

Математика

Оглавление

<i>Энергетическая калибровка.....</i>	<i>2</i>
<i>Калибровка ширины пиков</i>	<i>3</i>
<i>Калибровка эффективности регистрации.....</i>	<i>3</i>
<i>Расчёт элементарных спектров из спектров эталонов.....</i>	<i>4</i>
<i>Расчёт спектров линий</i>	<i>5</i>
<i>Расчёт элементарных спектров по таблице линий</i>	<i>6</i>
<i>Поглощение излучения в веществе пробы.....</i>	<i>7</i>
<i>Интерполяция таблиц и спектров компонентов.....</i>	<i>10</i>
<i>Поиск пиков</i>	<i>11</i>
<i>Аппроксимация спектра непрерывного рассеяния.....</i>	<i>11</i>
<i>Учёт каскадных переходов</i>	<i>12</i>
<i>Расчёт активностей и оценка погрешностей</i>	<i>13</i>
<i>Расчёт суммарной активности пробы.....</i>	<i>20</i>
<i>Расчёт активности цепочки нуклидов</i>	<i>22</i>

Энергетическая калибровка

Энергетическая калибровка спектрометра (или выбранного спектра) определяет связь между каналами спектрометра (спектра) и энергией регистрируемого излучения. Энергетическая калибровка разделяется на два типа: **начальная** и **коррекция дрейфа**.

Для начальной калибровки используется четыре варианта функции связи $E = \varphi(Pn(z))$:

Шкала	Вид функции
Линейная	$E = Pn(z)$
Экспонента	$E = \exp(Pn(z))$
Логарифм	$E = \log(Pn(z))$
Кв. корень	$E = \sqrt{Pn(z)}$

По умолчанию используется линейная шкала $E = Pn(z)$.

$Pn(z)$ - полином рангом не выше 3-его, который на крайних калибровочных точках заменяется касательной.

$$z < z_0 \quad Pn = P'n(z_0) \cdot z + Pn(z_0) - P'n(z_0) \cdot z_0$$

$$z < z_0 < z_n \quad Pn = Pn(z)$$

$$z > z_n \quad Pn = P'n(z_n) \cdot z + Pn(z_n) - P'n(z_n) \cdot z_n$$

Здесь: E - энергия; $Z = X - (X_0 + X_n)/2$; $x_0, (z_0 = (X_0 - X_n)/2)$ - первая калибровочная точка; $x_n, (z_n = (X_n - X_0)/2)$ - последняя калибровочная точка; $Pn(z)$ - полином; $P'n(z)$ - производная по z от полинома; $P'n(z_0)$ - производная в точке z_0 , $P'n(z_n)$ - производная в точке z_n .

Коэффициенты полинома определяются методом наименьших квадратов

$$k_{Pn} = (A^T \cdot W^T \cdot W \cdot A)^{-1} \cdot A^T \cdot W^T \cdot W \cdot e$$

Здесь:

$$A_{ij} = \sum_{k=1}^n P^i(z_k) \cdot P^j(z_k);$$

n - число точек для калибровки;

$P^j(z_k)$ - ортогональный полином Чебышева ранга j в точке z_k

$W = K_z^{-1/2}$ - матрица весов;

$K_z = D_z \cdot I$ (I - единичная матрица, D_z - вектор дисперсий);

K_z - ковариационная матрица положений помеченных пиков или каналов. Энергии помеченных пиков или каналов считаются известными, а вся неопределённость калибровки связана с неопределённостью положений пиков, используемых для калибровки линейчатых спектров или каналов выбранных оператором. Если для калибровки используются каналы выбранные оператором, неопределённость положения принимается равной половине канала.

e - вектор энергий используемых для калибровки пиков или каналов.

В случае если погрешность определения коэффициента при старшей степени полинома превышает его величину, ранг полинома понижается и рассчитывается новый полином энергетической калибровки.

Дрейф энергетической калибровки в процессе эксплуатации спектрометра предполагается нелинейным: $x = a \cdot ch + b + c \cdot ch^2$ (ch - канал спектрометра, $a - 1$ -

дрейф коэффициента усиления, b - дрейф нуля шкалы, c – коэффициент нелинейных искажений). При начальной калибровке $x = ch$.

Калибровка ширины пиков

В качестве ширины пиков используется ширина пиков на половине высоты. Калибровка ширины пиков определяет связь между шириной и энергией пиков.

Для калибровки ширины пиков используется четыре варианта функции связи $FWHM = \varphi(Pn(z))$:

Шкала	Вид функции
Линейная	$FWHM = Pn(z)$
Экспонента	$FWHM = \exp(Pn(z))$
Логарифм	$FWHM = \log(Pn(z))$
Кв. корень	$FWHM = \sqrt{Pn(z)}$

По умолчанию используется $FWHM = \sqrt{Pn(z)}$.

$Pn(z)$ полином рангом не выше 3-его, который на крайних калибровочных точках заменяется касательной.

$$\begin{aligned} z < z_0 & \quad Pn = P'n(z_0) \cdot z + Pn(z_0) - P'n(z_0) \cdot z_0 \\ z < z_0 < z_n & \quad Pn = Pn(z) \\ z > z_n & \quad Pn = P'n(z_n) \cdot z + Pn(z_n) - P'n(z_n) \cdot z_n \end{aligned}$$

Здесь: $FWHM$ - ширина пиков; X - энергия; $Z = X - (X_0 + X_n)/2$; $x_0, (z_0 = (x_0 - x_n)/2)$ - первая калибровочная точка; $x_n, (z_n = (x_n - x_0)/2)$ - последняя калибровочная точка; $Pn(z)$ - полином; $P'n(z)$ - производная по z от полинома; $P'n(z_0)$ - производная в точке z_0 , $P'n(z_n)$ - производная в точке z_n .

Расчёт коэффициентов полинома такой же, как и в процедуре энергетической калибровки (см. «Энергетическая калибровка»).

Калибровка эффективности регистрации

В программном пакете «SPECTRRAD» можно рассчитать четыре функции эффективности регистрации квантов:

- эффективность регистрации квантов определённой энергии в пиках полного поглощения $Eff(e) = S(e)/Q(e)$,
- в пиках одиночного вылета $EffEsc1(e-511) = Sesc1(e-511)/Q(e)$,
- в пиках двойного вылета $EffEsc2(e-1022) = Sesc2(e-1022)/Q(e)$.
- полная эффективность регистрации квантов определённой энергии в спектре $Eff(e) = S/Q(e)$,

Здесь: e - энергия линии в кэВ, $S(e)$, $Sesc1(e-511)$, $Sesc2(e-1022)$, S - соответственно: площадь пика полного поглощения, площади пиков одиночного и двойного вылета, площадь спектра, включающая комптон и все пики, соответствующие количеству квантов излучения $Q(e)$ данной энергии.

В пакете «SPECTRRAD» функция эффективности регистрации задаётся в табличном виде. При малой плотности точек таблицы рекомендуется аппроксимировать таблицу сплайном (под сплайном понимается сшитый с точностью до значений функции или первых производных, в зависимости от ранга сплайна, полином). Сплайн имеет аппроксимирующий характер - он не проходит через все точки таблицы, а аппроксимирует её, формируя отрезок сплайна взвешенным методом наименьших квадратов из ортогональных полиномов Чебышева по заданному количеству точек.

Считается, что для аппроксимации функций эффективности регистрации квантов в пиках полного поглощения в диапазоне 30-3000 кэВ, лучше других подходит двойной логарифмический масштаб полиномиальной аппроксимации $F = \exp(Pm(\log(x)))$, а для функций эффективности регистрации квантов в пиках вылета - логарифмический масштаб полиномиальной аппроксимации $F = Pm(\log(x))$.

Расчёт элементарных спектров из спектров эталонов

Полагаем, что альфа, гамма или бета спектр, накопленный спектрометром, является линейной суммой элементарных спектров:

$$s = F \cdot x + b$$

Здесь:

- F - матрица элементарных спектров нуклидов,
- x - вектор активностей нуклидов,
- b - спектр фона.

Необходимым условием расчета элементарных спектров является требование невырожденности матрицы активностей рассчитываемых элементарных спектров в рабочем наборе эталонов. Наиболее желательный вариант - ортогональность матрицы активностей.

$$\text{Формула для расчета: } F = R\{(S - B) \cdot C^{-1}\}$$

Здесь:

R - оператор проектирования получаемых значений на ограничения. В данном случае используется обнуление значений меньших заданного статистического уровня ($<G$) для задания области значений элементарного спектра.

