^{133m}Xe konversioelektronimittaus ja kansainvälinen kattava ydinkoekielto

Jani Turunen

Pro gradu -tutkielma

JYVÄSKYLÄN YLIOPISTO

FYSIIKAN LAITOS

2007

Esipuhe

Tämä tutkielma on tehty Jyväskylän yliopiston fysiikan laitokselle yhteistyössä Säteilyturvakeskuksen kanssa. Työhön liittyvät mittaukset suoritettiin keväällä 2006 JYFL:ssä osana IGISOL-ryhmää ja tulosten analysointi sekä tutkielman kirjoitus viimeisteltiin Säteilyturvakeskuksella kesällä 2007.

Haluaisin erityisesti kiittää työni ohjaajina toimineita erikoistutkija Kari Peräjärveä (STUK) ja lehtori Ari Jokista (JYFL). Heidän ohjeet ja asiantuntemus ovat olleet korvaamattoman arvokkaita tämän työn kannalta. Lisäksi haluan kiittää kaikkia IGISOL-ryhmän jäseniä, jotka jollain tavalla ovat työn toteutukseen osallistuneet. Erityisesti voidaan mainita Jani Hakala, jonka apu mittausdatan keräyksessä sekä puoliintumisaika-analyysien teossa oli hyvin tärkeää sekä Antti Saastamoinen, jonka panoksesta oli hyötyä mittausten aikana. Lisäksi haluan kiittää fysiikan laitoksen työpajan henkilökuntaa työssä tarvittujen osien valmistuksesta sekä asiantuntevasta avusta. Kiitos myös vaimolleni Marikalle, joka on ollut tukenani läpi tämän melko pitkän ja työlään prosessin.

Helsingissä 3.12.2007
Jani Turunen

Tiivistelmä

Tässä työssä tutkittiin ^{133m}Xe:n hajoamista. Työn keskeisin tarkoitus oli määrittää kyseisen nuklidin konversiokerroin mahdollisimman hyvällä tarkkuudella. Työssä tarvitut näytteet valmistettiin Jyväskylän yliopiston fysiikan laitoksen IGISOL-massaseparaattorilaitteistolla protoni-indusoitua fissiota hyväksi käyttäen. Näytteiden mittaukset suoritettiin ELLI-elektronispektrometrin sekä planaarisen Ge-ilmaisimen avulla.

^{133m}Xe:n on tärkeä nuklidi kattavan ydinkoekieltosopimuksen valvonnan kannalta. Aikaisemmat kokeelliset tulokset sen konversiokertoimelle ovat antaneet teorian kanssa osittain ristiriidassa olevia tuloksia. Tämän vuoksi määritimme konversiokertoimen uudestaan. Saamamme tulokset olivat hyvin sopusoinnussa teorian ennustamien arvojen kanssa.

Sisällysluettelo

1 Johdanto 1
1.1 Motivaatio 1
1.2 Aikaisemmat tulokset ^{133m}Xe:n konversiokertoimelle 3

2 Teoriaa 6
2.1 Atomi- ja ydinfysiikan perusteita 6
2.1.1 Radioaktiivinen hajoaminen 7
2.1.2 Eksponentiaalinen hajoamislaki 8

3 Sisäinen konversio 12
3.1 Teoriaa 12
3.2 Tarkasteltavat siirtymät 16

4 IGISOL ja näytteiden valmistus 18
4.1 IGISOL 18
4.2 Näytteiden valmistus 20

5 Säteilyilmaisimet ja työssä käytetty mittauslaitteisto 22
5.1 ELLI 23
5.2 Matalan energian Germanium-ilmaisin (LEGe) 27
5.3 Koaksiaalinen Germanium-ilmaisin (HPGe) 28
5.4 Mittauselektroniikka ja kokoonpano 29

6 Energia- ja tehokkuuskalibraatio 31
6.1 Energiakalibraatiot 31
6.2 Tehokkuuskalibraatiot 37
6.2.1 LEGe-ilmaisimen tehokkuuskalibraatio 37
6.2.2 Si(Li)-ilmaisimen tehokkuuskalibraatio 42

7 Näytteiden valmistus ja niille suoritetut mittaukset 47
7.1 ^{133m}Xe testinäytteiden valmistus ja mittaus 47
7.2 Varsinaisen kokeen näytteiden valmistus ja mittaukset 48
7.2.1 ^{95m}Nb-näyte 48
7.2.2 ^{133m}Xe-näyte 50
7.2.3 ^{85m}Kr:a, ^{133m}Xe:a ja ^{141}Ce:a sisältävä näyte 51
7.2.4 ^{133m}Xe:a ja ^{141}Ce:a sisältävä näyte 55

8 Puoliintumisajan määritys ^{133m}Xe:lle ja ^{85m}Kr:lle 58
8.1 Tammikuun testimittauksien avulla saadut puoliintumisajat ^{133m}Xe:lle 58
8.2 Puoliintumisaikojen määritys varsinaisesta koenäytteestä 60

9 ^{133m}Xe:n konversiokerroin 65

10 Johtopäätökset 70

Kirjallisuus 72

Liite 1. The decay of ^{133m}Xe 76
Liite 2a. ^{85m}Kr energiatasokaavio 81
Liite 2b. ^{95m}Nb energiatasokaavio 82
Liite 2c. ^{133}Ba energiatasokaavio 83
Liite 2d. ^{141}Ce:n energiatasokaavio 84
Liite 3. Näytteiden implantointi- ja mittauspöytäkirja 85
Liite 4. Puoliintumisaika-analyyseissä käytetty tietokoneohjelma 87

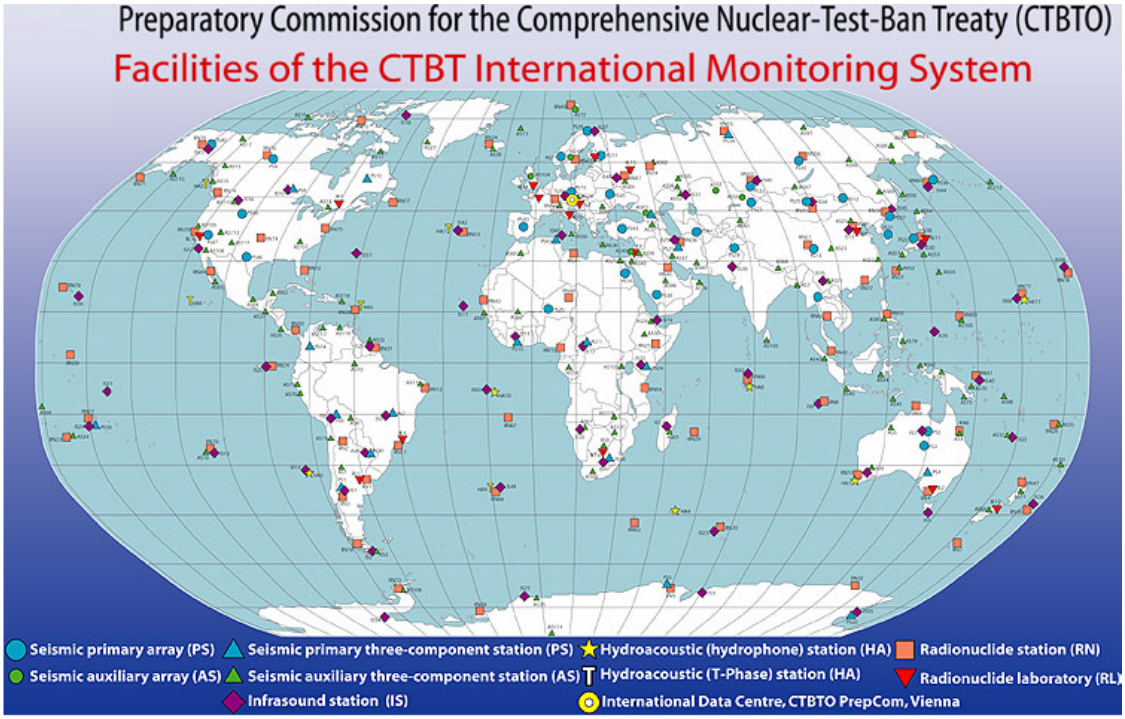
1 Johdanto

1.1 Motivaatio

Ydinkokeiden tekemistä rajoittaa kansainvälinen kattava ydinkoekieltosopimus (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty). Se on erittäin tärkeä ydinaseiden leviämisen estämisen kannalta. Sopimus kieltää kaikenlaisten ydinkokeiden tekemisen ja täten estää uudentyyppisten ydinaseiden kehittelyn ja valmistuksen. Yhdistyneiden Kansakuntien yleiskokouksessa 24.9.1996 sopimus sai laajan kannatuksen. Sopimuksen voimaantuloa valmisteleva komissio (Preparatory Commission for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization) perustettiin 19.11.1996 ja sen rahoitus tulee sopimuksen allekirjoittaneilta valtioilta. Sopimus astuu voimaan 180 päivän päästä siitä, kun kaikki maat, joilla on joko ydinvoimaloita tai tutkimusreaktoreita, ovat allekirjoittaneet ja ratifioineet sopimuksen. Tähän joukkoon kuuluu yhteensä 44 maata, ja näistä maista mm. Yhdysvallat, Kiina, Iran, Israel, Intia, Pakistan ja Pohjois-Korea eivät ole vielä sopimusta ratifioineet. Intia, Pakistan ja Pohjois-Korea eivät ole edes allekirjoittaneet sopimusta. Tästä johtuen on todennäköistä, että sopimuksen voimaantuloon voi mennä useita vuosia. On peräti mahdollista, että sopimus ei tule voimaan koskaan.

Sopimuksen toteutumisen valvonnassa käytettävien menetelmien on oltava sellaisia, että tehdyt ydinräjähdykset voidaan luotettavasti havaita, tehtiin ne sitten maan alla, vedessä tai ilmakehässä. Ydinräjähdyksessä vapautuu sekä energiaa että muodostuu fissiotuotteita. Energia vuorovaikuttaa ympäristönsä kanssa. Se luo ympäristöönsä mm. pitkän kantaman omaavia värähtelyitä. Räjähdyksessä syntyneet fissiotuotteet voivat vapautua ympäröivään väliaineeseen ja päästä ilmakehään niin vedestä kuin maan altakin. Suurin osa räjähdyksessä syntyvistä fissiotuotteista on varsin lyhytikäisiä. Kansainvälinen monitorointisysteemi koostuu 321 monitorointiasemasta ja 16 radionuklidilaboratoriosta. Monitorointiasemien jakauma eri tieteenalojen mukaan on seuraavanlainen: 170 (50 primääri- ja 120 sekundääriasemaa) seismologian asemaa, 11 hydroakustiikan asemaa,

60 infraääniasemaa ja 80 radionuklidiasemaa. Kuvassa 1.1 on esitetty monitorointiasemien verkoston jakautuminen ympäri maailmaa. Suomessa on radionuklidilaboratorio Helsingissä (Säteilyturvakeskus) ja primäärinen seismologian mittausasema Sysmässä [CTB07].



Kuva 1.1 Kansainvälisen CTBT-sopimuksen monitorointisysteemi [CTB07].

Puolessa tarkkailuverkoston 80 radionuklidiasemasta on mahdollista havaita myös jalokaasuja. Radionuklidien havaitseminen antaa lopullisen varmistuksen ydinräjähdyksen tapahtumisesta. Hiukkasnäytteiden ottaminen toteutetaan ohjaamalla ilmavirtaus lasikuitusuodattimen läpi. Lasikuitusuodatin on erittäin tehokas radioaktiivisten hiukkasten kerääjä. Saadut hiukkasnäytteet analysoidaan alustavasti radionuklidiasemilla ja sen jälkeen ne lähetetään tarvittaessa radionuklidilaboratorioille perusteellisempaa analyysia varten. Näiden näytteiden analysoinnissa on CTBTO:n mukaan käytettävä kuitenkin vain ja ainoastaan gammaspektroskopiaa.

Yksi hiukkasmittauksia rajoittava tekijä on se, että varsinkin maanalaisissa räjäytyksissä vain jalokaasujen tapaiset helposti haihtuvat yhdisteet saattavat päästä ilmakehään. Tämä

asettaa rajoituksia sille, mitä nuklideja on järkevää tarkastella, jos halutaan saada varmistus maanalaisen ydinräjähdyksen tapahtumisesta.

Ilma on pääosin sekoitus typpeä (78,08 % N_2) ja happea (20,94 % O_2). Ksenonia ilmassa on vain 0,087 ppm. Ydinräjähdyksessä muodostuu merkittävä määrä neljää – vielä usean päivän jälkeen havaittavissa olevaa – radioaktiivista ksenonin isotooppia/isomeeriä. Nämä ovat ^{131m}Xe ($T_{1/2}$ = 11,84 d), ^{133}Xe ($T_{1/2}$ = 5,243 d), ^{133m}Xe ($T_{1/2}$ = 2,19 d) ja ^{135}Xe ($T_{1/2}$ = 9,14 h). Etenkin maanalaisissa räjähdyksissä näiden isotooppien havainnointi on tärkeää. Radioaktiivisen ksenonin isotooppien aktiivisuussuhteiden perusteella voidaan erottaa toisistaan ydinräjähdyksessä tuotettu ja muista lähteistä peräisin oleva ksenon. Suorien fissiotuottojen ja verraten pitkien puoliintumisaikojen vuoksi ^{133m}Xe/^{133}Xe-aktiivisuussuhde on yksi tärkeimmistä indikaattoreista.

Jalokaasuanalyysiä häiritsee taustakontaminaatio, joka on peräisin isotooppituotannosta ja ydinvoimalaitosten päästöistä. Tästä johtuen CTBTO:n jalokaasunäytteiden keräimet sijoitetaan yleensä kauas tunnetuista taustaa aiheuttavista lähteistä. Useilla alueilla tyypillisin ksenonin taustaisotooppi on ^{133}Xe. ^{131m}Xe ja ^{135}Xe eivät ole yhtä yleisiä, mutta niitäkin on tavattu. Harvimmin yo. isotoopeista havaitaan ^{133m}Xe:a, minkä todennäköisin lähde on isotooppien tuotantolaitokset.

1.2 Aikaisemmat tulokset ^{133m}Xe:n konversiokertoimelle

Ennen tätä projektia ^{133m}Xe:n konversiokertoimen arvo oli kokeellisesti määritetty kolme kertaa. Näissä mittauksissa saadut arvot konversiokertoimelle poikkeavat huomattavasti toisistaan. Lisäksi vain yksi niistä on virherajojen puitteissa yhtenevä teoreettisten ennusteiden kanssa.

Kokeellisesti määritetyissä tuloksissa ilmoitetaan usein kokonaiskonversiokertoimen (α) lisäksi erikseen K-kuoren (α_K) sekä muiden kuorien ($\alpha_L + \alpha_M + \ldots$) yhteinen konversiokerroin. Tämä johtuu siitä, että K-kuorta lukuun ottamatta siirtymät ovat

energioiltaan hyvin lähellä toisiaan. Tällöin yksittäisiä konversiokertoimia on vaikea tai joissain tapauksissa jopa mahdotonta määrittää erikseen. Teorian pohjalta lasketuissa arvoissa on yleensä ilmoitettu erikseen kaikkien eri kuorien konversiokertoimet. Näiden avulla voidaan laskea arvo esim. yhdistetylle L+M+...-konversiokertoimelle.

Ensimmäinen kokeellinen määritys ^{133m}Xe:n konversiokertoimen saamiseksi tehtiin vuosien 1952 ja 1954 aikana Bergströmin toimesta [Ber52 ja Ber54]. Tämän määrityksen tuloksena saatiin arvot $\alpha_K = 4{,}4 \pm 1{,}4$ ja $\alpha_{L+M+...} = 1{,}9 \pm 0{,}6$. Tällöin yhteenlaskettu kokonaiskonversiokerroin on $\alpha = 6 \pm 2$. 1960- ja 70 luvun vaihteessa suoritettiin kaksi erillistä määritystä ^{133m}Xe:n konversiokertoimelle. Ensimmäisen näistä eli vuonna 1968 tehdyn Alexanderin ja Laun suorittaman kokeen perusteella arvoiksi saatiin $\alpha_K = 7{,}7 \pm 0{,}3$, $\alpha_{L+M+...} = 3{,}8 \pm 0{,}3$ ja $\alpha = 11{,}4 \pm 0{,}6$ [Ale68]. Viimeisin määritys tehtiin vuonna 1972 Achterbergin toimesta [Ach72]. Tällöin saatiin tulokset $\alpha_K = 7{,}4 \pm 1{,}4$, $\alpha_{L+M+...} = 2{,}9 \pm 0{,}6$ ja $\alpha = 10 \pm 2$.

Australian kansallisen yliopiston (Australian National University) verkkosivuilla [ANU07] on konversiokerroinlaskuri, jonka avulla voidaan määrittää eri teorioiden ennustamat arvot kiinnostaville hajoamisille. Eri teorioiden mukaan lasketut arvot poikkeavat toisistaan hieman. Relativistisen Hartree-Fock-Slater-mallin mukaan lasketut konversiokertoimet ovat $\alpha_K = 6{,}32 \pm 0{,}19$, $\alpha_{L+M+...} = 2{,}69 \pm 0{,}09$ ja $\alpha = 9{,}0 \pm 0{,}3$. Nämä arvot on laskettu lähteissä [Rö78a, Rö78b] olevia taulukoita käyttäen. Dirac-Fock-mallin perusteella saadut arvot ovat puolestaan $\alpha_K = 6{,}24 \pm 0{,}09$, $\alpha_{L+M+...} = 2{,}59 \pm 0{,}04$ ja $\alpha = 8{,}83 \pm 0{,}13$ [Ban02, Ram02]. Teoreettisesti lasketut arvot niin yksittäisille kuin kokonaiskonversiokertoimellekin ovat suurempia kuin Bergströmin (1954) ja pienempiä kuin Alexanderin ja Laun (1968) julkaisemat luvut. Achterbergin (1972) raportoimat konversiokertoimien arvot ovat virherajoissa yhteneviä teorian kanssa.

^{133m}Xe:n konversiokertoimen arvoksi on kirjallisuuteen listattu hieman paikasta riippuen samat kaksi edellä esitettyä teorian mukaan laskettua arvoa. Nuclear Data Sheets listaa kokonaiskonversiokertoimen arvoksi $\alpha = 8{,}8$ [Rab95]. NNDC:n (National Nuclear Data

Center) verkkosivuilla ENSDF-alaosiossa (Evaluated Nuclear Stucture Data File) on listattuna kaksi erillistä arvoa kokonaiskonversiokertoimelle $\alpha = 8{,}8$ ja $\alpha = 9{,}0$ [ENS07].

Jos kolmesta aikaisemmin tehdystä mittaustuloksesta otetaan virheellä painotettu keskiarvo, saadaan ^{133m}Xe:n konversiokertoimelle arvo $11{,}1 \pm 0{,}4$ [Sii04]. Tulos vaikuttaa olevan liian suuri verrattaessa sitä teorian pohjalta saatuun arvioon. Tällä tavoin lasketussa konversiokertoimessa painoarvo on erityisesti Alexanderin ja Laun määrittämillä tuloksilla, koska ko. mittauksessa virheen suuruus on arvioitu huomattavasti pienemmäksi kuin kahdessa muussa analyysissä. Bergströmin saama tulos taas on vahvasti alakanttiin, jos sitä verrataan teoriaan tai muihin kokeellisiin tuloksiin, joten todennäköisesti sekään ei ole oikea. Tekijät itsekin kyseenalaistivat mittaustensa luotettavuutta.

Koska aikaisempi kokeellinen data ei luo yksiselitteistä kuvaa CTBT-organisaatiolle tärkeän ^{133m}Xe hajoamisesta, oli ensiarvoisen tärkeää suorittaa tämä uudelleenmittaus. Tämän työn tarkoituksena oli määrittää ^{133m}Xe:n elektronikonversiokerroin paremmalla kuin 10 %:n tarkkuudella [Per05].

2 Teoriaa

2.1 Atomi- ja ydinfysiikan perusteita

Ionisoiva säteily voidaan jakaa kahteen päälajiin, jotka ovat hiukkas- ja sähkömagneettinen säteily. Edetessään väliaineessa varattu hiukkanen vuorovaikuttaa ympäristönsä kanssa. Hiukkanen jarruuntuu ja osa sen energiasta siirtyy väliaineeseen. Hiukkassäteilyn havaitseminen perustuu tähän ilmiöön. Ionisoiva sähkömagneettinen säteily puolestaan on epäsuorasti eli välillisesti ionisoivaa säteilyä. Sen vuorovaikuttaessa väliaineen kanssa syntyy ionisoivia sekundäärihiukkasia.

Gammasäteily on sähkömagneettisen säteilyn alalaji. Atomin ytimen ollessa virittyneessä tilassa voi tämä viritystila purkautua sähkömagneettisena säteilynä eli gammasäteilynä. Gammakvantti eli fotoni, joka havaitaan viritystilan purkautuessa, vie mukanaan kahta diskreettiä energiatilaa vastaavan energiaeron. Koska samasta lähtötilasta on usein mahdollista siirtyä useammalle eri tilalle, ovat havaitut gammasäteilyn intensiteetit verrannollisia vastaavien siirtymien todennäköisyyksiin. Gammasäteilyn yhteydessä esiintyy lähes aina myös muuta sähkömagneettista säteilyä. Näistä yleisimmät säteilylajit ovat röntgensäteily, jarrutussäteily ja annihilaatiosäteily.

Gammasäteily voi vaikuttaa väliaineen kanssa usealla eri tavalla. Nämä vuorovaikutusmenetelmät ovat Rayleigh-sironta, valosähköinen ilmiö, Compton-sironta ja parinmuodostus. Kukin vuorovaikutusilmiö dominoi eri energia-alueilla. Fotonin energian lisäksi, se mikä vuorovaikutustapa on vallitseva, riippuu myös väliaineen järjestysluvusta Z.

Rayleigh-sironnassa gammakvantti törmää väliaineeseen lujasti sitoutuneeseen elektroniin siten, että koko atomi ottaa vastaan rekyylienergian. Näin ollen gammakvantin energia likipitäen säilyy, mutta kulkusuunta saattaa hieman muuttua.

Rayleigh-sironta on merkittävää ainoastaan pienienergisillä kvanteilla (alle 100 keV). Tällä energia-alueella tärkeämpi vuorovaikutusilmiö on kuitenkin valosähköinen ilmiö, joka myös säilyy hallitsevana suuremmillekin energioille. Valosähköisessä ilmiössä fotoni luovuttaa kaiken energiansa atomin elektronille, joka sinkoutuu ulos atomista.

Viimeistään yhden MeV:n jälkeen Compton-sironnasta tulee hallitseva vuorovaikutusmuoto. Compton-sironnassa fotoni siroaa löyhästi sitoutuneesta elektronista siten, että lopputuloksena on aina sekä matkaansa jatkava sironnut fotoni että elektroni, jonka energia absorboituu väliaineeseen. Kun fotonin energia ylittää 1,022 MeV:a, on parinmuodostus mahdollinen vuorovaikutustapa. Parinmuodostuksessa gammakvantin energia muuttuu elektroni-positroni -pariksi [STU02].

2.1.1 Radioaktiivinen hajoaminen

Radioaktiivinen hajoaminen on spontaani prosessi, jossa epästabiili ydin muuttuu toiseksi ytimeksi ilman ulkoisten tekijöiden vaikutusta. Samalla ydin emittoi hiukkasia tai fotoneja.

Radioaktiivisen lähteen aktiivisuus A on lähteessä tapahtuvien hajoamisten lukumäärä aikayksikössä. Aktiivisuuden SI-yksikkö on becquerel (Bq = 1/s). Jos lähteessä tapahtuu keskimäärin yksi hajoaminen sekunnissa, on sen aktiivisuus tällöin 1 Bq. Koska radioaktiivinen hajoaminen on satunnaisilmiö, ei tietyn radioaktiivisen ytimen hajoamisen ajankohtaa ole mahdollista määrittää etukäteen. Radioaktiivisen aineen hajoamisen nopeutta kuvaa hajoamisvakio λ, joka on todennäköisyys, että tietty ydin hajoaa aikayksikön kuluessa. Hajoamisvakion SI-yksikkö on 1/s.

Puoliintumisajalla $T_{1/2}$ tarkoitetaan sitä aikaa, jonka kuluessa tietystä radionuklidista koostuvan radioaktiivisen lähteen aktiivisuus on laskenut puoleen alkuperäisestä. Kullakin nuklidilla on sille ominainen puoliintumisaika ja ne vaihtelevat eri nuklidien

välillä hyvin suuresti. Ne voivat olla sekunnin murto-osista aina vuosimiljooniin saakka [STU02].

Tämän työn kannalta olennaiset nuklidit olivat ^{85m}Kr, ^{95m}Nb, ^{133m}Xe ^{133}Ba ja ^{141}Ce. Näiden puoliintumisajat vaihtelevat neljästä ja puolesta tunnista aina reiluun kymmeneen vuoteen. Kyseisten nuklidien puoliintumisajat on listattu taulukkoon 2.1 [CRC04].

Taulukko 2.1 Tarkasteltavien nuklidien puoliintumisajat

Nuklidi	^{85m}Kr	^{95m}Nb	^{133m}Xe	^{133}Ba	^{141}Ce
$T_{1/2}$	4,48 h	3,61 d	2,19 d	10,53 y	32,50 d

2.1.2 Eksponentiaalinen hajoamislaki

Radioaktiiviset lähteet sisältävät usein erittäin suuren määrän ytimiä. Tällöin lähteen aktiivisuus voidaan laskea hyvin tarkkaan yksinkertaisten kaavojen avulla hajoamisen satunnaisluonteesta huolimatta.

Tarkasteltaessa lyhyellä aikavälillä (t, t + dt) tapahtuvaa hajoamista, saadaan yhden hajoamisen todennäköisyydelle arvo λdt. Tällöin ytimien lukumäärän N(t) muutokselle dN(t) saadaan lauseke $dN = - N\lambda dt$ eli

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \tag{2.1}$$

Jos ytimien määrä hetkellä t = 0 on N_0, saadaan edellisen differentiaaliyhtälön ratkaisuna ytimien määräksi hetkellä t:

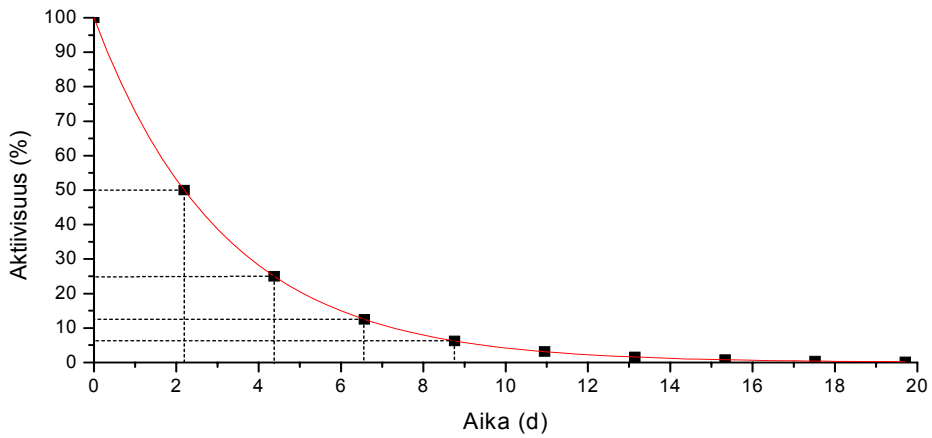
$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \tag{2.2}$$

Kyseisen ainemäärän aktiivisuus A(t) eli hajoamisten lukumäärä aikayksikköä kohti on yhden ytimen hajoamistodennäköisyys aikayksikköä kohti kerrottuna ytimien lukumäärällä N(t):

$$A(t) = \lambda N(t) = A_0 e^{-\lambda t}, \tag{2.3}$$

missä $A_0 = \lambda N_0$ on aktiivisuus hetkellä t = 0 [STU02].

Kuvassa 2.1 on esitetty kuinka radioaktiivisen näytteen aktiivisuus pienenee eksponentiaalisesti ajan funktiona. Näytteenä on ^{133m}Xe, jonka puoliintumisaika on 2,19 päivää. Kuvaajaan on merkitty pisteet, jolloin on kulunut aina yksi puoliintumisaika.



Kuva 2.1 ^{133m}Xe:n aktiivisuuden pieneneminen ajan funktiona.

Puoliintumisajan ja hajoamisvakion välinen yhteys voidaan ratkaista kaavan (2.3) avulla. Kun kaavaan sijoitetaan ajan tilalle yksi puoliintumisaika eli $t = T_{1/2}$ ja aktiivisuudeksi $A(t) = ½ A_0$, saadaan:

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \tag{2.4}$$

Aktiivisuuden eksponentiaalinen väheneminen koskee kerralla vain yhtä radionuklidia. Jos lähteessä on useita eri nuklideja, noudattaa jokaisen nuklidin aktiivisuus erikseen eksponentiaalista hajoamislakia [STU02].

Radioaktiivisen hajoamisen tuotteina syntyneet tytärytimet ovat usein itsekin radioaktiivisia. Tällöin muodostuu hajoamisketjuja ($A \rightarrow B \rightarrow C...$), joissa kutakin hajoamista kuvailee oma hajoamisvakio (λ_A, λ_B, λ_C...). Ensimmäinen nuklidi noudattaa yhtälön (2.2) mukaista hajoamista:

$$\mathrm{N_A(t) = N_A(0)}e^{-\lambda_A t} \tag{2.5}$$

Kun kirjoitetaan differentiaaliyhtälö nuklidi B:n hajoamiselle, on otettava huomioon A:n hajoamisen vaikutus. Tällöin lausekkeeseen tulee ylimääräinen termi:

$$\frac{\mathrm{dN_B}}{\mathrm{dt}} = -\lambda_B\ \mathrm{N_B} + \lambda_A\ \mathrm{N_A} \tag{2.6}$$

Tämä voidaan ratkaista kertomalla yhtälö puolittain tekijällä $e^{\lambda_B t}$, vaihtamalla termi $\mathrm{N_A(t)}$ termiin $\mathrm{N_A(0)}\,e^{-\lambda_A t}$ ja järjestelemällä yhtälö uudelleen:

$$\frac{\mathrm{dN_B}}{\mathrm{dt}}\mathrm{e}^{\lambda_B t} + \lambda_B\ \mathrm{N_B}\mathrm{e}^{\lambda_B t} = \frac{d}{dt}\left(\mathrm{N_B}\mathrm{e}^{\lambda_B t}\right) = \lambda_A\ \mathrm{N_A}\mathrm{e}^{\lambda_B t} = \lambda_A\ \mathrm{N_A}(0)\mathrm{e}^{(\lambda_B - \lambda_A)t} \tag{2.7}$$

Integrointi antaa tulokseksi:

$$\mathrm{N_B}\mathrm{e}^{\lambda_B t} = \lambda_A\ \mathrm{N_A}(0)\int \mathrm{e}^{(\lambda_B - \lambda_A)t}dt = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A}\mathrm{N_A}(0)\mathrm{e}^{(\lambda_B - \lambda_A)t} + K \tag{2.8}$$

Jos hetkellä t = 0, $\mathrm{N_B(0)} = 0$, voidaan integrointivakio K ratkaista:

$$K = -\frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} \mathrm{N_A}(0) \tag{2.9}$$

Tällöin saadaan ratkaistua lauseke, joka antaa ytimien B määrän ajan hetkellä t:

$$\mathrm{N_B}(t) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} \mathrm{N_A}(0)\left(\mathrm{e}^{-\lambda_A t} - \mathrm{e}^{-\lambda_B t}\right) \tag{2.10}$$

Samankaltaiset yhtälöt voidaan johtaa myös tapauksissa, joissa hajoamisketjuun kuuluu useampiakin jäseniä. Jos tytärnuklidi on paljon pitkäikäisempi kuin emoydin eli $\lambda_A >> \lambda_B$ voidaan hajoamisketjun tarkastella etenevän kahdessa vaiheessa. Ensin A hajoaa nopeasti B:ksi, jonka jälkeen B hajoaa huomattavasti hitaammin C:ksi. Tällöin voidaan yhtälö (2.10) kirjoittaa muotoon:

$$\mathrm{N_B}(t) \sim \mathrm{N_A}(0)\mathrm{e}^{-\lambda_B t} \tag{2.11}$$

Päinvastaisessa tilanteessa emonuklidi on suhteellisen pitkäikäinen tytärnuklidiin verrattuna ($\lambda_B >> \lambda_A$). Tällöin termi $\mathrm{e}^{-\lambda_B t}$ on paljon pienempi kuin termi $\mathrm{e}^{-\lambda_A t}$, jolloin lausekkeesta (2.10) saadaan:

$$\mathrm{N_B}(t) \sim \frac{\lambda_A}{\lambda_B} \mathrm{N_A}(0)\mathrm{e}^{-\lambda_A t} = \frac{\lambda_A}{\lambda_B} \mathrm{N_A}(\mathrm{t}) \tag{2.12}$$

Tästä seuraa se, että tytärnuklidin ytimien määrä kasvaa nopeasti, kunnes ne saavuttavat tasapainotilan emonuklidin ytimien kanssa. Tasapainotilassa molemmilla nuklideilla on sama aktiivisuus, eli $A_A(t) = A_B(t)$. Tällöin molemmat nuklidit hajoavat samaa nopeutta, joka riippuu A:n hajoamisvakiosta λ_A [Lil01].

