

ПОГРЕШНОСТИ В ОЦЕНКАХ ХАРАКТЕРИСТИК РАСПАДА РАДИОАКТИВНЫХ НУКЛИДОВ

В.П. Чечев

*Радиевый институт им. В.Г. Хлопина,
194021 Санкт-Петербург, Россия*

*XIII Международное Собрание
“Проблемы прикладной спектрометрии и
радиометрии” (ППСР-2015)*

5 октября 2015 года, Санкт-Петербург

DECAY DATA EVALUATION PROJECT (DDEP)

- Цель этой кооперации, включающей представителей ряда ведущих метрологических и ядерных лабораторий мира, состоит в разработке высококачественных таблиц оценённых распадных данных для широко применяемых радионуклидов.
- Предполагается оценить ЯФХ **~320** радионуклидов.
- В настоящее время оценены ЯФХ **220** нуклидов.
- **Но сейчас возникает проблема обновления старых оценённых данных!**

**«Файл Оценённых Данных по Структуре Ядра»
(Evaluated Nuclear Structure Data File, сокращённо
ENSDF)**

Полное число ядер, содержащихся в ENSDF — 3339.

ENSDF → Nuclear Data Sheets → NUDAT → MIRD

Подбиблиотеки распадных данных из ENSDF:

Базы данных по ядерным реакциям: ENDF/B-VII, JEFF-3.1, БНАБ-93, ROSFOND 2008, CENDL-3.1, JENDL-4.0.

Библиотека данных МАГАТЭ по нейтронным дозиметрическим реакциям IRDF-2002 → IRDFF-2017.

Недостатки файла ENSDF

- Медленная обновляемость файла (6 – 10 лет)
- Неодинаковая достоверность данных для радионуклидов, имеющих разные массовые числа
- Недостаточная обоснованность рекомендуемых погрешностей (ориентация на последние или наиболее точные экспериментальные данные)
- Редкое использование статистических процедур обработки данных
- Сложность формы представления информации
- Отсутствие оцененных данных по атомным излучениям

Координаторы и участники кооперации DDEP

Richard Helmer (INEEL)

США

Edgardo Browne (LBNL)

США

Filip G. Kondev (ANL)

США

Marie-Martine Be (LNHB)

Франция

2015 год

Mark Kellett (LNHB)

Франция

Valery Chechev (KRI)

Россия

Nikolay Kuzmenko (KRI)

Россия

Alan Nichols (IAEA)

Великобритания

Aurelian Luca (IFIN)

Румыния

Andy Pearce (NPL)

Великобритания

Huang Xiaolong (CIAE)

Китай

Tibor Kibedi (ANU)

Австралия

http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Accueil LNHB Remonter Sommaire LNHB Dosimétrie Radioactivité

Laboratoire National Henri Becquerel

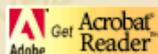
Recommended data



The screenshot shows the website's navigation menu at the top with buttons for 'Accueil LNHB', 'Remonter', 'Sommaire LNHB', 'Dosimétrie', and 'Radioactivité'. Below the menu is a banner for the 'Laboratoire National Henri Becquerel' with the text 'Recommended data'. The main content area displays a search interface with a search bar containing '[1.17800e+03300]e+03 e13', a 'Rechercher' button, and a table of data. The table has columns for 'Nucleide', 'Energie', and 'Exemple'. The first row shows '238U' with energy '4.2670 MeV' and example '1000'. The second row shows '235U' with energy '4.6840 MeV' and example '1001.340 33Me E001'. The third row shows '235U SEUL' with energy '4.6840 MeV' and example '1001.340 33Me E001'. The fourth row shows '235Pu' with energy '5.5930 MeV' and example '1001.340 33Me E001'. There is also a 'Quels' button at the bottom of the search area.

This [introduction](#) presents a brief description of the radioactivity physical processes, the enumeration of the evaluation rules leading to the recommended values, and a summary of the symbols and terms used in all the publications.