C^{-1} - матрица обратная матрице средних за время измерения активностей нуклидов в эталонах:

$$C_{nm} = A_{nm} \left\{ \sum_{k=0}^l \lambda_k \int_{T_m}^{T_e} \left(\frac{X_k}{\lambda_k} \cdot \prod_{i=0}^{k-1} \beta_i \cdot \lambda_i \cdot \left(\sum_{i=0}^k \frac{\exp(-\lambda_i \cdot (t - T_p))}{\prod_{\substack{j=0 \\ j \neq i}}^k (\lambda_j - \lambda_i)} \right) \right) dt \right\} / (T_E - T_M)$$

A_{nm} - активность n -ого нуклида в m -том эталоне на дату аттестации; n -ый нуклид в матрице активностей является l -ым нуклидом в цепочке распада нуклидов содержащихся в m -ом эталоне;

λ_j - постоянная распада j -ого нуклида в цепочке распада;

β_i - доля выбранного перехода (ветви) в данном узле дерева распада.

T_p - дата аттестации эталона;

T_m - дата начала измерений эталона;

T_e - дата окончания измерений.

S - матрица спектров измеренных эталонов нормированных на живое время измерения.

B - матрица спектров фона нормированных на живое время измерения.

Расчёт погрешностей элементарных спектров основан на условии, что статистические флуктуации спектра пренебрежимо малы в сравнении с погрешностью аттестации эталонов (спектры эталонов должны быть измерены с хорошей статистикой), и, соответственно, относительная погрешность значений в каналах спектров эталонов равна относительной погрешности аттестации эталонов. Соответственно

$$D_{Aij} = \sum_k D((S - B)_{ik}) \cdot (X_{kj}^{-1})^2.$$

D_{Aij} - дисперсия i -ого канала j -ого элементарного спектра.

$D((S - B)_{ik})$ - дисперсия k -ого элемента i -ой строки матрицы $(S - B)$.

Расчёт спектров линий

Аппаратурный спектр, зарегистрированный спектрометром, описывается выражением

$$S(x) = \int F(x, e) \cdot s(e) \cdot de$$

Здесь:

$F(x, e)$ - функция, описывающая процесс регистрации квантов излучения $s(e)$ в виде аппаратного спектра $S(x)$ - ядро преобразования.

В случае линейчатого спектра $s(e) = A_i \cdot \delta(e - e_i)$, δ - дельта функция Дирака.

$$S(x) = \sum A_i \cdot F(x, e_i),$$

где $F(x, e_i)$ - сечения ядра преобразования для заданной энергии e_i , или, другими словами, - отклик спектрометра на излучение заданной энергии - спектр линии.

Если мы сможем рассчитать какое-то количество таких сечений ядра преобразования (спектров линий), то сможем интерполяцией по этим сечениям рассчитывать аппаратные спектры нуклидов. Расчёт таких сечений практически возможен только для линейчатых спектров – альфа и гамма.

Исходя из предположения непрерывности $F(x, e)$, предлагается следующая параметризация:

- **Расчёт спектров пиков.**

Под спектром понимается спектр пиков (для гамма спектров - спектр без спектра непрерывного рассеяния). Для альфа спектров спектр пиков и полный отклик спектрометра на альфа излучение определённой энергии совпадают. Для гамма спектрометрии в качестве модели пика рассчитывается пик единичной площади заданной энергии и ширины. Спектр пиков (отклик спектрометра без спектра непрерывного рассеяния) будет произведением эффективности регистрации для кванта заданной энергии и рассчитанной модели пика.

$$F(x, e) = Eff(e) \cdot F((x - En^{-1}(e) + En^{-1}(e_i)) / (W(e) / W(e_i)))$$

Здесь:

$Eff(e)$ - функция эффективности регистрации, для альфа спектрометрии $Eff(e) = 1$.

$En(e)$ - энергетическая калибровка спектрометра,

$W(e)$ - калибровка ширины пиков,

e_i - энергия линии.

Используется энергетическая калибровка спектрометра, калибровка ширины пиков и калибровка эффективности регистрации.

- **Расчёт полных спектров.**

Спектр включает и спектр непрерывного рассеяния. Сечение ядра преобразования - полный отклик спектрометра на один квант излучения заданной энергии (сечение включает и эффективность регистрации).

$$F(x, e) = F(e \cdot (x - En^{-1}(e) + En^{-1}(e_i)) / e_i)$$

Используется только энергетическая калибровка спектрометра. Для гамма излучения расчёт полных спектров по данной методике страдает серьёзными недостатками (не учитывается тормозное рентгеновское излучение, эффекты образования пар), поэтому такой расчёт не рекомендуется использовать для

оценок активности, можно с осторожностью использовать для предварительного анализа нуклидного состава. Для альфа спектров ограничений нет.

Для линейчатых спектров модель пика рассчитывается по спектрам пиков полного поглощения. При этом предполагается (и подтверждается опытом), что в пределах используемого для расчёта модели пика одиночного пика или мультиплета все изменения формы достаточно точно описываются деформацией аффинного типа $\varphi(z) = \varphi\left(\frac{x-p}{w}\right)$.

Спектр линии $\varphi(i)$ при таком предположении рассчитывается решением системы интегральных уравнений $B(i) = \int \sum_{j=1}^{i+1} \varphi\left(\frac{i-p(e_j)}{w(e_j)}\right) \cdot di$.

Здесь: $B(i) = S(i) - S_{comp}(i) - Bgd(i) + Bgd_{comp}(i)$

$S(i)$ - спектр эталона, $S_{comp}(i)$ - спектр непрерывного рассеяния спектра эталона,

$Bgd(i)$ - спектр фона приведённый к времени измерения спектра эталона,

$Bgd_{comp}(i)$ - спектр непрерывного рассеяния для фона,

$p(e_j)$ - положение j -ой линии с энергией e на шкале каналов,

$w(e_j)$ - ширина j -ой линии с энергией e .

Процедура рассчитывает искомую функцию для всей области используемого одиночного пика или мультиплета, определяет параметры линии (энергия, ширина, площадь). Для гамма спектров нормирует выбранные пики на площадь. И сохраняет их как модели пиков.

Для плохо разрешенных спектров (обработка без выделения пиков) спектры линий рассчитываются из элементарных спектров. При этом может быть, что весь набор элементарных спектров не содержит спектров из одной линии (из набора нуклидов, обычно используемых для калибровки сцинтилляционных гамма спектрометров, только элементарный спектр К-40 состоит, практически, из одной линии 1460.8 кэВ). Поэтому процедура расчёта использует описанную параметризацию линий и для расчёта линий. Предположим, элементарный спектр содержит n линий и нет ни одной рассчитанной линии. Оператор должен выбрать наиболее мощную линию в качестве рассчитываемой (линия с индексом 0), при этом все остальные линии программа выражает, пользуясь описанной параметризацией, экстраполяцией рассчитываемого спектра линии. Если элементарный спектр s содержит k каналов, мы получаем систему из k уравнений с k неизвестными

$$F(e_i \cdot (x - En^{-1}(e_i) + En^{-1}(e_0)) / e_0) = s$$

Поскольку все дополнительные линии получаются экстраполяцией основной, решение будет приемлемым при выполнении условий:

- дополнительные линии расположены вблизи основной,
- вклад дополнительных линий незначителен в сравнении с вкладом основной линии.

Если рассчитываются несколько линий из нескольких элементарных спектров, процедура вначале рассчитывает наиболее обусловленные линии и использует полученные спектры для интерполяции линий рассчитываемых позже.

Процедура расчета для повышения обусловленности матрицы накладывает ещё одно ограничение - формируемая система уравнений должна иметь треугольный характер, то есть выбираемые линии должны быть крайними в спектре нуклида (либо первыми, либо последними).

Расчёт элементарных спектров по таблице линий

В том случае, если необходимый для декомпозиции измеренного спектра элементарный спектр не найден в наборе рассчитанных из спектров эталонов элементарных спектров, он рассчитывается процедурой расчёта элементарных спектров по

таблице сформированных откликов спектрометра на излучение определённых энергий (спектров линий/пиков), функциям калибровок спектрометра и библиотеке нуклидов (для краткости и отличия от других методов расчёта - процедурой «генерации»).