3 Sisäinen konversio

3.1 Teoriaa

Ydinreaktion seurauksena syntynyt ydin jää usein virittyneeseen tilaan. Nämä viritystilat pyrkivät purkautumaan nopeasti. Viritystilat voivat hajota useallakin eri tavalla, mutta monissa tapauksissa viritys purkautuu gammaemission välityksellä. Gammaemission kanssa kilpaileva prosessi on sisäinen konversio. Sisäisessä konversiossa ytimen sähköiset ja magneettiset multipolikentät vuorovaikuttavat atomin elektronien kanssa aiheuttaen elektronin irtoamisen atomista. Emittoitunut elektroni on siis peräisin joltakin atomin elektronikuorelta, eikä sitä luoda hajoamisessa kuten β-hajoamisen tapauksessa tapahtuu. Jos transitioenergia on tarpeeksi suuri, on mahdollista, että myös kolmas sähkömagneettinen prosessi tapahtuu. Tämä prosessi on nimeltään sisäinen parinmuodostus ja siinä syntyy elektroni-positroni -pari. Sisäinen parinmuodostus on mahdollinen vain suuremmilla kuin 1,022 MeV:n energioilla [Lil01]. Tässä työssä käsiteltyjen siirtymien energiat olivat kuitenkin huomattavasti pienempiä, jolloin sisäistä parinmuodostusta ei voinut tapahtua.

Sisäisessä konversiossa irronneen elektronin liike-energia E_{el} riippuu alku- ja lopputilan välisestä transitioenergiasta ΔE, elektronin sidosenergiasta B sekä ytimen rekyylienergiasta. Rekyylienergia voidaan jättää huomioimatta, koska se on muihin termeihin verrattuna hyvin pieni. Tällöin elektronin saama liike-energia saa muodon:

$$E_{el} = \Delta E - B \tag{3.1}$$

Sisäisellä konversiolla on siis elektronin sidosenergian suuruinen kynnysenergia, jonka jälkeen se on mahdollinen. Koska kullakin elektronikuorella on ominainen sidosenergia, saavat eri kuorilta emittoidut elektronit erisuuruiset energiat. Tietyin edellytyksin nämä on mahdollista mitata ja havaita erikseen. Konversioelektronit nimetään sen mukaan,

miltä kuorelta ne ovat peräisin. Kuoret on nimetty K, L, M jne. vastaten pääkvanttilukuja (n = 1, 2, 3...). Lisäksi nämä kuoret voidaan jakaa vielä alikuoriin. Esimerkiksi L-kuoren alikuoret nimetään L_I, L_{II} ja L_{III}, jotka vastaavat merkintöjä $2s_{1/2}$, $2p_{3/2}$ ja $2p_{1/2}$.

Koska gammaemissio ja sisäinen konversio ovat kilpailevia prosesseja, riippuu ytimen hajoamisnopeus molemmista prosesseista. Tällöin kokonaishajoamisvakio λ_{tot} on gammaemission hajoamisvakion λ_γ ja elektronikonversion hajoamisvakion λ_e summa.:

$$\lambda_{tot} = \lambda_\gamma + \lambda_e \tag{3.2}$$

Sisäisen konversiokertoimen on määritelty olevan elektroniemission ja gammaemission hajoamisnopeuksien suhde.

$$\alpha = \frac{\lambda_e}{\lambda_\gamma} \tag{3.3}$$

Konversiokerroin voidaan ilmoittaa osittaisten konversiokertoimien summana, jolloin lausekkeen kukin termi vastaa tietyltä elektronikuorelta tapahtuvaa emissiota:

$$\alpha = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + ... \tag{3.4}$$

Tietyn kuoren konversiokerroin on mahdollista jakaa vielä sen alikuorien mukaan, eli esim. L-kuorelle:

$$\alpha_L = \alpha_{L_I} + \alpha_{L_{II}} + \alpha_{L_{III}} \tag{3.5}$$

Sisäisen konversion yhteydessä syntyy aina röntgensäteilyä ja mahdollisesti myös Auger-elektroneja. Tämä johtuu siitä, että elektronikuorelle luotu aukko pyrkii aina täyttymään ja atomi palautumaan minimienergiatilaansa [Lil01].

Konversiokertoimien teoreettinen ennustaminen vaatii varsin mutkikasta algebraa ja siihen ei tässä työssä haluta paneutua. Voidaan kuitenkin todeta, että mittaustuloksilla viritettyjen mallien ennustuskyky on nykyisin jo varsin hyvä. Konversiokertoimien arvoja on laskettu teoreettisesti ja niistä on saatavilla hyvin kattavia taulukoita (mm. [Ban02], [Rö78a] ja [Rö78b]). Taulukoissa on laskettu konversiokertoimen arvoja eri multipoleille siirtymän energian ja alkuaineen järjestysluvun Z funktiona. Epärelativistisessa käsittelyssä saadaan sähköisille ja magneettisille multipolisiirtymille seuraavat lausekkeet [Ruo91]:

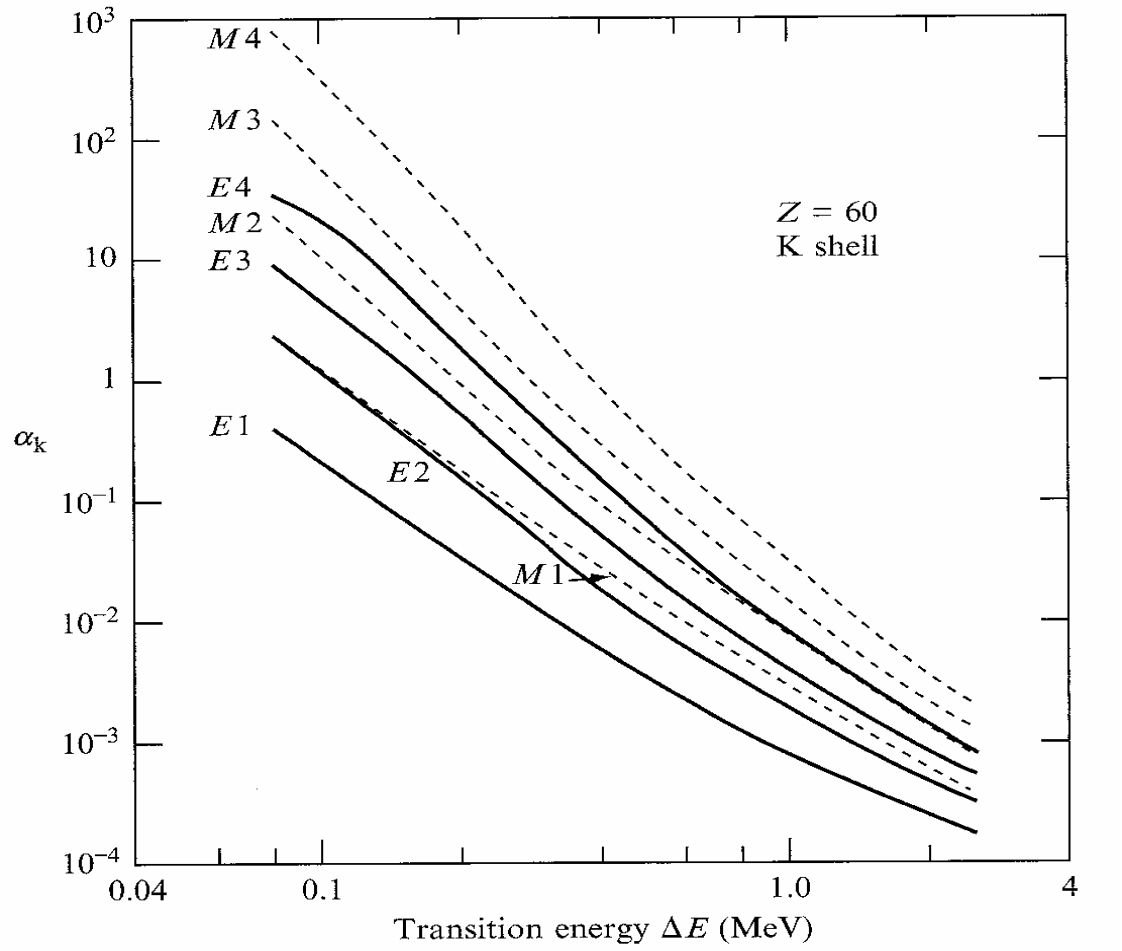
$$\alpha(\mathrm{EL}) \cong \frac{Z^3}{n^3}\left(\frac{L}{L+1}\right)\left(\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\hbar c}\right)^4\left(\frac{2m_e c^2}{E}\right)^{L+5/2} \tag{3.6}$$

$$\alpha(\mathrm{ML}) \cong \frac{Z^3}{n^3}\left(\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\hbar c}\right)^4\left(\frac{2m_e c^2}{E}\right)^{L+3/2}, \tag{3.7}$$

missä Z = atomin järjestysluku, n = pääkvanttiluku, L = multipoliaste ja E = siirtymän energia. Muut termit ovat luonnonvakioita.

Lausekkeiden (3.6) ja (3.7) perusteella voidaan hyvin tehdä joitakin huomioita konversiokertoimien käyttäytymisestä. Yleisesti ottaen konversiokertoimen lukuarvo kasvaa nopeasti järjestysluvun Z kasvaessa termin Z^3 ansiosta. Tämän tekijän vaikutus näkyy eniten raskailla alkuaineilla ja sen takia sisäinen konversio on huomattavasti yleisempää raskailla kuin kevyillä alkuaineilla. Pääkvanttiluvun n kasvaessa eli siirryttäessä ulommille elektronikuorille konversiokerroin pienenee tekijällä $1/n^3$ eli sisäkuoren elektronit viettävät suhteessa eniten aikaa ytimen välittömässä läheisyydessä. Multipoliasteen L kasvaessa konversiokerroin kasvaa voimakkaasti. Lisäksi huomattavaa on, että magneettisten siirtymien arvot ovat yleensä suurempia kuin vastaavien sähköisten siirtymien. Siirtymäenergian kasvaessa konversiokertoimen arvo pienenee nopeasti. Kaiken kaikkiaan voidaan sanoa sisäisen konversion olevan todennäköisintä raskaiden alkuaineiden korkean multipolin omaaville K-kuoren siirtymille, joilla on alhainen (kuitenkin kynnysenergian ylittävä) siirtymäenergia. Kuvassa 3.1 on esitetty K-konversiokertoimien arvo eri multipoleille transitioenergian funktiona, kun $Z = 60$.

Kuvasta voidaan selvästi havaita kuinka konversiokertoimien arvot käyttäytyvät eri tekijöiden muuttuessa.

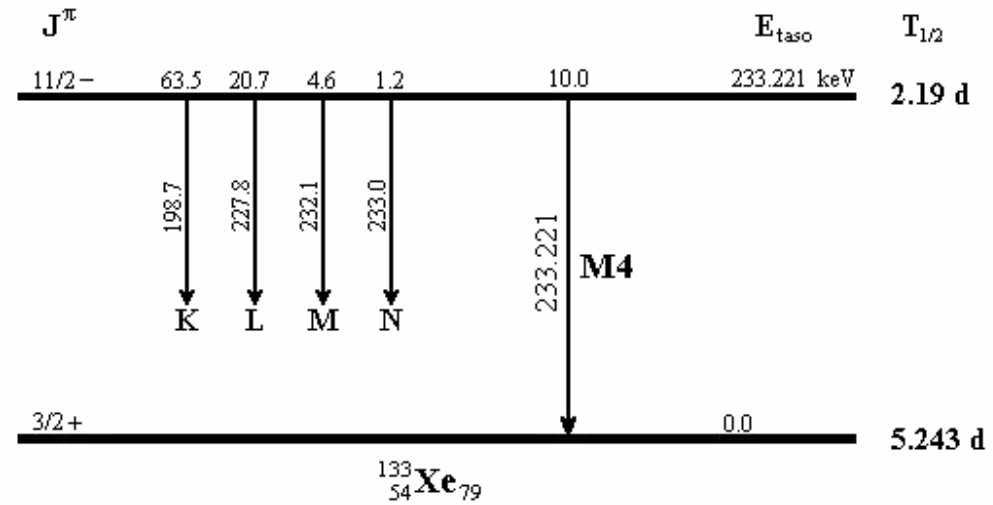


Kuva 3.1 K-konversiokertoimen arvo usealle eri Eλ- ja Mλ-siirtymälle, kun Z = 60 [Tab78].

Mittaamalla eri konversiokertoimia, on usein myös mahdollista tutkia siirtymän laatua ja mm. määrittää siirtymän multipoli. Sähkömagneettisissa siirtymissä on yksi erikoistapaus, jossa siirtymät voidaan havaita vain sisäisen konversion kautta. Tämä on E0-siirtymä, jonka gammaemissio on kielletty.

3.2 Tarkasteltavat siirtymät

^{133}Xe:n (Z=54) gammasiirtymä isomeeriseltä tilalta perustilaan on energialtaan 233,221 keV:a. Tämän siirtymän multipoliaste on M4. Näiden tietojen ja edellisessä kappaleessa esiteltyjen riippuvuuksien pohjalla voidaan olettaa siirtymän olevan varsin konvertoitunut. Tämä pätee myös todellisuudessa. Kirjallisuuslähteiden mukaan gammasiirtymän intensiteetti on noin 10 % eli 90 % hajoamisista tapahtuu sisäisen konversion välityksellä [ENS07]. Kuvassa 3.2 on ^{133m}Xe:n hajoamiskaavio, jossa on kyseisen gammasiirtymän lisäksi esitetty myös isomeeriseltä tilalta lähtevät konversioelektronisiirtymät. Liitteessä 2 on muiden tämän työn kannalta olennaisten nuklidien energiatasokaavioita.



Kuva 3.2 ^{133m}Xe:n hajoamiskaavio.

Taulukkoon 3.1 on koottu ^{133m}Xe:n sekä muiden tässä työssä tarvittujen nuklidien eli ^{85m}Kr:n, ^{95m}Nb:n ja ^{141}Ce:n gamma- ja konversioelektronisiirtymien energiat. Gammaenergiat intensiteetteineen on otettu lähteestä [ENS07]. Pääkuoriin liittyvät elektronienergiat intensiteetteineen on otettu lähteestä [Cha07]. ^{133m}Xe:n tapauksessa on lisäksi laskettu alikuoriin liittyvien elektronien energiat käyttäen apuna tunnettuja gammaenergioita sekä lähteessä [XBD01] olevaa elektronien sidosenergiataulukkoa.

Tämän työn kokeellisessa osassa eri alikuorien siirtymiä ei kuitenkaan ollut mahdollista erottaa toisistaan, koska käyttämämme mittalaitteiston energiaresoluutio ei ollut riittävän hyvä. Lisäksi myös (L-, M-...) -siirtymien piikit olivat mittauksissamme kuroutuneet yhteen. Tämä ei ollut odottamatonta, sillä aikaisemmissa kokeellisissa määrityksissäkin on ^{133m}Xe:lle ilmoitettu K-konversiokerroin ja sen lisäksi vain yhteinen (L+M+…)-konversiokerroin.

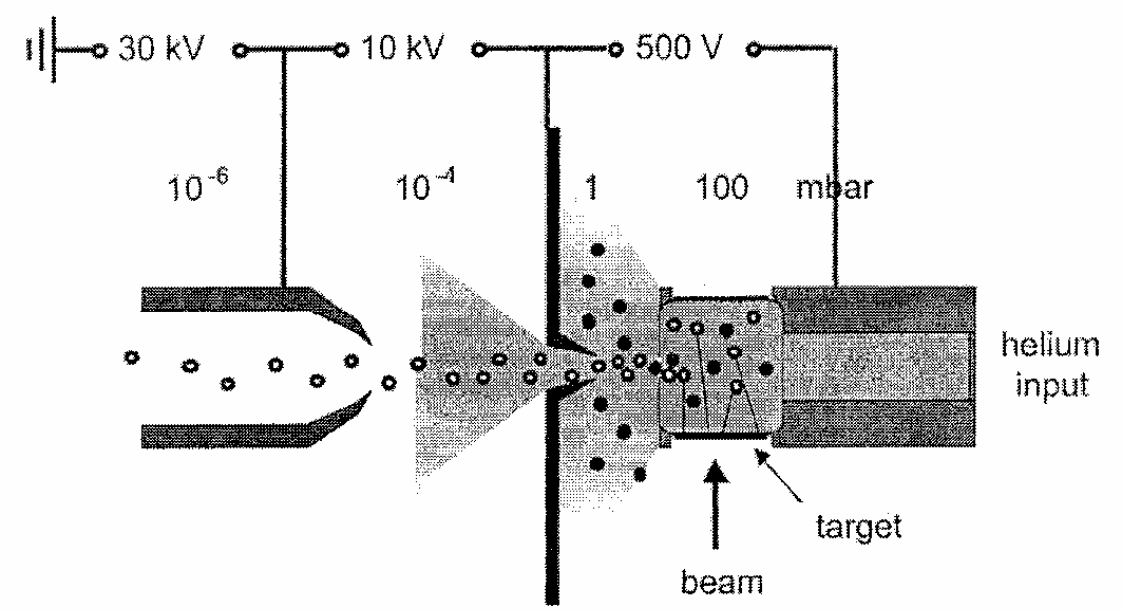
Taulukko 3.1 Tarkasteltujen nuklidien gamma- ja konversioelektronienergiat ja siirtymien intensiteetit.

Nuklidi	Gammaenergia (keV)	I_γ	Elektronienergia (keV)	I_e	Kuori
^{133m}Xe	233,221	10,0	198,660	63,5	K
			227,768		L_1
			228,114		L_2
			228,435		L_3
			227,768	20,68	L
			232,072		M_1
			232,219		M_2
			232,280		M_3
			232,532		M_4
			232,545		M_5
			232,079	4,57	M
			233,008		N_1
			233,074		N_2
			233,076		N_3
			233,152		N_4
			233,154		N_5
			233,013	1,225	NP
^{85m}Kr	304,87	14,0	290,544	6,15	K
			302,949	0,932	L
			304,582	0,182	M
^{95m}Nb	235,690	24,9	216,704	56,0	K
			232,992	11,23	L
			235,222	2,058	M
			235,632	0,3710	N
^{141}Ce	145,4405	48,2	103,4527	18,74	K
			138,6085	2,588	L
			143,9323	0,5408	M
			145,1388	0,1487	NP

4 IGISOL ja näytteiden valmistus

4.1 IGISOL

IGISOL on yksi Jyväskylän yliopiston Fysiikan laitoksen (JYFL) kiihdytinlaboratorion ydin- ja kiihdytinpohjaisen fysiikan erikoislaitteistoista. Nimi IGISOL tulee sanoista Ion Guide Isotope Separator On-Line eli kyseessä on ns. massaseparaattorilaitteisto. IGISOL-laitteisto on kehitelty Jyväskylässä 1980-luvulla ja sen avulla on esim. löydetty kymmeniä uusia keskiraskaita neutronirikkaita isotooppeja sekä tutkittu näiden rakennetta ja hajoamisominaisuuksia. Kuvassa 4.1 on esitetty ioniohjaimen toimintaperiaate.



Kuva 4.1 Ioniohjaimen toimintaperiaate: Primääriset reaktiotuotteet muutetaan termisiksi ioneiksi ja ohjataan kaasuvirtauksen sekä sähkökenttien avulla massaseparaattoriin [Äys01].

JYFL:n K130-syklotronilla tuotettu protonisuihku ohjataan ioniohjaimen sisällä olevaan uraanikohtioon (paksuus tyypillisesti 15 mg/cm^2). Protonisuihku aikaansaa kohtiossa

fissioreaktioita. Syntyneet kohtiosta ulos lentävät fissiotuotteet termaloidaan kohtiokammiossa olevaan virtaavaan puskurikaasuun. Puskurikaasuna käytetään yleensä heliumia, mutta se voi olla myös argonia. Ulosvirtauksen aikana reaktiotuotteet törmäilevät jatkuvasti puskurikaasun atomien kanssa. Reaktiotuotteiden saapuessa ulosvirtausaukolle on osa niistä edelleen ionisoituneita (1^+ on tyypillisin varaustila). Ionit erotellaan neutraalista kaasusta differentiaalisesti pumpatun elektrodisysteemin avulla, joka samanaikaisesti myös kiihdyttää ne 30 keV kineettiseen energiaan (aiemmin käytettiin Kuvan 4.1. mukaista 40 keV kiihdytysjännitettä). Kuva 4.2 esittelee koko IGISOL-laitteiston.

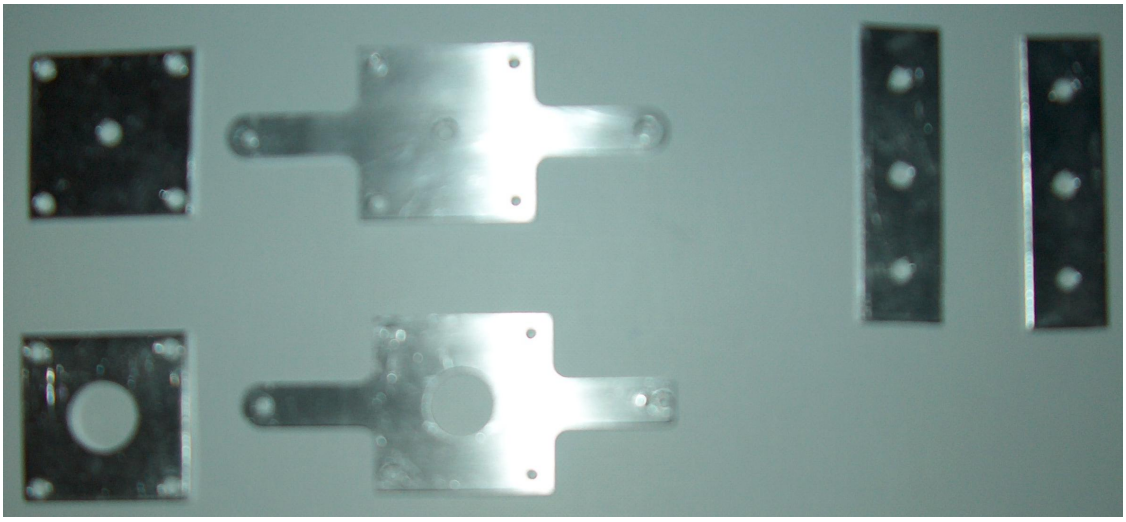
Kuva 4.2 IGISOL:n pohjakuva. (1) Ioniohjain, (2) K130-syklotronin suihkulinja, (3) primäärisuihkun pysäytin, (4) kiihdytyskammio, (5) dipolimagneetti, (6) ionisuihkun ohjauslaatikko, (7) radiotaajuuskvadrupolijäähdytin, (8) kaksiosainen Penningin loukku, (9) pienoiskvadrupoliohjain, (10) sähköstaattinen ohjain ja suihkulinja yläkertaan, (11) koejärjestelyt [IGI07].

Kiihdytetyt ionit massaerotellaan dipolimagneetin avulla. Massaseparoitu hiukkassuihku voidaan ohjata JYFLTRAP:n kvadrupoliloukkuun - joka jäähdyttää ja kimputtaa ionisuihkun - ja tästä edelleen kaksiosaiseen Penningin loukkuun. Toinen vaihtoehto on ohjata massaseparoitu hiukkassuihku suoraan haluttuun koejärjestelyyn, kuten teimme myös tässä työssä. Koejärjestelystä kerrotaan tarkemmin seuraavassa kappaleessa.

4.2 Näytteiden valmistus

Mittauksissa tarvitut näytteet valmistettiin IGISOL-laitteistolla. Kiinnostavista ytimistä koostuvat hiukkassuihkut implantoitiin ohuisiin alumiinikalvoihin (paksuus 3,2 mg/cm^2). Näytteiden implantaatioalustaksi valittiin alumiini, koska sen on havaittu pystyvän tehokkaasti pidättämään siihen implantoidut jalokaasut [Wei00].

IGISOL-linjaston päähän rakennettiin implantaatioita varten oma keräysasema. Se linjattiin tarkasti paikalleen linjauskiikaria ym. apuvälineitä käyttäen. Massaseparoitu hiukkassuihku ohjattiin tyhjiökammion sisällä olevalle alumiinikalvolle. Implantaatiota varten oli valmistettu useita identtisiä näytteenpidikkeitä, joita voitiin aina vaihtaa tarpeen mukaan. Tulevaa hiukkassuihkua rajattiin näytteenpidikkeen edessä olevalla kollimaattorilla, jonka halkaisija oli 5 mm. Kollimaattorin avulla lähteistä tuli varsin hyvin määriteltyjä. Kyseinen kollimaattori ainoastaan leikkasi suihkujen hännät pois eli suurin osa suihkusta osui kalvoon. Suihkujen häntien leikkaaminen tarkoitti myös sitä, että saatoimme paremmin ajatella näytteitämme pistelähteinä. Kuvassa 4.3 on näytteiden implantoinnissa sekä mittauksissa käytettyjä pidikkeitä ja kollimaattoreita.



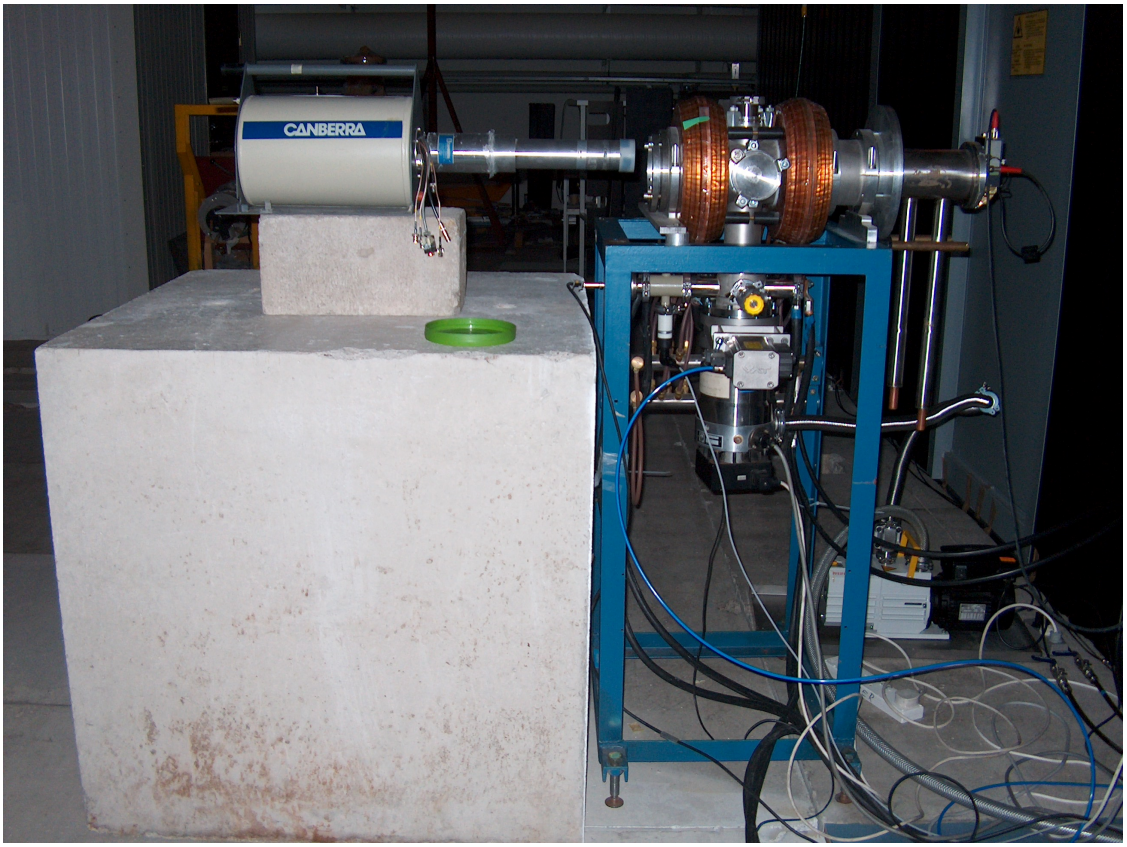
Kuva 4.3 Kuvassa vasemmalla on implantoinnissa ja mittauksissa käytetyt näytteenpidikkeet, joiden keskireiän halkaisijat ovat 5 mm ja 16 mm. Oikealla on implantoinnissa käytetyt kollimaattorit (reiän halkaisija 5 mm).

Näytteenpidike kiinnitettiin metallitangon päähän, jota oli tyhjiöläpiviennin kautta mahdollista liikuttaa kammion sisällä tyhjiötä rikkomatta. Näin näyte voitiin siirtää implantaatiopisteeseen ja sieltä pois tarpeen mukaan. Tyhjiökammion takaseinässä - johon hiukkassuihku osui, jos näyte ei ollut paikalla - oli ohut tyhjiöikkuna, jonka päälle kiinnitimme palan alumiinikalvoa. Ikkunan ulkopuolella ilmanpaineessa oli koaksiaalinen Ge-ilmaisin, joka oli kytketty MCA:han. Tämän avulla voitiin aina ennen näytteen implantoinnin aloittamista tarkistaa ja optimoida analyysimagneetin asetukset.

Näytteitä valmistettiin kahteen eri otteeseen, ensin tammikuun lopulla ja toisen kerran maaliskuun puolivälissä 2006. Implantoinnin tarkemmat tiedot on listattu liitteessä 3 olevaan taulukkoon. Tähän taulukoon on lisäksi merkitty kaikkien tämän työn puitteissa suoritettujen mittausten tiedot. Valmistettuja näytteitä ja niille suoritettuja mittauksia käsitellään kappaleessa 7. Näytteiden valmistuksen jälkeen niitä tutkittiin mittausjärjestelyllä, jota esitellään seuraavassa kappaleessa.

5 Säteilyilmaisimet ja työssä käytetty mittauslaitteisto

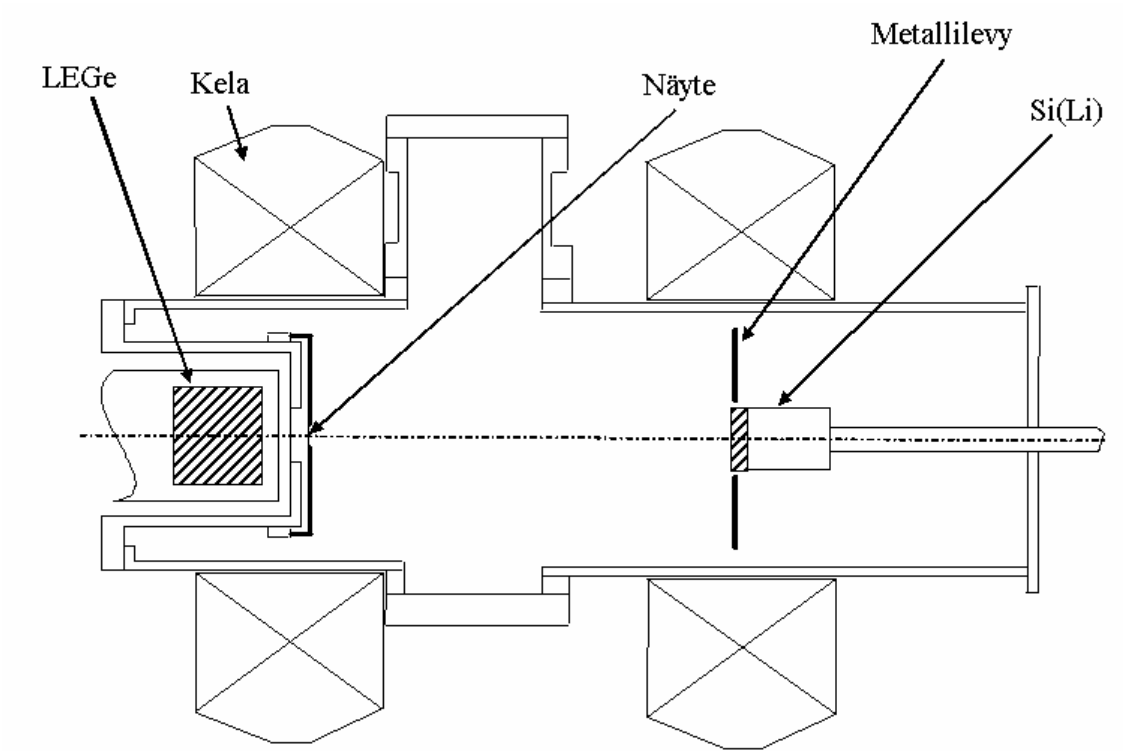
Mittaukset tehtiin käyttäen kahta erillistä ilmaisinta, koska mitattavana oli yhtäaikaisesti sekä konversioelektroneja että gammasäteitä. Käyttämässämme elektroni-gamma -mittausjärjestelyssä elektroneja havaittiin jäähdytetyllä Si(Li)-ilmaisimella ja gammoja mitattiin planaarisella LEGe-ilmaisimella. Si(Li)-ilmaisin oli osa elektronispektrometrilaitteistoa, joka tunnetaan nimellä ELLI. Kuva 5.1 esittelee työssä käytettyä mittauskokoonpanoa. Se rakennettiin JYFL:n kohtiohallin ylätasanteella sijaitsevan laserkopin viereen.



