

Thorium-232 protoni-indusoidun fission tuottojakauma

Pro gradu -tutkielma, 10.6.2024

Tekijä:

RAMI KORKIAMÄKI

Ohjaaja:

HEIKKI PENTTILÄ



JYVÄSKYLÄN YLIOPISTO
FYSIKAN LAITOS

© 2024 Rami Korkiamäki

Julkaisu on tekijänoikeussäännösten alainen. Teosta voi lukea ja tulostaa henkilökohtaista käyttöä varten. Käyttö kaupallisiin tarkoituksiin on kielletty. This publication is copyrighted. You may download, display and print it for Your own personal use. Commercial use is prohibited.

Tiivistelmä

Korkiamäki, Rami

Thorium-232 protoni-indusoidun fission tuottojakauma

Pro gradu -tutkielma

Fysiikan laitos, Jyväskylän yliopisto, 2024, 92 sivua

Tässä tutkielmassa tutkittiin, kuinka thorium-232 protoni-indusoidun fission fissiotuotot vaihtelevat eri alkuaineilla riippuen siitä, kuinka fissiotuotteet massaerotellaan ja millä menetelmällä fissiotuotot määritetään. Mittaukset tehtiin gammaspektroskopian, lentoaikamassaerottimen (MR-TOF) ja JYFLTRAP Penningin loukun avulla massaluvuille $A=80, 86, 100, 104, 110, 124$ ja 136 . Menetelmien antamia suhteellisia fissiotuottoja vertailtiin massaluvuittain.

Lisäksi MR-TOF:lla määritettiin suhteelliset riippumattomat isotooppiset fissiotuottojakaumat niobiumille, molybdeenille, teknetiumille, ruteniumille, rodiumille ja palladiumille massaluvuissa $A=103-112$. Näiden jakaumien arvoja vertailtiin aiemmin myös JYFLTRAP:lla mitattuihin fissiotuottoihin.

Eri menetelmien välillä ei havaittu olevan suurta vaikutusta suhteellisia fissiotuottoja tarkastellessa. Menetelmien väliset erot ovat enimmäkseen luotettavuusarvojen sisällä. Poikkeuksena tähän ^{80}As ja ^{136}Te , joiden mitatut tuotot näyttäisivät olevan huomattavasti vähäisempiä MR-TOF:lla ja JYFLTRAP:lla mitatessa. MR-TOF:n ja JYFLTRAP:n suhteellisten riippumattomien isotooppisten fissiotuottojen välillä ei myöskään havaittu erityisen suuria eroja.

Avainsanat: Fissio, fissiotuottojakauma, MR-TOF

Abstract

Korkiamäki, Rami

Thorium-232 proton induced fission yield distribution

Master's thesis

Department of Physics, University of Jyväskylä, 2024, 92 pages.

In this thesis we studied how the fission yields of thorium-232 proton-induced fission vary with different elements depending on how the fission products are mass separated and which method is used to determine the fission yields. Measurements were done using gamma spectroscopy, multi-reflection time-of-flight mass separator (MR-TOF) and JYFLTRAP Penning's trap for mass numbers of $A=80, 86, 100, 104, 110, 124, 136$. The relative fission yields given by the methods were compared within each of the measured mass number.

Additionally, MR-TOF was used to determine the relative independent isotopic fission yield distributions for niobium, molybdenum, technetium, ruthenium, rhodium and palladium for mass numbers $A=103-112$. These distributions were compared to previously measured fission yields obtained using JYFLTRAP.

No significant impact was found between the different methods when examining the relative fission yields. The differences between the methods mostly fall within the reliability margins. An exception to this are ^{80}As and ^{136}Te , whose measured yields appear to be significantly lower when measured with MR-TOF and JYFLTRAP. No particular large differences were observed between the relative independent isotopic fission yields of MR-TOF and JYFLTRAP.