Процедура использует метод кусочно-линейной интерполяции (экстраполяции) спектров линий, формирующих элементарный спектр, по двум ближайшим к энергии рассчитываемой линии предварительно сформированных спектров линий (см. «Расчёт спектров линий») определённых энергий e_1 и e_2 в заданном оператором режиме интерполяции:

$$\begin{aligned} f &= a \cdot x + b \\ f &= \exp(a \cdot x + b) \\ f &= a \cdot \log(x) + b \\ f &= \exp(a \cdot \log(x) + b) \end{aligned}$$

Отклик на излучение определенной энергии e рассчитывается интерполяцией (экстраполяцией):

$$f(e, i) = ((e_2 - e) \cdot f(e_1, k_1, i) + (e_1 - e) \cdot f(e_2, k_2, i)) / (e_2 - e_1), \dots, k_1 = e / e_1, k_2 = e / e_2$$

Спектр нуклида $F = \sum A_j \cdot f_j$ - сумма откликов с соответствующим квантовым выходом A_j всех линий данного нуклида.

Для расчёта спектров линий заданной энергии e используется следующая параметризация рассчитанных спектров линий

- **Для спектров пиков.**

Под спектром понимается спектр пиков (спектр без спектра непрерывного рассеяния). Под спектром линии понимается пик единичной площади заданной энергии и ширины

$$F(e, x) = \text{Eff}(e) \cdot F(e_i, (x - E_n^{-1}(e) + E_n^{-1}(e_i)) / (W(e) / W(e_i)))$$

Здесь:

$\text{Eff}(e)$ - функция эффективности регистрации, $E_n(e)$ - энергетическая калибровка спектрометра, $W(e)$ - калибровка ширины пиков, e_i - энергия линии. Используется энергетическая калибровка спектрометра, калибровка ширины пиков и калибровка эффективности регистрации.

- **Для полных спектров.**

Спектр включает и спектр непрерывного рассеяния.

$$F(e, x) = F(e_i, (x - E_n^{-1}(e) + E_n^{-1}(e_i)) / e_i)$$

Используется только энергетическая калибровка спектрометра.

Поглощение излучения в веществе пробы

При прохождении через вещество частицы излучения взаимодействуют с электронами и ядрами атомов вещества. При взаимодействии они либо поглощаются, либо теряют часть своей энергии и изменяют направление. Для потока частиц N_0 проходящих через единицу площади на отрезке Δx в реакцию взаимодействия вступят $\Delta n = N_0 \cdot (\rho \cdot N_a / A) \cdot \sigma \cdot \Delta x$ частиц.

Здесь ρ - плотность среды, N_a - число Авогадро, A - молярная масса атомов среды, σ - полное эффективное (усреднённое для всех атомов вещества) сечение взаимодействия.

Величина $\sigma \cdot \rho \cdot N_a / A$ называется полным линейным коэффициентом ослабления излучения. Полный линейный коэффициент ослабления зависит от плотности вещества, поэтому при расчётах пользуются величиной $\mu = \sigma \cdot N_a / A$ (кв.см/г) - массовым сечением взаимодействия (или массовым коэффициентом ослабления). Для альфа и бета излучения принято использовать величину обратную массовому коэффициенту

ослабления – пробег частицы в веществе $R = 1/\mu = A/(\sigma \cdot N_a)$ (г/кв.см.). Пробег измеряемый в г/кв.см также не зависит от плотности счётного образца. Для вычисления пробега в единицах длины его требуется поделить на плотность вещества

Эффективность регистрации частиц в детекторе зависит от плотности счётного образца и массового коэффициента ослабления (или пробега) частиц в веществе счётного образца:

$$eff_1 = eff_0 \cdot k(\mu_0, \rho_0, \mu_1, \rho_1) \text{ или } eff_1 = eff_0 \cdot k(R_0, \rho_0, R_1, \rho_1)$$

$k(\mu_0, \mu_1) = \mu_0 \cdot \rho_0 \cdot (1 - \exp(-\rho_1 \cdot \mu_1)) / (\mu_1 \cdot \rho_1 \cdot (1 - \exp(-\rho_0 \cdot \mu_0)))$ - коэффициент эффективности регистрации связанный с массовым коэффициентом ослабления излучения в эталоне μ_0 в кв.см/ г и в счётном образце μ_1 для эффективности регистрации выраженной в (имп./с)/ Бк или в имп./квант – измерения в «тонком» слое для гамма и бета излучения.

$k(\mu_0, \mu_1) = \mu_0 \cdot (1 - \exp(-\rho_1 \cdot \mu_1)) / (\mu_1 \cdot (1 - \exp(-\rho_0 \cdot \mu_0)))$ - коэффициент эффективности регистрации связанный с массовым коэффициентом ослабления излучения в эталоне μ_0 в кв.см/ г и в счётном образце μ_1 для эффективности регистрации выраженной в (имп./с)/ (Бк/кг) или в имп./квант/кг – измерения в «толстом» слое для гамма и бета излучения.

$$k(R_0, R_1) = \frac{R_1 \cdot fAtten(\rho_1, R_1)}{R_0 \cdot fAtten(\rho_0, R_0)} - \text{коэффициент эффективности регистрации}$$

связанный с пробегом излучения в эталоне R_0 в г/кв.см и в счётном образце R_1 (измерения в «толстом» слое) для альфа излучения.

$$fAtten(\rho, R) = 1 - \sqrt{1 - (\rho/R)^2} + (\rho/R) \cdot \arccos(\rho/R) - \text{для } \rho/R < 0.8.$$

$$fAtten(\rho, R) = 1 - \exp(-\alpha \cdot \rho/R) - \text{для } \rho/R > 0.8.$$

ρ - поверхностная плотность в г/кв.см, соответственно эталона и пробы.

α - коэффициент для связки двух функций.

Гамма излучение

При прохождении через вещество гамма кванты либо поглощаются в результате фотоэлектрического эффекта, либо теряют часть своей энергии и изменяют направление в результате комптоновского рассеяния и эффекта рождения электрон – позитронных пар (есть ещё ряд эффектов, но наиболее существенны три указанных). При малых энергиях гамма квантов, наиболее значимым является фотоэффект. При энергиях квантов $E_\gamma \geq 1022$ кэВ, возникает эффект рождения электрон-позитронных пар. Сечение совместного действия эффектов равно сумме сечений отдельных реакций:

$$\sigma = \sigma_\phi + \sigma_\kappa + \sigma_{пар}$$

$\sigma_\phi, \sigma_\kappa, \sigma_{пар}$ - сечения фотоэффекта, комптоновского рассеяния и эффекта образования пар.

В пакете «SPECTRRAD» существует несколько способов определения сечений реакций как функций от энергии излучения для заданных видов материалов счётных образцов:

- задание в виде таблицы,
- расчёт по массовой или химической формуле вещества с учётом поглощения для конкретного элемента по таблицам <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>;
- расчёт по процедуре определённой оператором.

Если процедура расчёта оператором не задана, используется расчёт по массовой или химической формуле вещества по формулам, предложенные преподавателями кафедры общей ядерной физики физического факультета МГУ:

$$\sigma_{\phi} = 4\pi r_0^2 a^4 Z^5 * \frac{(2 + \varepsilon)^{3/2}}{\varepsilon^{7/2}} * \left[\frac{4}{3} + (1 + \varepsilon) * \frac{(\varepsilon - 1)}{(2 + \varepsilon)} * \left(1 - \ln \left(\frac{1 + \varepsilon + \sqrt{\varepsilon * (2 + \varepsilon)}}{1 + \varepsilon - \sqrt{\varepsilon * (2 + \varepsilon)}} \right) \right) \right]$$

где:

$$\varepsilon = \frac{E_{\gamma}}{(m_e * c^2)} - \text{безразмерный параметр энергии гамма-квантов,}$$

$$r_0 = \frac{e^2}{(m_e * c^2)} = 2.81794092 * 10^{-15} \text{ м} - \text{классический радиус электрона,}$$

Z - заряд ядра элемента вещества счётного образца.

$$a = \frac{e^2}{(h * c)} = \frac{1}{137.03598} - \text{постоянная тонкой структуры,}$$

E_{γ} - энергия гамма излучения.

