

УДК 539.1.08

РАЗРАБОТКА МЕТОДА ОБРАБОТКИ СЛОЖНЫХ РЕНТГЕНОВСКИХ И ГАММА-СПЕКТРОВ В НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ОБЛАСТИ

© 2021 г. М. В. Желтоножская^{1, *}, В. А. Желтоножский¹, Д. Е. Мызников²,
А. Н. Никитин³, Н. В. Стрильчук², В. П. Хоменков²

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, физический факультет, Москва, Россия

²Институт ядерных исследований Национальной академии наук Украины, Киев, Украина

³Институт радиобиологии Национальной академии наук Беларуси”, Гомель, Беларусь

*E-mail: zhelton@yandex.ru

Поступила в редакцию 24.05.2021 г.

После доработки 01.06.2021 г.

Принята к публикации 28.06.2021 г.

Предложен метод обработки сложных рентгеновских и гамма-спектров в области энергий 10–100 кэВ, учитывающий сложность описания рентгеновских линий и обеспечивающий погрешность обработки не более 1%. С его помощью исследованы L_X -компоненты излучения калибровочного источника ^{241}Am . С точностью 1–4% определены выходы основных гамма-квантов.

DOI: 10.31857/S0367676521100276

ВВЕДЕНИЕ

В результате радиационных аварий в окружающую среду выпало большое количество радионуклидов техногенного происхождения. Значительную радиологическую опасность представляют альфа-нуклиды, связанные с распадом изотопов плутония и ^{241}Am . Регистрация подобных радионуклидов может проводиться по рентгеновскому характеристическому излучению, сопровождающему распад этих нуклидов [1]. Однако, спектр излучения в этой области энергий (10–30 кэВ) крайне сложный и описывать форму линии в спектре простой функцией Гаусса недостаточно, приходится использовать более сложную функцию, что особенно актуально при небольшой статистике спектра. Кроме того, отличительной особенностью характеристического рентгеновского излучения является наличие нескольких компонент. Например, L_β -группа нептуния содержит 6 переходов в диапазоне энергий 16.1–17.8 кэВ. В этой же области находятся L_β -переходы урана, смещенные на 300 эВ. Фактически в диапазоне 2 кэВ находятся 12 переходов. К тому же в этой же области находится K_X -излучение, сопровождающее распад ^{90}Sr и фотовозбуждение циркониевой матрицы [1]. Обработка таких спектров требует создания специального программного кода, учитывающего тот факт, что линии характеристического излучения описываются сверткой распределений Лоренца и Гаусса. В представленной работе нами

представлен метод обработки сложных рентгеновских и гамма-спектров в низкоэнергетической области.

МЕТОДЫ И МАТЕРИАЛЫ

Для описания формы пиков после анализа формы гамма-линий в низкоэнергетической области экспериментального спектра (рис. 1) нами используется функция Гаусса с “хвостами”:

$$f(i, \alpha) = \begin{cases} \alpha_1 \cdot e^{-\frac{\alpha_4(2i-2\alpha_2+\alpha_4)}{2\alpha_3^2}}, & i < \alpha_2 - \alpha_4 \\ \alpha_1 \cdot e^{-\frac{(i-\alpha_2)^2}{2\alpha_3^2}}, & \alpha_2 - \alpha_4 \leq i \leq \alpha_2 + \alpha_5 \\ \alpha_1 \cdot e^{-\frac{\alpha_5(2\alpha_2-2i+\alpha_5)}{2\alpha_3^2}}, & i > \alpha_2 + \alpha_5 \end{cases} \quad (1)$$

Детальное описание участка спектра с пиком приведено на рис. 2.