Explanation on recommended data and their evaluation :



to view pdf files

Tables of evaluated data and comments on evaluation

Pages updated by the Laboratoire National Henri Becquerel

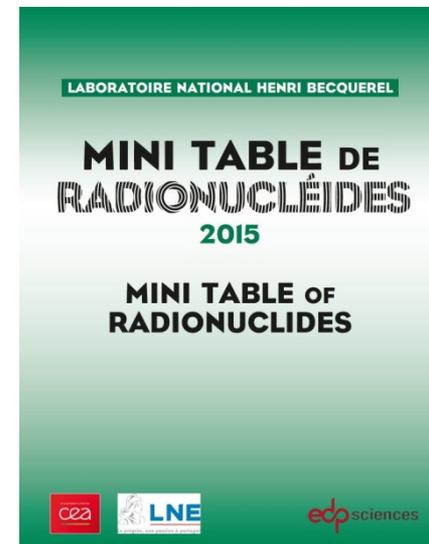
All questions about the data must be sent to the authors. See chapter [Addresses](#).

updated : 19th May 2008

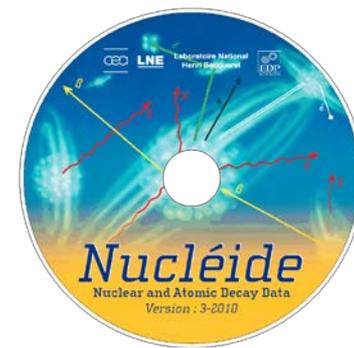
latest update : Xe-133

latest entry : Po-210

ПУБЛИКАЦИИ DDER



EDP Sciences



<http://www.bipm.org/fr/publications/monographie-ri-5.html>

Статус современных оценённых данных по характеристикам распада радионуклидов

В настоящее время существуют два уникальных источника высококачественной информации по характеристикам распада радионуклидов: **ENSDF** и **DDEP**. При выборе специфической группы нуклидов обширные данные ENSDF имеют недостаток **неодинаковой надёжности** для радионуклидов с разными массовыми числами. Что касается **методики оценки**, файл **ENSDF** нацелен на экспериментальные данные с наименьшей погрешностью (прямой выбор лучшего экспериментального значения в качестве рекомендуемого или простое взвешивание, которое иногда необоснованно может занижить погрешность рекомендуемого значения). В отличие от этого методика оценки **DDEP** предполагает **то или иное регулирование** входных экспериментальных погрешностей и погрешности рекомендуемого значения.

Различие методов оценки – один пример: Te-132

Даже когда **одни и те же экспериментальные данные** приняты во внимание в **DDEP** и **ENSDF** оценках и полученные оценённые значения очень близки, **погрешности** рекомендуемых значений интенсивностей гамма-излучения (4-я колонка) **различаются значительно**.

	$T_{1/2}$	E_{γ}	I_{γ}	α_{γ}
Te-132		49.72 (1)	15.1 (3)	5.62 (8)
		49.72 (1)	15.0 (6)	5.71
DDEP 2007	3.230(13) d	111.81 (8)	1.85 (18)	0.71 (3)
		111.76 (8)	1.74 (7)	0.71 (5)
ENSDF 2005	3.204(13) d = 1983Wa26	116.34 (13)	1.97 (7)	0.606 (20)
		116.30 (8)	1.96 (7)	
		228.327 (3)	88.12 (13)	0.0990 (14)
		228.16 (6)	88(3)	0.100

DDEP: Перечень основных оцениваемых характеристик распада и излучений

- **период полураспада радионуклида**
- **полная энергия распада**
- **энергии и вероятности ядерных переходов (α -, β -, ε -, γ)**
- **энергии компонентов альфа-, бета-, гамма- излучений и характеристического рентгеновского излучения, конверсионных электронов и электронов Оже**
- **средняя энергия бета- излучения**
- **относительная интенсивность гамма-излучения**
- **абсолютная вероятность эмиссии (интенсивность) всех излучений в процентах от числа распадов**
- **коэффициенты внутренней конверсии (КВК) для различных атомных оболочек; полный КВК**

Коды и процедуры оценки DDEP

- **LWEIGHT** – компьютерная программа для усреднения данных; использует метод ограничения относительного веса (50%) для расходящихся данных при $\chi^2_{\nu} > \chi^2_{\nu}(\text{critical})$, $\nu=N-1$.
- *Допускается использование других процедур усреднения с регулировкой погрешностей входных данных:* **NRM** – Normalized Residual; **RM** – Rajeval; **BAYS** (**MBAYS**); **BOOTSTRAP** (подробнее см. ГСССД МО 130-2007 Metrologia 52 (2015) S66-S72).
- **EMISSION** - компьютерная программа для расчёта интенсивности атомных излучений, сопровождающих распад – **KX-**, **LX-** и электронов Оже.
- **ALPHAD**, **BRICC**, **GABS**, **GTOL**, **LOGFT** - программы расчёта различных ядерных характеристик, используемые также в оценках файла **ENSDF**.