$m_e * c^2$ – энергия покоя электрона,

$$\sigma_{\kappa} = 2\pi r_0^2 Z * \left\{ \frac{(1 + \varepsilon)}{\varepsilon^2} * \left[2 * \frac{(1 + \varepsilon)}{(1 + 2 * \varepsilon)} - \frac{\ln(1 + 2 * \varepsilon)}{\varepsilon} \right] + \frac{\ln(1 + 2 * \varepsilon)}{2 * \varepsilon} - \frac{(1 + 3 * \varepsilon)}{(1 + 2 * \varepsilon)^2} \right\}$$

$$\sigma_{\text{нар}} = r_0^2 a Z^2 * \left(\frac{28}{9} * \ln(2 * \varepsilon) - \frac{218}{27} \right), \text{ при } 1 \ll \varepsilon < \frac{1}{a * Z^{1/3}}$$

$$\sigma_{\text{нар}} = r_0^2 a Z^2 * \left(\frac{28}{9} * \ln(183 * Z^{-1/3}) - \frac{218}{27} \right), \text{ при } \varepsilon > \frac{1}{a * Z^{1/3}}$$

Для расчёта таблицы эффективности регистрации в фотопиках используется суммарное сечение трёх эффектов. Для расчёта таблицы эффективности регистрации в пиках вылета используется сечение образования пар.

В сцинтилляционной спектрометрии (при обработке без выделения пиков) нельзя использовать суммарное сечение трёх реакций, поскольку гамма кванты, испытавшие комптоновское рассеяние, могут не зарегистрироваться в детекторе, а могут и зарегистрироваться в спектре комптоновского рассеяния. Точно так же гамма кванты, образовавшие пары электрон-позитрон, могут зарегистрироваться в спектре, но естественно, в другой энергетической области. Рассчитать, где в спектре регистрируется гамма квант (если регистрируется) после комптоновского рассеяния, очень непросто. Для сцинтилляционных спектров в пакете «SPECTRRAD» производится перерасчёт (интерполяция или экстраполяция) спектров компонентов на заданную плотность электронов (комптоновское рассеяние пропорционально плотности электронов) по спектрам компонентов, рассчитанным из эталонов различной плотности, приведённых к заданному эффективному заряду атомов и эффективной атомной массе. А перерасчёт на заданный эффективный заряд и эффективную атомную массу, то есть учёт

фотопоглощения производится по формуле поглощения излучения в веществе для фотоэффекта (σ_{ϕ}).

Бета излучение

Пробег бета частиц обратно пропорционален плотности электронов. По умолчанию используется формула:

$$R = 0.19272464 * E_{\beta}^{1.4} * \frac{A}{Z} \text{ для } E_{\beta} < 0.8 \text{ МэВ,}$$

$$R = 0.4818116 * (0.54 * E_{\beta} - 0.133) \cdot \frac{A}{Z} \text{ для } E_{\beta} \geq 0.8 \text{ МэВ.}$$

Поскольку спектр бета излучения непрерывен, расчёт по формулам может применяться (с осторожностью) только при расчёте суммарной активности. Расчёт спектров компонентов разложения для бета спектров в пакете «SPECTRRAD» производится интерполяцией или экстраполяцией спектров компонентов с различными значениями плотности электронов на плотность электронов счётного образца.

Альфа излучение

Пробег альфа частиц в веществе рассчитывается по эмпирической формуле Уильяма Генри Брэгга: $R = 0.0001 \cdot \sqrt{A \cdot E_{\alpha}^3}$ г/кв.см. (энергия E_{α} в МэВ).

Интерполяция таблиц и спектров компонентов

Таблицы эффективности регистрации и спектры компонентов разложения, приведённые к заданному значению геометрического параметра (параметра интерполяции), рассчитываются из таблиц и элементарных спектров с различными значениями параметра интерполяции в соответствии с выбранным геометрическим параметром пробы. В качестве геометрического параметра, как правило, используется плотность счётного образца, а если заданы эффективный атомный номер и эффективная атомная масса вещества эталонов и счётного образца – в соответствии с плотностью электронов счётного образца. Расчет осуществляется процедурой кусочно-полиномиальной интерполяции (экстраполяции) для каждого канала спектра или точки таблицы по n ($n < 7$) таблицам или элементарным спектрам с различными значениями геометрического параметра по выбранной формуле:

$$F(S) = F([EXP](Pm[LOG](X)))$$

с параметрами *Parameter*, *Rang*, *Mode*, *Points* и *Volume* устанавливаемыми в файле “**decomp.ini**”.

Здесь:

<i>F(S)</i>	Функция интерполируемых значений: (S - значения аппроксимируемых точек спектра).
<i>X</i>	Параметр интерполяции (плотность пробы или один из размеров пробы или изменяемых размеров геометрии).
<i>Pm</i>	Полином ранга <i>Rang</i> . Значение по умолчанию - <i>Rang</i> = 1. <i>Rang</i> должен лежать в диапазоне от 0 до 3.
<i>Mode</i>	Вид интерполяции: mode=0 – F=Pm(x), mode=1 – F=Pm(log(x)), mode=2 – F=exp(Pm(x)) – значение по умолчанию для гамма спектрометров, mode=3 – F=exp(Pm(log(x))), mode=4 – F=1/Pm(x), если <i>Points</i> = 2 и <i>Rang</i> = 1, то F=1/(ax+b) ² , mode=5 – F=1/Pm(log(x)), mode=6 – F=1/exp(Pm(x)), mode=7 – F=1/exp(Pm(log(x))), mode=8 – F=F0·(1-exp(-k·x)) - значение по умолчанию для геометрий «толстого слоя»,

mode=9 – $F=F_0 \cdot (1 - \exp(-k \cdot x)) / (k \cdot x)$ - значение по умолчанию для альфа и бета спектрометров,

Points Число точек, участвующих в формировании полинома.

Volume Объём стандартного для данной геометрии сосуда для измерения проб.

Поиск пиков

Процедура поиска пиков использует по выбору оператора три метода поиска пиков:

- **«Плавающий отрезок».**

$$f(i) = \left(\int_{i-w(i)/2}^{i+w(i)/2} (Sp(x) - Sbgd(x)) \cdot dx \right) / \sqrt{1 + \int_{i-w(i)/2}^{i+w(i)/2} Sp(x) \cdot dx}$$

Здесь:

$f(i)$ - функция детектирования.

i - канал спектра, $w(i)$ - ширина пика (в каналах).

Sp - спектр, $Sbgd$ - значения «фона» под пиком, аппроксимируемые отрезком прямой закреплённых на спектре в точках $i-w(i)/2$ и $i+w(i)/2$.

- **Свёртка с моделью пика.**

$$f(e) = \left(\int_{e-w(e)/2}^{e+w(e)/2} F(x, e) \cdot (Sp(x) - Sbgd(x)) \cdot dx \right) / \int_{e-w(e)/2}^{e+w(e)/2} \sqrt{Sp(x) \cdot F(x, e)^2} \cdot dx$$

Здесь:

$f(e)$ - функция детектирования.

e - энергия, $w(e)$ - ширина пика (в единицах энергии).

$F(x, e)$ - модель линии (пика).

- **Метод Марискотти.**

$$f(e) = \left(\int_{e-2w(e)}^{e+2w(e)} M(x, e) \cdot Sp(x) \cdot dx \right) / \int_{e-2w(e)}^{e+2w(e)} \sqrt{Sp(x) \cdot M(x, e)^2} \cdot dx$$

Здесь:

$f(e)$ - функция детектирования.

e - энергия, $w(e)$ - ширина пика (в единицах энергии).

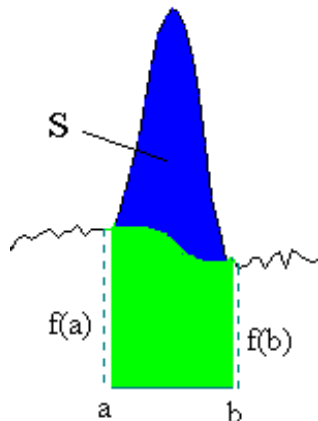
$M(x, e)$ - функция Марискотти.

Считается, что в спектре присутствует пик, если значение функции детектирования превышает порог, заданный параметрах настройки.

Аппроксимация спектра непрерывного рассеяния

Для аппроксимации спектра непрерывного рассеяния под пиком используется два метода:

- **Интегральная ступенька Филиппота.**



$$f_j(i) = f(a) - (s(i) - f_{j-i}(i)) \cdot (f(a) - f(b)) / S_{j-1}$$

Здесь:

f - спектр непрерывного рассеяния, i - канал спектра, j - номер итерации.

s - спектр; a, b - начало и конец области пика.

$$S = \sum_a^b (s(i) - b(i)) - \text{площадь пика.}$$

- **Полином.** При аппроксимации полиномом участок спектра, содержащий пики раскладывается методом наименьших квадратов на сумму спектров пиков и полином спектра непрерывного рассеяния.