В некоторых случаях не удается удовлетворительно описать форму пика в спектре функцией (1). Тогда можно создать некую эталонную линию, прообразом которой служит сильная одиночная линия из этого же или подобного спектра. Для этого выделим участок спектра $\{N_i\}$, $i_1 \leq i \leq i_2$, в котором находится калибровочная линия. Вычтя из него линейный фон, определенный по точкам

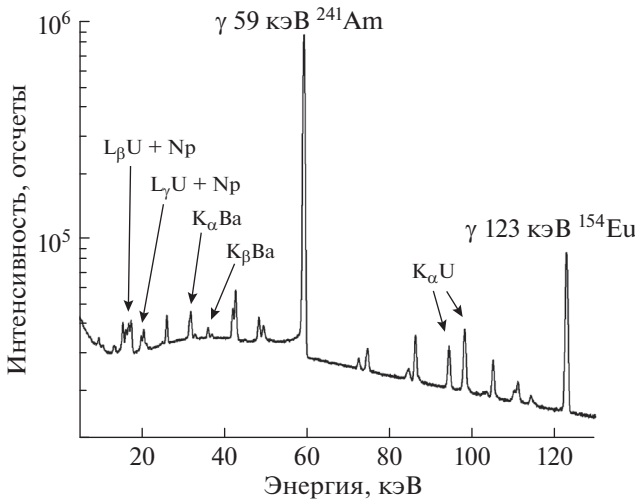


Рис. 1. Фрагмент области экспериментального спектра в области энергий 10–130 кэВ.

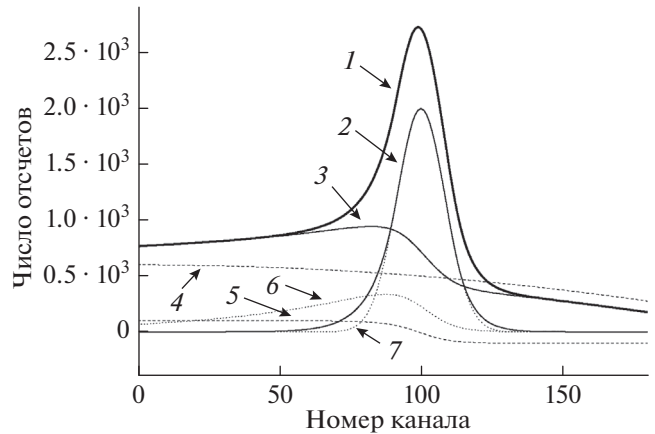


Рис. 2. Участок спектра с γ -пиком (1) описывается функцией Гаусса с “хвостами” (2) и фоном (3). Составляющие фона: квадратичная функция (4), ступенька (5) и экспоненциальный “хвост” (6). Простая функция Гаусса (7) демонстрирует асимметричность высоко- и низкоэнергетического “хвостов” пика.

i_1 и i_2 , получаем чистую калибровочную линию $\{y_i\}$, $i_1 \leq i \leq i_2$.

Аппроксимируем ее кусочно-непрерывной функцией $f'(x')$, где каждый участок описывается кубическим сплайном (параметры сплайнов c_{ij} определяются по стандартной процедуре, описанной, например, в [2]):

$$f'(x') = \begin{cases} \sum_{j=0}^3 c_{ij} x'^j, & i \leq x' \leq i+1, \quad i_1 \leq i \leq i_2 \\ 0, & (x' < i_1) \cup (x' > i_2) \end{cases} \quad (2)$$

Будем считать, что эта функция и есть описание калибровочной линии с амплитудой, положением и полушириной $\alpha'_1, \alpha'_2, \alpha'_3$, соответственно, через некоторую эталонную линию $T(x)$:

$$f'(x') = \alpha'_1 \cdot T \left[\frac{x - \alpha'_2}{\alpha'_3} \right],$$

$$x' = \frac{x - \alpha'_2}{\alpha'_3}, \quad x = \alpha'_3 x' + \alpha'_2.$$

Тогда: $T(x) = \frac{f'(\alpha'_3 + \alpha'_2)}{\alpha'_1}$.