Kuva 5.1 Mittausasetelma, jossa oikealla on ELLI ja vasemmalla LEGe. Kuva poikkeaa lopullisesta asetelmasta LEGe:n osalta. Mittaustilanteessa LEGe sijaitsi matalammalla ja oli osittain työnnetty elektronispektrometrin sisään, kts kuva 5.2.

5.1 ELLI

ELLI (ELectron Lens for Igisol) on nimensä mukaisesti IGISOL-ryhmälle valmistettu elektronispektrometri. Se on rakennettu vuonna 1989 Jyväskylän yliopistossa ja se on ollut käytössä siitä lähtien aina kun tarve on vaatinut. ELLI on alun perin kehitetty sijoitettavaksi IGISOL-linjan jatkoksi, jolloin sillä voi suorittaa on-line mittauksia. ELLI:ä voidaan käyttää myös off-line mittauksissa, kuten tämän työn mittauksissa tehtiin. Keskityn käsittelemään tässä kappaleessa vain käyttämäämme off-line kokoonpanoa ELLI:lle. On-line kokoonpano eroaa joiltakin osin off-line kokoonpanosta ja näistä mahdollisuuksista on kerrottu tarkemmin mm. Juha-Matti Parmosen ja Panu Ruosteen Pro Gradu-töissä [Par90 ja Ruo91]. Kuvassa 5.2 näkyy käyttämämme mittausasetelman läpileikkaus ylhäältä katsottuna.

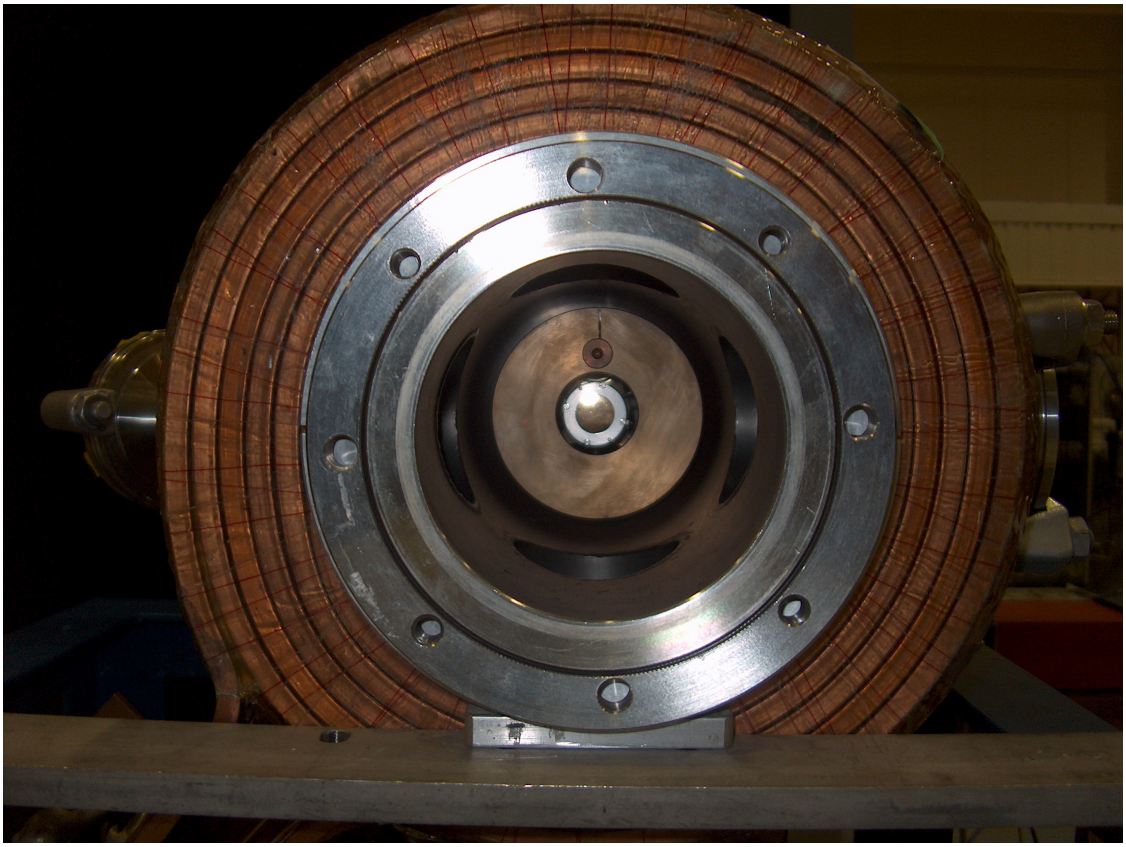


Kuva 5.2 Mittausasetelman läpileikkaus ylhäältäpäin tarkasteltuna [Per07].

ELLI:n elektroni-ilmaisimena toimii piistä valmistettu litiumilla kompensoitu n-i-p diodi. Se on Enertecin valmistama ja se on pääasiallisesti suunniteltu käytettäväksi

konversioelektroni-mittauksissa. Ilmaisimen energia-alue on noin 20 keV:stä 2 MeV:iin [Enert]. Si-ilmaisimen kyky toimia säteilyn havaitsijana perustuu puolijohteen ominaisuuksiin. Yleisesti aineet jaetaan johteisiin, eristeisiin ja puolijohteisiin sen perusteella, kuinka aineen elektronit miehittävät mahdollisia energiatiloja eli vöitä. Puolijohteissa (kuten eristeissäkin) kaikki vyöt ovat joko täysiä tai tyhjiä. Puolijohteissa ylimmän täyden vyön (valenssivyö) ja alimman tyhjän vyön (johtavuusvyö) väliin jää eristeisiin verrattuna pieni kielletty alue eli energia-aukko. Piille energia-aukon suuruus on noin 1,12 eV. Puolijohteeseen osuessaan säteily voi siirtää elektronin valenssivyöltä johtavuusvyölle jättäen jälkeensä aukon. Tällöin syntyy varauksenkuljettajina toimivia elektroni-aukko –pareja [You00].

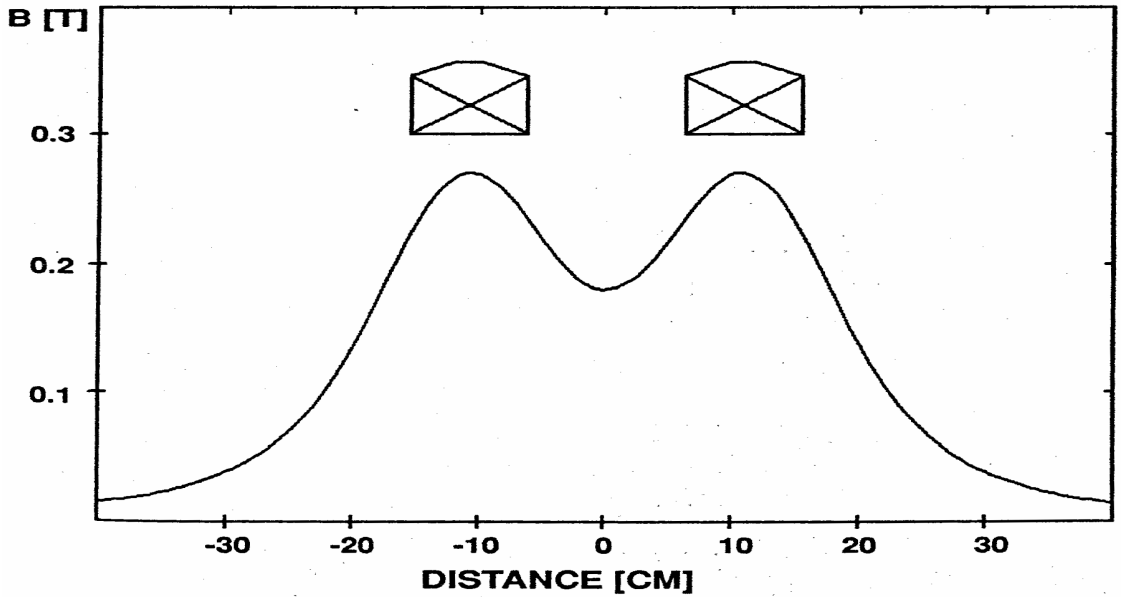
Kiteen p-tyypin kerroksessa on ”ylimääräisiä” aukkoja ja n-tyypin kerroksessa puolestaan ”ylimääräisiä” elektroneja. Konversioelektronit tulevat ilmaisimen p-kontaktipinnalle säteilyä läpäisevän ikkunan läpi. Ikkunana toimii ohut (20-40 $\mu g/cm^2$) kultakerros. Kuva 5.3 on otettu ELLI:n symmetria-akselin suuntaisesti ja kyseinen sisääntuloikkuna näkyy siinä keskellä. Kun kaksi erityyppistä aluetta liitetään toisiinsa, alkavat ”ylimääräiset” elektronit diffuntoitua n-tyypistä p-tyyppiin ja aukot p-tyypistä n-tyyppiin. Toisensa kohtaavat elektroni ja aukko rekombinoituvat, jolloin pn-rajapinnan ympärille syntyy katoalue, jossa on hyvin vähän vapaita varauksenkuljettajia. Kytkemällä tämän yli estosuuntainen jännite, katoaluetta saadaan entisestään laajennettua. Säteilyn osuessa ilmaisimeen syntyy elektroni-aukko –pareja, jotka kerätään talteen ja havaitaan varauspulsseina. Nämä johdetaan esivahvistimelle, joka muokkaa ne jännitemuotoisiksi jatkokäsittelyä varten.



Kuva 5.3 Näkymä ELLI:n sisustasta symmetria-akselin suuntaisesti. Si(Li)-ilmaisimen etuosa näkyy keskellä. Sen ympärillä on jäähdytetty metallilevy, jonka tarkoitus on kerätä kammion sisältä ylimääräiset epäpuhtaudet. Uloimpana näkyy toinen magneettikentän muodostamiseen käytetyistä keloista.

Spektrometriä tulee aina käyttää tyhjiössä nestetypellä jäähdytettynä. Ilmaisimen jäähdytys tapahtuu ELLI:n sivulla olevien kylmäsormien avulla (kts. kuvan 5.1 oikea reuna). Toinen kylmäsormista johtaa Si(Li)-ilmaisimelle ja toinen ilmaisimen ympärillä olevalle pyöreälle metallilevylle. Kuvassa 5.3 voidaan nähdä tämä ilmaisimen etuosan ympärillä oleva levy. Metallilevyn tarkoitus on kerätä ELLI:n sisältä mahdolliset ylimääräiset epäpuhtaudet mm. öljy- ja vesihöyry. Ilman tätä levyä epäpuhtaudet hakeutuisivat ilmaisimen kärkeen ja voisivat käytännössä tehdä sen käyttökelvottomaksi. Metallilevyn jäähdytys on aina tehtävä ennen ilmaisimen jäähdytystä. Mittausten päätyttyä ilmaisimen on annettava lämmetä ensi ja metallilevyn vasta tämän jälkeen.

ELLI:ssä magneettikenttä kuljettaa lähteestä tai näytteestä tulevat elektronit Si(Li)-ilmaisimelle. Magneettikenttä muodostetaan kahdella rinkelinmuotoisella kelalla. Kelat on suunniteltu Jyväskylän yliopiston Fysiikan laitoksella ja ne on valmistettu Scanditronixin toimesta Ruotsissa. Kelat ovat keskenään identtiset ja sijaitsevat noin 20 cm:n päässä toisistaan. Kuvassa 5.4 on esitetty ELLI:n magneettikentän muoto ja voimakkuus symmetria-akselin suunnassa.



Kuva 5.4 ELLI:n magneettikentän muoto ja voimakkuus symmetria-akselilla, kelojen virran ollessa 560 A [Par90].

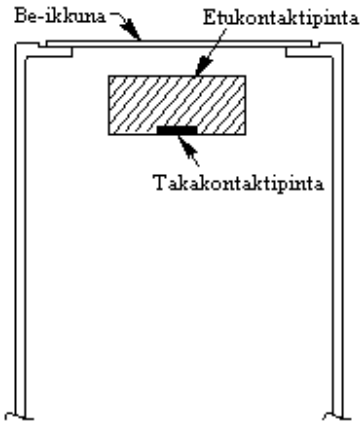
Kelojen virta saatiin Danfysikin valmistamasta virtalähteestä, jonka maksimivirta on 700 A jännitteen ollessa 70 V. Keloissa käytettävä maksimivirta saa kuitenkin olla vain 70 % tästä eli 490 A. Virta on mahdollista asettaa haluttuun kiinteään arvoon tai oskilloimaan kahden valitun virran välille (ns. sweep moodi). Itse jännitelähde sijaitsee JYFL:n kohtiohallin kellarikerroksessa, mutta sitä pystyy etäkäyttämään mittauskokoonpanon luona olevan ohjausyksikön avulla.

Kelojen jäähdytys tapahtuu vedellä siten, että kummassakin kelassa on viisi jäähdytysveden sisäänmenoa ja ulostuloa. Keloissa on lämpötila-anturit, jotka

tarkkailevat jatkuvasti, että kelojen lämpötila ei kohoa liian suureksi. Jos lämpötila ylittää 70˚C, turvajärjestelmä kytkee virran pois päältä.

5.2 Matalan energian Germanium-ilmaisin (LEGe)

Mittauksissa käytetty matalan energian Germanium-ilmaisin (LEGe = Low Energy Germanium Detector) oli Canberran valmistama ja malliltaan GL1010R. Kuvassa 5.5 on tällaisen LEGe-ilmaisimen kaavakuva.



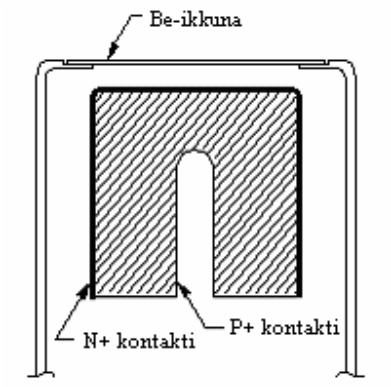
Ilmaisimen alue	1000 mm^2
Ilmaisimen paksuus	15 mm
Be-ikkunan paksuus	0,5 mm (20 mils)
Resoluutio 5,9 keV:ssa (FWHM)	300 eV
Resoluutio 122 keV:ssa (FWHM)	650 eV
Esivahvistin	RC

Kuva 5.5 Mittauksissa käytetyn LEGe-ilmaisimen kaavakuva. Lisäksi valmistajan antamia tietoja ilmaisimesta [Ca07a].

Ge-ilmaisinten toiminta perustuu puolijohteen ominaisuuksiin kuten edellä esitellyn Si(Li)-ilmaisimenkin. LEGe-ilmaisimissa säteilyn sisääntuloikkuna valmistetaan usein berylliumista, näin myös käyttämässämme ilmaisimessa. Joissain tapauksissa sisääntuloikkuna voi olla tehty myös alumiinista. LEGe-ilmaisimissa on hyvin ohut etukontaktipinta. Kuten kuva 5.5 näyttää on käyttämässämme ilmaisimessa pieni takakontaktipinta. Tällä tavalla ilmaisimen kapasitanssi saadaan pienemmäksi, joka edelleen johtaa pienempään kohinaan ja lopulta parempaan energiaresoluutioon. LEGe-ilmaisimet soveltuvat erinomaisesti säteilyn havainnointiin pienillä ja keskisuurilla energioilla. LEGe:n käyttöalue alkaa noin 3 keV:sta ja ulottuu 1-2 MeV:iin [Ca07a].

5.3 Koaksiaalinen Germanium-ilmaisin (HPGe)

Varsinaisen koelaitteiston lisäksi käytimme koaksiaalista HPGe-ilmaisinta näytteiden valmistuksen yhteydessä. Tällä ilmaisimella varmistimme, että mittauspisteeseen saapui aina kulloinkin haluamamme ionisuihku. Kuvassa 5.6 on esitetty tyypillinen koaksiaalisen germanium-ilmaisimen muoto.

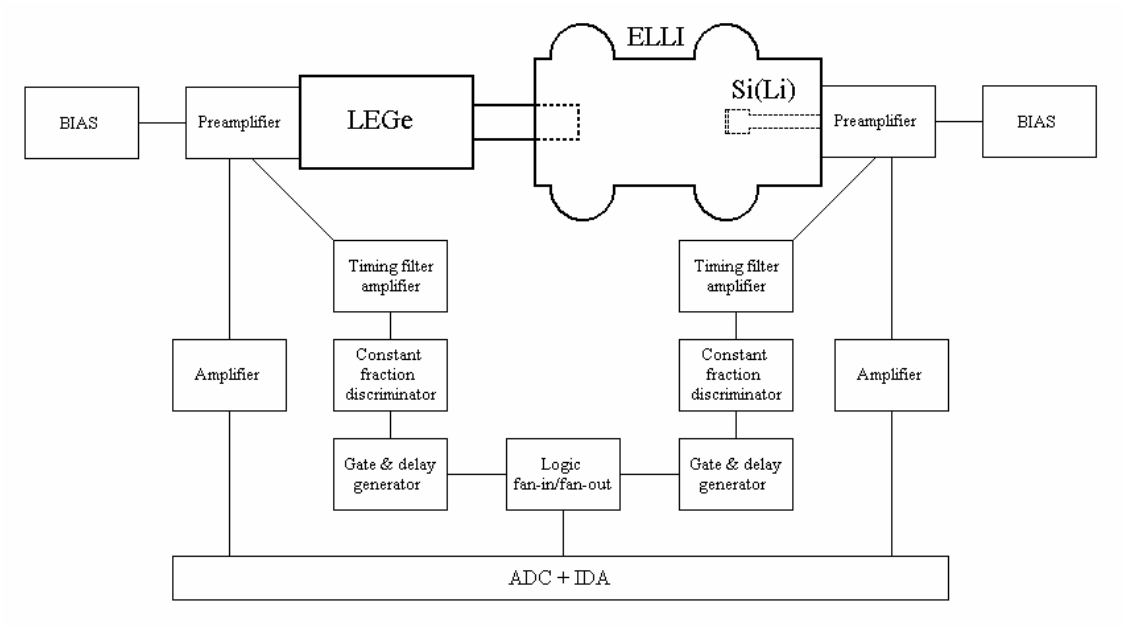


Kuva 5.6 Koaksiaalisen germanium-ilmaisimen kaavakuva [Ca07b].

Ilmaisin on käytännössä germaniumsylinteri, jossa on n-tyypin kontakti ulkopinnalla ja p-tyypin kontakti kiteen sisällä olevassa "kaivossa". Nämä n- ja p-kontaktit eli elektrodit ovat yleensä diffusoitua litiumia ja implantoitua booria. Ulompi n-tyypin litiumkontakti on noin 0,5 mm paksu ja sisempi p-tyypin kontakti noin 0,3 µm. Germaniumin epäpuhtaustaso on luokkaa 10^{10} atomia/cm^2, joten kohtuullisella vastakkaisella bias-jännitteellä koko elektrodien väliin jäävä alue tyhjentyy. Tällöin sähkökenttä ulottuu koko aktiivisen alueen läpi. Fotonien vuorovaikutus tällä alueella tuottaa varauksenkuljettajia, jotka sähkökenttä kuljettaa keräyselektrodeille. Varausherkkä esivahvistin muuttaa ko. varauksen jännitepulssiksi, jonka suuruus on verrannollinen ilmaisimeen jätettyyn energiamäärään. Koaksiaalisen Ge-ilmaisimen käyttöalue on noin 50 keV -10 MeV [Ca07b].

5.4 Mittauselektroniikka ja kokoonpano

Mittauslaitteiston molemmille ilmaisimille tehtiin käytännössä varsin samanlaiset mittauskytkennät. Molempien ilmaisinten bias-jännitteet saatiin Ortecin jännitelähteistä. LEGe:n bias oli suuruudeltaan -2 kV ja Si(Li):n -500 V. Esivahvistimista saadut energiasignaalit johdettiin lineaarivahvistimien läpi. Lineaarivahvistin tuotti analogisia pulsseja, joiden amplitudi oli suoraan verrannollinen fotonin/elektronin ilmaisinkiteelle luovuttamaan energiamäärään. Lineaarivahvistimista energiasignaalit johdettiin analogi-digitaali-muuntimien (ADC) läpi tiedonkeruujärjestelmä IDA:an. Esivahvistimista saadut nopeat aikasignaalit johdettiin kuvassa 5.7 esitetyn kytkennän läpi. Ko. kytkennässä aikasignaalien muotoja muokattiin ja ne yhdistettiin yhdeksi ns. laukaisusignaaliksi, jolla IDA:lle kerrottiin energiasignaalien saapumisesta. Laukaisinkytkentä oli siis ns. looginen OR ilmaisinten välillä.



Kuva 5.7 Mittauselektroniikan lohkokaavio.

Mittausjärjestelyyn tarvittiin ilmaisinten ja elektroniikan lisäksi myös tyhjiötekniikkaa (katso kuva 5.1). Heti ELLI:n alapuolella oli nelihaarainen väliosa, jonka kaksi haaraa oli käytössä ja kaksi suljettu sokkolaipoilla. Toiseen käytössä olleista haaroista oli kytkettynä

Pirani- ja Penning-paineanturit, joka johdettiin Balzersin TPG 300 ohjausyksikköön. Niiden avulla kyettiin seuraamaan kammion sisällä vallitsevia olosuhteita. Toiseen käytössä olleista haaroista oli kytkettynä ilmausventtiili. Haaroitinkappaleen alapuolelle asennettiin paineilmalla toimiva porttiventtiili. Tällä venttiilillä kammio kyettiin tarvittaessa eristämään tyhjiön pumppaamiseen käytetyistä pumpuista. Tyhjiö luotiin porttiventtiilin alapuolelle asennetulla Turbovac 360- turbopumpulla ja sen kanssa sarjassa olleella Pfeiffer Vacuumin valmistamalla DUO 10- esipumpulla.

6 Energia- ja tehokkuuskalibraatio

Varsinaisen mittauslaitteiston molemmille ilmaisimille tehtiin sekä energia- että suhteellinen tehokkuuskalibraatio käyttäen ^{133}Ba-lähdettä. Energiakalibraatiot tehtiin erikseen tammikuun ja maaliskuun mittausjaksoille, koska ilmaisinten elektroniikan asetuksia (vahvistuksia) muutettiin näiden kahden ajankohdan välillä. Koska molempien mittausjaksojen yksittäisten mittausten juokseva numerointi alkaa ykkösestä, olen merkinnyt ensimmäisen mittajakson ajot RUN01a, RUN02a, RUN03a jne. ja toisen mittajakson RUN01b, RUN02b, RUN03b jne.

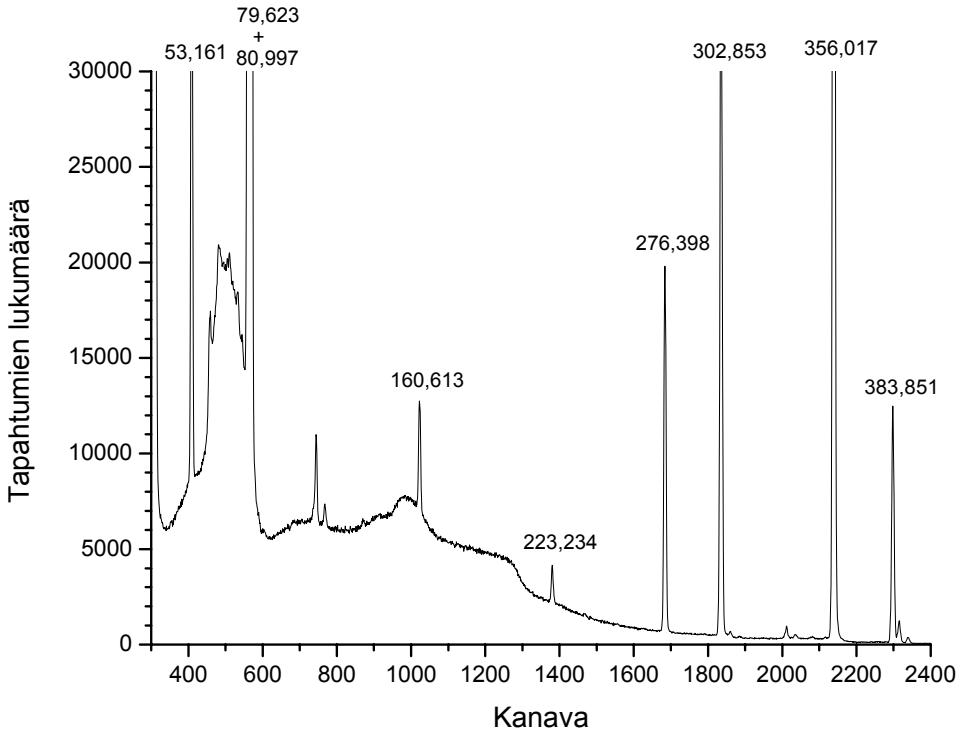
6.1 Energiakalibraatiot

LEGe-ilmaisimen energiakalibraatiot tehtiin tammikuun mittajaksolle kahta (RUN23a ja 24a) ja maaliskuun mittajaksolle neljää (RUN02b, 20b, 22b ja 25b) mittausta käyttäen. Tammikuun mittaukset yhdistettiin ja summaspektristä määritettiin ^{133}Ba:lle kuuluvien gammapiikkien painopisteet. Maaliskuun mittaukset puolestaan analysoitiin erikseen ja tulokset yhdistettiin jälkikäteen. Painopisteet yhdistettiin ottamalla keskiarvo kullekin fotopiikille saaduista neljästä eri arvosta. Gammapiikkien gaussiset sovitukset tehtiin Origin-ohjelmalla. Taulukossa 6.1 näkyy ^{133}Ba:n gammaenergiat ja niiden suhteelliset intensiteetit [Trz90]. Lisäksi taulukossa on kunkin piikin energiaa vastaavat kanavaluvut sekä tammi- että maaliskuun mittajaksoille.

Taulukko 6.1 ^{133}Ba:n fotopiikkien energiat ja suhteelliset intensiteetit [Trz90] sekä niitä vastaavat kanavaluvut LEGe-ilmaisimen energiakalibraatiossa.

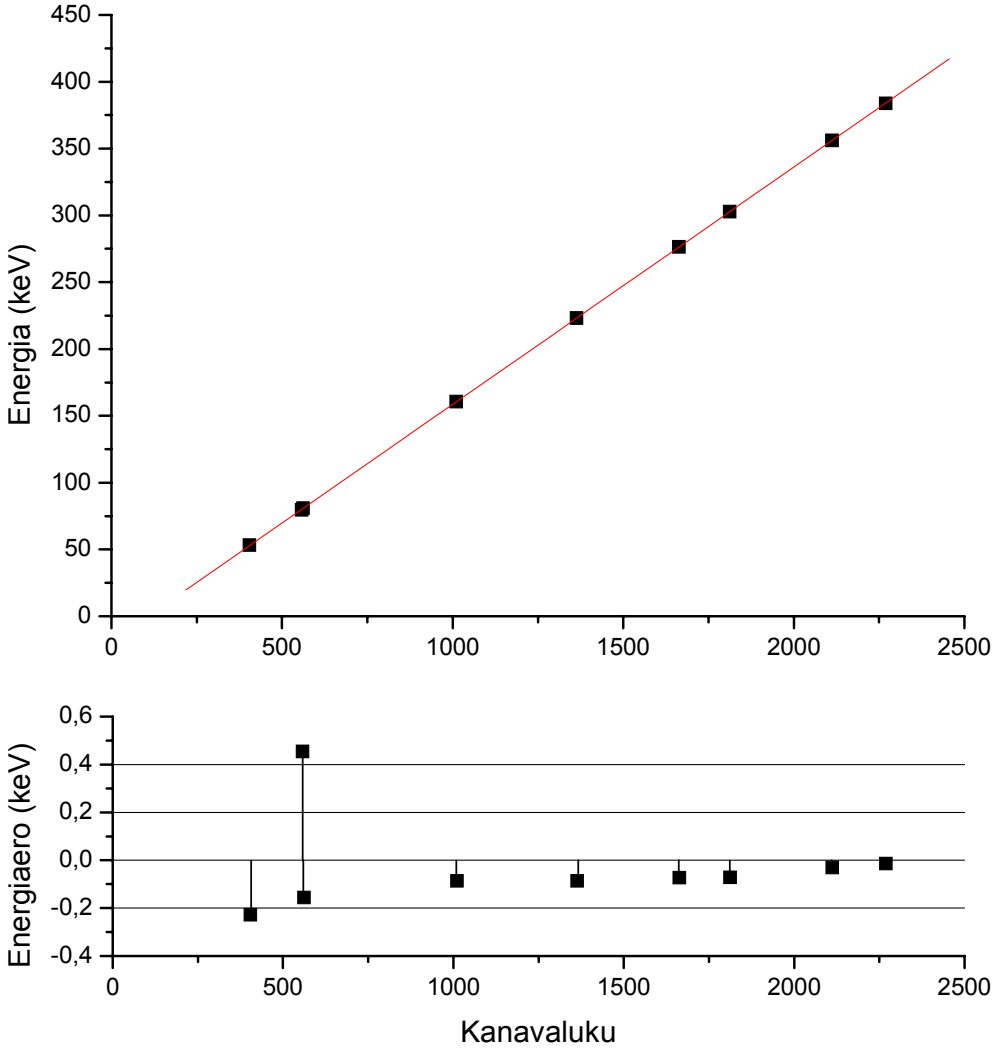
E_{gamma} [keV]	I_{gamma}	Kanavaluku (tammi)	Kanavaluku (maalis)
53,161	21,99 ± 0,22	404,77 ± 0,02	408,95 ± 0,15
79,623	26,2 ± 0,6	557,7 ± 0,7	560,16 ± 0,12
80,997	340,6 ± 2,7	562,00 ± 0,02	568,02 ± 0,11
160,613	6,45 ± 0,08	1010,93 ± 0,13	1022,6 ± 0,3
223,234	4,50 ± 0,04	1363,73 ± 0,11	1380,0 ± 0,5
276,398	71,64 ± 0,22	1663,317 ± 0,006	1683,4 ± 0,7
302,853	183,3 ± 0,6	1812,367 ± 0,007	1834,4 ± 0,8
356,017	620,5 ± 1,9	2112,120 ± 0,008	2138,0 ± 1,0
383,851	89,4 ± 0,3	2269,02 ± 0,01	2297,0 ± 1,1

Kuvassa 6.1 on esitetty esimerkkinä RUN02b:n liittyvä gammaspektri. Spektriin on merkitty kalibraatiossa käytetyt ^{133}Ba:lle kuuluvat gammapiikit.



Kuva 6.1 ^{133}Ba-lähteellä mitattu gammaspektri (RUN02b). Kuvaan on merkitty ^{133}Ba:n fotopiikit.