В пакете «СПЕКТРРАД» разработана процедура аппроксимации спектра непрерывного рассеяния сплайном для всего используемого при обработке энергетического диапазона спектра (сплайнами для всех спектров группы при совместной обработке спектров). Неизвестные коэффициенты сплайнов включаются в общую систему уравнений и определяются при решении системы уравнений (см. Расчёт активностей и оценка погрешностей).

Учёт каскадных переходов

Для линейчатых гамма спектров эффекты, связанные с каскадными переходами (утечка импульсов из пиков полного поглощения в пики суммирования каскадных переходов), учитываются как при обработке спектров с поиском пиков (калибровка эффективности, генерация спектров, расчёт активностей нуклидов), так и при обработке спектров без поиска пиков (генерация спектров, расчёт активностей нуклидов).

Для двух каскадных переходов:

$N_1 = Ef_1 \cdot Q_1 - N_1^*$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых в первом пике с учётом утечки.

$N_2 = Ef_2 \cdot Q_2 - N_2^*$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых во втором пике с учётом утечки.

$N_{12} = Ef_1 \cdot K_1 \cdot Q_1 \cdot Ef_2 \cdot K_2 \cdot Q_{2/1}$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых в пике суммирования.

$N_1^* = Ef_1 \cdot K_1 \cdot Q_1 \cdot Ef_2^* \cdot K_2 \cdot Q_{2/1}$ - вероятность утечки импульсов из первого пика.

$N_2^* = Ef_2 \cdot K_2 \cdot Q_2 \cdot Ef_1^* \cdot K_1 \cdot Q_{1/2}$ - вероятность утечки импульсов из второго пика.

Q_1 - вероятность выхода квантов для первой каскадной линии.

Q_2 - вероятность выхода квантов для второй каскадной линии.

$Ef_1 = \iiint f(e_1) \cdot dv / Vol$ - усреднённая по объёму пробы эффективность регистрации в пике полного поглощения для первой каскадной линии. Здесь: $f(e)$ - эффективность регистрации кванта с энергией e для данной точки геометрии, Vol - объём пробы.

Ef_2 - усреднённая по объёму пробы эффективность регистрации в пике полного поглощения для второй каскадной линии.

Ef_1^* - усреднённая по объёму пробы полная эффективность регистрации для первой каскадной линии (вероятность регистрации кванта в любой области спектра: пике полного поглощения, спектре комптоновского рассеяния, пиках вылета, аннигиляционном пике).

Ef_2^* - усреднённая по объёму пробы полная эффективность регистрации для второй каскадной линии.

$K(e) = \sqrt{(\iiint f(e) \cdot f(e) \cdot dv) / (\iiint f(e) \cdot dv \cdot \iiint f(e) \cdot dv)}$ - геометрический фактор учитывающий отличие эффективности регистрации в данной точке от эффективности регистрации усреднённой по объёму.

$Q_{2/1}$ - вероятность выхода кванта второй каскадной линии при условии выхода кванта для первой.

$Q_{1/2}$ - вероятность выхода кванта первой линии при условии выхода кванта для второй.

При расчёте используется равенство $Q_2 \cdot Q_{1/2} = Q_1 \cdot Q_{2/1}$. - вероятность одновременного выхода двух гамма квантов.

Для трёх каскадных переходов:

$N_1 = Ef_1 \cdot Q_1 \cdot (1 - Ef_2^* \cdot K_1 \cdot K_2 \cdot Q_{2/1}) \cdot (1 - Ef_3^* \cdot K_1 \cdot K_3 \cdot Q_{3/1})$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых в пике полного поглощения с учётом утечки (аналогично для N_2 и N_3).

$N_{12} = Ef_1 \cdot K_1 \cdot Q_1 \cdot Ef_2 \cdot K_2 \cdot Q_{2/1} \cdot (1 - Ef_3^* \cdot K_3 \cdot Q_{3/1})$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых в пике суммирования двух каскадных (аналогично для N_{13} и N_{23}).

$N_{123} = Ef_1 \cdot K_1 \cdot Q_1 \cdot Ef_2 \cdot K_2 \cdot Q_{2/1} \cdot Ef_3 \cdot K_3 \cdot Q_{3/1}$ - вероятность регистрации импульсов регистрируемых в пике суммирования трёх каскадных.

$Q_{3/1}$ - вероятность выхода квантов третьей каскадной линии при условии выхода квантов для первой.

Ef_3 - эффективность регистрации в пике полного поглощения для третьей каскадной линии.

Ef_3^* - полная эффективность регистрации для третьей каскадной линии.

Расчёт активностей и оценка погрешностей

Методика расчёта активностей основана на разложении спектров в выбранном энергетическом диапазоне на спектры компонентов в предположении, что измеренный спектр является суммой спектров нуклидов счетного образца (пробы) и спектра фона. Нуклидный состав пробы полагается либо заранее известным, либо определяется процедурами предварительного анализа. Предполагается, что спектр компонента не изменяется от наличия в пробе других нуклидов, но зависит от геометрических факторов (геометрия измерений) химического состава и плотности счётного образца.

Метрика

Распространенный подход в оценивании – найти такие параметры p_x модели $M(p)$ (p – вектор оцениваемых параметров модели), которые имели бы минимальные дисперсии $D_{p_x} = \min(D_p)$ и удовлетворяли условию $\|M(p_x) - S\| < E$ ($\|\dots\|$ - обозначение нормы вектора, S - объект, в нашем случае, - измеренный спектр (ряд спектров), E - заданный порог приемлемости модели). Для класса линейных оценок (и для несколько более широкого класса в случае нормальности $M(p) - S$) эти два условия объединяются в одно $\|K_x^{-1/2} \cdot (M(p_x) - S)\| = \min \|K_x^{-1/2} \cdot (M(p_x) - S)\|$.

Здесь K – ковариационная матрица вектора $M(p) - S$.

Использование в качестве нормы $\|\dots\|$ евклидовой длины и, соответственно, в качестве процедуры – метода наименьших квадратов обеспечило бы нам минимальные дисперсии оценок, но только при выполнении предположения о заранее известной ковариационной матрице K . Метод наименьших квадратов является весьма неустойчивой, по отношению к нарушениям исходных предположений, процедурой и поэтому в настоящее время используются различного рода помехоустойчивые (робастные) методы оценивания. Широко распространено оценивание Хуберовского типа (Huber estimation), которое используется и в нашей программе. Норма в Хуберовской метрике (Huber metric) выглядит следующим образом:

$$\|\dots\| = (M(p) - S)^2 \text{ в случае } 0 > C_a < (M(p) - S) < C_b > 0 \text{ - наименьшие квадраты при небольшом отклонении.}$$

$$\|\dots\| = |M(p) - S| \text{ в случае } 0 > C_a > (M(p) - S) \text{ или } (M(p) - S) > C_b > 0 \text{ - наименьшие модули при отклонениях превышающих заданный порог.}$$

В нашей методике $C_a = -m \cdot G$, $C_b = n \cdot G$, где G – предполагаемое среднеквадратичное отклонение, значения m и n задаются в параметрах декомпозиции (m и n могут быть заданы равным ∞ , в этом случае оценка будет МНК оценкой).

Объект

Мы предполагаем, что спектр S имеет диагональную ковариационную матрицу $K_s = D_s \cdot I$ (I – единичная матрица, D_s – вектор дисперсий) причем $D_{S_i} = F_i + \eta^2 F_i^2$ для $F_i > 0$ и $D_{S_i} = 1$ для $F_i < 1$. $F_i = S_i$ для первой итерации и $F_i = M(p, i)$ для последующих итераций.

Здесь:

S_i – количество отсчётов в i – том канале спектра S ,

η – коэффициент линейной составляющей статистики ($\eta \geq 0$). То есть спектр имеет составную: пуассоновскую плюс линейную статистику. Для спектра пробы η определяется дифференциальной нелинейностью спектрометра. Для спектра фона η является коэффициентом изменчивости фона, рассчитываемой процедурой статистической обработки результатов измерений фона.