Оценка погрешностей в методологии DDEP - 1

- В качестве входных данных для оценки используются опубликованные экспериментальные результаты, из которых извлекаются **комбинированные стандартные погрешности**. Последние согласно руководству ИСО 1993 года содержат «статистическую» часть (**тип А**) и другие компоненты, квалифицируемые как **тип В**. В старых результатах обычно нет подробного перечня различных вкладов в погрешность – т.н. **бюджета погрешности**. Поэтому – на усмотрение оценщика – если в экспериментальном результате сообщается только статистическая составляющая, оценщик может добавить квадратично часть В путём сравнения с другими экспериментами, выполненными тем же методом и в тот же период, либо просто исключить этот результат из статистической обработки.

Следующие определения погрешностей были извлечены из «Руководства по выражению погрешности измерений».

Погрешность (измерения): параметр, связанный с результатом измерения, характеризующий дисперсию значений, которые могли бы быть обоснованно приписаны измеряемой величине.

Стандартная погрешность: погрешность результата измерения, выраженная как стандартное отклонение.

Тип А оценки (погрешности): метод оценки погрешности из статистического анализа серии наблюдений.

Тип В оценки (погрешности): метод оценки погрешности иными средствами, чем статистический анализ серии наблюдений.

• В случае необходимости и при наличии достаточных деталей в работе, погрешности, заявленные авторами, могут быть пересмотрены путем комбинирования стандартных погрешностей σ_A и σ_B через общий закон преобразования (пропагации) дисперсии:

$$u_c = \sqrt{\sigma_A^2 + \sigma_B^2}$$

где u_c является комбинированной стандартной погрешностью,

σ_A является типом А стандартного отклонения и

σ_B является типом В стандартного отклонения.

Когда авторы дают недостаточно информации о своих расчётах погрешности, комбинированная погрешность u_c может быть оценена экспертом по оценке, основываясь на знании метода измерения (й).

Оценка погрешностей в методологии DDEP - 2

- Методология DDEP исходит из того, что главная задача оценщика – избежать **занижения** погрешности рекомендуемого значения. Для этого вводятся два следующих правила:

1). От одной и той же лаборатории при измерениях одним и тем же методом в наборе отобранных для оценки величин учитывается **только один**, самый поздний результат измерения данной характеристики, остальные отвергаются.

2). Погрешность рекомендуемого значения данной характеристики принимается **большей или равной наименьшей погрешности** отобранных экспериментальных значений, используемых для вычисления среднего. Это правило позволяет **избежать** неоправданного уменьшения (**недооценки**) погрешности рекомендуемого значения из-за статистической обработки.

Оценка погрешностей в методологии DDEP - 3

- Основными расчётными величинами в процедуре **LWEIGHT**, кроме СВ a_w и СА, являются внутренняя (весовая) σ_{int} и внешняя (погрешность разброса) σ_{ext} погрешности СВ и приведённая величина $\chi^2_v = \chi^2 / (n-1)$, где n - число независимых данных a_i . Значение χ^2_v сравнивается с табличной критической $\chi^2_{v(crit)}$ для доверительного интервала 1%. В зависимости от этого сравнения **погрешность a_k** с относительным статистическим весом больше 50% **может быть увеличена** так, чтобы вес этого значения стал равным 50%. После этого **процедура** расчёта σ_{int} и σ_{ext} **возобновляется**. В итоге в качестве погрешности рекомендуемого значения **в зависимости от расхождения данных** может быть принята либо σ_{int} , либо σ_{ext} , либо ещё более расширенная погрешность.