Как легко убедиться, функция $T(x)$ нормирована: ее положение равно 0, а амплитуда и полуширина 1. В самом деле, при $x = 0$ $x' = \alpha'_2$, при $x_2 =$

$x_1 = 1x'_2 - x'_1 = \alpha'_3$, а $T(0) = \frac{f'(\alpha'_2)}{\alpha'_1} = 1$.

Используем эту функцию для описания другой линии с амплитудой, положением и полушириной $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, соответственно, из участка спектра $\{N_i\}$:

$$f(i, \alpha) = \alpha_1 \cdot T \left[\frac{i - \alpha_2}{\alpha_3} \right] = \frac{\alpha_1}{\alpha'_1} f' \left[\frac{\alpha'_3}{\alpha_3} (i - \alpha_2) + \alpha'_2 \right].$$

Функция f нелинейно зависит от параметров α . Для ее линеаризации используем разложение в ряд Тейлора в окрестности начальных значений параметров α_0 , оставив только члены первого порядка малости:

$$f(i, \alpha) \approx \tilde{f}(i, \delta\alpha) = \alpha_{01} f(x'_0) + f'(x'_0) \cdot \delta\alpha_{01} - \frac{\alpha_{01} \alpha'_3}{\alpha'_1 \alpha_{03}} \cdot \frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) \cdot \delta\alpha_{02} - \frac{\alpha_{01} \alpha'_3 (i - \alpha_{02})}{\alpha'_1 \alpha_{03}^2} \cdot \frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) \cdot \delta\alpha_{03}, \quad (3)$$

где

$$x'_0 = \frac{\alpha'_3}{\alpha_{03}} (i - \alpha_{02}) + \alpha'_2,$$

$$\frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) = \sum_{j=1}^3 j \cdot c_{kj} \cdot (x'_0)^{j-1},$$

индекс k определяется условием $k \leq x'_0 \leq k + 1$. Эта линеаризованная функция $\tilde{f}(i, \delta\alpha)$ используется для подгонки.

Описанная выше процедура используется при обработке гамма-линий, но при обработке выходов характеристического излучения такой подход

не полностью описывает форму рентгеновских пиков.

Как известно, форма линии в спектре образуется в результате свертки собственной формы линии с функцией отклика спектрометра (или приборной формой):

$$F(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(E')D(E - E')dE'. \quad (4)$$

Собственная форма линии описывается функцией Лоренца:

$$G(E) = \frac{\Gamma/2\pi}{(E - E_0)^2 + (\Gamma/2)^2}, \quad (5)$$

где E – энергия, E_0 – средняя энергия фотона, Γ – ширина линии.

Функция отклика спектрометра $D(E)$ описывается выражением (4) или эталонной линией. Поскольку ширина γ -линий намного меньше 10^{-2} эВ, а ширина приборной линии ~ 1 кэВ, то для γ -линий можно считать собственную форму линии δ -функцией, и тогда форма линии в спектре полностью определяется функцией отклика спектрометра.

По-другому обстоит дело с рентгеновскими линиями. Рентгеновские K_{α} -линии образуются в результате перехода электронов с L , M , ...-подоболочек при заполнении вакансии в K -оболочке. Ширина этих линий будет равна сумме ширин K и L , M , ...-уровней. Данные о естественных ширинах при возбуждении K , L -уровней приведены в [3] и можно видеть, что для тяжелых элементов собственная ширина K_{α} -линий достигает 100 эВ и выше. Так как форма функции Лоренца существенно отличается от формы приборной линии, которая приближенно описывается функцией Гаусса, в результате их свертки получается линия, края которой оказываются “затянутыми” по сравнению с приборной линией. В этом случае пренебрежение собственной формой линии приводит при обработке к ошибкам в значении интенсивности $\sim 5\%$, что недопустимо при хорошей статистике и требованиям к точности обработки $\sim 1\%$.

Поэтому для обработки рентгеновских пиков выбранная форма приборной линии по формуле (4) численным интегрированием сворачивается с функцией Лоренца соответствующей ширины, которая используется как табличная для обработки гамма-спектров.