Keywords: Fission, fission yield distribution, MR-TOF

Esipuhe

Erittäin isot kiitokset ohjaajalleni Heikki Penttilälle tutkielman aiheesta, säännöllisistä tapaamisista ja tuesta koko prosessin aikana. Osasit vastata kysymyksiini ennemmin kuin ehdin kysyä niitä, ja selventää asioita, joita en olisi edes osannut kysyä. Kiitos myös IGISOL tutkimusryhmälle mittauksien tekemisestä, ja erityisesti Ville Virtaselle ja Andrea Raggiolle avusta datan käsittelyn kanssa. Lisäksi lämpimät kiitokset kaikille läheisilleni ja kavereilleni tuesta opiskeluiden aikana, ilman teitä en olisi selvinnyt näistä vuosista. Nyt vain avoimin mielin kohti tulevaa, mitä vastaan tuleekaan.

Jyväskylässä 9. kesäkuuta 2024

Rami Korkiamäki

Sisällys

Tiivistelmä	3
Abstract	5
Esipuhe	7
1 Johdanto	11
2 Teoreettinen tausta	13
2.1 Fissio	13
2.2 Fissiotuotot	15
2.3 Fissiotuottojen mallinnus	16
2.4 Fissiotuottojen kokeellinen määrittäminen	18
3 Kokeelliset menetelmät ja aineisto	23
3.1 IGISOL	23
3.2 MR-TOF	27
3.3 Hajoamisspektroskopia	29
3.4 JYFLTRAP	31
3.5 Mittaukset	33
3.5.1 Isobaaristen tuottojen mittaus	33
3.5.2 Riippumattomat isotooppiset tuottomittaukset	37
4 Analyysi	39
4.1 MR-TOF-spektrien analyysi	39
4.2 Gammaspektrien analyysi	43
5 Tulokset	51
5.1 Isobaarijakaumat (Z-jakaumat)	51
5.2 Riippumattomat isotooppiset fissiotuotot	59

6 Päättäntö	67
Lähteet	68
A MR-TOF- mittaustulokset	75
B Gammamittausten mittaustulokset	83

1 Johdanto

Fission tuotteiden jakaumien tunteminen on erittäin tärkeää fission prosessin ymmärtämisen kannalta. Tutkimalla fission tuotteita saadaan selville, miten fission tapahtuu ja kuinka prosessi etenee. Mittausten pohjalta voidaan kehittää malleja, joilla voidaan kuvata fission sellaisille reaktioille, joita ei tunneta kokeellisesti.

Fission tuottojakaumien tuntemisella on käytännöllistäkin merkitystä. Esimerkiksi ydinreaktorien suunnittelun ja turvallisuuden kannalta on tärkeää tunkea fission tuottojakauma. Polttoaineen fission tuotossa muodostuu paljon erilaisia isotooppeja, joilla on hyvin eripituisia puoliintumisaikoja. Näiden isotooppien radioaktiivisissa hajoamisissa vapautuu paljon haitallista säteilyä. Tuntemalla fission reaktion jakauma voidaan optimoida reaktorin toimintaa ja vähentää radioaktiivisen jätteen muodostumista.

On tärkeää myös säteilyn-, päästöjen- ja ydinasevalvonnan kannalta tunkea fission tuotteiden jakauma. Tuntemalla jakauma voidaan arvioida aiheutuvan säteilyn määrää ja sen tuottamia terveysriskejä. Tämän perusteella voidaan suunnitella tarpeellisia suojaus- ja jatkotoimenpiteitä, jotta säteilystä aiheutuisi mahdollisimman vähän haittaa ihmisille ja luonnolle. Tutkimalla jakaumaa voidaan myös päätellä mistä fission tuotteet ovat peräisin. Eri reaktiot muodostavat erilaisia jakaumia, jolloin voidaan selvittää, ovatko fission tuotteet tulleet esimerkiksi reaktorista vai ydinräjähdyksessä, ja mikä fission tuotettava aine on kyseessä. Lisäksi jakauman avulla voidaan selvittää esimerkiksi, kuinka kauan sitten mahdollinen ydinräjähdys on tapahtunut.