Для n независимых значений a_i , каждое с комбинированной стандартной погрешностью u_{ci} и с весом p_i , обратно пропорциональным квадрату отдельных u_{ci} , оцениваемой величине может быть сопоставлено среднее значение

$$a_w = \frac{\sum_{i=1}^n p_i a_i}{\sum_{i=1}^n p_i},$$

где веса $p_i = 1/u_{ci}^2$.

Этому среднему значению может быть приписана внутренняя и внешняя погрешности:

$$\sigma_{int}(a_w) = \left[\sum_i \left(1/u_{ci}^2 \right) \right]^{-1/2} \quad \text{и} \quad \sigma_{ext}(a_w) = \left[\frac{\sum_i (a_i - a_w)^2 / u_{ci}^2}{(n-1) \sum 1/u_{ci}^2} \right]^{1/2}.$$

Внутренняя погрешность – это погрешность, основанная на индивидуальных дисперсиях u_{ci}^2 (из пропагации погрешности). Внешняя погрешность отражает рассеяние данных и основана на величинах отклонения каждой величины a_i от среднего.

Мера согласованности данных определяется отношением

$\sigma_{ext} / \sigma_{int} = \sqrt{\chi^2 / (n-1)}$. Если это отношение значительно больше единицы, по крайней мере, одно из входных данных, скорее всего, имеет недооценённую погрешность, которая должна быть увеличена.

Experimental and recommended P_γ values for the most intense gamma rays in the ^{241}Am α -decay

Reference	$P_{\gamma_{1,0}}$ (26.3 keV) $\times 100$	$P_{\gamma_{2,1}}$ (33.2 keV) $\times 100$	$P_{\gamma_{4,2}}$ (43.4 keV) $\times 100$	$P_{\gamma_{2,0}}$ (59.5 keV) $\times 100$
Legrand et al., 1975				36.3 (4)
Gunnink et al., 1976	2.45 (5)			
Plch et al., 1976				35.5 (3)
Genoux-Lubain, 1978	2.54 (26)	0.106 (11)	0.073 (7)	
Ahmad et al., 1983		0.125 (8)		
Debertin, 1983	2.41 (5)			
Hutchinson, 1983				35.82 (17) ^d
Ovechkin, 1984		0.12 (1)	0.066 (5)	
Denecke, 1987				36.36 (17)
Bland et al., 1992	2.395 (19)	0.1233 (28)	0.0654 (29)	36.03 (25)
Martin, 1992				35.6 (2)
Iwahara et al., 2005	2.06 (3)			35.87 (17)
Recommended	2.31 (8) ^a	0.1215 (28) ^b	0.0669 (29) ^c	35.92 (17) ^e

Experimental values of ^{233}Th half-life (in minutes)

Author(s)	Original value	Re-estimated	Measurement method
Rutledge et al. (1952)	23.6 (6)		β -counting
Jenkins (1955)	22.12 (5) ^a	22.12 (7)	β -counting, good purification of the thorium sample
Dropesky and Langer (1957)	22.4 (1)		β -counting
Hoekstra (1969)	22.3 (1)		Gamma-ray counting
Abzouzi et al. (1989)	22.30 (2) ^b	22.30 (10)	Gamma-ray counting
Usman et al. (1998)	21.83 (4) ^c	21.83 (10)	Gamma-ray counting
DeVries and Griffin (2008a)	21.99 (5) ^d	21.99 (9)	Liquid scintillation counting, multiple purifications of the thorium sample
Recommended	22.15 (8)		

Experimental values of the ^{57}Co half-life (in days)

N	Author(s) and year	$T_{1/2}$	COMMENTS
1	ANSPACH <i>e.a.</i> (1965)	271.65 (13)	OMITTED AS SUPERSEDED BY 7
2	EMERY <i>e.a.</i> (1972)	269.84 (4)	OMITTED ON CHAUVENET'S CRITERION
3	LAGOUTINE <i>e.a.</i> (1972)	271.23 (21)	OMITTED ON CHAUVENET'S CRITERION
4	HOUTERMANS <i>e.a.</i> (1980)	271.77 (5)	
5	VANINBROUKX <i>e.a.</i> (1981)	271.90 (9)	
6	WALZ <i>e.a.</i> (1983)	271.84 (4)	
7	UNTERWEGER <i>e. a.</i> (1992)	272.11 (26)	OMITTED AS SUPERSEDED BY 9
8	MARTIN <i>e.a.</i> (1997)	271.68 (9)	
9	FITZGERALD (2012)	271.65 (13)	OMITTED AS SUPERSEDED BY 11
10	SILVA <i>e. a.</i> (2012)	271.82 (17)	
11	UNTERWEGER <i>e. a.</i> (2014)	271.87 (44)	
Recommended value		271.81 (4)	LWEIGHT