При исследовании спектров гамма-лучей в образцах из зон аварии на АЭС в спектрах, как правило, присутствуют K_{α} -линия урана (рис. 1). Именно $K_{\alpha 1}$ -линия урана может использоваться в качестве эталонной линии при обработке спектров L_{α} -переходов урана и нептуния.

Калибровка по энергии аппроксимируется квадратичной функцией от номера канала i :

$$E(i) = \sum_{j=0}^2 a_j i^j, \quad (6)$$

Коэффициенты a_j определяются по нескольким линиям с известной энергией. Если задается две линии, проводится линейная калибровка, а если одна – то считается, что $E(0) = 0$.

При изотопном анализе спектра задаются два параметра: ΔE (кэВ) – ширина интервала по энергии, и I_{min} (%) – порог интенсивности линии. Затем линии с интенсивностью выше пороговой из базы данных по изотопам сравниваются по энергии со всеми обнаруженными в спектре линиями. Если линия, принадлежащая какому-то изотопу, в пределах интервала ΔE совпадает по энергии с любой линией в спектре, рейтинг этого изотопа повышается на 1, а если такой линии в спектре нет – понижается на 2. Таким образом, с помощью простой процедуры можно оценить изотопный состав спектра с градацией по вероятности присутствия изотопов.

Абсолютная эффективность регистрации гамма-квантов $\epsilon(E)$ является одной из главных характеристик спектрометра, которая осуществляется по одной из двух формул:

$$\ln \epsilon(E) = \sum_{j=0}^m a_j (\ln E)^j \quad [4] \quad (7)$$

либо

$$\epsilon(E) = \sum_{j=1}^3 a_{2j-1} e^{-a_{2j} E} + a_7 E^{-a_8} \quad [5] \quad (8)$$

здесь E – энергия в кэВ.

Параметры кривой эффективности определяются при измерении спектров калибровочных источников, в которых интенсивности гамма-квантов измерены с точностью лучше 2% [6]. Если используются данные для нескольких калибровочных источников, то минимизируется следующая функция:

$$S(\mathbf{a}, \mathbf{b}) = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{n_i} w_{ik} (f(E_{ik}) - b_i \phi_{ik})^2, \quad (9)$$

где n_i – количество линий i -го изотопа, N – количество изотопов, f – функция калибровки (7) или (8), E_{ik} – энергия k -й линии i -го изотопа, b_i – весовой коэффициент i -го изотопа, ϕ_{ik} – для функции (7) это логарифм отношения измеренной и табличной интенсивностей k -й линии i -го изотопа и просто отношение для функции (8). Коэффициенты w_{ik} обратно пропорциональны сумме квадратов относительных погрешностей измеренной и табличной интенсивностей линии (для функции (7)) либо абсолютных погрешностей

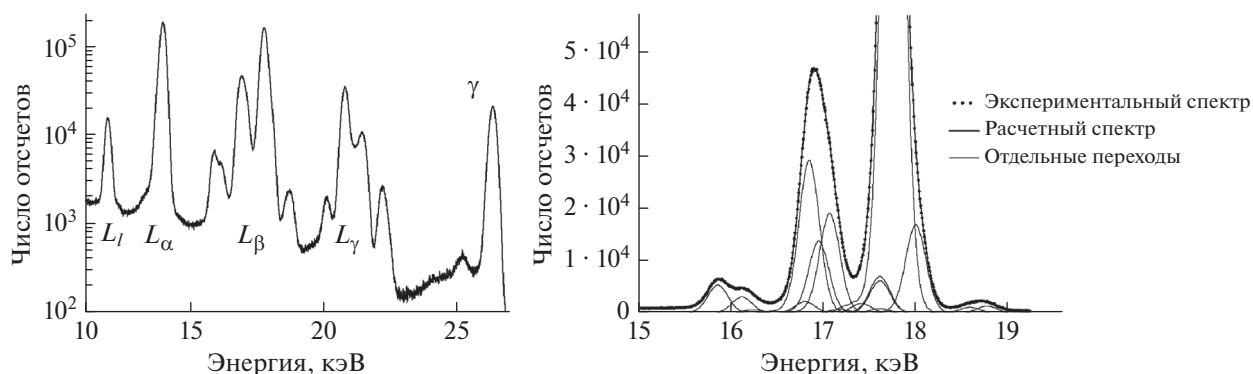


Рис. 3. Участок спектра распада ^{241}Am (слева); пример обработки L_β -группы (справа).