Tässä tutkielmassa tutkitaan thorium-232:n 25 MeV protonilla indusoidun fission tuottojakaumaa. Kyseinen reaktio valittiin siksi, koska samaa reaktiota on tutkittu aikaisemmin JYFLTRAP:ia käyttäen [1]. Aikaisemmissa mittauksissa oli kuitenkin puutteita, joita haluttiin täydentää. Käyttäen samaa reaktiota voidaan myös vertailla uusia tuloksia vanhempiin.

Mittaukset suoritettiin gammaspektroskopialla ja lentoaikaerotinta (MR-TOF) käyttäen. Näiden lisäksi hyödynnetään aiemmin tehtyjen JYFLTRAP-mittausten tuloksia. Eri menetelmillä mitattuja fission tuotteita voidaan vertailla keskenään, jolloin saadaan selville, missä määrin käytetty mittausmenetelmä vaikuttaa eri alkuaineiden havaittuihin fission tuotteisiin. Tuottomittaukset voidaan tehdä useassa paikassa

IGISOL-laitteiston mittausalueella. Fission tuotteet erotellaan yhä hienostuneemmillä menetelmillä massan perusteella. Työssä pyrittiin selvittämään, muuttavatko lajittelumenetelmät havaittua tuottojakaumaa.

Tutkielman alussa käydään läpi ensin fission teoriaa. Myöhemmin teoriaosuudessa käsitellään fission tuotteita ja sitä, kuinka niitä voidaan mallintaa, ja kuinka fission tuotteita voidaan määrittää kokeellisesti. Tämän jälkeen esitellään mittauksissa käytettyjä laitteistoja ja niiden toimintaperiaatteita. Lopuksi käsitellään mittausdatan analyysimenetelmiä ja niistä saatuja tuloksia. Saatuja tuloksia vertaillaan eri menetelmien välillä ja aikaisemmin mitattuihin tuloksiin.

2 Teoreettinen tausta

2.1 Fissio

Fissio on ydinreaktio, jossa ydin hajoaa tyypillisesti kahdeksi pienemmäksi ytimeksi. On kuitenkin mahdollista, että ydin hajoaa useampaan osaan, jolloin puhutaan ternaarisisesta tai kvartaarisesta fissiosta [2]. Näissä tapauksissa muodostuu kahden keskiraskaan ytimen lisäksi jokin pieni ydin, kuten alfahiukkanen.

Fissiossa muodostuneet ytimet ovat aina viritystilassa [3]. Viritykset voivat purkautua neutroni- tai ftoniemissiolla. Neutroniemissio on mahdollinen, jos viritysenergia on neutronin sidosenergiaa suurempi. Tällöin se on myös vallitseva reaktio virityksen purkautumiselle, sillä neutroniemissio on huomattavasti ftoniemissiota nopeampi. Fissiotuotteen saavuttaessa perustilansa, se on useimmiten edelleen radioaktiivinen, ja beetahajoaa kohti stabiileja ytimiä. Fissiossa syntyy suoraan myös stabiileja ytimiä, mutta niiden osuus on hyvin pieni. On myös mahdollista, että fissioreaktiossa vapautuvat neutronit aiheuttavat ketjureaktion uusia fissioita. Se, mitä fissioreaktiossa syntyy, riippuu myös siitä, miten fissioituva ydin on muodostunut.