Модель

Мы полагаем

$$M^{l,i}(p) = \left\{ \int (\Phi(x, w^l) \cdot f_0^l \cdot (a_0^l \cdot (i-x)^2 + b_0^l \cdot (i-x) + c_0^l) + k(Z, i) \cdot \sum A_j \cdot f_j^l \cdot (a_j^l \cdot (i-x)^2 + b_j^l \cdot (i-x) + c_j^l)) \cdot dx \right\} + S_{compt}^l(i) + Pn^l(i)$$

$$p = (Z, A_1, \dots, A_n, w_j^l, a_j^l, b_j^l, c_j^l, Pn^l).$$

Здесь:

$l = 0-m$ – индекс спектра, к которому относится модель, i – канал спектра l ,

$j = 0-n$ – номер компонента ($j=0$ – фон).

$f_0^l = B^l - B_{compt}^l$ – спектр фона с вычтенным спектром непрерывного рассеяния (B_{compt}^l включается в модель только в режиме обработки гамма спектров с выделением пиков).

f_1^l, \dots, f_n^l – спектры компонентов (нормированные на число распадов спектры излучения отдельных нуклидов или цепочек нуклидов, находящихся в состоянии радиоактивного равновесия).

A_1, \dots, A_n – амплитуды соответствующих компонентов.

a_j^l, b_j^l и c_j^l – параметры энергетического дрейфа спектрометра.

Множитель $k(Z, i) = (1 - \exp(-\mu \cdot \rho \cdot Z^4 \cdot \Delta / f(E(i)))) / (\mu \cdot \rho \cdot Z^4 \cdot \Delta / f(E(i)))$ используется только в режиме обработки гамма спектров.

Z - отклонение условного Z эффективное пробы от Z эффективное эталона использованного при расчёте эффективности регистрации. $E(i)$ - энергия канала i . μ - линейный коэффициент поглощения. ρ - плотность счётного образца. Δ - толщина счётного образца (задаётся при установке геометрии).

$S_{comp}^l(i)$ – спектр непрерывного рассеяния для спектра пробы (спектр непрерывного рассеяния включается в модель только в режиме обработки гамма спектров с выделением пиков).

$Pn^l(i)$ - сплайн. Сплайн используется при разложении гамма спектра на спектры пиков для аппроксимации спектра непрерывного рассеяния в том случае, если не производилась предварительная обработка спектра для поиска пиков и расчёта спектра непрерывного рассеяния ($S_{comp}^l(i) = 0$).

Свёртка с функцией рассеяния $\Phi(x, w)$ моделирует ухудшение разрешения спектрометра. В качестве функции рассеяния, за исключением альфа спектрометрии, используется гауссиан $\exp(-(x/w)^2)$. Для альфа спектрометрии используется свёртка с откликом спектрометра на квант излучения - моделью пика $S((x-p)/w)$.

Используется нелинейная модель, так как в сцинтилляционной спектрометрии (и не только в сцинтилляционной) пренебрегать энергетическим дрейфом спектрометрических трактов нельзя (обычный рабочий дрейф в пределах 1-3% для сцинтилляционных спектров вызывает искажение оценок в несколько раз превышающее оцененные статистические погрешности даже при 3 – 4 компонентах в модели). В общем случае предполагаются независимые значения параметров дрейфа для всех компонентов, поскольку измерение эталонов происходило в разное время и при различной загрузке спектрометра, соответственно - при различных значениях коэффициентов усиления и нуля шкалы спектрометра. В том случае, если с помощью процедур предварительных энергетических калибровок при измерениях эталонов, мы добились, в какой-то степени, единой энергетической шкалы для всех компонентов разложения, оператор может указать в табличке параметров декомпозиции, что спектры компонентов находятся в единой шкале, то есть $a_0^l = a_1^l \dots = a_n^l$, $b_0^l = b_1^l \dots = b_n^l$, $c_0^l = c_1^l \dots = c_n^l$. Оператор может исключить из списка параметров Z , W^l , a_j^l и (или) b_j^l и (или) c_j^l и Pn^l , удалив соответствующие галочки в таблице параметров декомпозиции.

При оконном методе обработки, который неплохо работает при разложении линейчатых спектров с высоким разрешением регистрирующего детектора (гамма спектрометрия с охлаждаемыми ППД детекторами), используется линейная модель

$$M^{l,i}(p) = f_0^l(i) + \sum A_j \cdot f_j^l(i) + C^l(i); \quad p = (A_1, \dots, A_n).$$

Здесь i – номер окна, $f_0^l, f_1^l, \dots, f_n^l, C^l(i)$ – интегральные значения в i -ом окне, соответственно, фона, компонентов и спектра непрерывного рассеяния.

При разложении спектров можно использовать значения активностей нуклидов для одного и того же материала пробы, измеренные на других спектрометрах или полученные другими методами. Модель при этом дополняется информацией о таких априорных данных: $X = X_0$; $K_x = G_0$.

X – значения активностей, K_x – ковариационная матрица X .

Решение

Используем метод Гаусса – Ньютона. Начальное значение вектора параметров p^0 находим, используя глобальное варьирование выбранных параметров в заданном диапазоне с заданным шагом. Быстродействие современных компьютеров, пока что не позволяет варьировать все параметры с достаточной плотностью сетки, поэтому оператор может задать в параметрах декомпозиции варьирование четырёх основных параметров: Z эффективное, коэффициента усиления, нуля шкалы и разрешения спектрометра. Найденное приближение уточняем, используя ньютоновский процесс.

$$p_{k+1}^j = p_k^j + R \left\{ \lambda_k \cdot (M_j^j + \beta_k \cdot D_j^j + G_0^{-1})^{-1} \cdot F^j \right\}$$

Здесь:

j – индекс определяемого параметра, k – номер итерации;

p_k^j – вектор параметров на k -ой итерации;

p_{k+1}^j – вектор параметров на $k+1$ -ой итерации.

R – оператор проектирования получаемых значений параметров на ограничения.

λ_k – шаг на k -ой итерации ($0 < \lambda_k < 1$).

$M_j^j = (W \cdot \frac{dM}{dp})^T \cdot (W \cdot \frac{dM}{dp})$ – матрица Гаусса - Ньютона;

$W_{i,i}^l = (K^l)^{-1/2}$ – тензор весов. K^l – ковариационная матрица вектора $M^l(p) - S^l$

$\beta_k \cdot D_j^j$ – коэффициент (задается в параметрах декомпозиции) и демпфирующая матрица k -ого шага.

G_0 – ковариационная матрица априорных данных.

$F^j = (W \cdot \frac{dM}{dP})^T \cdot (S - M(p_k)) + G_0^{-1} \cdot (A^k - X_0 \cdot b^k)$ для $0 > C_a < (S - M(p_k)) < C_b > 0$.

$F^j = (W \cdot \frac{dM}{dP})^T \cdot C_a + G_0^{-1} \cdot (A_k - X_0 \cdot b_k)$ для $(S - M(p_k)) < C_a < 0$.

$F^j = (W \cdot \frac{dM}{dP})^T \cdot C_b + G_0^{-1} \cdot (A_k - X_0 \cdot b_k)$ для $(S - M(p_k)) > C_b > 0$.

X_0 – априорные данные об активностях компонентов.

A_k – оценка вклада компонентов на k -ом шаге,

b_k – оценка коэффициента усиления тракта.

C_a, C_b – границы МНК оценивания.

Свёртка тензоров $(W \cdot \frac{dM_j^{l,i}}{dp})^T \cdot (W \cdot \frac{dM_j^{l,i}}{dp})$ при расчёте матрицы M_j^j и

$(W \cdot \frac{dM_j^{l,j}}{dP})^T \cdot (M^{l,i}(p) - S^{l,i})$ при расчёте вектора F^j производится по номеру спектра l и номеру канала спектра (номеру энергетического окна) i . Полученные, усреднённые свёрткой, оценки значений активностей и неопределённостей по группе спектров пересчитываются на временные параметры первого спектра в группе спектров и все дальнейшие вычисления производятся для этих данных, поэтому индекс спектра в дальнейшем тексте опущен.