(для функции (8)). Весовой коэффициент первого изотопа b_1 полагается равным единице. Функция калибровки (7) нелинейна по \mathbf{a} , поэтому она линеаризуется заменой $\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{a}_0 + \Delta\mathbf{a}$ и разложением в ряд Тейлора до членов первого порядка малости в окрестности начальных значений \mathbf{a}_0 .

Если мы продифференцируем функцию (9) по \mathbf{a} , \mathbf{b} и приравняем производные к 0, то в результате получим систему линейных уравнений:

$$\mathbf{M} \begin{pmatrix} \mathbf{a} \\ \mathbf{b} \end{pmatrix} = \mathbf{Y}. \quad (10)$$

Отсюда можно определить параметры калибровки a_j и относительные активности изотопов b_i ,

а если известна абсолютная активность одного из изотопов, то можно получить абсолютную кривую эффективности регистрации гамма-квантов.

При измерении активности в образцах если гамма-переходы близки по энергии, то погрешность относительной эффективности регистрации для двух различных, но близких по энергии гамма-переходов значительно ниже погрешностей отдельно взятых коэффициентов эффективности регистрации гамма-переходов. При использовании для кривой эффективности функции (8) относительная погрешность $\delta\eta$ будет равна абсолютной погрешности $\Delta(\ln \eta)$:

$$\Delta \ln \frac{\varepsilon_k}{\varepsilon_l} = \sqrt{S_0 \cdot \sum_{i,j=0}^m M_{ij}^{-1} \cdot [(\ln E_k)^i - (\ln E_l)^i] \cdot [(\ln E_k)^j - (\ln E_l)^j]}, \quad (11)$$

где E_k и E_l — энергии гамма-переходов, S_0 — минимизированное значение функции (9), M_{ij}^{-1} — элементы матрицы, обратной матрице \mathbf{M} (10), определяющие вариации и ковариации параметров калибровки \mathbf{a} . Из выражения (9) можно сделать вывод, что чем ближе по энергии находятся гамма-переходы E_k и E_l , тем погрешность отношения $\eta = \varepsilon_k/\varepsilon_l$ будет меньше. Из-за взаимной корреляции параметров калибровки \mathbf{a} относительная погрешность также уменьшается.

Изотопы ^{241}Am , ^{182}Ta и $^{152, 154, 155}\text{Eu}$ часто используются в качестве калибровочных источников для построения кривой эффективности спектрометров. Они позволяют получить калибровку в диапазоне энергий от 10 до 1600 кэВ. Основные исследования по определению активности изотопов плутония и америция проводятся в низкоэнергетической области, где изучаются как γ -переходы, так и характеристическое излучение [7]. Поэтому большое внимание нами было уделено

калибровке именно в области 10–60 кэВ. Для этой области энергий изотоп ^{241}Am является важным калибровочным источником. Однако результаты измерения L_X -излучения, сопровождающего распад ^{241}Am , приведенные в работе [7], существенно (на 4–6% для групп L_β и L_γ) отличаются от данных справочника [8], который является одним из основных в γ -спектроскопии. Поэтому нами были проведены тщательные измерения ОСГИ ^{241}Am на Si(Li)-спектрометре с энергетическим разрешением 150 эВ на K_X -излучении Fe и обработаны результаты измерений с помощью вышеописанного метода, результаты которых подтвердили данные работы [7]. Нами были получены интенсивности более 30 L_X -линий, некоторые из них выделены впервые (рис. 3 и табл. 1).