Вместо Заключения

Ссылки на 2 недавно опубликованные работы:

- М.-М. Bé, V.P. Chechev. ***Recommended standards for gamma ray intensities.*** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A728,157-172 (2013).

Здесь подробно обсуждается деятельность и методология DDEP и приведены рекомендуемые данные по абсолютным интенсивностям гамма-излучения вместе с использованными методами оценки для примерно 200 радионуклидов.

- М.-М. Bé, V.P. Chechev and A. Pearce. ***Uncertainties in nuclear decay data evaluations.*** Metrologia 52 (2015) S66-S72.

Здесь представлено то, что я рассказал, но более детально.

БЛАГОДАРЮ ЗА ВНИМАНИЕ!

GAMMA RAY INTENSITIES

NIMPR A728 (2013) 157



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



Recommended standards for gamma ray intensities



Marie-Martine Bé^{a,*}, Valery P. Chechev^b

^a LNHB(FR), CEA LIST Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b KRI(RUS), V.G. Khlopin Radium Institute, St. Petersburg 194021, Russia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 21 February 2013

Received in revised form

14 May 2013

Accepted 22 May 2013

Available online 4 June 2013

Keywords:

Applied radionuclides

Decay data

Gamma ray intensities

Evaluation techniques

ABSTRACT

Gamma ray data are used in more and more areas of application, and so over the years the demand for recommended gamma ray energies and intensities has increased. This paper proposes a list of gamma rays whose intensity is sufficiently well-known and they can be used for the calibration of gamma ray spectrometers and other applications; it is based on studies carried out by an international group of evaluators: the Decay Data Evaluation Project. One goal of this paper is to gather this set of data together in order to facilitate and generalize their use. In the first part, a brief description of the methodology followed throughout the evaluations is given, different methods of gamma ray intensity evaluation are presented, some typical examples of evaluations are shown; in the second part, the list of chosen nuclides is given along with their applications, and finally a list of recommended gamma ray intensities is presented.

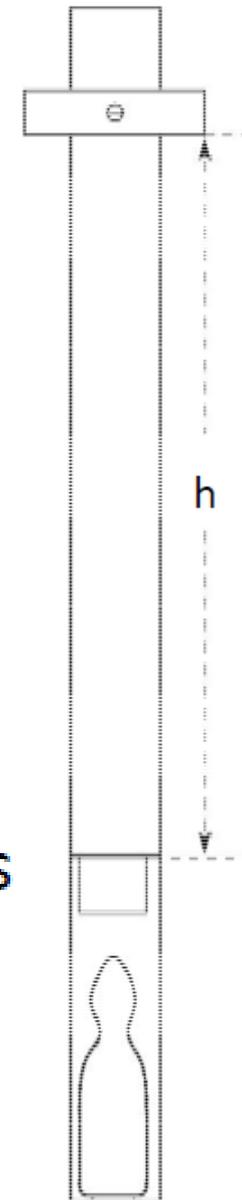
·
M.P. Unterweger, R. Fitzgerald, Appl. Radiat. Isot.
70, 1892 (2012)

M.P. Unterweger, R. Fitzgerald, Appl. Radiat. Isot.
87, 92 (2014)