Fissio voidaan indusoida esimerkiksi neutronin tai protonin avulla, tai se voi tapahtua spontaanisti. Fission tapahtumiseksi ytimen täytyy ylittää niin sanottu fissiovalli. Fissiovalli on potentiaalienergiavalli, joka on ytimen muodon funktio. Jokaiseen ytimen muotoon liittyy tietty potentiaalienergia. Perustilassa olevan ytimen muoto vastaa potentiaalienergian minimiä. Fissiossa tapahtuu muodonmuutosten ketju, joka johtaa ytimen perustilan muodosta fissiofragmenttien muodostumiseen ja niiden erkanemiseen. Aluksi potentiaalienergia kasvaa, kunnes saavutetaan potentiaalienergian huippu, niin sanottu satulapiste. Satulapisteen jälkeen potentiaalienergia pienenee, kun muodostuvat fragmentit etäännyvät toisistaan, kunnes ne irtoavat toisistaan skissioksi kutsutussa kohdassa. Fissio etenee deformaatioavaruudessa sitä reittiä, jolla potentiaalienergian kasvu on pienin, siis eräänlaista potentiaalisolan pohjaa pitkin. Fissiovalli on potentiaalienergiavalli tätä reittiä pitkin, jota ei kuitenkaan ole mahdollista kuvata vain yhdellä deformaatioparametrilla. Spontaanissa fissiossa ydin hajoaa ilman ulkopuolisten hiukkasten vaikutusta todennäköisyyteen

perustuen. Spontaania fissiota voidaan kuvata tunneloitumisena fissiovallin läpi [3]. Spontaani fissio on yleisesti todennäköisempi mitä raskaammasta ytimestä on kyse.

Hiukkasella indusoidussa fissiossa ammuhiukkanen ja kohtioydin sulautuvat yhdeksi raskaammaksi väliyttimeksi, joka fissioituu reaktiossa saamansa virityksen turvin. Virityksen energiaa voidaan kuvata massakeskipistekoordinaatistossa yhtälöllä

$$E = B_k + E_a - B_v, \quad (1)$$

missä B_k on kohtioytimen sidosenergia, E_a on ammuksen energia ja B_v on muodostuneen väliytimen sidosenergia. Tässä sidosenergiat ovat negatiivisia.

Fission todennäköisyys riippuu virityksen suuruudesta. Mitä lähempänä väliytimen virityksen energia on potentiaalienergiavallin huippua, sitä todennäköisemmin fissio tapahtuu [3]. Virityksen energia ei tarvitse olla fissiovallin huippua korkeampi, vaan fissio voi mennä loppuun tunneloitumalla. Virityksen turvin se on helpompaa kuin spontaanissa fissiossa.

Joillakin ytimillä, kuten esimerkiksi fissiileillä ytimillä ^{235}U ja ^{239}Pu , fissio tapahtuu, vaikka indusoivan hiukkasen liike-energia on oleellisesti nolla. Fissioon tarvittava virityksen energia saadaan vapautuvasta sidosenergiasta.

Väliytimen muodostumistodennäköisyys riippuu vahvasti ammuhiukkasen energiasta. Neutroni-indusoidussa fissiossa matalaenergisien neutronien sieppaustodennäköisyys kasvaa, kun neutronin energia pienenee. Suurienergisien neutronien tai protonien tapauksessa käy päinvastoin. Väliytimen muodostuminen ei kuitenkaan takaa fission tapahtumista, vaan siihen liittyy omat todennäköisyytensä. Fissio kilpailee neutroniemission ja gammaemission kanssa, jolloin virityksen suuruus on vaikuttava tekijä siihen, miten väliydin hajoaa [3].

Fissio voidaan kuvata tapahtuvan eri fissiokanavia pitkin [4]. Nämä kanavat, joita sanotaan myös moodeiksi tai Brosan moodeiksi, vastaavat muodostuvia fissiofragmenttipareja, joista jotkin ovat todennäköisempiä muodostua kuin muut. Suosituimpien, eli keskimääräistä todennäköisemmin muodostuvien, fragmenttien viereiset fragmentit ovat myös suosituimpia. Tämä johtuu siitä, että niiden ominaisuudet ovat samankaltaisia, jolloin ne voidaan niputtaa omiin ryhmiinsä. Näistä ryhmistä, eli kanavista, käytetään nimityksiä S1 (standard 1), S2 (standard 2), SL (super-long), SS (super-short) ja SA (super-asymmetric) [5], [6]. S1, S2 ja SA ovat asymmetrisiä moodeja, eli toinen muodostuvista ytimistä on isompi. Vastaavasti

SL ja SS ovat symmetrisiä moodeja, eli muodostuvat ytimet ovat samankokoisia. SL-moodissa ytimien välillä on pitkä kaula, kun taas SS-moodissa kaula on lyhyt. Nämä moodit voidaan erottaa toisistaan kokonaisliike-energian perusteella, joka on SS-moodissa paljon suurempi kuin SL-moodissa.