Средняя за время измерения активность k -ого нуклида:

$$\overline{X}_k = \left(\int_{El}^{Er} k(Z^n, e) \cdot A_k^n \cdot f_k(p^n) \cdot de / \int_{El}^{Er} f_k(p_0) \cdot de \right);$$

Здесь:

El, Er - левая и правая энергетические границы декомпозиции, e - энергия;

$p^n = (w, a_j, b_j, c_j)$. - значения параметров энергетического дрейфа на последней итерации;

p_0 - начальные значения параметров энергетического дрейфа:
 $w = 0, a = 0, b = 1, c = 0$

A_k^n - оценка вклада k -ой компоненты на последнем шаге,

f_k - спектр k -ой компоненты (нормированный на число распадов спектр излучения нуклида или цепочки нуклидов, находящихся в состоянии радиоактивного равновесия);

Значения активностей на момент начала измерений для одиночных нуклидов, нуклидов равновесных цепочек и материнских нуклидов цепочек распада:

$$X_k = \overline{X}_k \cdot (1 - \exp(-\lambda_k \cdot T_{meas})) / (\lambda_k \cdot T_{meas}). \text{ Здесь:}$$

λ_k - постоянная распада нуклида (постоянная распада материнского нуклида, обеспечивающего радиоактивное равновесие цепочки нуклидов, в случае цепочки нуклидов);

T_{meas} - время измерения.

Для нуклидов входящих в цепочку распада решение не описывается выражением из элементарных функций, а является численным решением системы интегральных уравнений:

$$\overline{X}_n = \left\{ \lambda_n \cdot \sum_{k=0}^n \int_0^{T_{meas}} \frac{X_k}{\lambda_k} \cdot \prod_{i=0}^{k-1} \beta_i \cdot \lambda_i \cdot \left(\sum_{i=0}^k \frac{\exp(-\lambda_i \cdot t)}{\prod_{\substack{j=0 \\ j \neq i}}^k (\lambda_j - \lambda_i)} \right) \cdot dt \right\} / T_{meas}$$

X_k - искомое решение;

λ_j - постоянная распада j -ого нуклида;

β_i - доля выбранного перехода (ветви) в данном узле дерева распада.

Оценка погрешностей

Наши предположения о характере ковариационной матрицы спектра сформулированы в разделе «Объект».

Ковариационную матрицу спектра непрерывного рассеяния также полагаем диагональной $K_{comp} = D_{comp} \cdot I$ (I - единичная матрица, D_{comp} - вектор дисперсий) причем

$D_{comp_i} = \alpha^2 C_i^2$, C_i - число отсчётов в спектре непрерывного рассеяния. α - погрешность формирования спектра непрерывного рассеяния задаётся в параметрах поиска пиков.

Значения в каналах спектра фона полагаем коррелированными (если фон увеличился, то он увеличился, вероятно, во всех каналах). $K_{i,j} = \beta^2 B_i \cdot B_j$ для $i \neq j$, $K_{i,i} = B_i + \beta^2 B_i^2$

. Такая коррелированность сохраняет свойство составной пуассоновской статистики для дисперсии $D(\sum B_i) = \sum B_i + \beta^2 (\sum B_i)^2$. Погрешностью вносимой неопределённостью спектра непрерывного рассеяния для фона пренебрегаем.

Здесь:

B_i – количество отсчётов в i – том канале спектра фона.

β – коэффициент изменчивости фона. Значение β задаётся в параметрах настройки спектрометра.

В итоге:

$$K_p^n = \max(K_p^{n-1}, (p^n - p^{n-1}) \cdot (p^n - p^{n-1})^T + (M_{jl}^n + G_0^{-1})^{-1})$$

Здесь

K_p^n, K_p^{n-1} - оценки ковариационной матрицы определяемых параметров на последнем и предпоследнем шаге процедуры решения.

$$p^n = (Z^n, A_j^n, w_j^n, a_j^n, b_j^n, c_j^n) \text{ и } p^{n-1} = (Z^{n-1}, A_j^{n-1}, w_j^{n-1}, a_j^{n-1}, b_j^{n-1}, c_j^{n-1})$$

оценки параметров на последнем и предпоследнем шаге процедуры решения. То есть мы используем оценки погрешностей линеаризованной модели дополненной погрешностями, связанными с обрывом итерационного процесса (погрешности дрейфа спектрометра).

$${}^n M_j^j = (W \cdot \frac{dM}{dp})^T \cdot (W \cdot \frac{dM}{dp}) - \text{матрица Гаусса - Ньютона рассчитанная на}$$

последнем шаге процедуры решения. Наша процедура решения формирует ковариационную матрицу параметров в матрице обратной матрице Гаусса - Ньютона.

$$W = K_S^{-1/2} - \text{матрица весов. } K_S - \text{ковариационная матрица вектора } M(p) - S.$$

Считаем её диагональной $K_S = D_S \cdot I$ (I – единичная матрица, D_S – вектор дисперсий) причем $D_{Si} = S_i + \eta^2 \cdot S_i^2 + \alpha^2 \cdot C_i^2 + (B_i + \beta^2 \cdot B_i^2) / t^2$, где $t = t_B / t_S$ отношение времени измерения фона и пробы.

G_0 - ковариационная матрица априорных данных.

Дисперсии оценок средних за время измерения активностей:

$$\overline{Dxi} = Pres \cdot D_i / (b_i^n)^2. \text{ Здесь:}$$

$Pres$ - парциальные (рассчитанные в пределах объединения значимых областей определения коррелированных с i -м компонентом элементарных спектров) невязки для данного нуклида. Значимая область определения - область, где значения элементарного спектра отличны от нуля.

$D_i = K_p^n(i, i)$ - диагональный элемент ковариационной матрицы параметров для параметра A_i^n в режиме обработки спектров без поиска пиков и вычитания спектра непрерывного рассеяния.

$D_i = \max(H_i, K_p^n(i, i))$ - максимальное значение из порога детектирования i -го нуклида и диагонального элемента ковариационной матрицы параметров для параметра A_i^n в режиме обработки спектров с вычитанием спектра непрерывного рассеяния.

$H_i = \min(\{(h \cdot S_{compj} / ((k(Z, e_j) \cdot q_j^i \cdot Eff(e_j) \cdot T_{meas}))^2)\}_{j=1..n})$ - минимальное значение порога из значений, рассчитанных по всем n значащим линиям i -го нуклида.

h - значение порога детектирования, задаваемое в параметрах настройки процедуры поиска пиков.

S_{compj} - интегральное значение спектра непрерывного рассеяния в области равной трём полуширинам пика для энергии e_j j -ой линии i -го нуклида.

q_j^i - квантовый выход j -ой линии i -го нуклида.

$Eff(e_j)$ - эффективность регистрации для энергии e_j .

b_i^n - коэффициент линейного энергетического дрейфа ($z = b \cdot x + d$) i -ой компоненты рассчитанный как коэффициент линейной регрессии оценённого нелинейного энергетического дрейфа, n - последняя итерация;

T_{meas} - время измерения.

Дисперсии оценок активностей на момент начала измерений для одиночных нуклидов, нуклидов равновесных цепочек и материнских нуклидов цепочек распада:

$$Dxi = \overline{Dxi} \cdot ((1 - \exp(-\lambda_i \cdot T_{meas})) / (\lambda_i \cdot T_{meas}))^2$$

λ_i - постоянная распада нуклида (постоянная распада материнского нуклида, обеспечивающего радиоактивное равновесие цепочки нуклидов, в случае цепочки нуклидов).

Дисперсии Dxi для нуклидов входящих в цепочку распада рассчитываются при решении системы интегральных уравнений описывающих распад и накопление нуклидов в процессе измерения:

$$\overline{X}_n = \left\{ \lambda_n \cdot \sum_{k=0}^n \int_0^{T_{meas}} \frac{X_k}{\lambda_k} \cdot \prod_{i=0}^{k-1} \beta_i \cdot \lambda_i \cdot \left(\sum_{i=0}^k \frac{\exp(-\lambda_i \cdot t)}{\prod_{\substack{j=0 \\ j \neq i}}^k (\lambda_j - \lambda_i)} \right) \cdot dt \right\} / T_{meas}$$

Решением является линейное преобразование $x = F \cdot \overline{x}$, соответственно:

$$Kx = F \cdot K \overline{x} \cdot F^T, Dxi = Kx_{ii}$$

Итоговая полная погрешность i -ой активности:

$$G_{xi} = \sqrt{(E_0 \cdot Xi)^2 + (E_i \cdot Xi)^2 + 4 \cdot Dxi}$$

E_0 - погрешность метода - дополнительная относительная погрешность. E_0 - связана с погрешностями определения массы пробы, нарушений геометрии и т.д. и т.п. В пакете «SPECTRRAD» E_0 задается как параметр декомпозиции.

