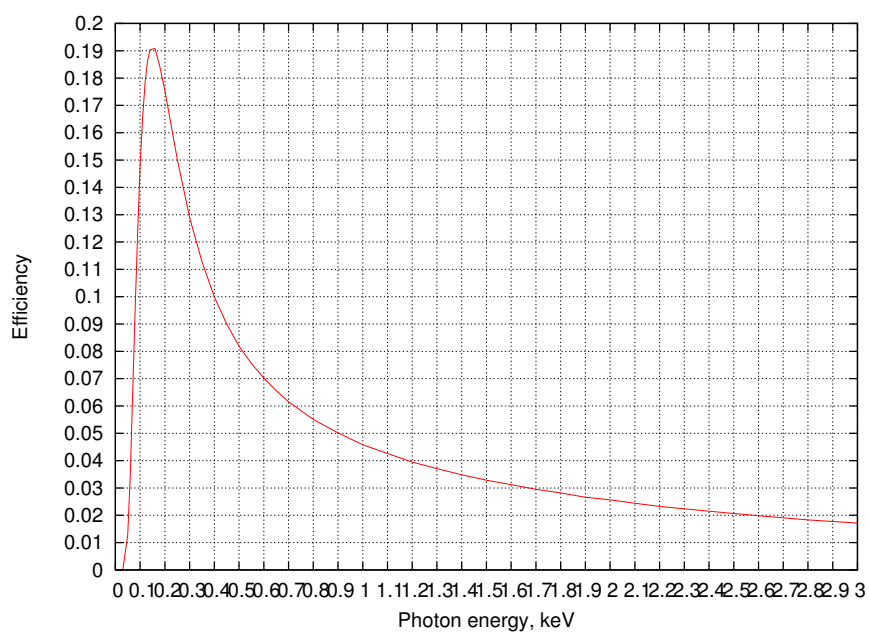


Рис. 10. Эффективность детектора.

Приложение

В приложении показана зависимость эффективности детектора от энергии гамма-квантов. Для расчета использовалась модель детектора на GEANT4.