Kummankin mittajakson kanavalukujen ja gammaenergioiden muodostamat pisteparit syötettiin Originiin ja niihin sovitettiin suora. Näin saatiin energiakalibraatiot muodossa Energia(keV) = a*kanavaluku - b. Kuvassa 6.2 on esitetty LEGe-ilmaisimen energiakalibraatio maaliskuun mittajaksolle.



Kuva 6.2 LEGe-ilmaisimen energiakalibraatio maaliskuun mittajaksolle sekä pisteiden poikkeamat sovituskäyrästä.

LEGe:n energiakalibraatioksi saatiin:

Energia (keV) = 0,17752 (± 1,03455E-4) * kanavaluku - 18,91371 (± 0,15163)

(tammikuun mittaus)

Energia (keV) = 0,17517 ± (7,72707E-6) * kanavaluku - 18,49311 (± 0,01146)

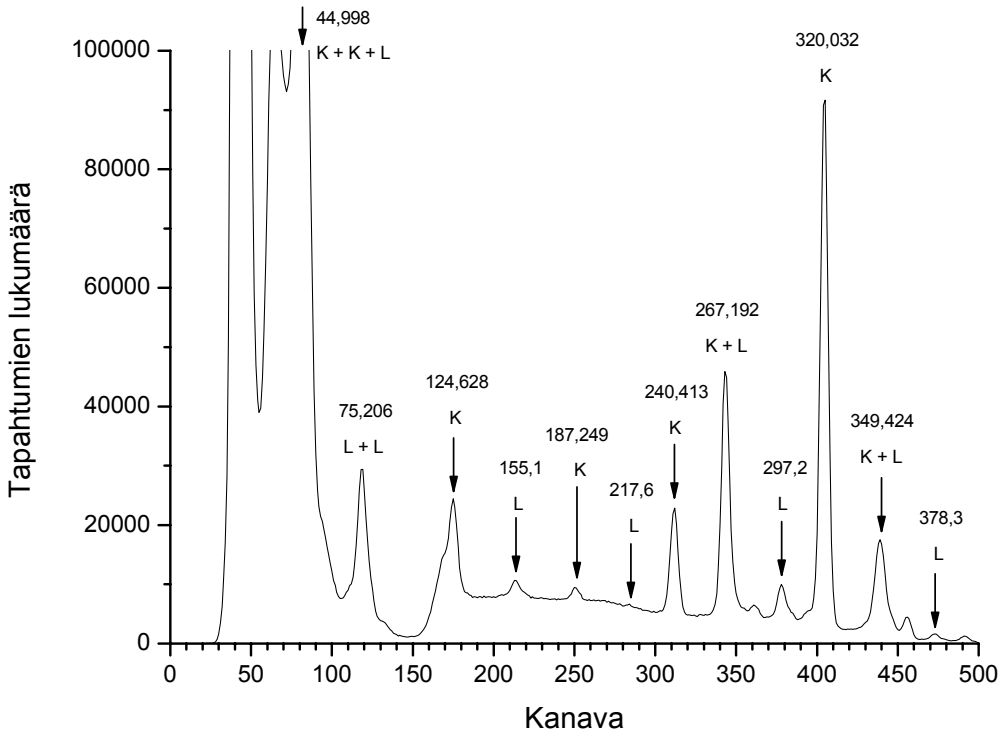
(maaliskuun mittaus)

Pii-ilmaisimen energiakalibraatiot tehtiin samalla tavoin kuin LEGe:n kuitenkin sillä erotuksella, että RUN20b jätettiin käyttämättä. Tämä sen vuoksi, että RUN20b oli mittaus, jossa Si(Li)-ilmaisin ei ollut käyttökunnossa. Elektronispektreistä sovitettiin kaikki ^{133}Ba:lle kuuluvat piikit, jotka vain selvästi erottuivat taustasta. Osa kiinnostavista siirtymistä oli energiassa niin lähellä toisiaan, että spektreissä niihin liittyvät piikit olivat kuroutuneet yhteen. Nämä tapaukset käsiteltiin yhtenä piikkinä, jonka energia määräytyi siirtymien intensiteettien mukaan. Elektronisiirtymien energiat esitetään taulukossa 6.2. Originilla ei kyetty sovittamaan aivan kaikkia käytössä olleita elektronipiikkejä. Tämä johtui pääasiassa ko. piikkien pienestä statistiikasta. Näissä tapauksissa piikin painopiste arvioitiin manuaalisesti.

Taulukko 6.2 Käytettyjen ^{133}Ba elektronipiikkien energiat, suhteelliset intensiteetit ja siirtymien kuoret [Trz90] sekä kanavalukujen arvot. Sellaiset elektronipiikit, jotka olivat spektreissä summautuneet yhteen, on taulukoon laskettu yhdeksi piikiksi.

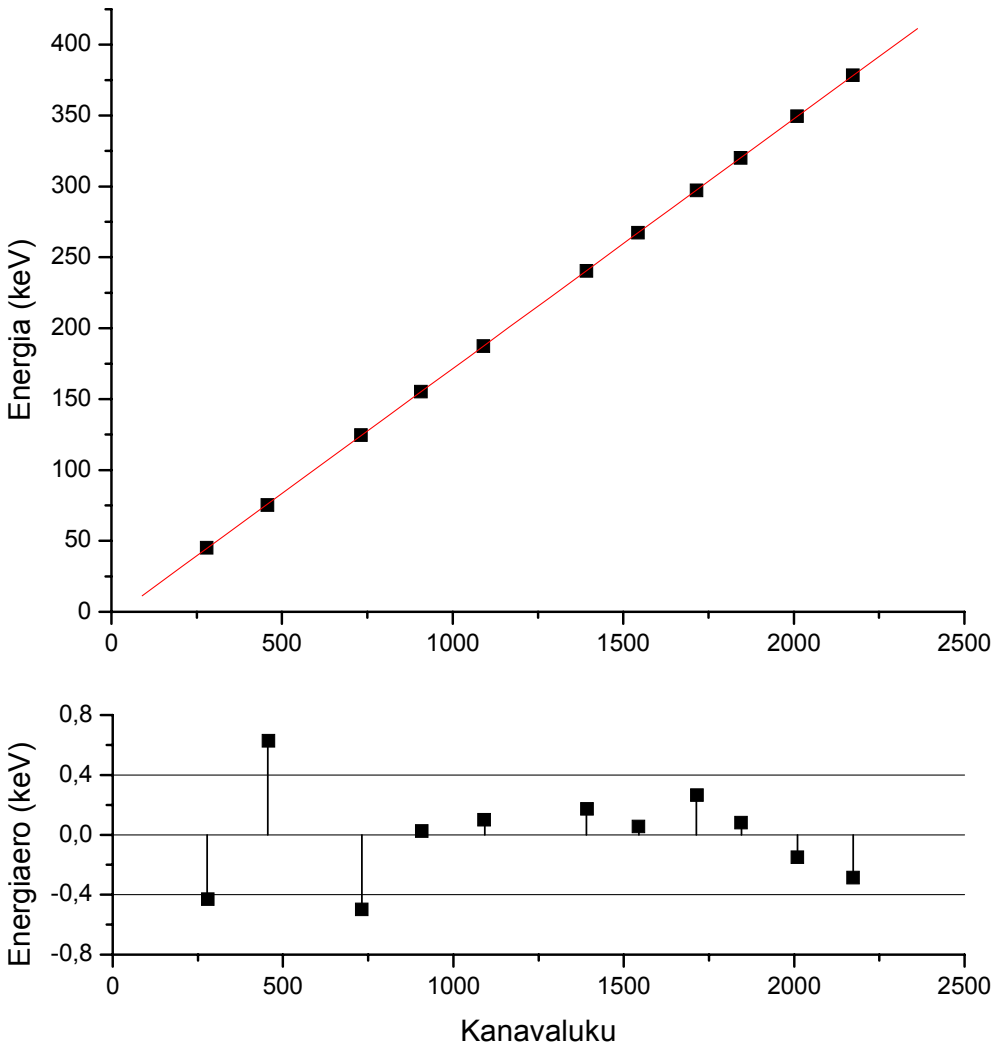
E_{el} [keV]	I_{expe}	Kuori	Kanavaluku (tammi)	Kanavaluku (maalis)
17,176	109,0 ± 21,0	K	-	-
44,998	-	K +K + L	-	279,2 ± 0,4
75,206	71,56 ± 1,83	L + L	-	456,740 ± 0,2
124,628	1,427 ± 0,027	K	175 ± 0,5	731 ± 3
155,1	0,278 ± 0,015	L	213,64 ± 0,15	907 ± 3
187,249	0,324 ± 0,010	K	250,6 ± 0,1	1090 ± 3
217,6	0,041 ± 0,006	L	284 ± 1	-
240,413	3,28 ± 0,35	K	311,63 ± 0,03	1392,3 ± 0,1
267,192	7,50 ± 0,76	K + L	343,35 ± 0,03	1543,7 ± 0,2
297,2	1,00 ± 0,13	L	378,0 ± 0,5	1715,3 ± 0,3
320,032	13,08 ±	K	404,50 ± 0,02	1843,91 ± 0,07
349,424	3,66 ± 0,29	K + L	439,02 ± 0,05	2009,5 ± 0,2
378,3	0,255 ± 0,034	L	472,73 ± 0,06	2172,7 ± 1,5

Kuvassa 6.3 on tammikuun testimittausten aikaan ^{133}Ba-lähteellä tehtyjen kahden mitta-ajon (RUN23a ja 24a) summattu elektronispektri. Kuvaan on merkitty ^{133}Ba:lle kuuluvat elektronipiikit, joista suurinta osaa käytettiin kalibraatioissa.



Kuva 6.3 Tammikuun testimittausten yhteydessä ^{133}Ba-lähteellä mitattu elektronispektri. Spektriin on summattu molemmat tällöin tehdyt mittaukset (RUN23a ja 24a). Lisäksi siihen on merkitty ^{133}Ba:lle kuuluvien elektronipiikkien energiat ja siirtymiin liittyvät elektronikuoret.

Pisteparit syötettiin Originiin ja niihin sovitettiin suorat. Maaliskuun mittaukseen liittyvä energiakalibraatio on esitetty kuvassa 6.4.



Kuva 6.4 Si(Li)-ilmaisimen energiakalibraatio maaliskuun mittausjaksolle sekä pisteiden poikkeamat sovituskäyrästä.

Si(Li):n energiakalibraatioksi saatiin:

Energia (keV) = 0,85618 (± 0,00271) * kanavaluku - 26,46727 (± 0,92217)

(tammikuun mittaus)

Energia (keV) = 0,1761 (± 1,69262E-4) * kanavaluku - 4,59871 (± 0,24075)

(maaliskuun mittaus)

Seuraavissa kappaleissa esitetyissä spektreissä, joissa on X-akselilla kanavaluvun sijasta energia, on käytetty näitä energiakalibraatioita. Tammikuun mittauksissa oli havaittavissa

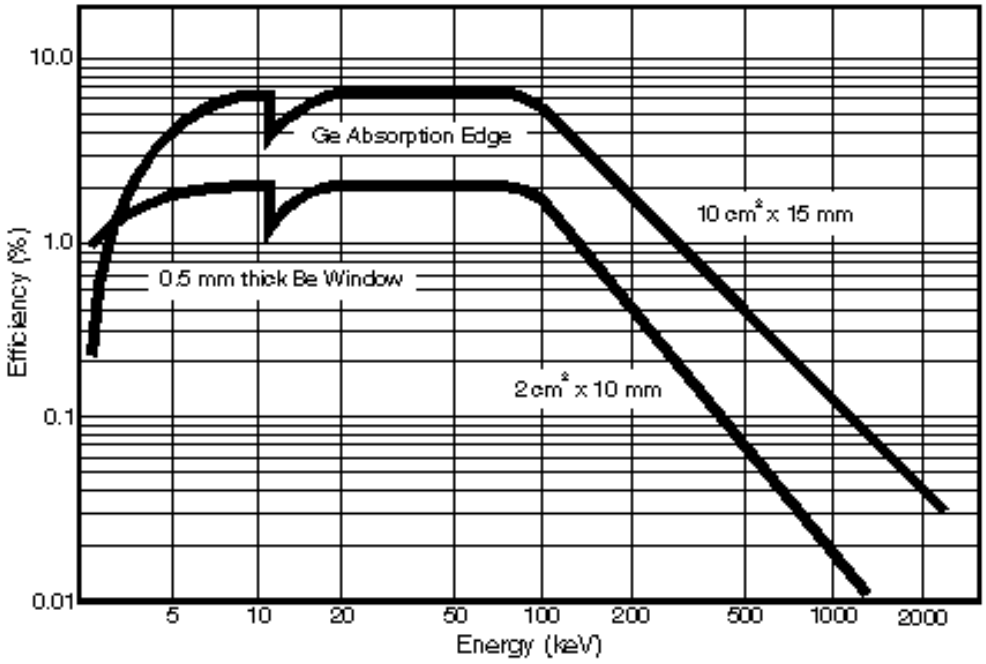
pientä vahvistuksen vaeltamista sekä gamma- että elektroni-ilmaisimissa. Tämä näkyi spektreissä siten, että tietyn energinen foto/elektronipiikki siirtyi energiassa joko ylös- tai alaspäin ja spektreissä saattoi näkyä ns. tuplapiikkejä, jotka siis kuitenkin kuuluivat samaan hajoamiseen. ^{133}Ba-kalibraatiot suoritettiin tammikuun mittausten lopuksi. Vahvistuksen vaeltamisen vuoksi energiakalibraatio ei ole paras mahdollinen kaikille mittauksille eli joissain tuolloin mitatuista spektreissä foto- ja elektronipiikit saatavat olla energialtaan muutaman keV:n verran sivussa. Ilmiö oli havaittavissa vain tammikuun testimittausjaksolla, eikä siitä ollut haittaa varsinaisten koemittausten aikana maaliskuussa.

6.2 Tehokkuuskalibraatiot

LEGe- ja Si(Li)-ilmaisimien tehokkuuskalibraatiot tehtiin samaa ^{133}Ba-aineistoa käyttäen kuin edellä esitellyt energiakalibraatiotkin. Tässä tutkimuksessa ilmaisimille ei tarvinnut tehdä absoluuttisia tehokkuuskalibraatiota.

6.2.1 LEGe-ilmaisimen tehokkuuskalibraatio

LEGe-ilmaisinten tyypillisesti kattama energia alue alkaa noin kolmesta keV:sta ja ulottuu yhden MeV:n tietämille. Kuvassa 6.5 näkyy LEGe-ilmaisimille tyypillisiä tehokkuuskäyriä [Ca07a]. Kuvassa esitetyistä kahdesta tehokkuuskäyrästä ylempi (10 cm^2 x 15 mm) kuluu käyttämämme kaltaiselle ilmaisimelle.

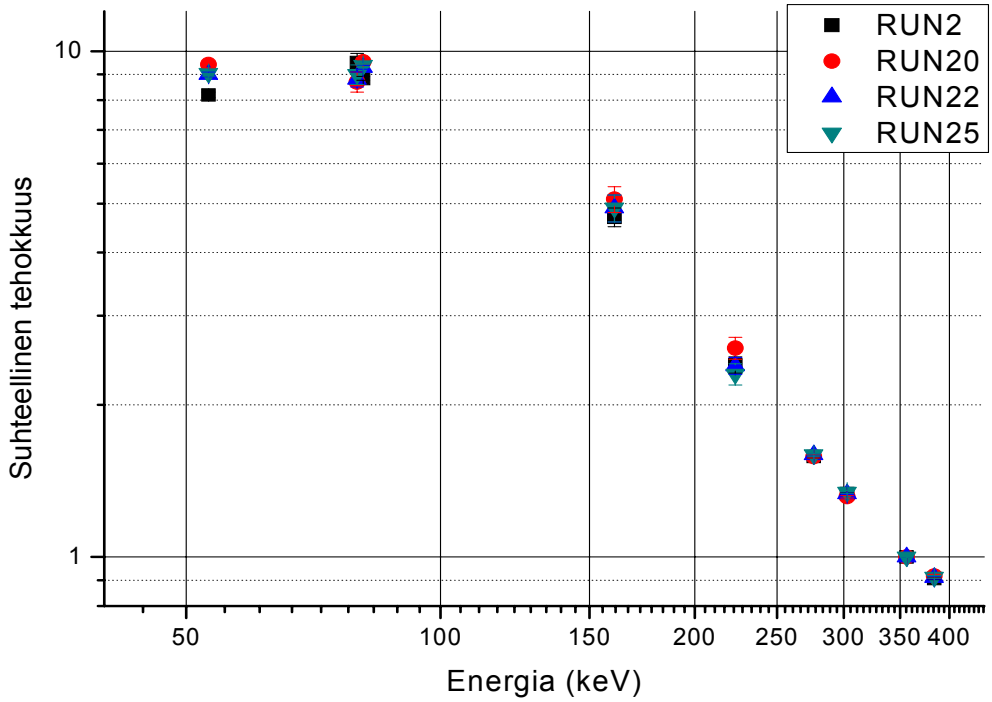


Kuva 6.5 LEGe-ilmaisimelle tyypillinen absoluuttinen tehokkuuskäyrä, kun lähteen ja ilmaisimen välinen etäisyys on 2,5 cm [Ca07a].

LEGe-ilmaisimen suhteellinen tehokkuuskalibraatio tehtiin käyttäen maaliskuun neljää ^{133}Ba mittausta. Ensimmäinen näistä kalibraatiomittauksista suoritettiin ennen implantaatioiden aloittamista ja kolme muuta varsinaisten näytemittausten jälkeen. Ensimmäisessä mittauksessa (RUN02b) ^{133}Ba-lähde oli kiinni näytteenpidikkeessä, jossa oli keskellä halkaisijaltaan viisi millimetriä oleva reikä. Tämä reikä oli samansuuruinen kuin implantoinnissa käytettyjen näytteenpidikkeen edessä olleiden kollimaattoreiden. Kuvassa 4.3 esiteltiin eri näytteenpidikkeet sekä implantoinnissa käytettyjä kollimaattoreita. Toisessa kalibraatiomittauksessa (RUN20b) Si(Li)-ilmaisin ei ollut käytössä. Tässä mittauksessa ^{133}Ba-lähde käännettiin kohti LEGe-ilmaisinta eli tällöin tarkasteltiin mitä vaikutusta on lähteen kääntämisellä. Tämä oli kiinnostavaa sen vuoksi, että ^{133}Ba oli implantoitu alumiinilastun pinnalle ja täten oli mahdollista, että osa matalaenergisistä fotoneista absorboituu alumiiniin. Kolmas mittaus (RUN22b) suoritettiin näytteenpidikkeellä, jonka keskellä olevan reiän halkaisija oli 16 mm, katso kuva 4.3. Tällöin tutkittiin sitä, modifioiko pienempireikäinen näytteenpidike mittausten

RUN02b ja 20b gammaintensiteettejä. Viimeisin kalibraatiomittaus (RUN25b) tehtiin aiempaa matalampaa CFD-kynnystä käyttäen.

Kaikista neljästä spektristä määritettiin ^{133}Ba:lle kuuluvien fotopiikkien pinta-alat, Gaussisella sovituksella Origin-ohjelmaa käyttäen. Fotopiikkien pinta-alojen ja kunkin siirtymän suhteellisen intensiteetin avulla kyettiin laskemaan suhteellinen tehokkuus kullekin siirtymälle. Virheet laskettiin käyttämällä virheen etenemislakia [Tay97]. Lisäksi tehokkuudet normitettiin keskenään siten, että intensiteetiltään suurimman piikin eli 356,017 keV:n piikin tehokkuus sai aina arvon yksi. Saadut pistejoukot kullekin eri mittaukselle esitellään kuvassa 6.6. Kuvasta voidaan nähdä helposti se, että kovin suuria eroja ei eri olosuhteissa suoritetuissa kalibraatiomittauksissa ole. Lisäksi pistejoukot noudattavat melko hyvin myös kuvassa 6.5 esiteltyä tyypillistä tehokkuuskäyrän muotoa ko. ilmaisimelle.



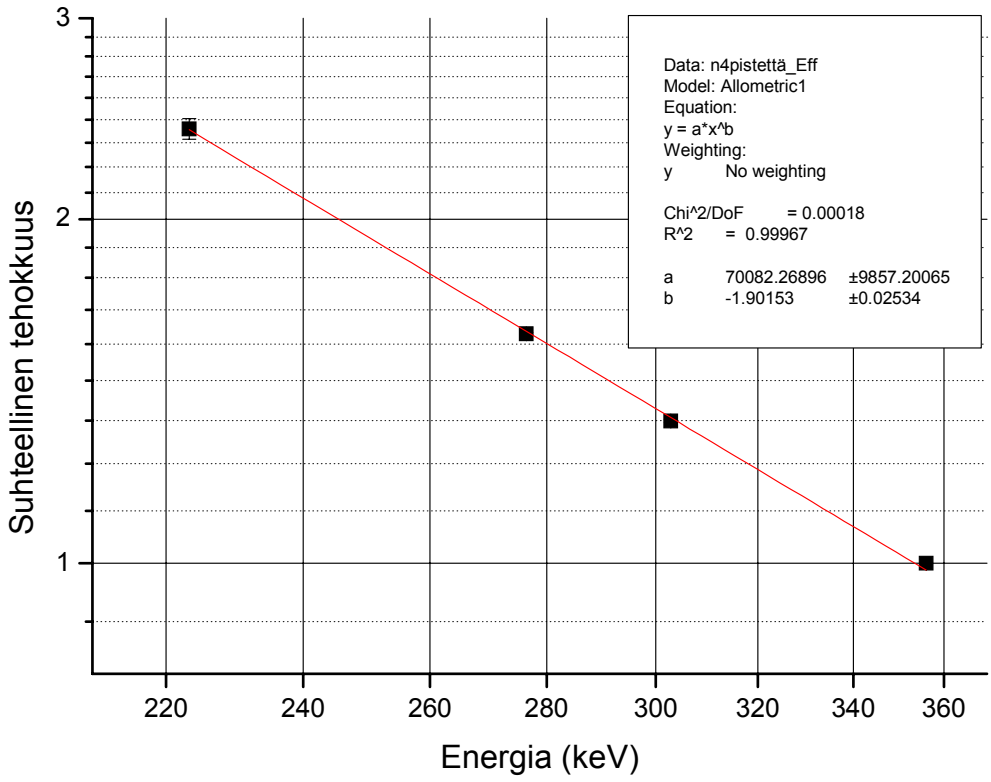
Kuva 6.6 LEGe-ilmaisimen suhteellisen tehokkuuskalibraation pistejoukot neljälle eri mittaukselle.

Näiden neljän eri mittauksen aineistot yhdistettiin, ottamalla kunkin fotopiikin tehokkuudelle virheen käänteisarvolla painotettu keskiarvo. Koska kiinnostuksen kohteina olevien nuklidien eli ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n fotopiikit sijaitsivat energioiltaan vajaan 100 keV:n päässä toisistaan, ei lopulliseen tehokkuuskalibraatioon tarvinnut sisällyttää kaikkia ^{133}Ba:n siirtymiä. ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n fotopiikit (233 keV ja 305 keV) sijaitsivat tehokkuuskäyrän laskevalla, mutta samalla myös helposti ennustettavalla osalla. Taulukkoon 6.3 on koottu lopulliseen ^{133}Ba-tehokkuuskalibraatioon käytettyjen pisteiden gammaenergiat, niiden intensiteetit ja saadut suhteelliset tehokkuudet. Taulukoon on myös lisätty ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n gammaenergiat ”oikeille” paikoilleen.

Taulukko 6.3 ^{133}Ba:n fotopiikkien energiat, intensiteetit ja saadut suhteelliset tehokkuudet. 356 keV:n piikin tehokkuus on määrätty ykköseksi ja muut tehokkuudet on normitettu sen mukaan. Lisäksi taulukkoon on sijoitettu ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n fotopiikkien energiat.

Nuklidi	E_{gamma} [keV]	I_{gamma}	Suht. tehokkuus
^{133}Ba	223,234	4,50 ± 0,04	2,40 ± 0,05
^{133m}Xe	233,221	-	
^{133}Ba	276,398	71,64 ± 0,22	1,588 ± 0,004
^{133}Ba	302,853	183,3 ± 0,6	1,332 ± 0,003
^{85m}Kr	304,87	-	
^{133}Ba	356,017	620,5 ± 1,9	1

Tehokkuuspisteiden karsimisen jälkeen jäljelle jäi siis ainoastaan neljän ^{133}Ba:n fotopiikin muodostama joukko. Tähän joukkoon sovitettiin Originilla muotoa $y = ax^b$ oleva käyrä. Tehty sovitus esitetään kuvassa 6.7.

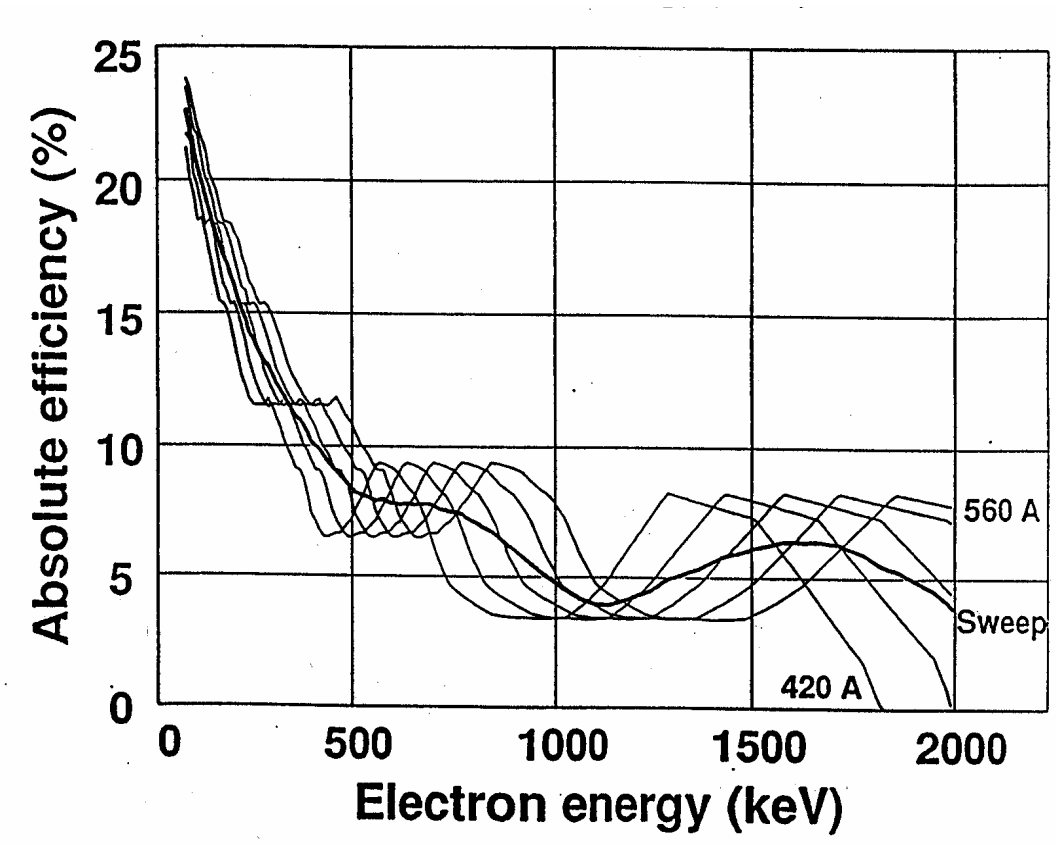


Kuva 6.7 LEGe-ilmaisimen suhteellinen tehokkuuskalibraatio kiinnostuksen kohteena olevalla energia-alueella.

Sovituksen antamat arvot vakioille a ja b ovat: a = 70 082 ± 9 857 ja b = -1,90153 ± 0,02534. Kalibraation virhettä arvioitiin ottamalla kalibraatiokäyrältä eniten poikkeava piste (356 keV) ja laskemalla sen sekä käyrän antaman tehokkuuden arvon prosentuaalinen ero. Näin tekemällä virheeksi tulee 2 %.

6.2.2 Si(Li)-ilmaisimen tehokkuuskalibraatio

Si(Li)-ilmaisimen suhteellinen tehokkuuskalibraatio tehtiin hieman eri tavalla kuin LEGe-ilmaisimen. ELLI:iin liittyvissä aiemmissa tutkimuksissa on Si(Li)-ilmaisimen tehokkuutta tutkittu varsin yksityiskohtaisesti. Lähteissä [Par91], [Par90], [Ruo91] ja [Oin93] on käsitelty kuinka teoreettisesti voidaan laskea ELLI:n absoluuttinen havaitsemistehokkuus energian funktiona. Eri lähteissä esitetyt tehokkuuskäyrät ovat pääpiirteittäin samanmuotoisia, mutta tarkemmin katsottaessa löytyy niistä myös pieniä eroavaisuuksiakin. Tässä työssä käytettiin hyväksi lähteessä [Par91] esitettyä tehokkuuskäyrää, katso myös kuva 6.8. Siinä näkyy ELLI:n absoluuttinen tehokkuus elektronien energian funktiona erisuuruisilla kiinteillä käyttövirran arvoilla sekä sweep-moodissa.

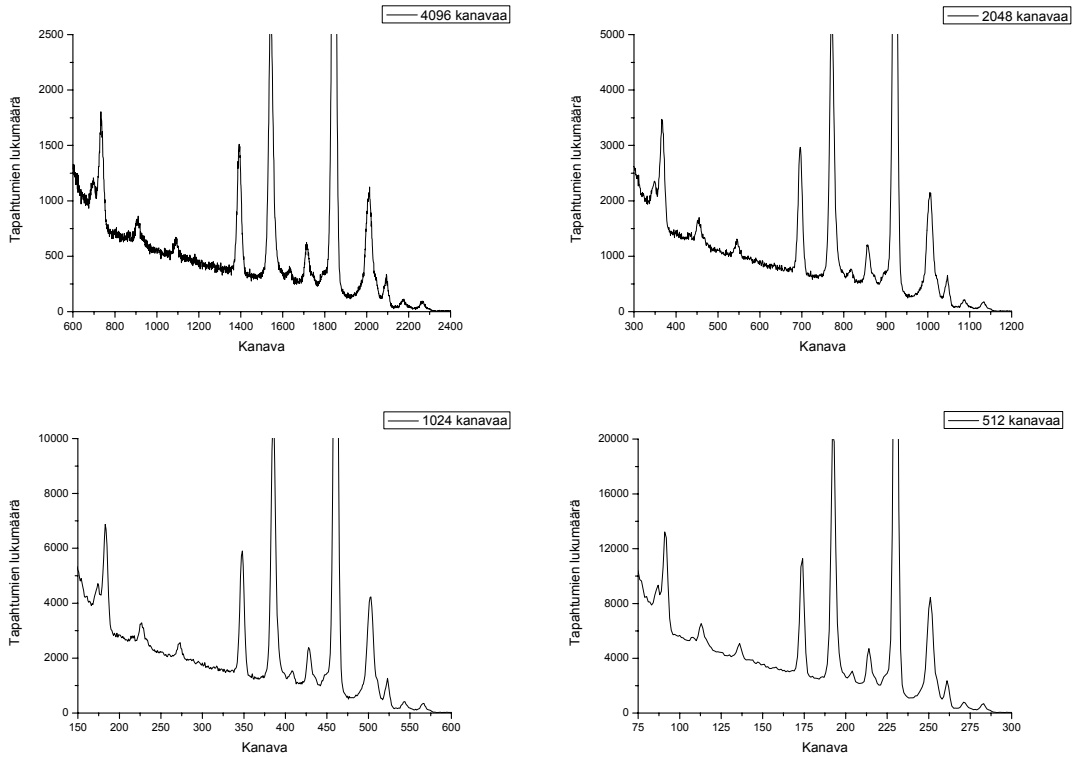


Kuva 6.8 ELLI:n absoluuttinen tehokkuus elektronien energian funktiona [Par91].

Kokeissa käyttämämme virran arvo oli 60 % eli 420 A. Tämän työn kannalta mielenkiintoisella energia-alueella eli noin 0-500 keV 60 % käyrä näkyy kuvassa 6.8 alimmaisena. Kuva 6.8 purettiin numeeriseen muotoon xyExtract-ohjelman avulla.