Ennen kuin fissioituva ydin halkeaa, ytimen viritysendergia jakautuu fragmenttien välillä [4]. Fragmenttien saama energia riippuu niiden lämpötilasta, joka ytimien tapauksessa on kääntäen verrannollinen massalukuun [7]. Tällöin raskaampi fragmentti on kylmempi ja se saa suuremman osan viritysendergiasta. Ytimen halkeamisen, eli skission, jälkeen fragmenteilla on omat viritysendergiansa. Fragmenttien viritysendergian kokonaismäärä riippuu siitä, miten paljon energiaa fission vapautuu ja mikä osuus energiasta menee fragmenttien kineettiseksi energiaksi. Se, mikä ei mene kineettisiin energioihin, menee fragmenttien viritysendergiaksi. Tämä viritysendergia purkautuu fragmenteista ensiksi neutroniemissioiden kautta, kunnes viritysendergia on neutronin sidosenergiaa pienempi, jonka jälkeen purkautuminen tapahtuu gammaemission kautta [3]. Näiden emissioiden jälkeen muodostuneiden ytimien jakaumaa kutsutaan riippumattomaksi fissiotuotoksi. Useimmat muodostuneet ytimet ovat vielä kuitenkin radioaktiivisia ja beetahajoavat, kunnes lopulta muodostuu stabiili ydin.

2.2 Fissiotuotot

Fissiotuotot voidaan ilmoittaa usealla eri tavalla. Yleisimmin puhutaan fission riippumattomista ja kumulatiivisista tuotoista [8]. Riippumaton tuotto kertoo sen, kuinka paljon mitäkin tiettyä isotooppia muodostuu suoraan fissiosta, ennen kuin beetahajoaminen alkaa. Kumulatiivinen tuotto puolestaan kertoo sen, kuinka paljon mitäkin isotooppia on muodostunut sekä suoraan fissiosta, että radioaktiivisten hajoamisten seurauksena. Kumulatiivisten tuottojen perusteella voidaan selvittää riippumaton tuotto.

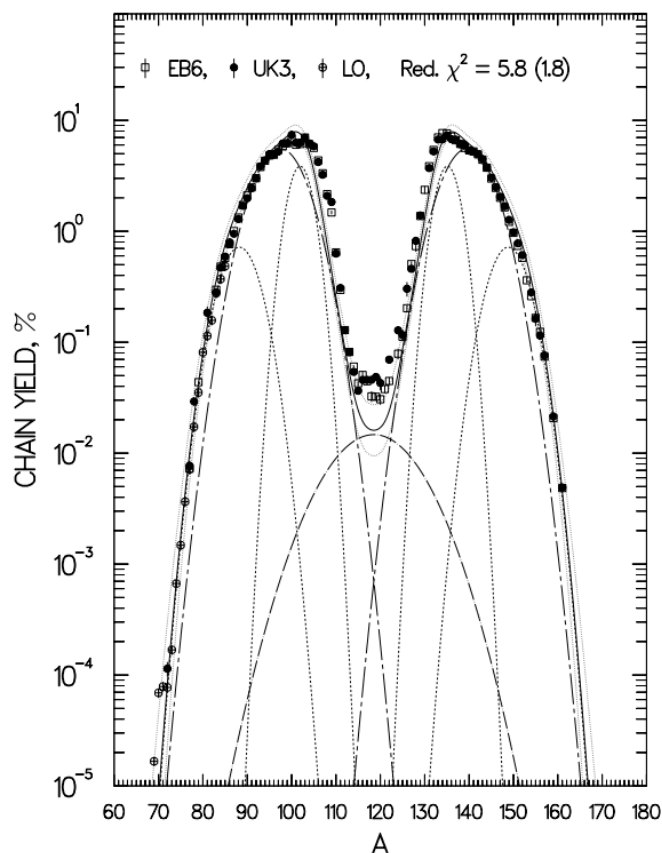
Näiden tuottojen lisäksi voidaan puhua hajoamisketju-, massaluku- ja alkuainetuotoista [8]. Hajoamisketjutuotto on se kumulatiivinen tuotto, mikä kertyy hajoamisketjussa viimeiselle, stabiilille isotoopille. Massalukutuotto puolestaan saadaan summaamalla tietyn massaluvun isotooppien riippumattomat tuotot yhteen, jolloin saadaan selville, kuinka fissiotuotteet jakautuvat massaluvuittain. Hajoamisketju- ja massalukutuotot ovat lähes yhtä suuret, mutta hajoamisketjutuotto voi sisältää useampaa eri massalukua, jos hajoamisketju etenee viivästyneiden neutroniemissioi-