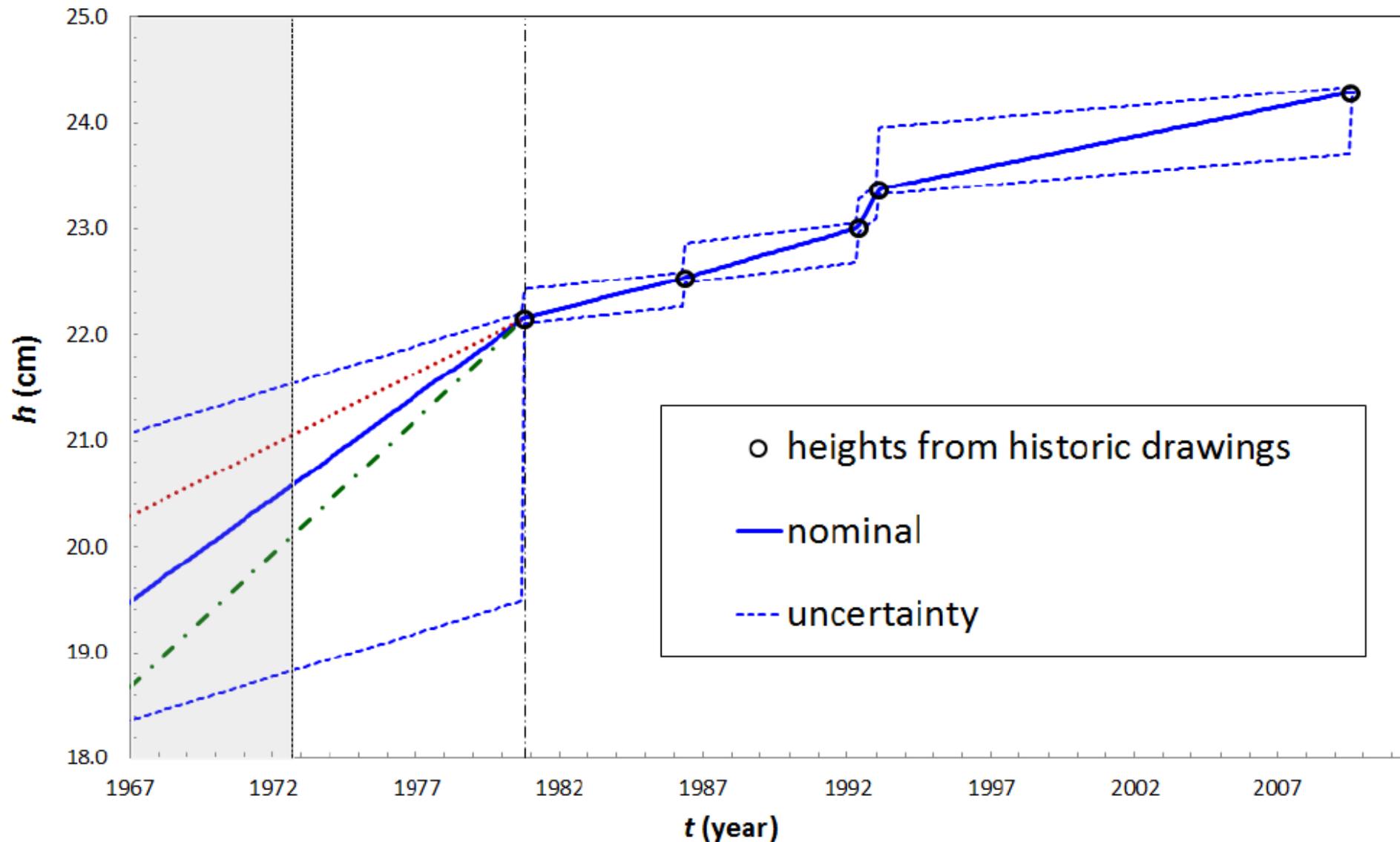
UNCOVERED BIAS IN NIST $4\pi\gamma$ IONIZATION
CHAMBER MEASUREMENTS

In January of 2010, it was discovered that the source holder used for calibrations in the NIST $4\pi\gamma$ ionization chamber (IC) since 1968 has not been stable.

The positioning ring that determines the height of the sample in the reentrant tube of the IC has slowly shifted during 35 years of use.



Sample Height in Chamber



КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ

1. **Современные библиотеки оценённых данных по характеристикам распада радионуклидов. Файл ENSDF.**
2. **Международная кооперация Decay Data Evaluation Project (DDEP) в 2015 году.**
3. **Оценка погрешностей в DDEP методологии. Определение «лучшей» величины.**
4. **Примеры оценок.**



70 лет атомной промышленности СССР