Si(Li)-ilmaisimen energiaresoluutio oli tammikuun testimittauksessa jonkin verran parempi kuin varsinaisen kokeen aikana. Osittain tästä syystä ja koska mittausgeometriat olivat identtisiä, myös tammikuun mittauksia käytettiin suhteellisessa tehokkuuskalibraatiossa. Eli tehokkuuskalibraation tekoon käytettiin kahta testimittauksen yhteydessä kerättyä ^{133}Ba-spektriä (RUN23a ja 24a) ja kahta varsinaisen kokeen yhteydessä mitattua ^{133}Ba-spektriä (RUN01b ja RUN02b). LEGe:n kalibraatioissa käytettyjä spektrejä (RUN22b ja RUN25b), joissa oli isompireikäinen näytteenpidike, ei käytetty Si(Li):n kalibroimiseen. Eli ^{133}Ba-mittaukset joissa Si(Li):n näkemää lähdettä ei ollut kollimoitu, ei myöskään käytetty lopullisissa kalibraatiossa.

Koska varsinaisen mittauksen aikana Si(Li):n resoluutio ei ollut optimaalinen, kokeilimme myös sitä, miten RUNien 01b ja 02b spektrit käyttäytyvät, jos niitä kompressoidaan eli muuntuvatko heikot siirtymät helpommin tutkittaviksi vai eivät? Kuvassa 6.9 esitetään alkuperäinen 4096 kanavasta koostuva spektri ja kun se on kompressoitu 2048, 1024 ja 512 kanavaan.



Kuva 6.9 ^{133}Ba-lähteellä mitattu alkuperäinen spektri ja siitä tiivistämällä johdetut spektrit. Alkuperäinen spektri muodostettiin summaamalla RUNien 01b ja 02b aineisto.

Kuten olettaa saattaa ja kuvasta 6.9 näkyy, tiivistäminen ei muuta spektrin muotoa. Kompressointi kuitenkin selkiyttää erityisesti heikkojen elektronipiikkien ääriviivoja. Analyysissä käytettiin 1024 kanavaan tiivistettyä spektriä. (Tehokkuuskalibraatioon käytetty testimittauksen ^{133}Ba-spektri (RUN23a-24a) esitettiin jo aiemmin kuvassa 6.3.)

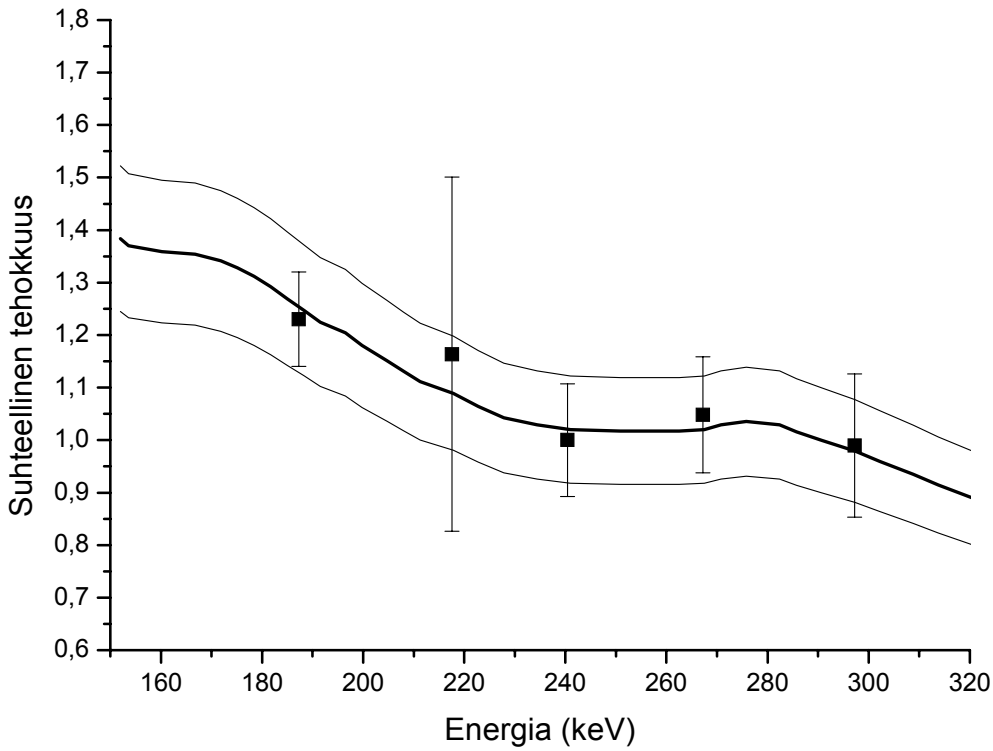
Si-ilmaisimen suhteelliseen tehokkuuskalibraatioon käytetyistä spektreistä määritettiin tämän tutkimuksen kannalta mielenkiintoisella energia-alueella olevien piikkien pinta-alat. Koska kiinnostavat elektronipiikit sijaitsivat vaihtelevassa taustassa ja osa niistä oli päällekkäin toisten kanssa, määritettiin kunkin piikin pinta-ala lopulta menetelmällä, jonka katsottiin olevan sopivin ko. tarkoitukseen. Käytettyjä menetelmiä olivat: 1) gauss-sovitus, 2) summaus ja tämän jälkeen suorittava taustan vähennys sekä 3) piikin alueen taustakäyrän määritys ja vähennys sekä tämän jälkeen jäljellä olevien tapahtumien summaus. Pinta-alamääritykset tehtiin kaikille piikeille useilla eri menetelmillä ja näin

saatiin lisätietoa pinta-alamääritysten luotettavuudesta ja stabiiliudesta. 217,6 keV piikin pinta-ala määritettiin vain testimittauksen (RUN23a-24a) spektristä, koska huonomman resoluution omaavasta RUN01b-02b spektristä se ei kylliksi erottunut taustasta. Kalibraatioaineistot yhdistettiin normittamalla 240,413 keV:n piikit ensin arvoon yksi ja sen jälkeen keskiarvoistamalla muut mittauspisteet. Taulukossa 6.4 listataan työssä käytetyt siirtymät ja niille saadut suhteelliset tehokkuudet. Siirtymien intensiteetit ja energiat on otettu lähteestä [Trz90]. Taulukkoon on lisätty myös konversiokerrointa määritettäessä tarvitut ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n piikkien energiat.

Taulukko 6.4 Tarvittavien ^{133}Ba elektronipiikkien energiat, intensiteetit [Trz90] ja suhteelliset tehokkuudet sekä ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n piikkien energiat.

Nuklidi	E_{el} [keV]	Kuori	I_{expe}	Suht. tehokkuus
^{133}Ba	187,249	K	0,324 ± 0,010	1,23 ± 0,10
^{133m}Xe	198,660	K	-	-
^{133}Ba	217,6	L	0,041 ± 0,006	1,2 ± 0,4
^{133m}Xe	227,768	L	-	-
^{133}Ba	240,413	K	3,28 ± 0,35	1,00 ± 0,11
^{133}Ba	267,192	K + L	7,50 ± 0,76	1,05 ± 0,11
^{85m}Kr	290,54	K	-	-
^{133}Ba	297,2	L	1,00 ± 0,13	0,99 ± 0,14

Taulukon 6.4 suhteellisen tehokkuuden pistejoukkoon sovitettiin lähteen [Par91] mukaan saatu teoreettinen tehokkuuskäyrä. 217,6 keV siirtymään liittyvä virhe on suuri sen marginaalisen statistiikan vuoksi. Tästä johtuen suhteellisen tehokkuuskäyrän epävarmuutta arvioitaessa ko. pisteelle ei annettu juurikaan painoarvoa. Tehokkuuskäyrän epävarmuudeksi arvioidaan 10 %. Tämä siksi, että muut siirtymät paitsi 217,6 keV sopivat virherajoineen kohtalaisen hyvin 10 % epävarmuusikkunaan, katso kuva 6.10.



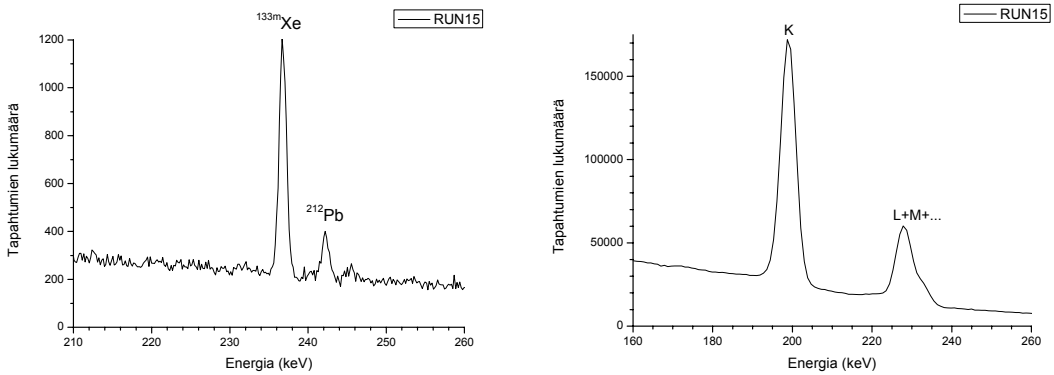
Kuva 6.10 Si(Li)-ilmaisimen suhteellinen tehokkuuskalibraatio. Kuvassa on kokeellisesti määritetyt mittauspisteet virherajoineen sekä niiden avulla sovitettu teoreettinen tehokkuuskäyrä. Tehokkuus on normitettu siten, että 240 keV piikki saa arvon yksi.

7 Näytteiden valmistus ja niille suoritetut mittaukset

Mittauksissa käytettyjen näytteiden valmistus tapahtui siis kahdessa eri jaksossa. Ensimmäiset näytteet valmistettiin tammikuussa 2006. Näiden pääasiallinen tarkoitus oli testata käyttämämme mittauslaitteiston sopivuutta kaavailtuihin tutkimuksiin. Varsinaisten mittausten näytteet puolestaan valmistettiin ja analysoitiin maaliskuussa 2006. Kunkin näytteen valmistukseen ja analysointiin liittyvät tiedot löytyvät liitteestä 3.

7.1 ^{133m}Xe testinäytteiden valmistus ja mittaus

Ensimmäisellä kerralla valmistettiin ainoastaan massalukua 133 sisältäviä näytteitä, joista haluttiin tarkastella ^{133m}Xe:a. Tällöin valmistettiin kaksi erillistä näytettä. Näytteiden implantointiajat olivat 130 min (näyte 1) ja 109 min (näyte 2). Ensimmäisen näytteen implantoinnissa protonisuihkun energia oli 25 MeV:a ja toisen näytteen 50 MeV:a. Ensimmäistä ^{133m}Xe-näytettä mitattiin neljän eri keruun (RUN01a-04a) ja toista yhteensä 16 peräkkäisen keruun (RUN07a-22a) verran. Kuvassa 7.1 on esitetty RUN15a:n (näyte 2) gamma- ja elektronispektrit.



Kuva 7.1 Tammikuun toisesta ^{133m}Xe-testinäytteestä mitattu gamma- ja elektronispektri (RUN15a).

Näiden testinäytteiden avulla haluttiin mm. tarkastella sitä, että pysyykö alumiinikalvoon implantoitu ksenon siinä riittävän kauan. (Käytetty implantaatioenergia oli 30 keV.) Lisäksi haluttiin testata koko konseptin toimivuutta ennen pitkään kokeeseen ryhtymistä. Tammikuun ensimmäisellä näytteellä optimoitiin mittauslaitteiston asetukset. Myös toisen näytteen ensimmäiset mittaukset kuluivat laitteiston testaamiseen. RUNeja 11a-20a käyttäen määritettiin ^{133m}Xe:n puoliintumisaika. Tämä puoliintumisaika-analyysi käsitellään kappaleessa 8. Kuvan 7.1 gammaspektrissä näkyvä ylimääräinen piikki kuuluu ^{212}Pb:lle. ^{212}Pb kuuluu luonnon radioaktiivisiin hajoamissarjoihin ja se näkyi myös mittausten muissakin spektreissä. Lisäksi mittauksissa havaittiin myös ^{214}Pb:lle kuuluvia gammoja. ^{214}Pb on myös radonin jälkeläinen eli sekin kuuluu luonnontaustaan. Luonnontausta ei aiheutunut kontaminaatiota työssä tarkasteltuihin foto- ja elektronipiikkeihin.

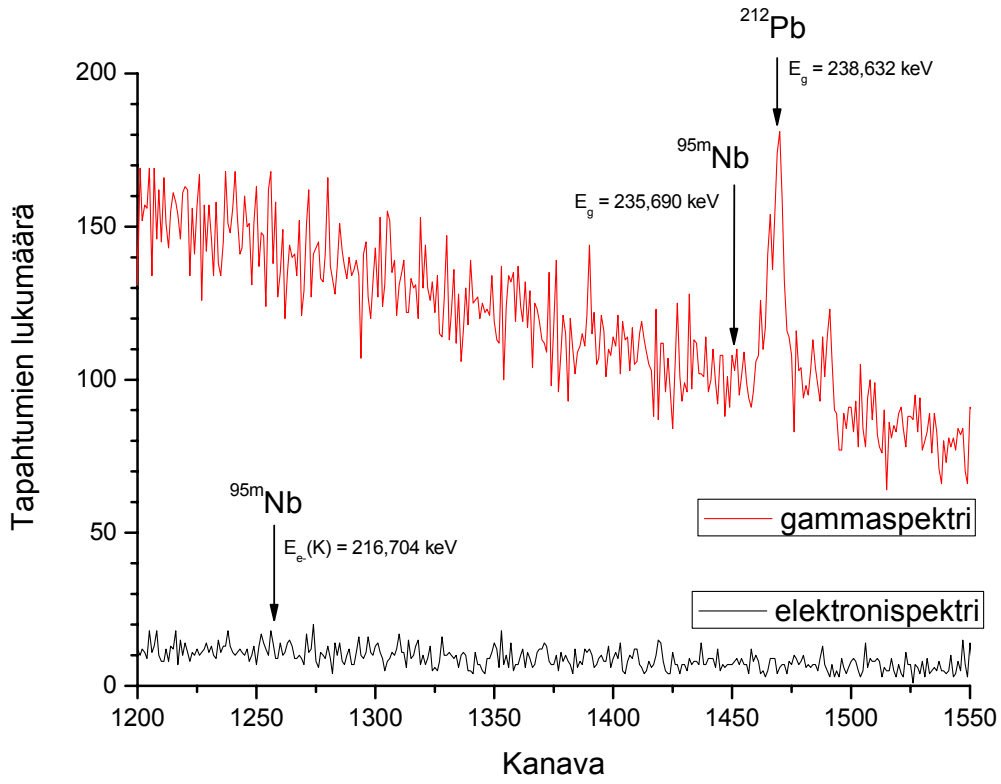
7.2 Varsinaisen kokeen näytteiden valmistus ja mittaukset

Testinäytteiden avulla saatujen kokemusten perusteella voitiin todeta, että laitteisto toimii hyvin ja kaikki oli näin valmista varsinaisia koenäytteitä varten. Maaliskuun 15. ja 18. päivän välillä valmistettiin neljä erillistä näytettä mittauksia varten. Näiden näytteiden implantoinnissa protonisuihkun energia oli 50 MeV:a. Ensimmäinen näyte oli massalukua 95, josta olisimme halunneet nähdä ^{95m}Nb:a. Toinen näyte oli massalukua 133 eli tarkoituksena oli saada aikaisemmin valmistettujen näytteiden kaltainen puhdas ksenonnäyte. Kolmannessa näytteessä oli massalukuja 85, 133 ja 141, eli tällöin halutut nuklidit olivat ^{85m}Kr, ^{133m}Xe ja ^{141}Ce. Neljäs näyte sisälsi massalukuja 133 ja 141.

7.2.1 ^{95m}Nb-näyte

Ensimmäisenä valmistettiin ainoastaan massalukua 95 sisältänyt näyte. Implantointiaika oli 3,6 h ja näytteen mittaus aloitettiin 4,7 h implantoinnin päättymisestä. Kahdesta näytteelle suoritetusta mittauksesta (RUN3b ja 4b) kuitenkin kävi ilmi, että ^{95m}Nb ei olisikaan käyttökelpoinen referenssinuklidi näissä mittauksessa. Kuvassa 7.2 on

RUN3b:n gamma- ja elektronispektri tarkastelualueelta. ^{95m}Nb:n gammaenergia on suuruudeltaan 235,690 keV:a ja vastaava K-konversioelektronienergia 216,704 keV:a. Gammaspektrissä näkyvä piikki ei kuulu ^{95m}Nb:lle, koska sen energia on noin kolme keV:a liian suuri. Tämä piikki kuuluu ^{212}Pb:lle, joka siis oli läsnä kaikissa mittauksissa. Elektronispektristäkään ei löytynyt taustasta erottuvia piikkejä koko mitatulta alueelta. Spektreihin on merkitty paikat, joissa ^{95m}Nb:n piikkien olisi kuulunut olla.



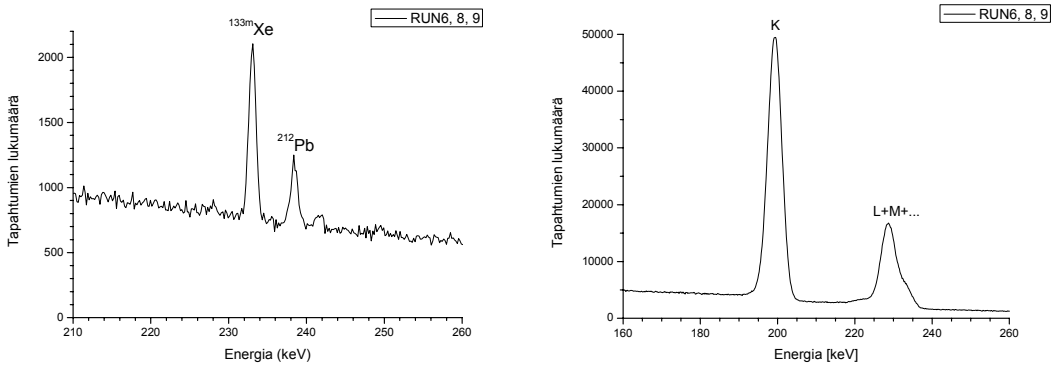
Kuva 7.2 A = 95 näytteen gamma- ja elektronispektri tarkastelualueelle rajattuna. Spektreihin on merkitty paikat, joissa ^{95m}Nb:n piikkien kuuluisi olla.

Todennäköisin syy siihen miksi haluttuja piikkejä ei spektreistä löytynyt on se, että implantoinnissa saadun suoran ^{95m}Nb-fissiotuoton osuus on jäänyt hyvin vähäiseksi. Kumulatiivista tuottoa hidastaa ^{95}Zr pitkä puoliintumisaika (64.02 d) ja se, että suurin osa beeta-hajoamisista johtaa ^{95}Nb perustilaan isomeerisen tilan kautta kulkematta (98,87 %).

^{95m}Nb:n puoliintumisaika (3,61 d) on sitä luokkaa, että olisimme sen havainneet, jos näyte sitä olisi sitä sisältänyt. Tämän analyysin johdosta päätimme hylätä ^{95m}Nb:n käytön referenssinä ja keskittyä jatkossa kahteen muuhun referenssinuklidiin.

7.2.2 ^{133m}Xe-näyte

Tämän jälkeen vuorossa oli ainoastaan massalukua 133 sisältävä näyte eli tavoitteena oli mahdollisimman puhdas ^{133m}Xe-näyte. Kyseinen näyte valmistettiin lähinnä siksi, että haluttiin varmistaa näiden mittausten ja aikaisemmin suoritettujen testien yhtenäisyys. Implantointiaika oli 182 min ja näytteen mittaus aloitettiin 30 h 53 min implantoinnin lopettamisesta. Näytettä mitattiin kolmen ajon (RUN6b, 8b, 9b) verran, kokonaismittausajan ollessa 31 h 44 min. Kuvassa 7.3 esitetään mitatut gamma- ja elektronispektrit. Spektrit sisältävät koko statistiikan.



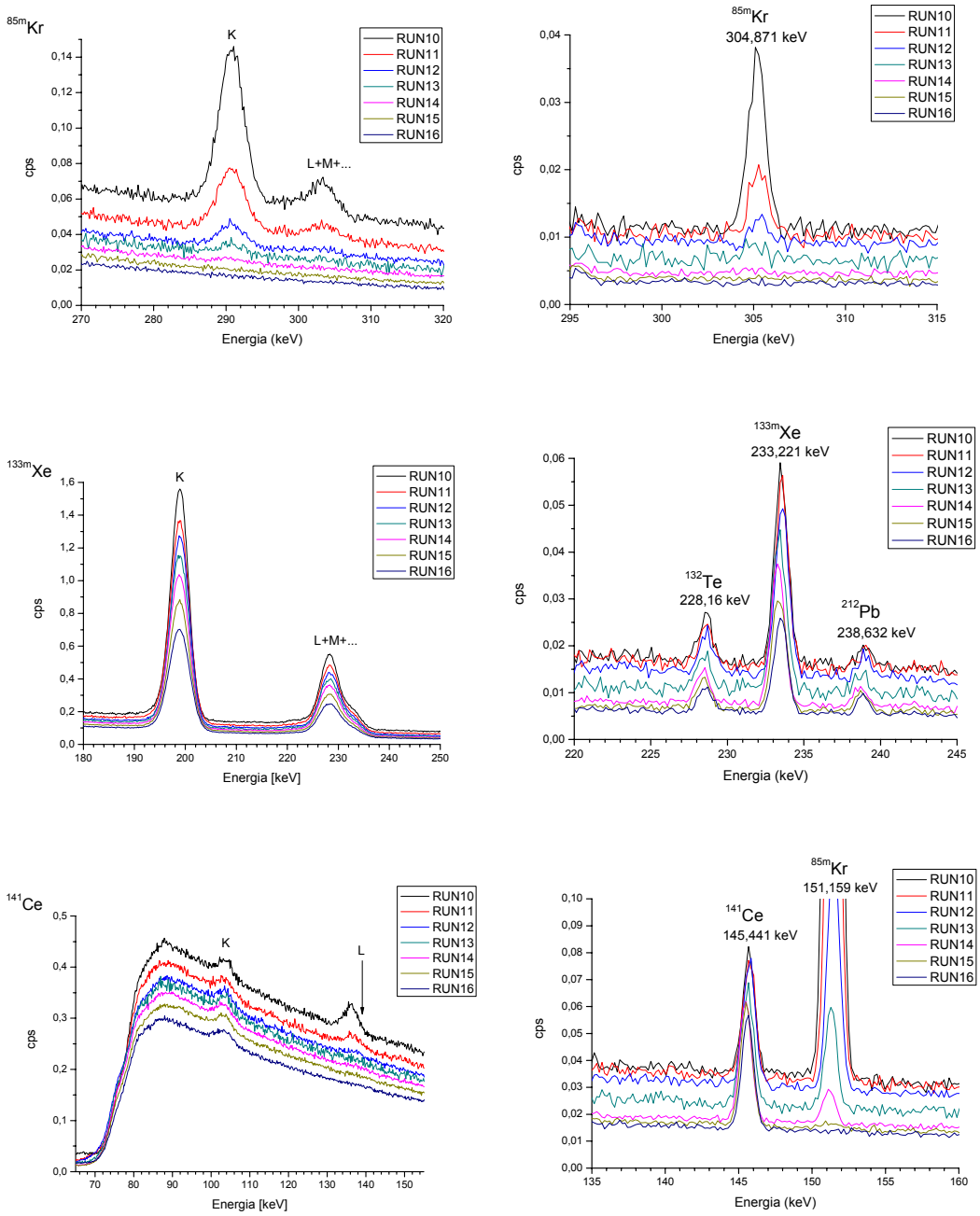
Kuva 7.3 A = 133 näytteen gamma- ja elektronispektri.

Verrattaessa näiden mittausten ja testimittauksen spektrejä keskenään, voitiin huomata niiden olevan erittäin lähellä toisiaan.

7.2.3 ^{85m}Kr:a, ^{133m}Xe:a ja ^{141}Ce:a sisältävä näyte

Päänäytteeseen implantoitiin ^{133m}Xe:n lisäksi referenssinuklideja ^{85m}Kr ja ^{141}Ce. Tarkasteltaessa massoihin 85, 133 ja 141 liittyviä hajoamisketjuja havaittiin, että massojen 133 ja 141 on hyvä ”jäähtyä” ennen mittausten aloittamista. Ensimmäisenä näytteeseen implantoitiin massalukua 141 ja välittömästi tämän jälkeen massalukua 133. Nämä implantoinnit tehtiin siis peräkkäin. Massaluvun 85 implantointi tehtiin vasta seuraavana vuorokautena. Tällä haluttiin varmistaa se, että cerium ja ksenon näytteet olisivat mahdollisimman puhtaita, eli hajoamisketjussa kauempana stabiiliudesta olevat, melko lyhytikäiset isotoopit olisivat ehtineet ainakin suurimmaksi osaksi hajota ennen mittausten aloittamista. Lisäksi koska kryptonin puoliintumisaika (4,48 h) on varsin lyhyt ja kaikki sitä eksoottisemmat neutronirikkaat massan 85 omaavat ytimet ovat vielä ^{85m}Kr:a paljon lyhyempi-ikäisiä, oli kryptonin implantaatio järkevää suorittaa juuri ennen mittausten aloittamista. Huomaa tässä myös se, että laitteiston toimintakuntoon saattaminen siitä hetkestä, kun näyte oli asennettu laitteiston sisään, kesti useamman tunnin (pumppaus, laipan - ja ilmaisimen jäähdytys jne.).

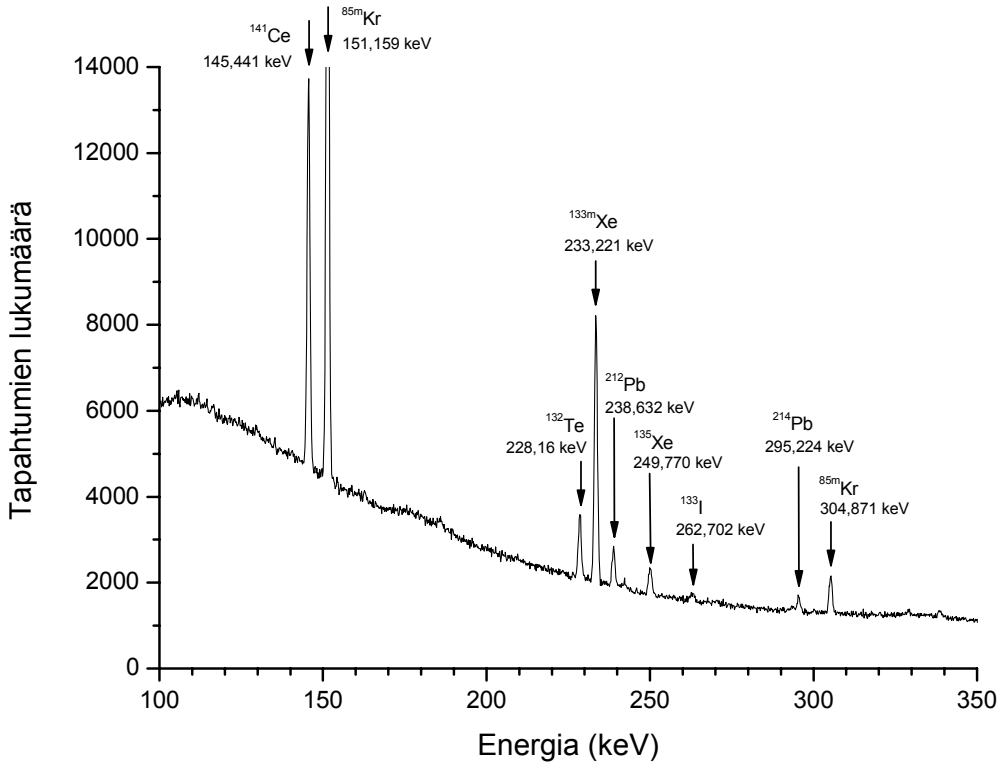
Näytettä mitattiin yhteensä 70 h 16 min. Mittaus jaksottui kahdeksalle eri keruulle (RUN10b-17b), joiden pituus vaihteli n. 3 tunnista 12,6 tuntiin. Mittaus aloitettiin 3 h 54 min päästä siitä, kun kryptonin implantointi oli lopetettu. Tällöin oli kulunut hieman alle yksi ^{85m}Kr:n puoliintumisaika (4,48 h). ^{133m}Xe:n ja ^{141}Ce:n implantaation lopettamisesta oli tällöin kulunut noin 20-23 h. Kahdeksasta ajosta seitsemän oli käyttökelpoisia. Viimeisen ajon (RUN17b) dataa ei käytetty, koska siinä näytti olevan häiriöitä. Tästä johtuen kokonaismittausaika tälle näytteelle (RUN10b-16b) oli 59 h 13 min. Kuvassa 7.4 ovat kullekin tarkasteltavalle nuklidille yksittäisten ajojen elektroni- ja gammaspektrit. Kunkin ajon tapahtumadata on normitettu mittausajan mukaan siten, että Y-akselilla on tapahtumien määrä sekunnissa (cps).



Kuva 7.4 ^{85m}Kr/^{133m}Xe/^{141}Ce-näytteen yksittäiset elektroni- ja gammaspektrit kullekin nuklidille. Spektreihin on merkitty kiinnostuksen kohteina olleet K- ja (L+M+…)-elektronipiikit sekä fotopiikit. ^{141}Ce:n tapauksessa huomioitavaa on se, että (L+M+…)-piikki ei selkeästi erotu spektristä.

Spektreistä nähdään hyvin kuinka aktiivisuus pienenee kussakin tapauksessa. Toisin sanoen mitä lyhyempi puoliintumisaika nuklidilla on, sitä nopeammin se häviää näytteestä. Viimeisissä RUNeissa ei voida havaita enää ollenkaan ^{85m}Kr, koska mittauksen loppupuolella on kulunut jo yli kymmenen sen puoliintumisaikaa. Spektreissä noin 136 keV:n kohdalla oleva piikki ei ole ^{141}Ce:n L-konversiopiikki. L-piikin tulisi sijaita korkeammalla energialla eli noin 139 keV:n kohdalla. Lisäksi spektrissä oleva ylimääräinen piikki kuolee pois paljon nopeammin kuin ^{141}Ce:lle kuuluvan piikin tulisi (vrt. K-piikki). Energian perusteella piikki kuuluu ^{85m}Kr:n beeta-hajoamiselle (E_e = 135,995 keV). Myös hajoamisnopeus vastaa kyseisen isotoopin puoliintumisaikaa ($T_{1/2}$ = 4,480 h). Tämä voidaan nähdä esim. vertaamalla sitä spektreissä esitettyihin muihin kryptonin piikkeihin.

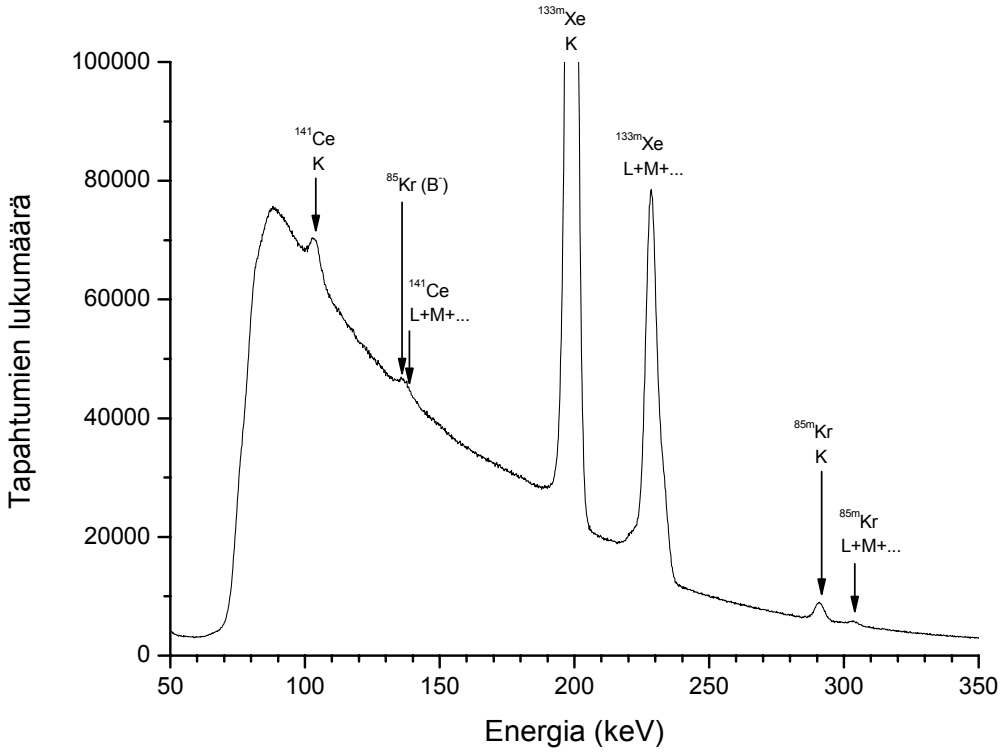
Päänäytteen mittausajojen 10-16 yksittäiset gammaspektrit summattiin yhteen. Kuvassa 7.5 on päänäytteen yhdistetty gammaspektri tämän työn kannalta kiinnostavalta energia-alueelta. Spektriin on merkitty ^{85m}Kr:n, ^{133m}Xe:n ja ^{141}Ce:n fotopiikit energioineen. Tämän lisäksi myös muut tällä alueella näkyvät fotopiikit on tunnistettu ja merkitty spektriin.