den kautta. Alkuainetuotto saadaan summaamalla kaikki saman alkuaineen isotooppien riippumattomat tuotot, jolloin saadaan selville, miten fissiotuotteet jakautuvat alkuaineittain.

2.3 Fissiotuottojen mallinnus

Fission tuottojakaumia voidaan mallintaa useilla erilaisilla malleilla. Mikroskooppinen lähestymistapa fissioprosessiin ja fissiotuottojen mallintamiseen on esitetty esimerkiksi artikkelissa [9]. Tässä ”Randrupin mallissa” ytimen muoto on kuvattu kuudella dimensiottomalla parametrilla. Näistä yhden arvo kiinnittyy, kun viiden muun parametrin arvo tunnetaan, jolloin ytimen muotoa voidaan varioida viisiulotteisessa avaruudessa. Alkuperäisessä artikkelissa [9] tämä avaruus oli rajoitettu viisiulotteiseen hilaan, jossa oli 5 315 625 hilapistettä. Tässä mallissa ytimen muotoa muuttavat voimat ovat ”potentiaalienergia”, joka on systeemin pyrkimys kohti potentiaalienergian minimiä, kitkavoima, joka vastustaa systeemin muutosta, sekä tilastollisesti satunnainen jäännösvoima. Jäännösvoiman aikajakauman oletetaan noudattavan Markovin prosessin statistiikkaa. Näillä oletuksilla fissioituvan ytimen muotoa kuvaa Smoluchowskin liikeyhtälö, joka kuvaa Brownin liikettä, eli mikroskooppisten hiukkasten satunnaisliikettä. Ytimen muoto siis muuttuu satunnaisesti, mutta ei sattumanvaraisesti. Randrupin mallissa ytimen muodon muutos tapahtuu ”satunnaisesti” vierekkäisten tilapisteiden välillä. Satunnaisuutta ohjaa kuitenkin ”potentiaalienergia”, joka on ytimeen muotoon liittyvä potentiaalienergian gradientti. Tämä voima kasvaa, kun potentiaalienergiapinta jyrkkenee, ja pyrkii siis ajamaan systeemiä kohti potentiaalienergian minimiä. Tarkempi kuvaus Randrupin mallista löytyy viitteistä [9], [10] ja ytimen muodon parametrisoinnista viitteestä [11]. Randrupin mallin kaltaisten lähtökohtaisesti mikroskooppisten mallien tarkkuus ei ole kuitenkaan vielä samalla tasolla empiiristen mallien kanssa [4].