По результатам полученных данных была проведена калибровка Si(Li)-спектрометра по эффективности, приведенная на рис. 4. Высокая точность измерения интенсивности L_X -излучения и гладкий ход кривой эффективности позво-

Таблица 1. Интенсивности L_X -линий из спектра распада ^{241}Am

Линия	Переход	E , кэВ	I , %	
			наши данные	данные работы [4]
L_1	$L3-M1$	11.87	0.864 (11)	0.864 (12)
L_t	$L3-M2$	12.24	0.017 (1)	
	$L3-M3$	13.18	0.044 (8)	
$L_{\alpha 2}$	$L3-M4$	13.76	1.33 (5)	1.15 (5)
$L_{\alpha 1}$	$L3-M5$	13.95	11.66 (12)	11.88 (11)
L_{α}		13.90	13.03 (13)	13.03 (13)
L_{η}	$L2-M1$	15.85	0.374 (6)	0.369 (12)
$L_{\beta 6}$	$L3-N1$	16.11	0.218 (4)	0.246 (8)
	$L2-M2$	16.23	0.050 (2)	
	$L3-N2$	16.28	0.011 (2)	
	$L3-N3$	16.53	0.019 (2)	
	$L1-M1$	16.69	0.012 (3)	
$L_{\beta 15}$	$L3-N4$	16.79	0.157 (6)	[0.12 (6)]
$L_{\beta 2}$	$L3-N5$	16.84	2.65 (3)	2.59 (7)
$L_{\beta 4}$	$L1-M2$	17.06	1.74 (2)	1.76 (4)
	$L2-M3$	17.16	0.056 (4)	
$L_{\beta 7}$	$L3-O1$	17.27	0.022 (2)	[0.20 (3)]
$L_{\beta 5}$	$L3-O4.5$	17.51	0.435 (14)	0.465 (15)
	$L3-P4.5$	17.60	0.244 (20)	
$L_{\beta 1}$	$L2-M4$	17.75	11.25 (13)	11.60 (16)
$L_{\beta 3}$	$L1-M3$	17.99	1.217 (16)	1.222 (25)
$L_{\beta 10}$	$L1-M4$	18.58	0.084 (3)	0.075 (10)
$L_{\beta 9}$	$L1-M5$	18.76	0.103 (3)	0.108 (11)
L_{β}		17.54	18.64 (14)	18.39 (19)
$L_{\gamma 5}$	$L2-N1$	20.10	0.106 (4)	0.121 (8)
$L_{\gamma 1}$	$L2-N4$	20.78	2.88 (4)	2.84 (6)
$L_{\gamma 2}$	$L1-N2$	21.10	0.15 (2)	
$L_{\gamma 8}$	$L2-O1$	21.26	0.37 (5)	0.452 (13)
$L_{\gamma 3}$	$L1-N3$	21.34	0.46 (1)	0.47 (3)
$L_{\gamma 6}$	$L2-O4$	21.49	0.52 (2)	0.60 (4)
	$L2-P1$	21.55	0.038 (6)	
	$L2-P4$	21.59	0.020 (4)	
$L_{\gamma 4}$	$L1-O2.3$	22.20	0.198 (8)	0.197 (11)
	$L1-P2.3$	22.40	0.042 (8)	[0.058 (6)]
L_{γ}		22.01	4.78 (7)	4.74 (8)
L_{total}			37.34 (24)	37.39 (24)