Kuva 7.5 ^{85m}Kr/^{133m}Xe/^{141}Ce-näytteen gammaspektri tarkastellulla energia-alueella.

Päänäyte, kuten osittain muutkin näytteet, kontaminoituivat hiukan tarkasteltavien nuklidien naapurimassoista. Tämä johtui pääasiassa implantointien kanssa limittäin suoritetusta JYFLTRAP-kokeesta. JYFLTRAP on varsin herkkä mittalaite, joka on sensitiivinen myös IGISOL:n alkupään parametreille. Tästä syystä emme halunneet koskea niihin, vaikka huomasimmekin massaresoluution olevan varsin huonon. Tärkeää oli myös se, että kontaminaatiosta aiheutuva vaikutus tarkasteltaville siirtymille oli niin vähäinen, että se voitiin analyysissä jättää huomioimatta.

Myös päänäytteen elektronispektrit yhdistettiin (mittaukset 10 - 16), katso kuva 7.6.



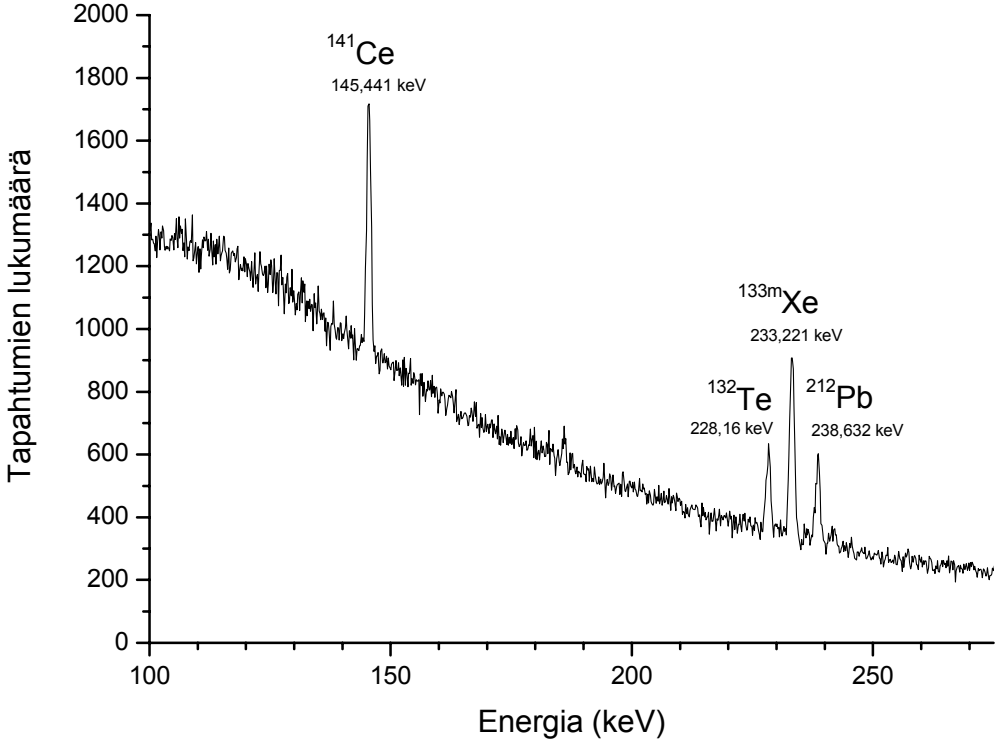
Kuva 7.6 ^{85m}Kr/^{133m}Xe/^{141}Ce-näytteen elektronispektri tarkastellulla energia-alueella. Spektriin on merkitty kiinnostuksen kohteina olleet piikit.

Summaspektrejä käyttäen voidaan muodostaa käsitys nuklidien suhteellisista voimakkuuksista. ^{141}Ce ei käytetty lopullisessa analyysissä sen vuoksi, että sen käyttö olisi vaatinut koinsidenssisummaustekijöiden huomioimista eli 145,4 keV siirtymään liittyvien gammojen ja elektronien kanssa on aina koinsidenssissa beeta-elektroni. Tämän päätöksen teimme luonnollisesti vasta analyysivaiheessa.

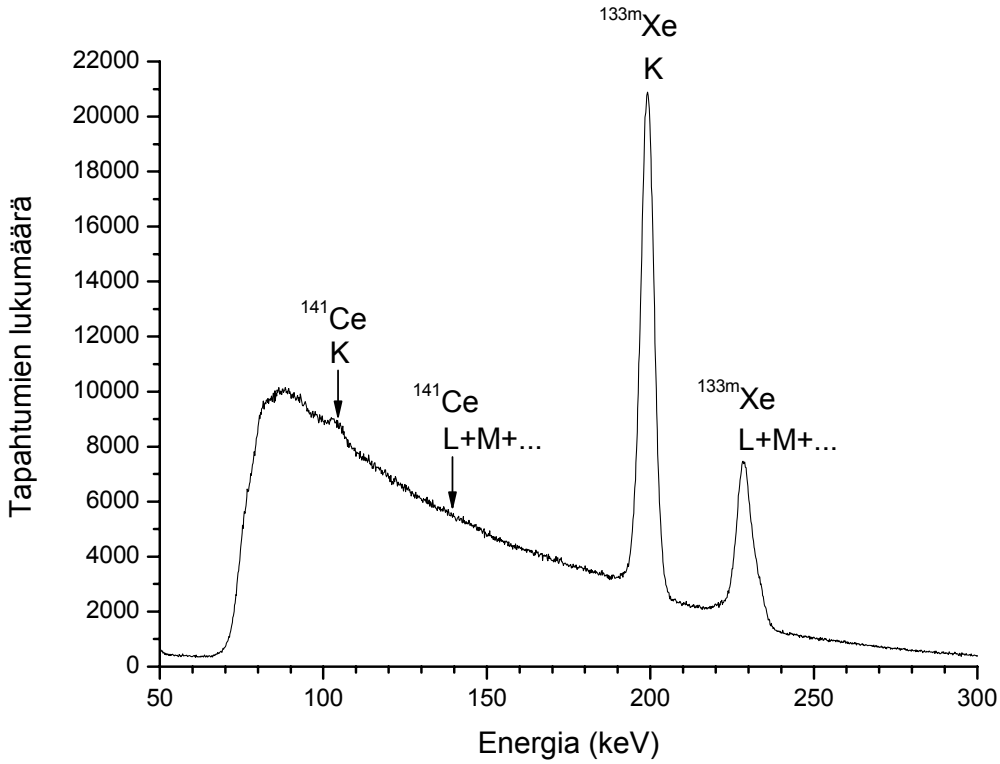
7.2.4 ^{133m}Xe:a ja ^{141}Ce:a sisältävä näyte

Viimeiseksi ja lähinnä varmuuden vuoksi valmistimme näytteen, jossa oli massalukuja 141 ja 133. Tähän näytteeseen ei voitu implantoida kryptonia, koska suihkuaikataulu ei sitä sallinut.

Tämän näytteen mittaus aloitettiin 86,8 tunnin kuluttua implantoinnin lopettamisesta. Näytettä mitattiin kahden ajon (RUNit 18b ja 19b) verran. Näiden yhteiskesto oli 18 h 47 min. Kuvissa 7.7 ja 7.8 esitetään kyseiseen näytteeseen liittyvät spektrit. Sekä gamma- että elektronispektreihin on summattu molempien ajojen aikana kerätyt tapahtumat. Spektreihin on merkitty ^{133m}Xe:n ja ^{141}Ce:n siirtymät. Tälläkään kertaa ^{141}Ce:n L+M+…-piikki ei erotu taustasta.



Kuva 7.7 ^{133m}Xe/^{141}Ce-näytteen gammaspektri kiinnostavalla energia-alueella.



Kuva 7.8 ^{133m}Xe/^{141}Ce-näytteen elektronispektri kiinnostavalla energia-alueella.

Tästä näytteestä mitatut spektrit olivat hyvin samankaltaisia kuin edellisestäkin näytteestä mitatut. Niitä ei kuitenkaan käytetty lopullisessa analyysissä ym. koinsidenssisummautumissyyn ja varsin pienen ^{141}Ce K-piikin statistiikan vuoksi.

8 Puoliintumisajan määritys ^{133m}Xe:lle ja ^{85m}Kr:lle

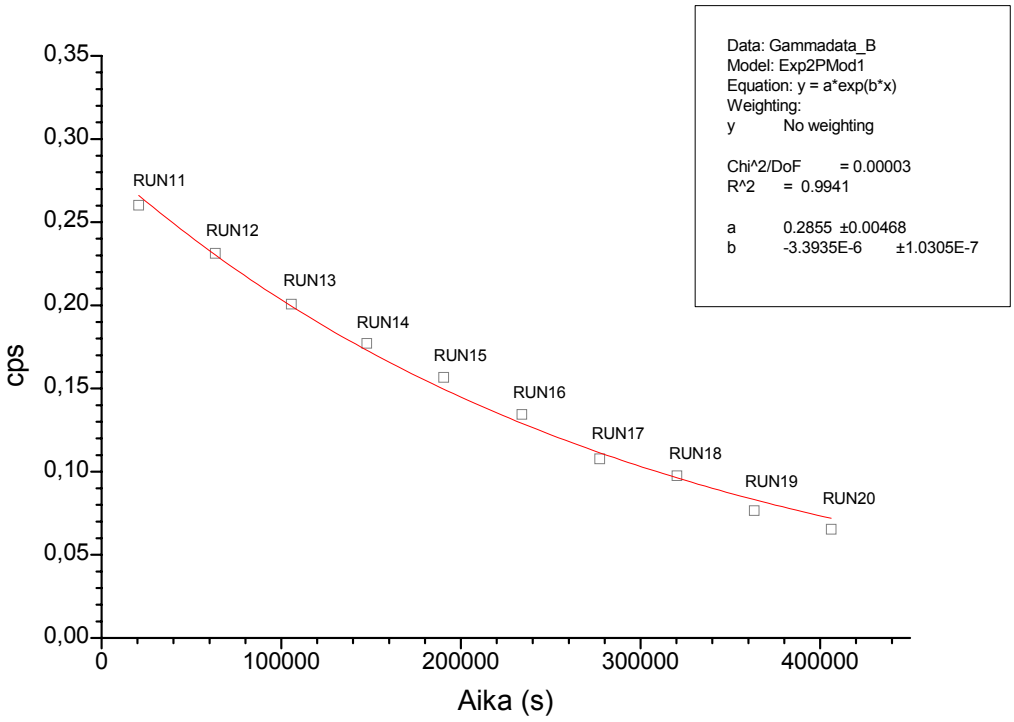
Ksenonin ja kryptonin jalokaasuluonteen vuoksi oli hieman epävarmaa kuinka ne pysyisivät implantointikalvossa. Vaikka aikaisemmat tutkimukset tukevat alumiinin käyttöä implantointimatriisina [Wei00], halusimme kuitenkin itse varmistua siitä, että koejärjestelymme oli todellakin toimiva. Tämä oli helpointa tehdä määrittämällä ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n puoliintumisajat ja vertaamalla niitä kirjallisuusarvoihin. Jos määritetyt puoliintumisajat olisivat olleet merkittävästi pienempiä kuin kirjallisuusarvot, ksenonia ja kryptonia häviäisi kalvosta jollain muullakin mekanismilla kuin radioaktiivisella hajoamisella. Tällöin olisimme modifioineet mittauslaitteistoamme siten, että alumiinikalvo olisi jäähdytetty nestetypen lämpötilaan.

8.1 Tammikuun testimittauksien avulla saadut puoliintumisajat ^{133m}Xe:lle

Tammikuussa 2006 valmistettujen näytteiden yhtenä päätarkoituksena oli testata pysyykö ksenon alumiinisessa implantointikalvossa. Tällöin valmistettiin kaksi massalukua A = 133 olevaa näytettä. Toista ksenon-näytettä mitattiin yhteensä noin 7,25 vuorokauden ajan noin 12 tunnin mittajaksoissa (RUNit 7a-22a). Näistä mittausjaksoista käyttökelpoinen osuus tähän puoliintumisaikamääritykseen oli noin viiden vuorokauden mittainen ajanjakso (RUNit 11a-20a). Implantoinnin lopettamisen ja ensimmäisen puoliintumisaika-analyysissä käytetyn mittauksen alun väliin jäi 85 h 15 min.

Kullekin RUNille saadusta gammaspektristä määritettiin ^{133m}Xe:n 233,221 keV:n fotopiikin pinta-ala. Tämä tehtiin summausmenetelmällä. Fotopiikit suhteutettiin mittausajan mukaan siten, että kunkin fotopiikin intensiteetti annettiin yksiköissä tapahtumia sekunnissa (cps). Puoliintumisaikaa määritettäessä kukin näistä intensiteeteistä sijoitettiin sitä vastaavan mittauksen puoliväliin. Ajan hetkeksi nolla valittiin RUNin 11a alkuhetki. Saatuun pistejoukkoon sovitettiin Origin-ohjelmalla kaavan (2.3) mukainen hajoamiskäyrä. Käyrä oli muotoa $y = ae^{bx}$, missä a ja b ovat

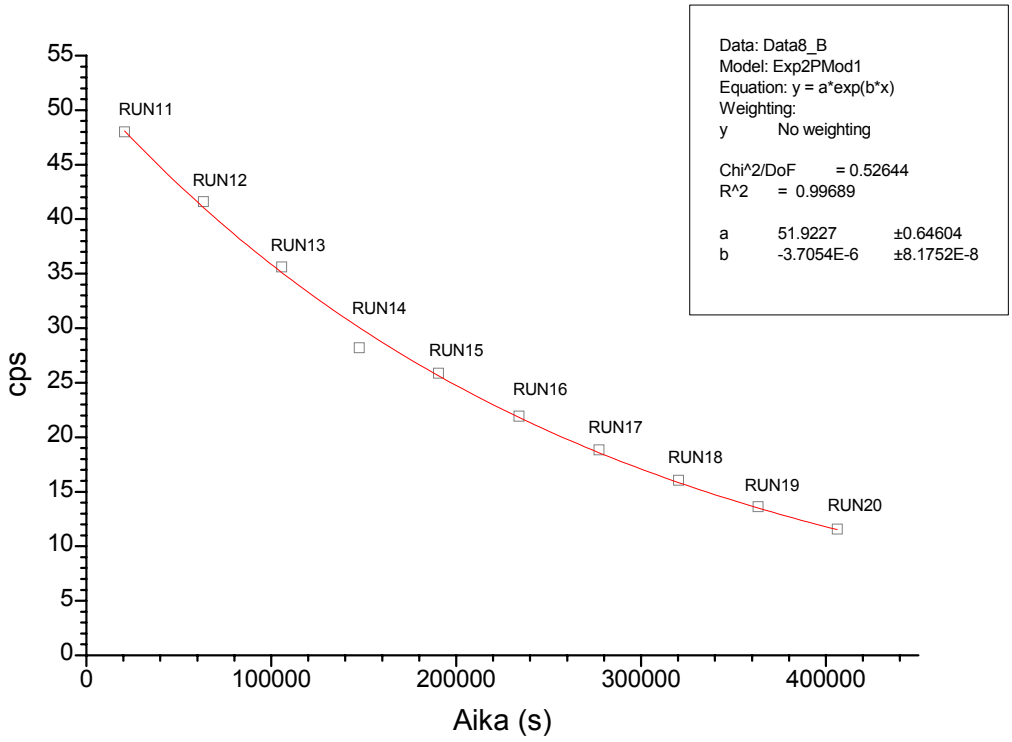
vakioita. Tällöin sovituksen termi b vastaa hajoamisvakiota λ. Kuvassa 8.1 on gammaspektrien avulla saatu pistejoukko ja siihen tehty sovitus.



Kuva 8.1 ^{133m}Xe:n puoliintumisajan määritys testinäytteestä gammadataa käyttäen.

Kaavan (2.4) mukaisesti puoliintumisaika saatiin jakamalla ln2 hajoamisvakiolla λ eli tässä tapauksessa sovitustermillä b. λ:n virhe tulee suoraan sovituksesta (katso kuva 8.1). Tällä tavalla ^{133m}Xe:n puoliintumisajaksi saadaan 57 ± 2 h.

Vastaava puoliintumisaikamääritys tehtiin myös elektronidataa käyttäen. Elektronimääriä laskettaessa huomioitiin sekä K- (198,66 keV) että L+M+…-piikit (n. 230 keV). Kuvassa 8.2. on elektronidatan avulla saatu pistejoukko sekä siihen tehty sovitus.

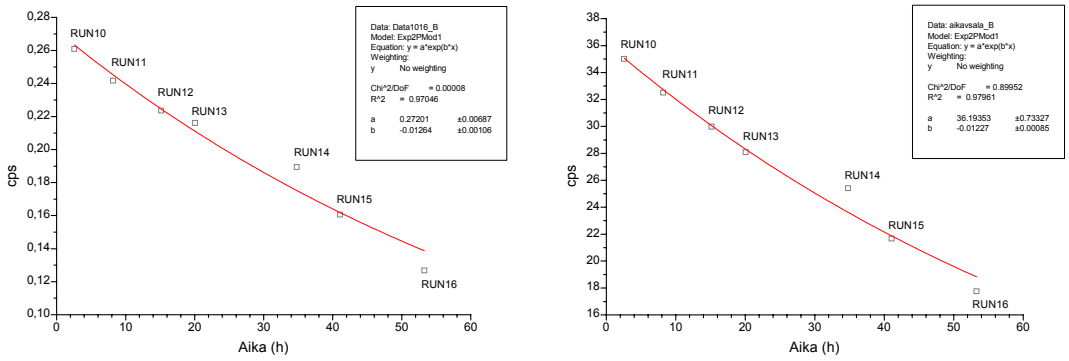


Kuva 8.2 ^{133m}Xe:n puoliintumisajan määritys testinäytteestä elektronidataa käyttäen.

Nyt puoliintumisajalle saatiin arvo (52,0 ± 1,2) h. Koska molemmat arvot olivat suhteellisen lähellä kirjallisuusarvoa 52,56 h, päädyimme siihen tulokseen, että laitteistoon ei tarvitsisi tehdä muutoksia ennen varsinaisia koemittauksia.

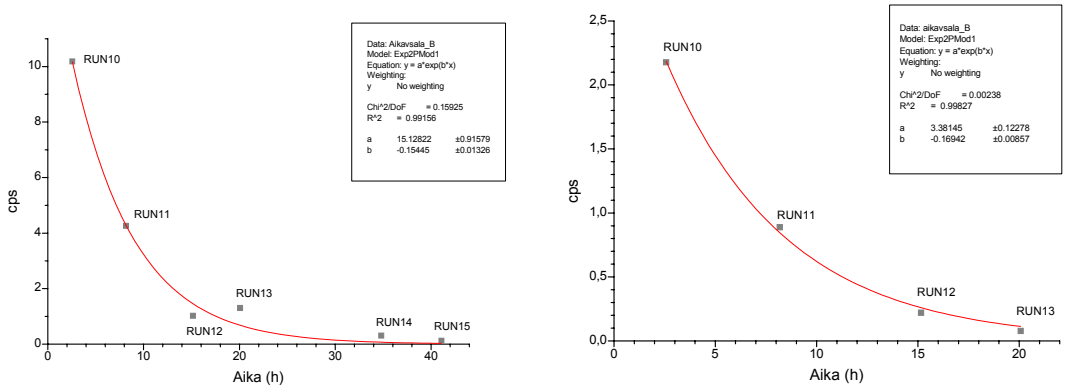
8.2 Puoliintumisaikojen määritys varsinaisesta koenäytteestä

Päänäytteelle tehtiin myös puoliintumisaika-analyysejä. Ne toteutettiin kahdella eri menetelmällä: samoin kuin edellä ja lisäksi hyödyntäen sitä, että havaitut tapahtumat aikamerkittiin IDA:ssa. Yllä esitetyllä menetelmällä tehdyssä määrityksessä käytettiin päänäytteestä mitattuja RUNeja 10b-16b ^{133m}Xe:lle. Kuvassa 8.3 on esitetty saadut puoliintumisaikasovitukset.



Kuva 8.3 ^{133m}Xe:n puoliintumisajan määritys päänäytteestä gamma- ja elektronidatan avulla.

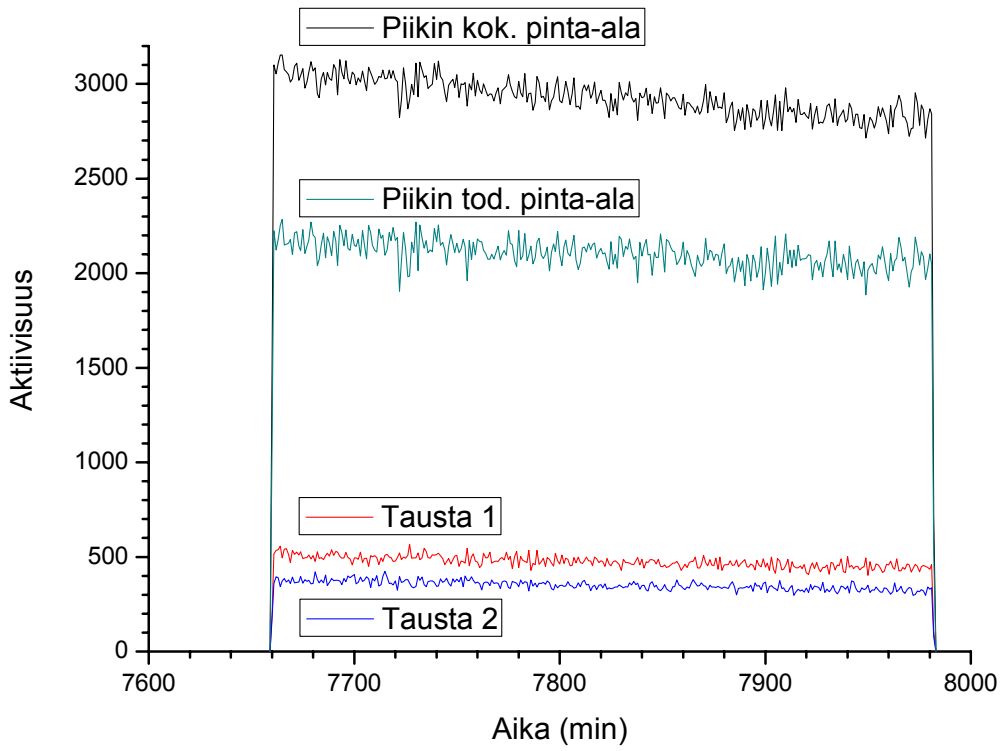
Koska ^{85m}Kr:n puoliintumisaika on merkittävästi lyhyempi kuin ^{133m}Xe:n, oli krypton ehtinyt hävitä näytteestä ennen viimeisiä näytteelle suoritettuja mittauksia. Tästä syystä gammapuolen määrityksessä käytettiin RUNeja 10b-15b ja elektronipuolen RUNeja 10b-13b. Kuvassa 8.4 on gamma- ja elektronispektreihin perustuvat ^{85m}Kr:n puoliintumisaikasovitukset.



Kuva 8.4 ^{85m}Kr:n puoliintumisajan määritys päänäytteestä gamma- ja elektronidatan avulla.

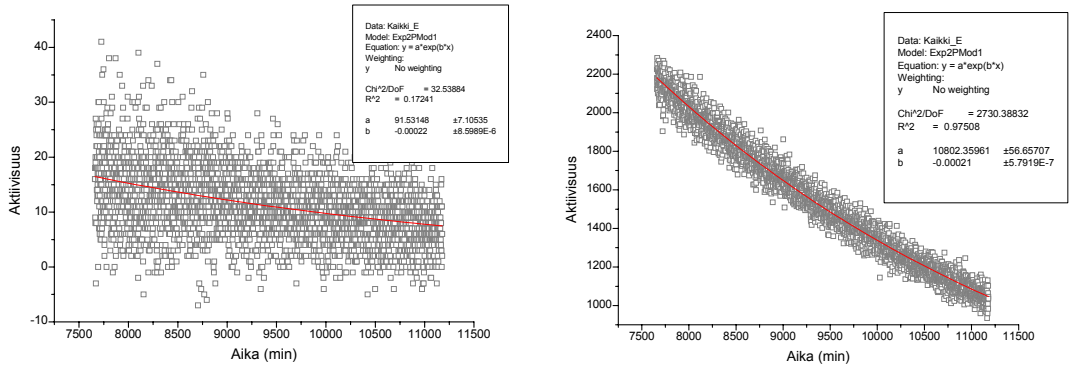
^{133m}Xe:n puoliintumisajaksi sain gammaspektrien avulla 55 ± 5 h ja elektronispektrien avulla 56 ± 4 h. ^{85m}Kr:lle saadut arvot olivat 4,5 ± 0,4 h gammadatan ja 4,1 ± 0,3 h elektronidatan avulla.

Puoliintumisaika-analyysit tehtiin myös niin, että mittausaineisto lajiteltiin ohjelmallisesti muotoon, jossa kiinnostaviin gamma- ja K-elektronipiikkien kattamiin spektrin alueisiin osuneet tapahtumat järjestettiin niiden saapumisajankohdan mukaan. Taustavähennys tehtiin siten, että kiinnostavien piikkien molemmilta puolilta valittiin puolet kapeammat alueet, joiden aikakäyttäytymistä myös tarkasteltiin. Liitteenä 4 on puoliintumisaika-analyysissä käytetty koodi. Kuvassa 8.5 esitetään RUN10b:n elektronidatasta muodostetut hajoamiskäyrät.



Kuva 8.5 RUN10b:n elektronidatasta ^{133m}Xe:n K-piikille muodostetut hajoamiskäyrät.

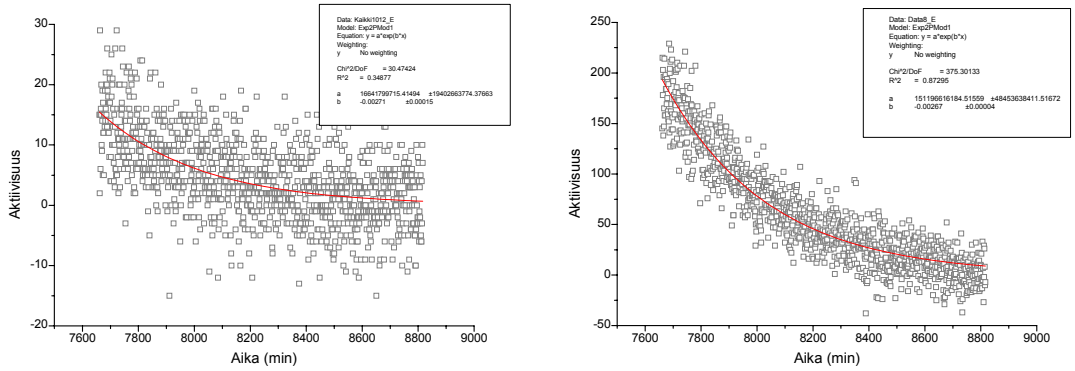
Lopuksi mittausaineistot yhdistettiin ja ne analysoitiin Origin-ohjelmalla. Kuvassa 8.6 esitetään näin tehdyt puoliintumisaikasovitukset ^{133m}Xe:lle.



Kuva 8.6 ^{133m}Xe:n puoliintumisajan määritys päänäytteestä gamma- ja elektronispektrien avulla.

Gammadatan mukaan määritetyksi puoliintumisajaksi saatiin 53 ± 3 h ja elektronidatan mukaan määritetyksi 55.0 ± 0.2 h.

Puoliintumisaika määritettiin tällä tavalla myös päänäytteen ^{85m}Kr:lle. Kryptonin analyysissä käytettiin ainoastaan RUNeja 10b-12b sen lyhyemmän puoliintumisajan vuoksi. Kuvassa 8.7 esitetään sekä gamma- että elektronidataan sovitetut ^{85m}Kr:n hajoamiskäyrät. Gammadataan perustuen puoliintumisajaksi saatiin 4.4 ± 0.2 h ja elektronidatan 4.33 ± 0.07 h.



Kuva 8.7 ^{85m}Kr:n puoliintumisajan määritys päänäytteestä gamma- ja elektronispektrien avulla.

Taulukkoon 8.1 on koottu saadut tulokset ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n puoliintumisajoille. Taulukossa esitetään myös ensin esitellyllä tavalla määritetyistä puoliintumisajoista muodostetut virheellä painotetut keskiarvot ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n puoliintumisajoille.

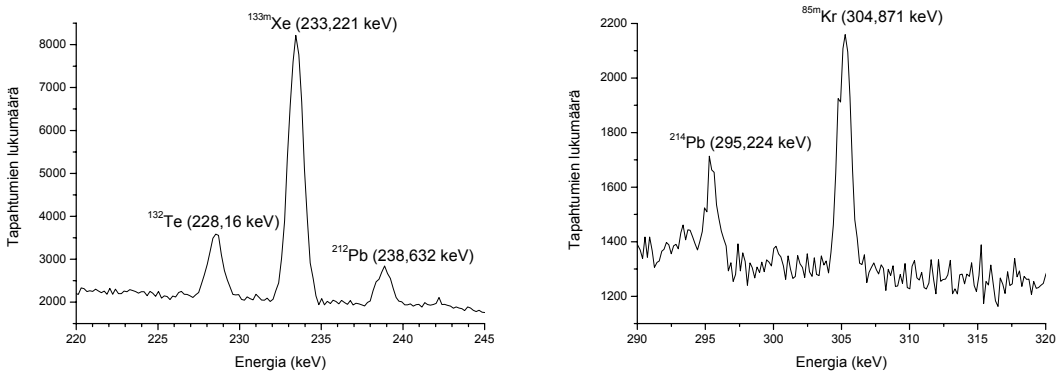
Taulukko 8.1 Puoliintumisaikamäärityksistä saadut tulokset ja tavalla yksi määritettyjen puoliintumisaikojen virheellä painotetut keskiarvot sekä vastaavat kirjallisuusarvot.

Näyte	γ/e^-	Määritystapa	$T_{1/2}(^{133m}Xe)$ [h]	$T_{1/2}(^{85m}Kr)$ [h]
Testinäyte	gamma	1	57 ± 2	-
Testinäyte	elektroni	1	52,0 ± 1,2	-
Päänäyte	gamma	1	55 ± 5	4,5 ± 0,4
Päänäyte	elektroni	1	56 ± 4	4,1 ± 0,3
Päänäyte	gamma	2	53 ± 3	4,4 ± 0,2
Päänäyte	elektroni	2	55,0 ± 0,2	4,33 ± 0,07
Keskiarvo		1	**54,3 ± 1,2**	**4,3 ± 0,3**
Kirj. arvo			**52,56**	**4,48**

Verrattaessa saatuja tuloksia kirjallisuusarvoihin nähdään, että näytteiden hajoamiskäyttäytyminen on likimain odotetun kaltaista. Tästä johtuen ei ole syytä olettaa, että nuklidit häviäisivät alumiinikalvolta muilla tavoin kuin radioaktiivisen hajoamisen seurauksena. ^{133m}Xe:n keskiarvoistettu puoliintumisaika on vähän suurempi kuin kirjallisuusarvo. Tämä saattaa johtua osittain siitä, että päänäytteessä oli havaittavissa jonkin verran ^{133}I:a. Kyseisen nuklidin puoliintumisaika on 20,8 h, joten se aiheuttaa suhteellisen pitkän sisään kasvun [ENS07]. Jodista johtuva ^{133m}Xe kumulatiivinen tuotto siis ikään kuin hidastaa ^{133m}Xe:n hajoamista. Huomaa myös, että päänäytettä ei mitattu kuin likimain yhden ^{133m}Xe:n puoliintumisajan verran. ^{85m}Kr:lle saatu puoliintumisaika puolestaan on virherajoissa yhtenevä kirjallisuusarvon kanssa. Näiden tulosten valossa voidaan todeta alumiinin toimivan hyvin implantointialustana jalokaasuille.