Empiiristen mallien esikuvana on Wahlin malli [12], jonka systematiikkaan moni muu fissiotuottomalli perustuu. Wahlin malli on empiirinen malli, jossa sovitetaan useita gaussisia funktioita kokeelliseen dataan tuottojakauman muodostamiseksi. Kyseisessä mallissa gaussisten funktioiden parametrit (leveys, korkeus ja sijainti) määritetään fissioituvan ytimen protoniluvun ZF , massaluvun AF ja virityksenenergian PE funktiona kullekin fissioreaktiolle. Sovittamalla kokeelliset parametrit pienimmän neliösumman menetelmän avulla voidaan laskea fissiomoodeja vastaavien gaussin käyrien leveys, korkeus ja sijainti myös sellaisille fissioreaktioille, joita ei kokeellisesti



Kuva 1. Massalukujakauma ^{239}Pu termiselle fissiolle. Kokeellisiin datapisteisiin sovitettuna seitsemän gaussista funktiota. Kuva lähteestä [12].

tunneta [12]. Kuvassa 1 on esimerkkinä ^{239}Pu termisen fission massalukujakauma. Kuvassa näkyy kokeelliset datapisteet ja seitsemän sovitettua gaussista funktiota. Jakaumat ovat komplementaarisia siten, että kevyin jakauma on yhtä leveä ja korkea raskaimman jakauman kanssa, ja niiden keskiarvojen summa vastaa fissioituvan ytimen massalukua. Vastaavasti muilla jakaumilla on omat komplementaariset jakaumat. Keskimäinen jakauma on komplementaarinen itsensä kanssa, voidaan siis kuvitella sen koostuvan kahdesta täysin päällekkäisestä jakaumasta. Jos jokin fissiossa muodostunut ydin sijaitsee jakauman kevyellä puolella, sitä vastaava ydin löytyy toisen jakauman raskaalta puolelta. Fissionuotolle voidaan tehdä myös vastaavasti Z-jakaumat.

2.4 Fissiotuottojen kokeellinen määrittäminen

Fissiotuottoja voidaan mitata useilla eri menetelmillä. Perinteinen tapa tuottojen selvittämiseksi on tutkia niitä gammaspektroskopian avulla [4]. Tämä tapahtuu mittamalla fissiotuotteiden beetahajoamista seuraavaa gammasäteilyä. Beetahajoamisessa muodostunut tytärudin päätyy diskreeteille vitystiloille, joiden purkautuessa vapautuu aina saman energian omaavia gammafotoneita, jotka voidaan tunnistaa. Lähes kaikilla beetahajoavilla fissiotuotteilla on omanlaisensa gammafotonien energioiden ja niitä vastaavien gammapiikkien intensiteettien muodostama spektri. Poikkeuksen tähän muodostavat ne isotoopit, joiden beetahajoaminen tapahtuu perustilojen välillä. Tällöin gammafotoneita ei tietenkään emitoidu. Gammaspektrien analysoinnista saadaan selville isotoopin kumulatiivinen tuotto, sillä mittauksen aikana isotooppia tuotetaan sekä suoraan fissiosta, että beetahajoamisketjun kautta neutronirikkaamista fissiotuotteista.

Toinen tapa tuottojen selvittämiseen on tutkia niitä massaspektroskopian avulla. Klassisessa massaspektroskopiassa fissiotuotteet erotellaan toisistaan massa-varaus suhteensa perusteella magneettisesti ja/tai sähköisesti. Jotta fissiotuotteita voidaan tutkia massaspektroskopisesti, täytyy tuotteet ensin ionisoida ja kiihdyttää jännitteen avulla. Esimerkkinä tällaisesta on menetelmä, jolla tutkittiin rubidiumin ja cesiumin riippumattomia tuottoja ^{238}U nopeilla neutroneilla indusoidussa fissiossa [13]. Menetelmässä käytettiin suojaamatonta nopeaa reaktoria (Godiva IV), joka koostuu noin 65 kilogrammasta erittäin rikastettua ^{235}U :a. Alun perin vuonna 1967 rakennettu reaktori on edelleen käytössä [14]. Reaktorilla voidaan tuottaa 10^{17} neutronin purkauksia 30 mikrosekunnin välein. Näillä neutroneilla indusoiitiin fissio kohtiossa, jossa oli noin 300 milligrammaa erittäin puhdasta ^{238}U :a. Fissiotuotteet ionisoitiin kuumalla pinnalla ja kiihdytettiin jännitteen avulla kohti itsefokusoivaa dipolimagneettia, joka erotteli ionit massoittain. Fissiotuotteet kerättiin levyille, joka leikattiin osiin eri massaisten tuotteiden väleistä. Näistä levyjen osista mitattiin beetahajoamisten aktiivisuutta usean päivän ajan isotooppien suhteellisten tuottojen selvittämiseksi.