E_i - относительная погрешность, рассчитанных при калибровке спектрометра, значений интенсивности компонентов разложения и связана с погрешностями аттестации эталонов, погрешностями расчёта элементарных спектров. E_i - погрешность средства измерения для конкретного нуклида.

Нюансами, связанными с рекомендуемой несимметричностью систематической погрешности для оценок положительно определённых величин ($U^+ = \frac{\delta}{1-\delta}$ и $U^- = \frac{\delta}{1+\delta}$) решено пренебречь, поскольку пользователи пакета и к двум цифрам как результатам измерений с трудом привыкают, три цифры – это чересчур, тем более, что эти нюансы тонут в рекомендуемом представлении погрешности - не более двух цифр. Оценка погрешности соответствует 95% доверительному интервалу.

Расчёт суммарной активности пробы

Суммарная активность - условная активность пробы равная интенсивности радиоактивного излучения от пробы. Суммарная гамма активность - число гамма квантов излучаемое пробой за 1 секунду, суммарная альфа и бета, соответственно, - число альфа и бета частиц в единицу времени. Поскольку спектрометр регистрирует излучение в ограниченном энергетическом диапазоне, можно говорить о суммарной активности пробы в определённом энергетическом диапазоне.

При обработке линейчатых спектров с поиском и выделением пиков:

$$A_{sum} = \sum (S_i(e) - F(e)) / Eff(e, Am, Z)$$

Здесь:

$S_i(e)$ - интенсивность i -ого пика с энергией e .

$F(e)$ - интенсивность фона в области i -ого пика с энергией e .

$Eff(e, Am, Z)$ - эффективность регистрации квантов излучения с энергией e в пиках полного поглощения для счётного образца с эффективной атомной массой Am и эффективным атомным номером Z .

Сумма вычисляется по всем пикам энергетического диапазона спектрометра. Без анализа нуклидного состава излучения невозможно выделить пики полного поглощения из общего набора найденных в спектре пробы пиков, поэтому оценка суммарной активности будет несколько завышенной за счёт включения в расчёт пиков вылета.

При обработке спектров, не имеющих линейчатой структуры или плохо разрешенных (обработка без выделения пиков):

$$A_{sum} = k(R_0, R_1) \cdot \left(\int (S(e) - F(e)) \cdot de \right) / \left(\int Elem(nucl, e) \cdot de \right) / \sum Q_i(nucl)$$

Здесь:

$$k(R_0, R_1) = \frac{R_1 \cdot fAtten(\rho_1, R_1)}{R_0 \cdot fAtten(\rho_0, R_0)} \quad - \text{коэффициент эффективности регистрации}$$

связанный с пробегом излучения в эталоне R_0 в г/кв.см и в счётном образце R_1 при измерениях в «толстом» слое.

Для гамма и бета излучения:

$$fAtten(\rho, R) = 1 - \exp(-\rho / R)$$

Для альфа излучения:

$$fAtten(\rho, R) = 1 - \sqrt{1 - (\rho/R)^2} + (\rho/R) \cdot \arccos(\rho/R) \quad - \text{для } \rho/R < 0.8.$$

$$fAtten(\rho, R) = 1 - \exp(-\alpha \cdot \rho / R) \quad - \text{для } \rho/R > 0.8.$$

ρ - поверхностная плотность в г/кв.см, соответственно эталона и пробы.

α - коэффициент для связки двух функций.

$S(e)$ - интенсивность спектра пробы (e - энергия).

$F(e)$ - интенсивность фона.

$Elem(nucl, e)$ - элементарный спектр нуклида $nucl$, выбранного оператором для расчёта суммарной активности.

$Q_i(nucl)$ - квантовый выход i -ой линии нуклида $nucl$.

Пробег квантов излучения в веществе счётного образца $R = f(E, Am, Z)$ является функцией средней начальной энергии излучения E и значений эффективной атомной массы Am и эффективного номера (заряда) Z атомов вещества счётного образца.

Пробег квантов излучения в пакете «SPECTRRAD» задаётся пользователем либо в виде таблиц, либо в виде формул в процедуре ввода и редактирования нормативов и констант для различных типов проб (см. «Нормативы и константы»). По умолчанию используются следующие формулы:

Для альфа излучения - $R = 10^{-4} \sqrt{Am \cdot E^3}$ г/кв.см (формула Уильяма Брэгга).
Энергия E в МэВ.

Для бета:

$R = 0,19272464 \cdot E^{1,4} \cdot Am/Z$ для начальной энергии электронов менее 0.8 МэВ,

$R = 0.4818116 \cdot (0.54 \cdot E - 0.133) \cdot Am/Z$ для начальной энергии электронов более 0.8 МэВ.

Для гамма: эффект образования пар не учитывается, комптоновское рассеяние учитывается перерасчётом элементарного спектра нуклида *nucl* на плотность электронов в счётном образце интерполяцией по спектрам эталонов с различной плотностью электронов, влияние фотоэффекта рассчитывается по следующим формулам:

$$R = Am / (kz \cdot ke \cdot Z^5)$$

$kz = 4\pi \cdot R_e^2 \cdot a^4 \cdot N_a$, здесь: R_e - радиус электрона в см, $a = 7.2973525376e-3$ - постоянная тонкой структуры, N_a - число Авогадро.

$$ke = \frac{(2+e)^{1,5}}{e^{3,5}} \cdot \left\{ \frac{4}{3} + (1+e) \cdot \frac{e-1}{2+e} \cdot \left[1 - \ln\left(\frac{1+e+\sqrt{e \cdot (2+e)}}{1+e-\sqrt{e \cdot (2+e)}} \right) \right] \right\}$$

$e = E / 511$. Энергия E в кэВ.

Усреднённая по всем линиям попадающим в заданный энергетический диапазон регистрации квантов начальная энергия E для нуклида *nucl* рассчитывается при калибровке спектрометра и хранится в параметрах элементарного спектра. Средняя начальная энергия квантов излучения счётного образца для бета частиц рассчитывается процедурой обработки по положениям медиан элементарного спектра $Elem(nucl, e)$ и спектра пробы $S(e) - F(e)$, для альфа частиц либо задаётся оператором в параметрах пробы или спектрометра, либо рассчитывается по медианам спектров, если не задана в параметрах пробы.

Интеграл элементарного спектра рассчитывается по заданному в шаблоне обработки энергетическому диапазону, энергетический диапазон интеграла для спектра пробы умножается на коэффициент растяжения-сжатия, рассчитываемый по квартилям спектров пробы и эталона. Для уменьшения дополнительных погрешностей связанных с перерасчётом энергетического диапазона для пробы, оператор для расчёта суммарной активности должен выбрать нуклид, имеющий энергию излучения близкую к предполагаемой энергии регистрируемого излучения.

Сумма квантового выхода нуклида *nucl* берётся для всех линий с энергией линий (для линейчатых спектров) или граничной энергией (для непрерывных спектров) превышающей левую энергетическую границу выбранного диапазона.

Поскольку элементарные спектры нормированы на распад нуклида, а не на квант излучения, для корректного перерасчёта требуется в параметрах декомпозиции задать таблицу нуклидов соответствующую выбранному элементарному спектру. Например, если мы указали в качестве нуклида для расчёта суммарной активности Sr-90, а элементарный спектр Sr-90 содержит суммарный отклик Sr-90 и Y-90, в используемой таблице нуклидов Sr-90 должен быть представлен в виде равновесной цепочки Sr90+Y90.

Расчёт активности цепочки нуклидов

Активность нуклидов в выбранной ветви цепочки распада материнского нуклида описывается системой дифференциальных уравнений:

$$\frac{dN_0}{dt} = -\lambda_0 \cdot N_0$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \beta_0 \cdot \lambda_0 \cdot N_0 - \lambda_1 \cdot N_1$$

.....

$$\frac{dN_n}{dt} = \beta_{n-1} \cdot \lambda_{n-1} \cdot N_{n-1} - \lambda_n \cdot N_n$$

Здесь:

N - число атомов нуклида,

λ - постоянная распада

β - доля выбранного перехода (ветви) в данном узле дерева распада.

Решение имеет вид:

$$N_n(t) = N_0 \cdot \prod_{i=0}^{n-1} \beta_i \cdot \lambda_i \cdot \left(\sum_{i=0}^n \frac{\exp(-\lambda_i \cdot t)}{\prod_{\substack{j=0 \\ j \neq i}}^n (\lambda_j - \lambda_i)} \right)$$

Активность $A(t) = \lambda \cdot N(t)$.