9 ^{133m}Xe:n konversiokerroin

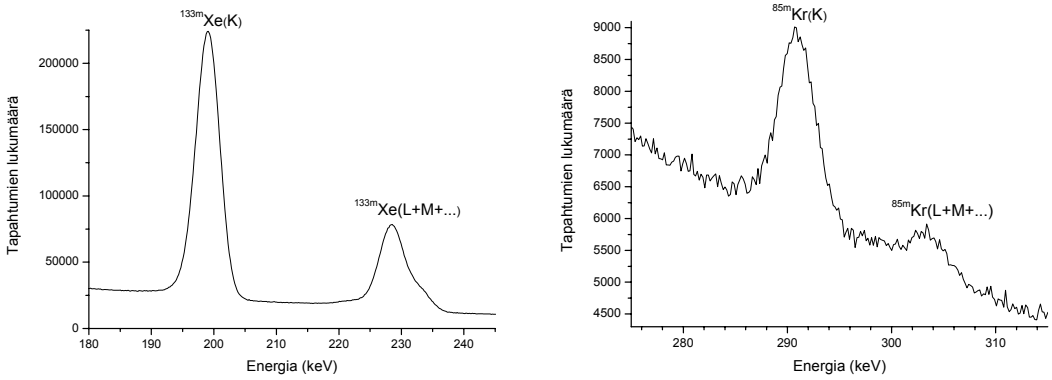
^{133m}Xe:n konversiokerroin määritettiin esiteltyjä tehokkuuskalibraatioita, hyvin tunnettua ^{85m}Kr:n konversiokerrointa sekä ^{133m}Xe/^{85m}Kr/^{141}Ce-näytteestä kerättyä (RUN10b-16b) aineistoa käyttäen. Päänäytteen piikkien pinta-alojen analyyseissä käytettiin kappaleessa 7.2.3 esiteltyjä yksittäisten RUNien spektrejä kuten myös niiden summaspektrejä. Kuvassa 9.1 esitellään summattua gammaspektriä kiinnostavilla energia-alueilla.



Kuva 9.1 ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n fotopiikit yhdistetyssä päänäytteen spektrissä (RUNit 10b-16b).

Gammaspektreissä esiintyvät piikit olivat varsin symmetrisiä muodoiltaan. Kiinnostavien fotopiikkien pinta-alat määritettiin, sekä sovittamalla niihin gauss-käyrät, että summeerausmenetelmällä. Molemmilla menetelmillä saadut tulokset olivat virherajojen puitteissa yhteneviä. Otin tulosten keskiarvon ja sain ^{133m}Xe:n fotopiikin pinta-alaksi 39 800 ± 400 tapahtumaa ja ^{85m}Kr:n piikin 5 700 ± 200 tapahtumaa.

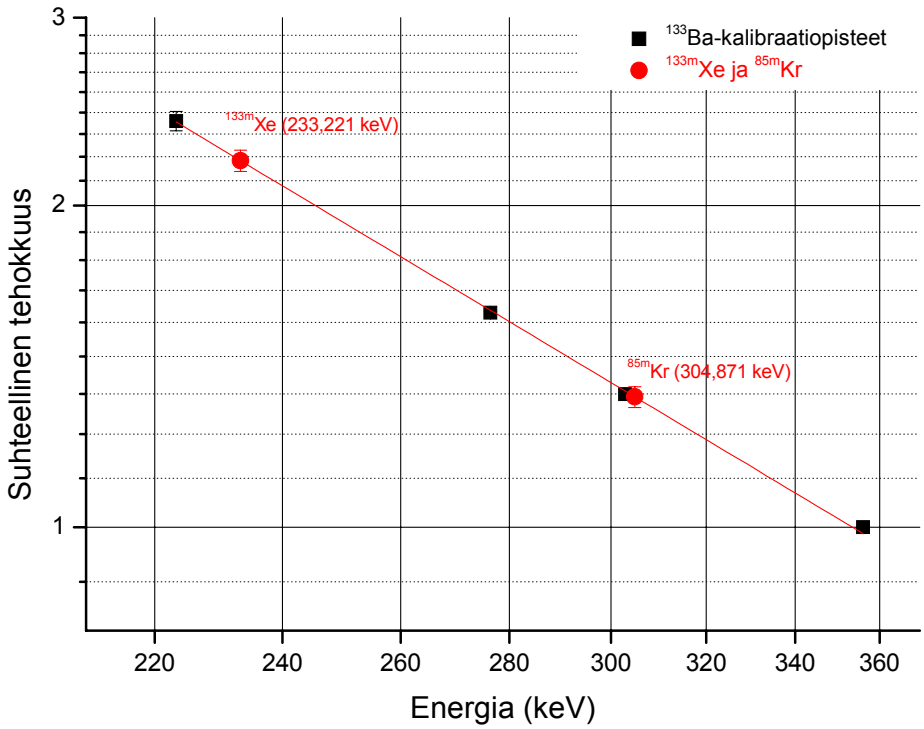
Elektronispektrien piikit eivät olleet muodoltaan yhtä kauniin symmetrisiä. Kuvassa 9.2 on esitetty päänäytteen yhdistetty elektronispektri ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n piikkien lähistöllä.



Kuva 9.2 ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n elektronipiikit päänäytteen yhdistetyssä spektrissä (RUNit 10b-16b).

Elektronipiikkien pinta-alat määritettiin samoja tekniikoita käyttäen, kuin millä ^{133}Ba kalibraatiotkin tehtiin (katso kappale 6.2.2). Tarkasteltavien nuklidien K- ja L+M+…-piikit analysoitiin siis usealla eri tavalla. (^{85m}Kr:n L+M+…-piikin pinta-ala ei tosin ole välttämätön analyysin kannalta.) Analyysi suoritettiin sekä yksittäisten RUNien spektreille että summatulle spektrille. Eri menetelmillä määritetyt piikkien pinta-alat olivat lähellä toisiaan. Tästä syystä analyysitulokset päätettiin keskiarvoistaa ja pinta-alojen virherajat valittiin siten, että kaikki mittauspisteet sopivat niiden sisälle. ^{133m}Xe:n K-piikin pinta-alaksi saatiin 5 520 000 ± 60 000 tapahtumaa ja L+M+…-piikin 2 250 000 ± 60 000 tapahtumaa. ^{85m}Kr:n vastaavat arvot olivat K-piikki 76 000 ± 5 000 tapahtumaa ja L+M+…-piikki 19 000 ± 4 000 tapahtumaa.

Seuraavaksi laskettiin ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n fotopiikkien energioita vastaavat suhteelliset gammatehokkuudet virheineen. Nämä olivat 2,20 ± 0,05 ^{133m}Xe:lle ja 1,32 ± 0,03 ^{85m}Kr:lle, katso myös kuva 9.3.



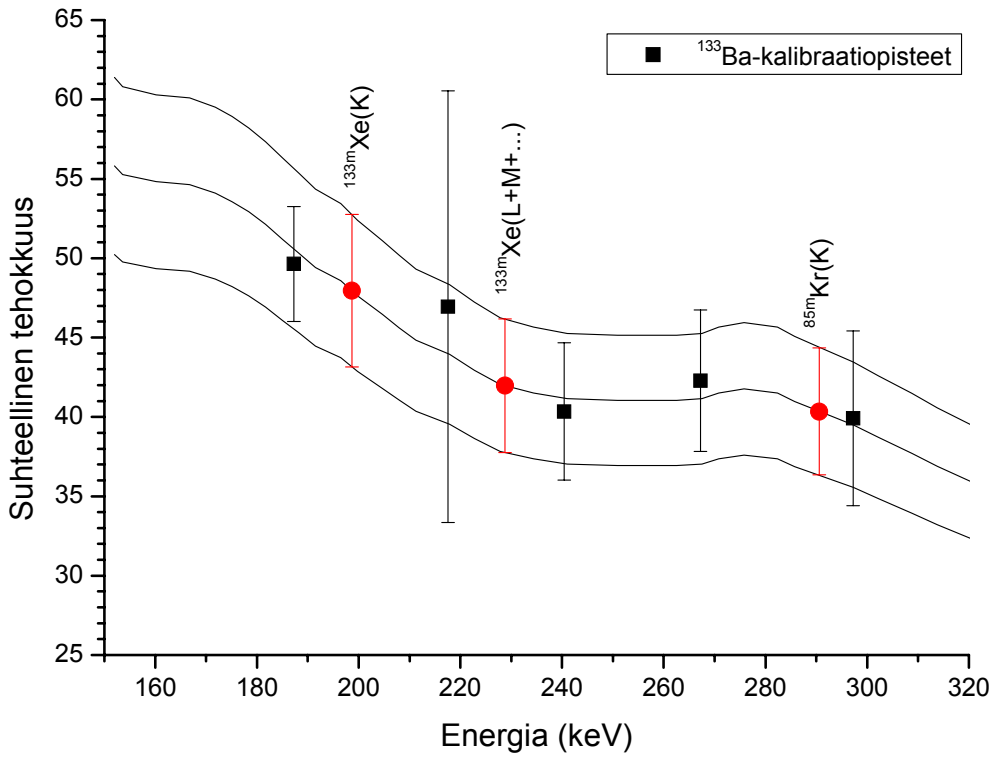
Kuva 9.3 ^{133m}Xe:n ja ^{85m}Kr:n gammojen suhteelliset havaitsemistehokkuudet esitettynä alkuperäisen tehokkuuskalibraation rinnalla.

^{85m}Kr:n konversiokertoimen arvo tunnetaan melko tarkasti (virhe n. 5 %). Kokeellisesti määritetty arvo K-kuoren konversiokertoimelle on $0{,}432 \pm 0{,}020$ (= α_K) [Woh70]. Suhteellinen arvo elektronien havaitsemistehokkuudelle ^{85m}Kr:n K-elektronipiikin kohdalla voitiin laskea kaavalla 9.1. Tähän laskuun tarvittiin K-konversiokertoimen lisäksi suhteellisen gammatehokkuuden arvo ja gamma- ja elektronipiikkien pinta-alat. Virhe laskettiin virheen etenemislain mukaan.

$$\varepsilon_e = \frac{A_e \varepsilon_\gamma}{A_\gamma \alpha} \tag{9.1}$$

A_e on elektronipiikin pinta-ala, A_γ on gammapiikin pinta-ala, ε_γ on suhteellinen gammatehokkuus ja α konversiokerroin.

^{85m}Kr:n K-elektronipiikin energiaa vastaavan suhteellisen havaitsemistehokkuuden arvoksi saatiin 41 ± 4. Tämän luvun avulla kiinnitettiin suhteellinen ELLI:n tehokkuuskäyrä suhteelliseen LEGen tehokkuuskäyrään ja edelleen laskettiin ^{133m}Xe:n elektronitehokkuuden suhteellinen arvo sekä K- että L+M+...-piikeille. Kuten edellisestä tuli jo selväksi käsiteltiin L+M+...-siirtymät yhtenä yksittäisenä piikkinä. Tämän piikin energia määritettiin siihen sisältyvien siirtymien energioita ja teoreettisia intensiteettejä käyttäen. Näin menettelemällä saatiin L+M+… piikin energiaksi 228,75 keV. Kuvassa 9.4 esitetään ^{85m}Kr:n avulla kiinnitetty suhteellinen ELLI:n tehokkuuskäyrä, johon on lisätty ^{85m}Kr:n ja ^{133m}Xe:n tehokkuuspisteet.



Kuva 9.4 ^{85m}Kr:n avulla kiinnitetty suhteellinen ELLI:n tehokkuuskäyrä. Käyrälle on lisätty ^{85m}Kr:n ja ^{133m}Xe:n tehokkuuspisteet.

^{133m}Xe:n elektronipiikkien suhteellisiksi tehokkuusarvoiksi saatiin K-piikille 48 ± 5 ja (L+M+..)-piikille 42 ± 5. Näiden kahden arvon, ^{133m}Xe:n gamma- ja elektronipiikkien pinta-alojen, sekä suhteellisen gammakalibraation avulla voitiin laskea ^{133m}Xe:n konversiokertoimet. Virheet on taas laskettu virheen etenemislain mukaan. Konversiokertoimet saatiin seuraavan kaavan mukaan:

$$\alpha = \frac{A_e \varepsilon_\gamma}{A_\gamma \varepsilon_e} \tag{9.2}$$

^{133m}Xe:n konversiokertoimille sain arvot $\alpha_K = 6{,}3 \pm 0{,}7$ ja $\alpha_{L+M+...} = 2{,}9 \pm 0{,}4$. Näiden mukaan laskettu kokonaiskonversiokerroin saa arvon $\alpha_K = 9{,}2 \pm 1{,}1$.

10 Johtopäätökset

Tämän työn avulla saadut tulokset tukevat vahvasti voimassa olevaa teoriaa ja antavat lisävalaistusta ^{133m}Xe:n sisäisen konversion prosessiin. Taulukkoon 10.1 on koottu tässä työssä määritetyn arvon lisäksi kaikki aikaisemmat kokeelliset sekä kahden eri teoreettisien mallin avulla lasketut konversiokertoimet ^{133m}Xe:lle.

Taulukko 10.1 ^{133m}Xe:n konversiokertoimen kokeelliset ja teoreettiset arvot.

	α_K	$\alpha_{L+M+...}$	α
Bergström [Ber52, Ber54]	4,4 ± 1,4	1,9 ± 0,6	6 ± 2
Alexander ja Lau [Ale68]	7,7 ± 0,3	3,8 ± 0,3	11,4 ± 0,6
Achterberg [Ach72]	7,4 ± 1,4	2,9 ± 0,6	10 ± 2
Tämä työ	6,3 ± 0,7	2,9 ± 0,4	9,2 ± 1,1
Rösel [Rö78a, Rö78b, ANU07]	6,32	2,69	9,0
Band [Ban02, ANU07]	6,24	2,59	8,8

Verrattaessa kokeellisia ja teoreettisia arvoja toisiinsa, voidaan huomata, että saamamme tulos on parhaiten sopusoinnussa teorian kanssa. Tämä on tärkeää sen vuoksi, että kokeellisella datalla viritetyt mallit ovat yleensä varsin luotettavia. Kaksi aiemmista kokeista on ristiriidassa teorian kanssa. On myös varsin mielenkiintoista huomata, että teorian kanssa sopusoinnussa olevat kokeet (Tämä työ ja Achterberg) ehdottavat jonkin verran teoriaa suurempaa arvoa kokonaiskonversiokertoimelle.

Tekemäni analyysin lisäksi STUKissa työskentelevä erikoistutkija Kari Peräjärvi teki omalla tahollaan riippumattoman analyysin samasta mittausaineistosta. Hänen saamansa arvot ^{133m}Xe:n konversiokertoimille ovat $\alpha_K = 6{,}5 \pm 0{,}9$ ja $\alpha_{L+M+...} = 2{,}9 \pm 0{,}4$ [Per07]. Hyvällä syyllä voidaan todeta, että saadut tulokset ovat käytännössä samat. Se pieni ero mikä tulosten välillä on, johtuu todennäköisesti ilmaisinten tehokkuuskalibraatioiksi saaduista hieman toisistaan eroavista käyristä. Pientä eroavaisuutta voi myös olla piikkien pinta-alojen määrityksissä. Liitteenä 1 on Karin analyysin pohjalta kirjoitettu

artikkeli ”The decay of ^{133m}Xe”, joka on hyväksytty Applied Radiation and Isotopes julkaisusarjaan.

Saatujen tulosten virheiden suuruus jäi hieman suuremmaksi kuin mitä alkuperäinen tavoite oli. Kokonaiskonversiokertoimen virheen suuruus on noin 12 %, kun tavoite oli määrittää konversiokerroin noin 10 % virheellä. Suurin epävarmuus tuloksiin aiheutui Si(Li)-ilmaisimen tehokkuuskalibraatiosta ja elektronipiikkien pinta-alojen määrityksistä. Tämän työn olisi mahdollisesti voinut tehdä myös ELLI:n virtalähteen ollessa sweep-moodissa. Tällöin Si(Li)-ilmaisimen tehokkuuskäyrän muoto olisi ollut pehmeämpi tarkastellulla alueella. Tämä olisi puolestaan helpottanut analyysia huomattavasti ja todennäköisesti virheen suuruutta olisi saatu myös hieman pienemmäksi. Tämä on asia, joka kannattaa tulevaisuudessa ottaa huomioon ELLI:n avulla tehtävissä mittauksissa.

Tässä työssä saadut tulokset ovat tärkeitä myös CTBTO:lle, joka valvoo kattavan ydinkoekieltosopimuksen noudattamista. CTBTO:n analyysit pohjautuvat nykyisin yksinomaan teoreettisiin ^{133m}Xe:n konversiokertoimiin.

Kirjallisuus

[Ach72] E. Achterberg, F.C. Iglesias, A.E. Jech, J.A. Moragues, D. Otero, M.L. Pérez, A.N. Proto, J.J. Rossi, W. Scheuer, J.F. Suárez, Conversion-Coefficient Measurements and Spin-Parity Assignments for Excited Levels in $^{133, 135, 136}$Xe, $^{135, 137, 139}$Cs and ^{138}Ba, Phys. Rev. C 5, 1759-1785 (1972).

[Ale68] P. Alexander, J.P. Lau, Nuclear structure in $^{133, 135}$Xe and $^{133, 135}$Cs, Nucl. Phys. A 121, 612-624 (1968).

[ANU07] http://www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc/ (16.7.2007)

[Ban02] I.M. Band, M.B. Trzhaskovskaya, C.W. Nestor Jr., P.O. Tikkanen, S. Raman, Dirac-Fock International Conversion Coefficients, Atomic Data and Nuclear Data Tables 81, Issues 1-2, 1-334 (2002).

[Ber52] I. Bergström, The isomers of krypton and xenon, Arkiv Fysik 5, 191-295 (1952).

[Ber54] I. Bergström, S. Thulin, A.H. Wapstra, B. Åström, K-conversion coefficients of γ-transitions occurring in the decay of Kr^{85m}, Xe^{129m}, Xe^{131m}, Xe^{133}, Xe^{133m}, Arkiv Fysik 7, 255-263 (1954).

[Ca07a] http://www.canberra.com/products/493.asp (15.6.2007)

[Ca07b] http://www.canberra.com/products/486.asp (15.6.2007)

[Cha07] http://www.nndc.bnl.gov/chart/ (18.7.2007)

[CRC04] CRC Handbook of Chemistry and Physics, 85th Edition 2004-2005, CRC Press (2004).

[CTB07] http://www.ctbto.org/ (24.8.2007)

[Enert] Enertec, Si (Li) detector for conversion electrons ESLB series -ohjevihko.

[ENS07] http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/ (16.7.2007)

[IGI07] http://www.jyu.fi/science/laitokset/fysiikka/en/research/accelerator/igisol (18.7.2007)

[Lil01] J.S. Lilley, Nuclear Physics: Principles and Applications, John Wiley & Sons Ltd (2001).

[Oin93] M. Oinonen, The magnetic electron transporter spectrometer ELLI in beta decay measurements, Thesis for the degree of MSc (1993).

[Par90] J.M. Parmonen, ELectron Lens for Igisol, Thesis for the degree of MSc, JYFL (1990).

[Par91] J.M. Parmonen, Z. Janas, W.H. Trzaska, J. Äystö, J. Kantele, P.P. Jauho, A. Jokinen, H. Penttilä, Electron-transporter spectrometer for on-line isotope separator, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 306, 504-511 (1991)

[Per05] K. Peräjärvi, T. Siiskonen, T. V.-V. Elomaa, T. Eronen, U. Hager, J. Hakala, A. Jokinen, A. Kankainen, P. Karvonen, T. Kessler, I. Moore, H. Penttilä, S. Rahaman, S. Rinta-Antila, A. Saastamoinen, T. Sonoda, B. Tordoff, J. Äystö, The decay of Xe-133m, proposal (2005).

[Per07] K. Peräjärvi, J. Turunen, J. Hakala, A. Jokinen, I.D. Moore, H. Penttilä, A. Saastamoinen, T. Siiskonen, H. Toivonen, J. Äystö, The Decay of ^{133m}Xe, hyväksytty julkaistavaksi Applied Radiation and Isotopes -lehdessä.

[Rab95] S. Rab, Nuclear data sheets update for A = 133, Nucl. Data Sheets 75, 491-665 (1995).

[Ram02] S. Raman, C.W. Nestor Jr., A. Ichihara, M.B. Trzhaskovskaya, How good are the international conversion coefficients now?, Phys. Rev. C 66, Issue 4, 044312 (2002).

[Ruo91] P. Ruoste, Konversioelektronispektroskopia on-line radioaktiivisuusmittauksissa, Pro gradu -tutkielma, JYFL (1991).

[Rö78a] F. Rösel, H.M. Fries, K. Adler, H.C. Pauli, International conversion coefficients for all atomic shells, Atomic Data and Nuclear Data Tables 21, Issues 2-3, 91-289 (1978).

[Rö78b] F. Rösel, H.M. Fries, K. Adler, H.C. Pauli, International conversion coefficients for all atomic shells, Atomic Data and Nuclear Data Tables 21, Issues 4-5, 291-514 (1978).

[Sii04] T. Siiskonen, H. Toivonen, Electron conversion decay of ^{133m}Xe, Rad. Phys. and Chem. 69, 23-24 (2004).

[STU02] T.K. Ikäheimonen (toim.) et al, Säteily ja sen havaitseminen, Säteily- ja ydinturvallisuus -kirjasarja, Säteilyturvakeskus (2002).

[Tab78] C.M. Lederer, V. Shirley (toim.), Table of Isotopes, Wiley, Appendix V (1978).

[Tay97] J.R. Taylor, An Introduction to Error Analysis, Second Edition (1997).

[Trz90] W.H. Trzaska, Recommended data on selected gamma-ray and conversion-electron calibration sources, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 297, Issues 1-2, 223-229 (1990).

[Wei00] L. Weissman, R. Raabe, M. Huyse, G. Koops, H. Pattyn, G. Terwagne, P. Van Duppen, An Implanted 4He target for experiments with radioactive beams, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 170, 266-275 (2000).

[Woh70] F.K. Wohn, W.L. Talbert Jr, J.K. Halbig, The Decay of ^{85m}Kr, Nucl. Phys. A 152, Issue 3, 561-569 (1970).

[XBD01] X-Ray Data Booklet, Center for X-Ray Optics and Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory (2001).

[You00] H.D. Young, R.A. Freedman, University Physics with modern physics, tenth edition, Addison Wesley (2000).

[Äys01] J. Äystö, Development and applications of the IGISOL technique, Nucl. Phys. A 693, 477-494 (2001).

5+ model ARI : 3905 Prod.Type:FTP pp.1–5(col.fig.:NIL) ED:VasudhaKS PAGN:Bhaskara SCAN:

Liite 1

ARTICLE IN PRESS

Available online at www.sciencedirect.com

ScienceDirect

Applied Radiation and Isotopes ▮ (▮▮▮▮) ▮▮▮–▮▮▮

Applied Radiation and Isotopes

www.elsevier.com/locate/apradiso

The decay of ^{133m}Xe

K. Peräjärvi[a,b,c,*], J. Turunen[b], J. Hakala[b], A. Jokinen[b], I.D. Moore[b], H. Penttilä[b], A. Saastamoinen[b], T. Siiskonen[a], H. Toivonen[a], J. Äystö[b]

[a]*STUK–Radiation and Nuclear Safety Authority, P.O. Box 14, Helsinki FIN-00881, Finland*
[b]*Department of Physics, University of Jyväskylä, P.O. Box 35 (YFL), FIN-40014 University of Jyväskylä, Finland*
[c]*Helsinki Institute of Physics, P.O. Box 64, FIN-00014 University of Helsinki, Finland*

Received 27 September 2007; received in revised form 25 October 2007; accepted 19 November 2007

Abstract

The decay of ^{133m}Xe has been re-measured using an electron-transporter spectrometer and a planar HPGe detector. The sample of ^{133m}Xe was produced by means of proton-induced fission using an ion-guide based on-line mass separator. The deduced K and $L^+M^+\ldots$ shell conversion coefficients, $\alpha_K = 6.5(9)$ and $\alpha_{L^+M^+\ldots} = 2.9(4)$, agree within the uncertainty limits with the theoretical values and remove the inconsistencies between the previous experimental studies of ^{133m}Xe.
© 2007 Published by Elsevier Ltd.

Keywords: Radioactivity; Conversion electron emission; Isomeric state; Xenon; On-line mass separation

1. Introduction

In a nuclear explosion, four radioactive xenon isotopes/isomers are produced in significant amounts with half-lives long enough to be detected several days after the explosion: ^{131m}Xe ($T_{1/2} = 11.84$ d), ^{133}Xe ($T_{1/2} = 5.243$ d), ^{133m}Xe ($T_{1/2} = 2.19$ d) and ^{135}Xe ($T_{1/2} = 9.14$ h). Especially in evasive underground explosions, which may be difficult to reveal with seismic sensors, the direct production of these isotopes/isomers plays a major role in the detection of the event. Namely, before these nuclei are generated via the beta-decays from nuclear reaction products it is possible that their parents have already been trapped in pockets where their release is considerably slower. It should also be pointed out that the refractory elements synthesized in the underground explosions and any resulting beta-decays mostly remain in the surrounding media and therefore the only gamma-emitting fingerprints of the explosion that may be released into the atmosphere with any significant amounts are the directly produced $^{131m,\ 133,\ 133m,\ 135}$Xe isotopes/isomers. This is also the main reason why the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) is placing noble gas sampling stations evenly around the globe (www.ctbto.org). Within this enterprise, 40 xenon sampling and measuring systems will be harnessed for the verification of the treaty compliance. If on-site inspection is carried out, even several weeks after the explosion, the slower component of the xenon release may still be detectable. Relative amounts of different isotopes/isomers are also of importance since they can be used to determine the origin of detected activities. The ^{133m}Xe/^{133}Xe activity ratio is one of the most informative indicators (Siiskonen and Toivonen, 2004). Typical background sources of these xenon isotopes/isomers are nuclear reactors, isotope production plants and hospitals.

Due to the lack of suitable final states in ^{133}Cs the $J^\pi = 11/2^-$ isomeric state of ^{133}Xe at an excitation energy of 233.22 keV decays to the ground state of ^{133}Xe via the emission of a gamma ray or a conversion electron. The multipolarity of the possibly emitted 233.22 keV gamma ray has been shown to be almost exclusively M4 (Fransson and Erman, 1969). The conversion electron decay of ^{133m}Xe has been experimentally studied three times in the past. These studies, for example, report the following K shell conversion coefficients (α_K): 1952/1954 by Bergström, $\alpha_K = 4.4(14)$ (Bergström, 1952; Bergström et al., 1954),

*Corresponding author at: STUK–Radiation and Nuclear Safety Authority, P.O. Box 14, Helsinki FIN-00881, Finland. Tel.: +358 9 759 88 705; fax: +358 9 759 88 433.
E-mail address: kari.perajarvi@stuk.fi (K. Peräjärvi).

0969-8043/$ - see front matter © 2007 Published by Elsevier Ltd.
doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

UNCORRECTED PROOF

Please cite this article as: Peräjärvi, K., et al., The decay of ^{133m}Xe. Appl. Radiat. Isotopes (2007), doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

1968 by Alexander and Lau, $\alpha_K = 7.68(25)$ (Alexander and Lau, 1968) and 1972 by Achterberg et al., $\alpha_K = 7.4(14)$ (Achterberg et al., 1972). Theoretically α_K is expected to be 6.32 or 6.24 depending on the model (Rösel et al., 1978a ,b, Issues 2–3 and 4–5; Band et al., 2002; www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc). Due to the large scatter of experimental results and the utmost importance of this conversion coefficient for the Treaty verification, we decided to re-measure it in the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä, Finland. Results from these studies are reported below.

2. Experimental

The ^{133m}Xe nuclei were produced using the ^{nat}U(p,f) reaction at 50 MeV beam energy and mass-separated with the ion-guide isotope separator on-line (IGISOL) system (Penttilä et al., 2005). In the IGISOL technique, a thin target of ^{nat}U (thickness 15 mg/cm^2) is surrounded by a flowing noble gas such as helium. Part of the fission products recoiling out from the uranium target thermalize within the flowing gas, which rapidly transports them out from the stopping cell. Following evacuation those fission products that are still charged ($^+$1 being the dominant charge state) are separated from the neutral gas using a special electrode/pumping setup. During this separation stage ions are simultaneously accelerated to 30 keV kinetic energy. After the acceleration the ions are mass separated using a dipole magnet. The $A = 133$ mass-separated beam was implanted into a thin aluminum foil (thickness 3.2 mg/cm^2). Aluminum was selected as a host material due to its proven ability to efficiently retain implanted noble gases (Weissman et al., 2000). A circular collimator with a diameter of 5 mm was mounted in front of the aluminum foil. To monitor the sample production, the implantation position was viewed with a coaxial HPGe detector. The signal from this detector was fed into a multi-channel analyzer.

Neutron-rich nuclei with $A = 85$, including the isomeric state of ^{85}Kr at an excitation energy of 304.87 keV, are also significantly produced in the proton-induced fission of uranium. A mass $A = 85$ beam was implanted into the ^{133m}Xe sample using the unchanged IGISOL settings (except of course the separator magnetic field). By this procedure a reference ^{85m}Kr sample ($T_{1/2} = 4.48$ h) with a similar implantation profile and sample geometry to that of ^{133m}Xe was created. The experimental K conversion coefficient of ^{85m}Kr is well known, $\alpha_K = 0.432(20)$ (Wohn et al., 1970). The decay of ^{85m}Kr was used to link the relative efficiency calibrations of the electron-transporter spectrometer and the planar HPGe detector to each other.

Due to approximately an order of magnitude difference in half-lives of ^{85m}Kr and ^{133m}Xe and also related to the other half-lives in the $A = 85$ and 133 mass chains, the following implantation sequence was accomplished: first, a 3-h long implantation of mass $A = 133$ followed by a break of about 13 h and after that another 3-h long implantation of mass $A = 85$. The first measurement was started about 4 h after finishing the $A = 85$ implantation. The total measurement time was about 47 h. In the beginning of the measurements approximately 1.1×10^8 ^{133m}Xe and 1.1×10^7 ^{85m}Kr nuclei were present in the sample.

Even though it was immediately observed that the Xe sample contained slight contamination from neighboring masses due to a simultaneously running experiment at JYFLTRAP (Kolhinen et al., 2004), the mass resolution could not be optimized further. Despite this observation, the transitions of interest in this work were not influenced by these contaminants (see below).

After the sample production the foil was placed inside the electron-transporter spectrometer, see Fig. 1 (Parmonen et al., 1991). The magnetic field generated inside the spectrometer transports the emitted electrons from the sample position to a cooled Si(Li) detector (maintained at liquid nitrogen temperature). This Si(Li) detector stops electrons with energies up to about 2 MeV (detector thickness 4 mm). The solid angle covered by this detector for the gamma rays emitted from the sample position is less than one part in one thousand. For more efficient detection of gamma rays the sample was simultaneously viewed with a planar HPGe detector. The data from these detectors were recorded using a VME-based data acquisition system where the master trigger was a logical OR between the detectors.

The relative efficiency calibrations of the detectors were accomplished using a ^{133}Ba source (area >20 mm^2) and data from (Parmonen et al., 1991). That part of the source facing the Si(Li) detector was collimated (circular collimator with a diameter of 5 mm). The ^{133}Ba source was selected for the calibration because this radioisotope emits electrons and gamma rays with energies close to those of interest, see Table 1. Another attractive feature related to the ^{133}Ba source is that it only undergoes EC decay ($Q_{EC} = 517.4$ keV). This means that one does not need to worry about the effects related to the positron–electron summing. The relative efficiency calibration of the electron spectrometer is shown in Fig. 2. The visible oscillation of

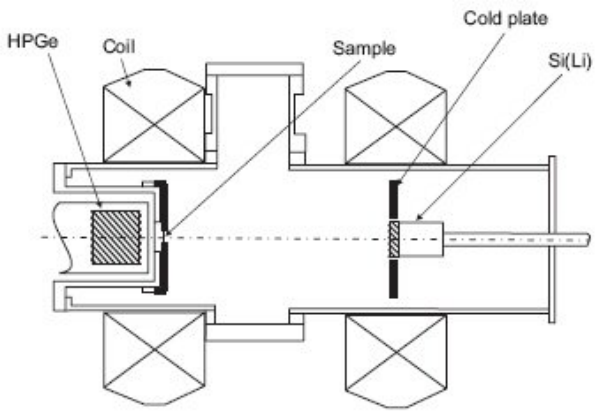


Fig. 1. Detector setup.