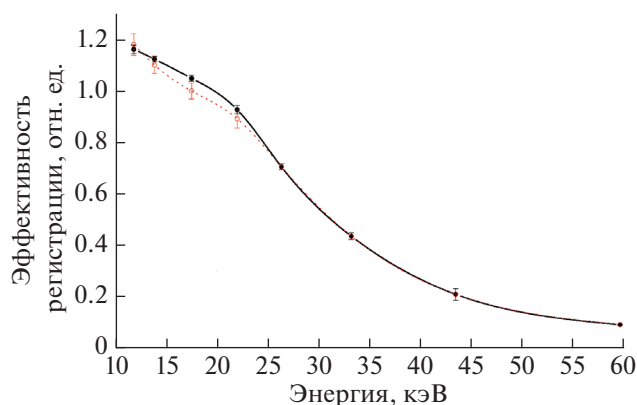


Рис. 4. Кривая относительной эффективности регистрации Si(Li)-спектрометра. Сплошная линия — по нашим данным, пунктирная — по данным [8].

ляет для гамма-переходов, смещенных по энергии на 1–2 кэВ определять погрешность с точностью $\leq 0.5\%$.

Если же проводятся измерения γ - и K_{α} -линий, смещенных по энергии друг от друга на десятки и более кэВ, то погрешность коэффициентов эффективности регистрации этих переходов составляет $\sim 1\%$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан метод обработки сложных рентгеновских и гамма-спектров в области энергий 10–100 кэВ. Предлагаемый метод учитывает сложность описания рентгеновских линий и обеспечивает погрешность обработки $\leq 1\%$. Для реализации метода разработан программный код, который производит набор одиночных и двумерных спектров гамма-лучей, позволяет обрабатывать одновременно несколько гамма-спектров, совместим с форматами Ortec и Canberra. Также с помощью

разработанного кода можно рассчитывать и сохранять в файле спектра калибровки по энергии, форме линии и эффективности, проводить по результатам обработки изотопный анализ. Форма линии в программном коде описывается либо модифицированной функцией Гаусса с “хвостами”, либо функцией Лоренца или табличной линией. Результаты анализа спектров можно экспортировать в текстовый формат для последующей обработки в программах численного анализа данных и научной графики. С помощью разработанного программного кода исследованы L_{α} -излучения калибровочного источника ^{241}Am . С точностью 1–4% определены выходы основных гамма-квантов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и БРФФИ (проект № 20-57-00009).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zheltonozhskaya M.V., Zheltonozhsky V.A., Vlasova I.E. et al. // J. Environ. Radioact. 2020. V. 225. Art. No. 106448.
2. Волков Е.А. Численные методы. Уч. пособ. для инж.-техн. спец. вузов. Санкт-Петербург: Лань, 2008. 248 с.
3. Debertin K., Helmer R.G. Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. Amsterdam: Elsevier Sci. Publ., 1988.
4. Gray P.W., Ahmad A. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 1985. V. 237. P. 577.
5. McNelles L.A., Campbell J.L. // Nucl. Instrum. Meth. 1973. V. 109. P. 241.
6. Вишневецкий И.Н., Желтоножский В.А., Саврасов А.Н. и др. // Вопр. атомн. науки и техн. Сер. физ. ядерн. реакт. 2015. № 1. С. 79.
7. Lepy M.C., Duchemin B., Morel J. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 1994. V. 353. P. 10.
8. Lederer C.M., Shirley V.S. Table of isotopes. New York, 1979.

Development of method for processing complex X-ray and gamma spectra in low energy area

M. V. Zheltonozhskaya^{a,*}, V. A. Zheltonozhsky^a, D. E. Myznikov^b, A. N. Nikitin^c,
N. V. Strilchuk^b, V. P. Khomenkov^b

^aLomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, Moscow, 119991 Russia

^bInstitute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kiev, 03680 Ukraine

^cInstitute of Radiobiology of the National Academy of Sciences of Belarus, Gomel, 246007 Belarus

*e-mail: zhelton@yandex.ru

A method for processing complex X-ray and gamma-spectra in the 10–100 keV energy range is proposed. It considers the complexity of describing X-ray lines and providing a processing error of $\leq 1\%$. It was used to study the L_{α} -radiation of the ^{241}Am calibration source. The yields of the main gamma quanta are determined with an accuracy of 1–4%.