Please cite this article as: Peräjärvi, K., et al., The decay of ^{133m}Xe. Appl. Radiat. Isotopes (2007), doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

Table 1
Relevant gamma ray and conversion-electron transitions

Nuclide	E_γ (keV)	I_γ	E_{el} (keV)	Shell	I_{el}
^{133m}Xe	233.221 (18)		198.66	K	
			227.77	L_1	
^{85m}Kr	304.87 (2)		290.54	K	
^{133}Ba	223.234	4.50 (4)	187.249	K	0.324 (10)
			217.6	L	0.041 (6)
^{133}Ba	276.398	71.64 (22)	240.413	K	3.28 (35)
			270.9	L	0.58 (7)
^{133}Ba	302.853	183.3 (6)	266.868	K	6.92 (69)
			297.2	L	1.00 (13)

Energies of gamma rays and electrons (E_γ, E_{el}) and relative intensities (I_γ, I_{el}) for ^{133}Ba are taken directly from (Trzaska, 1990) (intensities are normalized to 1000 decays). Absolute uncertainties are given in parentheses.

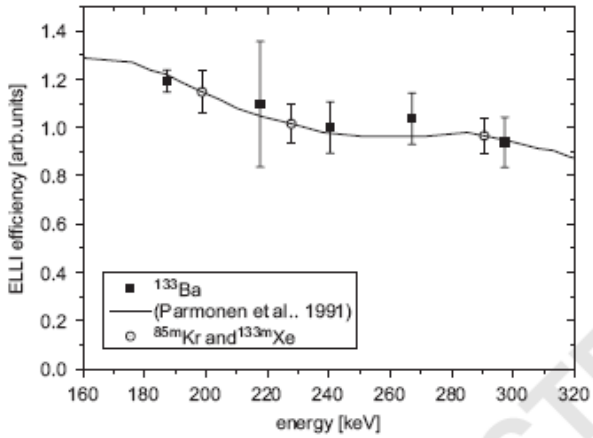


Fig. 2. Relative efficiency calibration of the electron spectrometer. Black squares were determined using the ^{133}Ba source. The shape of the solid curve is taken from Parmonen et al. (1991) and its level is fixed using the ^{133}Ba data (black squares). Open circles represent the relative detection efficiencies used for the ^{133m}Xe K and L^+M^+... and ^{85m}Kr K shell transitions. The error bars are included for all data.

efficiency curve is related to the focusing properties of the magnetic field. The behavior of the efficiency curve of the HPGe detector within the region of interest (233–305 keV) is smooth and therefore it is not presented here.

3. Results

Fig. 3 presents the relevant parts of the measured electron and the gamma spectra. The consecutive measurements are displayed separately. To further demonstrate the statistics of the experiment, approximately 4.7×10^6 and 7×10^4 events are present in the electron peaks at 198.66 keV (^{133m}Xe/K) and 290.54 keV (^{85m}Kr/K), respectively.

The gamma transition at 228.16 keV in Fig. 3b belongs to the beta-decay of ^{132}Te ($T_{1/2} = 3.2$ d). The area of the 228.16 keV peak is 0.227(6) relative to the 233.22 keV (^{133m}Xe) one. The multipolarity of the 228.16 keV gamma

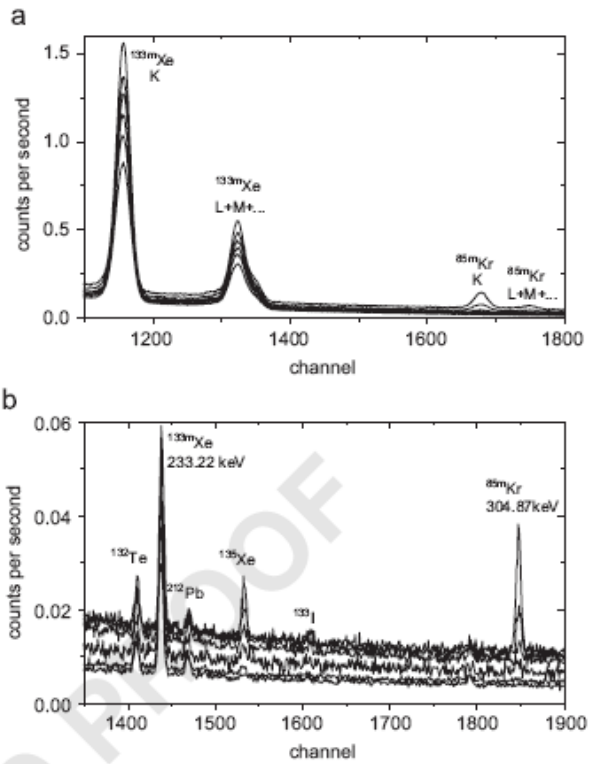


Fig. 3. Relevant parts of: (a) electron spectra and (b) gamma spectra obtained during the experiment. Consecutive measurements are presented separately.

ray is $E2$ and the total α related to the transition is about 0.1, i.e., roughly 90 times smaller than that associated with the ^{133m}Xe decay (www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc). Therefore, its contribution to the electron peaks of the ^{133m}Xe in Fig. 3a and further to the conversion coefficients of ^{133m}Xe is negligible. The ^{212}Pb nucleus (238.63 keV) visible in Fig. 3b is a radon granddaughter with a $T_{1/2} = 10.64$ h, and belongs to the naturally occurring ^{232}Th decay chain, i.e., it has nothing to do with the 50 MeV proton beam. One may overlook the influence of a natural background to the electron spectra since the electron spectrometer operates in a vacuum and only efficiently collects electrons emitted from the symmetry axis of the device (see also Fig. 1). Notice in Fig. 3b that the 238.63 keV peak is not decaying away which means that the ^{212}Pb source is not inside the spectrometer. Its time behavior suggests equilibrium conditions that are typical in room background. Additionally, the conversion electron decay of the 249.79 keV $5/2^+$ state in ^{135}Cs, fed by the beta-decay of ^{135}Xe, produces so few electrons that they are not observable in Fig. 3a. The K shell electrons related to this decay should appear in between the ^{133m}Xe K and L^+M^+... peaks. The influence of a 262.70 keV transition, belonging to the beta-decay of ^{133}I, to the ^{133m}Xe L^+M^+... electron peak is also insignificant.

UNCORRECTED PROOF

Please cite this article as: Peräjärvi, K., et al., The decay of ^{133m}Xe. Appl. Radiat. Isotopes (2007), doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

Since the decay data were collected in event mode it was possible, by determining the half-lives using the germanium and the silicon detector data, to verify that both the ^{133m}Xe and the ^{85m}Kr atoms did not diffuse out/escape from the aluminum foil during the experiment. In fact, it was verified already during the measurements that the intensity ratio between the gamma and the corresponding electron peaks remained unchanged as a function of time. Using the above discussed ^{133}Ba efficiency calibrations, Parmonen et al. (1991) and the data presented in Fig. 3, after summing it all up, the internal conversion coefficients of ^{133m}Xe were determined to be: $\alpha_K = 6.5(9)$ and $\alpha_{L+M+...} = 2.9(4)$. Table 2 presents the components from which the overall uncertainties are composed of. The largest uncertainty is related to the relative efficiency calibration of electron spectrometer. Notice also that the present measurements were done in a way that the uncertainties related to the data acquisition dead time, the sample geometry and the absolute detection efficiencies could be neglected. The results from the present and the past studies of ^{133m}Xe are compared in Table 3 along with the theoretical predictions.

Table 2
Components of the overall uncertainties

	α_K	$\alpha_{L+M+...} = 2.9(4)$
	Uncertainty (%)	Uncertainty (%)
Area under the ^{133m}Xe gamma peak	0.6	0.6
Area under the ^{133m}Xe electron peak	0.06	0.1
Area under the ^{85m}Kr gamma peak	2.0	2.0
Area under the ^{85m}Kr electron peak	1.0	1.0
^{85m}Kr K shell conversion coefficient	4.6	4.6
Ratio of relative ^{133m}Xe and ^{85m}Kr electron spectrometer efficiencies	11.0	11.0
Ratio of relative ^{133m}Xe and ^{85m}Kr HPGe efficiencies	7.8	7.8
Overall uncertainty	14.4	14.4

Table 3
Experimental and theoretical conversion coefficients for the K (α_K) and higher ($\alpha_{L+M+...}$) electron shells

	α_K	$\alpha_{L+M+...} = 2.9(4)$
Bergström (1952), Bergström et al. (1954)	4.4 (14)	1.9 (6)
Alexander and Lau (1968)	7.68 (25)	3.8 (3)
Achterberg et al. (1972)	7.4 (14)	2.9 (6)
Present work	6.5 (9)	2.9 (4)
Rösel et al. (1978a, b, Issues 2–3 and 4–5), (www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc)[a]	6.32	2.69
Band et al. (2002), (www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc)[a]	6.24	2.59

Absolute uncertainties are given in parentheses.
[a]Theoretical predictions.

4. Summary and conclusions

We have experimentally re-studied the decay of ^{133m}Xe by directly counting the conversion electrons and the gamma rays belonging to its decay. The required sample of ^{133m}Xe was produced using the ion-guide based on-line mass separator. As shown in Table 3, our results agree within the error bars with the theoretical predictions and with (Bergström, 1952; Bergström et al., 1954) and (Achterberg et al., 1972). Table 3 also shows that the results of Bergström (1952), Bergström et al. (1954) and (Alexander and Lau (1968) do not overlap the theoretical predictions. This is of importance since it is well known that the theoretical predictions of the internal conversion coefficients are usually quite accurate, see for example Németh and Veres (1990). It is also interesting to notice that the measurements which do overlap each other and with the theory (the present work and (Achterberg et al., 1972)) suggest conversion coefficients larger than the theoretical ones. Even though this is a very weak argument it is nevertheless possible that the theory is slightly underestimating the coefficients in question. In addition, the xenon gamma spectra measured earlier by the Radiation Protection Bureau, Ottawa, Canada, and analyzed by the authors (Siiskonen and Toivonen, 2004) also suggest a larger total α than the widely used value of 8.8 (theoretical), see (Siiskonen and Toivonen, 2004). (As an example, if the correct conversion coefficient is 9.4 instead of 8.8 then the resulting gamma yield decreases from 10.2% to 9.6%, i.e., the absolute gamma yield drops about 5.8%.) In conclusion, the present work improves and clarifies the experimental understanding of the decay of ^{133m}Xe. This is of importance for the verification of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty in order to interpret xenon-monitoring results correctly.

Acknowledgments

This work has been supported by the EU 6th Framework program "Integrating Infrastructure Initiative-Transnational Access", Contract No. 506065 (EURONS) and by the Academy of Finland under the Finnish Center of Excellence Program 2000–2005 (Project No. 44875, Nuclear and Condensed Matter Physics Program at JYFL).

References

Achterberg, E., Iglesias, F.C., Jech, A.E., Moragues, J.A., Otero, D., Pérez, M.L., Proto, A.N., Rossi, J.J., Scheuer, W., Suárez, J.F., 1972. Conversion-coefficient measurements and spin-parity assignments for excited levels in $^{133, 135, 136}$Xe, $^{135, 137, 139}$Cs, and ^{138}Ba. Phys. Rev. C 5, 1759–1785.

Alexander, P., Lau, J.P., 1968. Nuclear structure in $^{133, 135}$Xe and $^{133, 135}$Cs. Nucl. Phys. A 121, 612–624.

Band, I.M., Trzhaskovskaya, M.B., Nestor, C.W., Tikkanen, P.O., Raman, S., 2002. Dirac–Fock internal conversion coefficients. Atom. Data Nucl. Data Tables 81 (1–2), 1–334.

Bergström, I., 1952. The isomers of krypton and xenon. Arkiv Fysik 5, 191–295.

Please cite this article as: Peräjärvi, K., et al., The decay of ^{133m}Xe. Appl. Radiat. Isotopes (2007), doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

Bergström, I., Thulin, S., Wapstra, A.H., Åström, B., 1954. K-conversion coefficients of γ-transitions occurring in the decay of Kr^{85m}, Xe^{129m}, Xe^{131m}, Xe^{133}, and Xe^{133m}. Arkiv Fysik 7, 255–263.

Fransson, K., Erman, P., 1969. The M4 transitions in ^{131}Xe and ^{133}Xe. Arkiv Fysik 39, 7–13.

Kolhinen, V.S., Kopecky, S., Eronen, T., Hager, U., Hakala, J., Huikari, J., Jokinen, A., Nieminen, A., Rinta-Antila, S., Szerypo, J., Äystö, J., 2004. JYFLTRAP: a cylindrical Penning trap for isobaric beam purification at IGISOL. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 528, 776–787.

Németh, Zs., Veres, Á., 1990. Comparison of experimental and theoretical high multipole-order internal conversion coefficients. Nucl. Instrum Methods Phys. Res. A 286, 601–606.

Parmonen, J.M., Janas, Z., Trzaska, W.H., Äystö, J., Kantele, J., Jauho, P.P., Jokinen, A., Penttilä, H., 1991. Electron-transporter spectrometer for on-line isotope separator. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 306, 504–511.

Penttilä, H., Billowes, J., Campbell, P., Dendooven, P., Elomaa, V.-V., Eronen, T., Hager, U., Hakala, J., Huikari, J., Jokinen, A., Kankainen, A., Karvonen, P., Kopecky, S., Marsh, B., Moore, I., Nieminen, A., Popov, A., Rinta-Antila, S., Wang, Y., Äystö, J., 2005. Performance of IGISOL 3. Eur. Phys. J. A 25 (Suppl. 1), 745–747.

Rösel, F., Fries, H.M., Alder, K., Pauli, H.C., 1978a. Internal conversion coefficients for all atomic shells. Atom. Data Nucl. Data Tables 21 (2–3), 91–289.

Rösel, F., Fries, H.M., Alder, K., Pauli, H.C., 1978b. Internal conversion coefficients for all atomic shells. Atom. Data Nucl. Data Tables 21 (4–5), 291–514.

Siiskonen, T., Toivonen, H., 2004. Electron conversion decay of ^{133m}Xe. Rad. Phys. Chem. 69, 23–24.

Trzaska, W.H., 1990. Recommended data on selected gamma-ray and conversion-electron calibration sources. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 297, 223–229.

Weissman, L., Raabe, R., Huyse, M., Koops, G., Pattyn, H., Terwagne, G., Van Duppen, P., 2000. An implanted ^{4}He target for experiments with radioactive beams. Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. B 170, 266–275.

Wohn, F.K., Talbert Jr., W.L., Halbig, J.K., 1970. The decay of ^{85m}Kr. Nucl. Phys. A 152, 561–569.

www.ctbto.org.

www.rsphysse.anu.edu.au/nuclear/bricc.

UNCORRECTED PROOF

Please cite this article as: Peräjärvi, K., et al., The decay of ^{133m}Xe. Appl. Radiat. Isotopes (2007), doi:10.1016/j.apradiso.2007.11.010

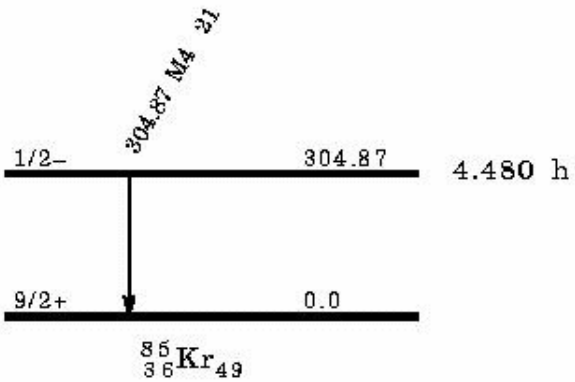
Liite 2a. ^{85m}Kr energiatasokaavio

$^{85}_{36}Kr_{49}$

^{85}Kr IT Decay (4.480 h) 1980Me06,1970Wo08

Decay Scheme

Intensity: I(γ+ce) per
100 parent decays
%IT=21.4 *4*



CITATION:
Nuclear Data Sheets (1991)

From NNDC(BNL)
program ENSDAT

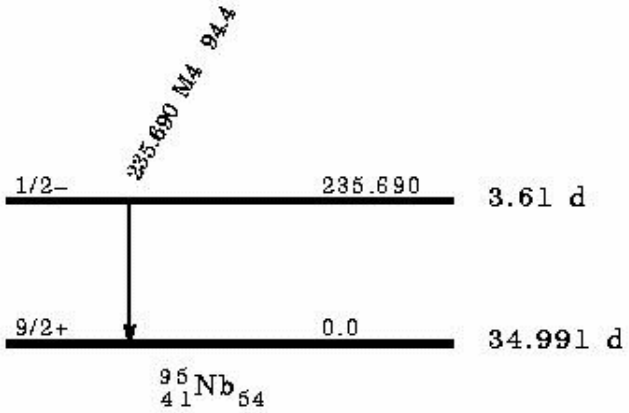
Liite 2b. ^{95m}Nb energiatasokaavio

$^{95}_{41}Nb_{54}$

^{95}Nb IT Decay (86.6 h) 1969Fo01

Decay Scheme

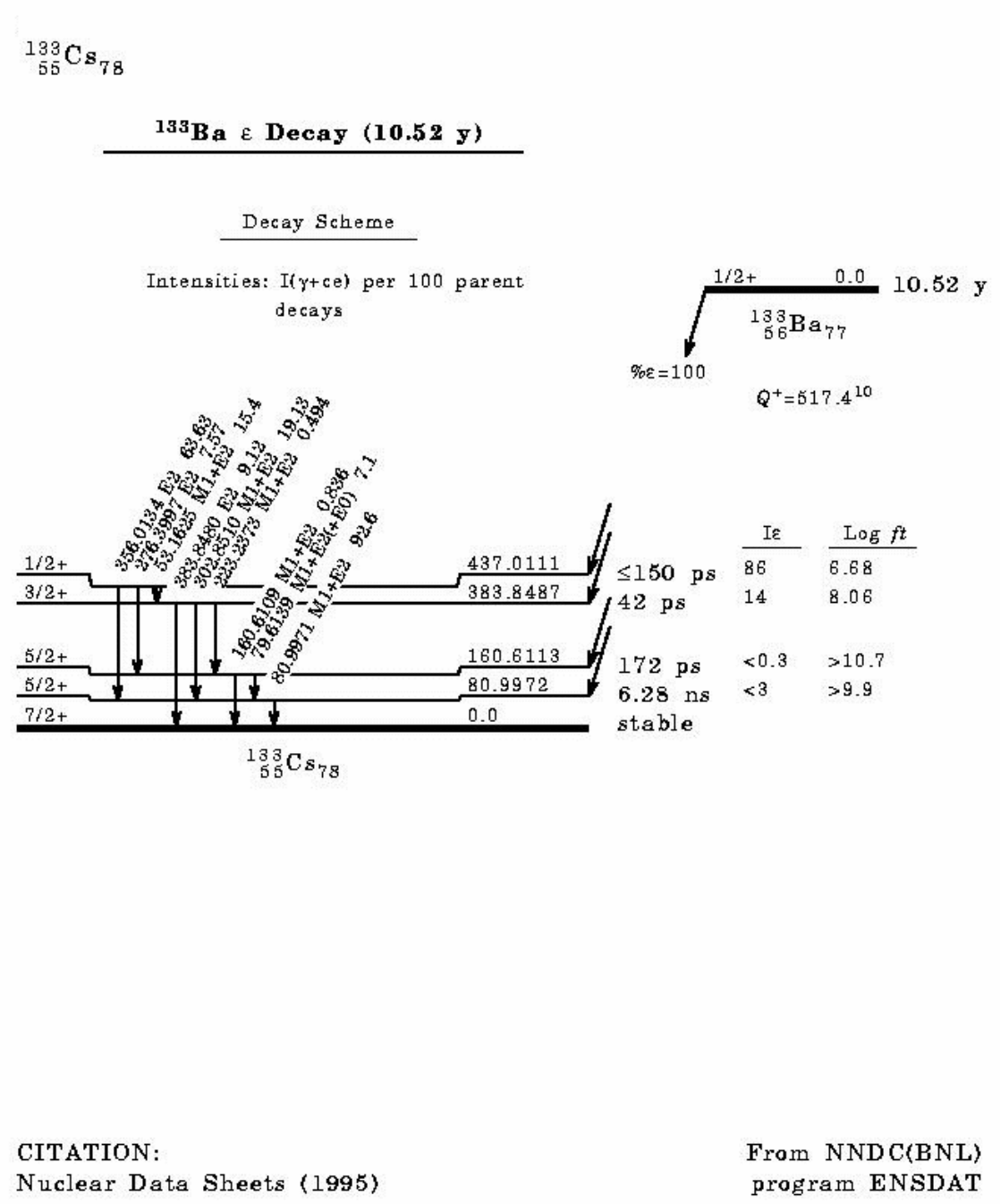
Intensity: I(γ+ce) per
100 parent decays
%IT=94.4 6



CITATION:
Nuclear Data Sheets (1993)

From NNDC(BNL)
program ENSDAT

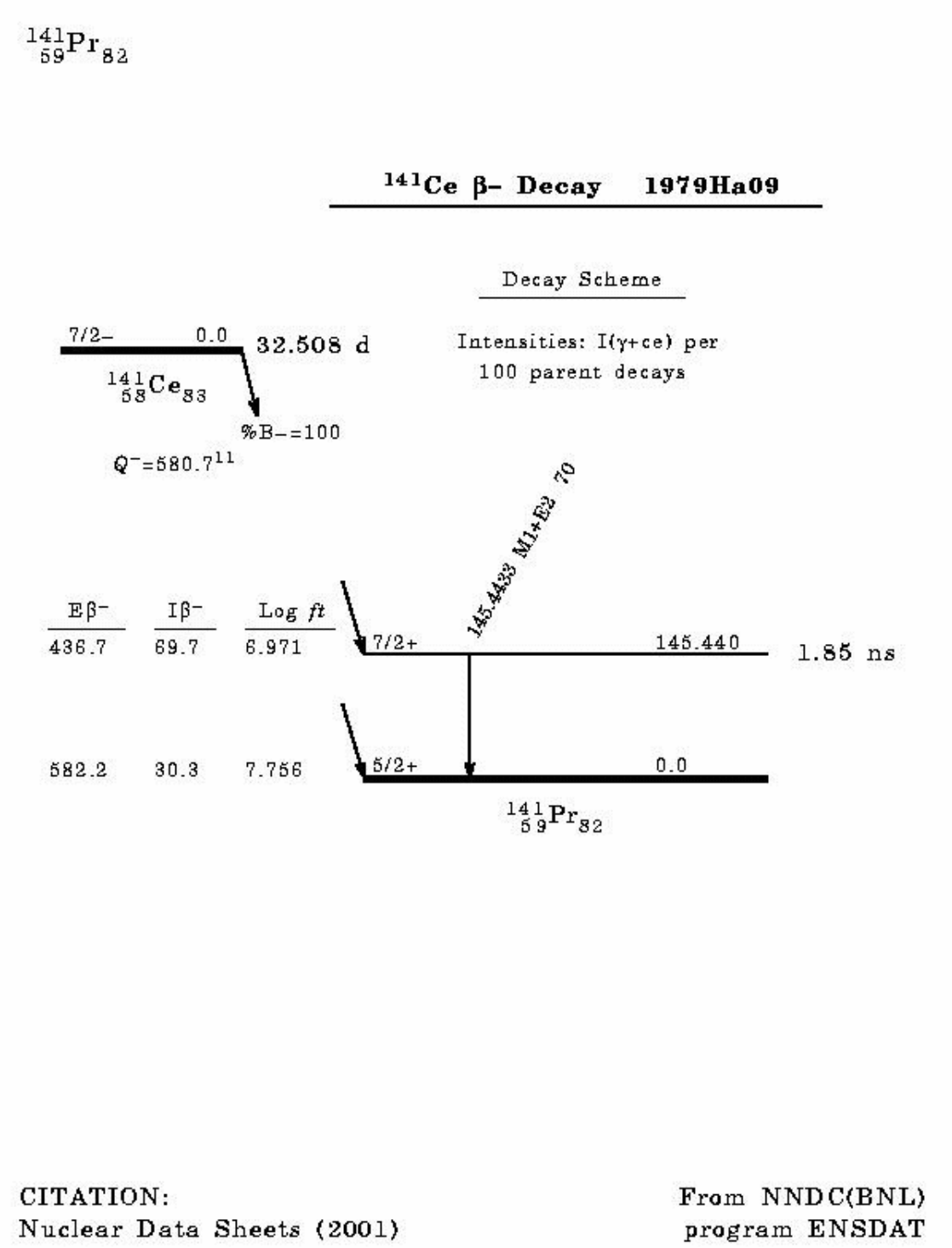
Liite 2c. ^{133}Ba energiatasokaavio



CITATION:
Nuclear Data Sheets (1995)

From NNDC(BNL)
program ENSDAT

Liite 2d. ^{141}Ce:n energiatasokaavio



Liite 3. Näytteiden implantointi- ja mittauspöytäkirja

Tammikuussa 2006 valmistetut näytteet						
NÄYTTEIDEN IMPLANTAATIO						
massa	pvm	start	stop	min	haluttu nuklidi	mittaukset
A = 133	24.1.2006	19:20	21:30	130	^{133m}Xe	RUNIT 1-4
A = 133	27.1.2006	21:10	22:59	109	^{133m}Xe	RUNIT 7-22
MITTAUKSET						
RUN#	PVM (alku)	START	STOP	MIN	NÄYTE/LÄHDE	HUOM.
RUN1	25.1.2006	17:57	19:38	101	^{133}Xe (1.)	
RUN2	26.1.2006	14:32	17:49	197		
RUN3	27.1.2006	10:45	10:55	10		
RUN4		10:56	23:02	726		
RUN5	-	-	-	-	-	häiriöitä
RUN6	-	-	-	-	-	
RUN7	29.1.2006	21:49	9:50	721	^{133}Xe (2.)	
RUN8	30.1.2006	14:22	16:59	157		
RUN9		17:08	22:19	311		ELLI 30 %
RUN10		22:33	12:13	784		
RUN11	31.1.2006	12:14	23:45	691		
RUN12		23:46	11:57	731		
RUN13	1.2.2006	12:00	23:19	679		
RUN14		23:21	11:17	716		
RUN15	2.2.2006	11:18	23:12	714		
RUN16		23:14	11:30	736		
RUN17	3.2.2006	11:31	23:23	712		
RUN18		23:24	11:23	719		
RUN19	4.2.2006	11:24	23:18	714		
RUN20		23:19	11:12	713		
RUN21	5.2.2006	12:08	22:04	596		vain LEGe
RUN22		22:05	10:39	754		
RUN23	7.2.2006	10:29	22:10	701	^{133}Ba	
RUN24		22:19	7:55	576		

Maaliskuussa 2006 valmistetut näytteet						
NÄYTTEIDEN IMPLANTAATIO						
massa	pvm	start	stop	min	haluttu nuklidi	mittaukset
A = 95	15.3.2006	1:29	5:02	213	^{95m}Nb	RUNIT 3, 4
A = 133	15.3.2006	6:05	9:07	182	^{133m}Xe	RUNIT 6, 8, 9
A = 141	17.3.2006	21:56	0:35	159	^{141}Ce	RUNIT 10-17
A = 133	18.3.2006	0:53	3:37	164	^{133m}Xe	
A = 85		16:51	20:00	189	^{85m}Kr	
A = 141	18.3.2006	20:33	22:17	104	^{141}Ce	RUNIT 18, 19
A = 133		22:22	0:18	116	^{133m}Xe	
MITTAUKSET						
RUN#	PVM (alku)	START	STOP	MIN	NÄYTE/LÄHDE	HUOM.
RUN1	13.3.2006	19:01	22:12	191	^{133}Ba	
RUN2		22:27	10:20	713		
RUN3	15.3.2006	9:45	15:41	356	^{95}Nb	
RUN4		16:51	22:15	324		
RUN5	16.3.2006	9:49	10:01	12	^{133}Ba	Lähde LEGen päällä
RUN6		16:00	22:15	375	^{133}Xe	
RUN7					-	häiriöitä
RUN8		22:30	10:20	710	^{133}Xe	
RUN9	17.3.2006	11:15	0:54	819		
RUN10	18.3.2006	23:54	5:15	321	^{133}Xe, ^{141}Ce, ^{85}Kr	
RUN11	19.3.2006	5:15	11:07	352		
RUN12		11:08	19:11	483		
RUN13		19:12	22:11	179		
RUN14		22:12	10:48	756		
RUN15	20.3.2006	10:48	23:21	753		
RUN16		23:21	11:10	709		
RUN17	21.3.2006	11:10	22:13	663		
RUN18	22.3.2006	15:05	22:15	430	^{133}Xe, ^{141}Ce	
RUN19		22:35	10:12	697		
RUN20	23.3.2006	14:27	16:37	130	^{133}Ba	Vain LEGe, lähteen akt. puoli LEGeä päin
RUN21		22:24	22:34	10		Isoreik. näytepidike, häiriöitä
RUN22		23:07	11:12	725		Isoreik. näytepidike
RUN23	24.3.2006	11:41	12:08	27		
RUN24		13:05	13:42	37		Isoreik. näytepidike, madal. CFD kynnys
RUN25		13:47	18:53	306		

Liite 4. Puoliintumisaika-analyyseissä käytetty tietokoneohjelma

```
*formats

 scaler_f[32:39](c1)
 adc1_f[103:104](e1)
!tdc1_f[64:79](t1)

*data

gatemap 1d gamma_gate1[0:4095]
 (1429 1446)
gatemap 1d gamma_gate1_bg1[0:4095]
 (1367 1375)
gatemap 1d gamma_gate1_bg2[0:4095]
 (1500 1508)

! elektroni
gatemap 1d el_gate1[0:4095]
 (1109 1192)
gatemap 1d el_gate1_bg1[0:4095]
 (1067 1108)
gatemap 1d el_gate1_bg2[0:4095]
 (1193 1234)

long minute

*spectra

 scaler[32:39]   65536 32
 history           65536 32
 cycle             65536 32
 gamma_history1    65536 32
 gamma_history1_bg1 65536 32
 gamma_history1_bg2 65536 32
 gamma_history1_dif 65536 32

 el_history1       65536 32
 el_history1_bg1 65536 32
 el_history1_bg2 65536 32
 el_history1_dif 65536 32

!tdc1[64:79]     4096 32
 adc1[103:104]    4096 32

*commands

  createlist fired1 from scaler_f
  createlist fired2 from adc1_f
! createlist fired4 from tdc1_f

  inc scaler($a=fired1.c1) indexed $a
  inc adc1($b=fired2.e1)   indexed $b
! inc tdc1($d=fired4.t1)   indexed $d
```

```
! scaler channel 1: 32,33   not used
! scaler channel 2: 34,35   triggers
! scaler channel 3: 36,37   cycle
! scaler channel 4: 38,39   history

  minute = (scaler_f[38].c1*65536+scaler_f[39].c1)/(60*1000)
  inc history(minute)
  inc cycle(scaler_f[37].c1)

  if adc1_f[104].e1 gatedby gamma_gate1 {
    inc gamma_history1(minute)
    inc gamma_history1_dif(minute)
  }
  else {
    if adc1_f[104].e1 gatedby gamma_gate1_bg1 {
      inc gamma_history1_bg1(minute)
      dec gamma_history1_dif(minute)
    }
    if adc1_f[104].e1 gatedby gamma_gate1_bg2 {
      inc gamma_history1_bg2(minute)
      dec gamma_history1_dif(minute)
    }
  }

  if adc1_f[103].e1 gatedby el_gate1 {
    inc el_history1(minute)
    inc el_history1_dif(minute)
  }
  else {
    if adc1_f[103].e1 gatedby el_gate1_bg1 {
      inc el_history1_bg1(minute)
      dec el_history1_dif(minute)
    }
    if adc1_f[103].e1 gatedby el_gate1_bg2 {
      inc el_history1_bg2(minute)
      dec el_history1_dif(minute)
    }
  }

*runfiles
DISC /home/venla/Xe02/R10_0.gz

*finish
```