Luvussa 3 käydään tarkemmin läpi, miten fissiotuottoja voidaan mitata massaspektroskopian avulla IGISOL:n tapauksessa.

Erikoisempia tapauksia massaspektroskopiasta ovat suoran kinematiikan menetelmät [4], joissa fissiotuotteita ei erikseen ionisoida ja kiihdytetä, vaan niiden varaukset ja liike-energiat määräytyvät täysin fissioreaktiosta. Fissiossa vapautuu energiaa si-

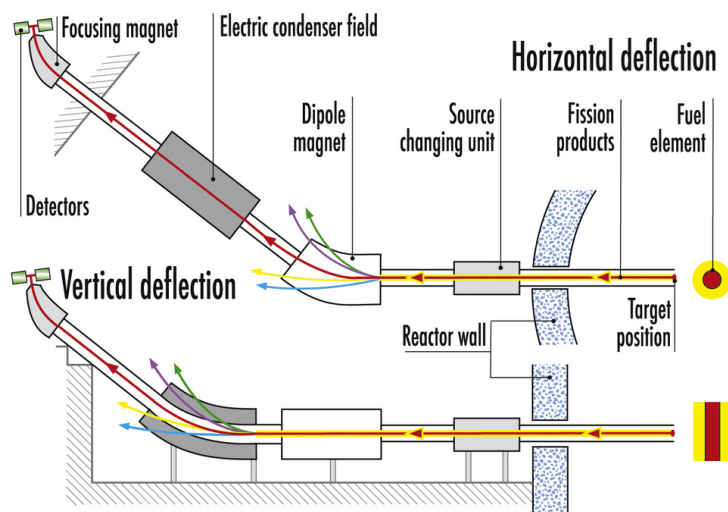
dosenergian muutoksen verran. Tästä energiasta suurin osa menee fissiofragmenttien liike-energiaksi. Liikemäärän säilyminen määrää sen, miten liike-energia jakautuu fragmenttien välillä. Symmetrisessä fissiossa fragmentit saavat yhtä paljon energiaa, kun taas epäsymmetrisessä fissiossa kevyen fragmentin energia E_k on massojen suhteessa suurempi kuin raskaan fragmentin energia E_r . Energioiden suhdetta kuvaa yhtälö

$$E_k = \frac{M}{m} E_r, \quad (2)$$

missä M on raskaan ja m kevyen fragmentin massa. Vaikka kaikkien eroteltavien fragmenttien liike-energia ei ole sama, kuten IGISOL:lla (luku 3.1) tai Godiva IV:llä tehdyssä kokeessa [13], se muuttuu tasaisesti fragmentin massan funktiona niin, että fissiorekyyliit voidaan magneettisesti erotella toisistaan.

Eräs laite, joka käyttää suoraa kinematiikkaa fissiotuottojen selvittämiseen on Grenoblessa Institut Laue-Langevin (ILL) tutkimusreaktorilla sijaitseva LOHENGRIN (kuvassa 2) spektrometri [15]. Spektrometrin kohtio sijaitsee reaktorin sisällä ja ulos lentävät tuotteet lajitellaan magneettisen ja sähköisen deflektorin avulla. Kohtio on erittäin ohut, jolloin reaktion kinematiikka määrää fissiotuotteiden liike-energian, eikä se, miten syvällä kohtiossa fissio tapahtuu. Fissiotuotteiden suuntajakauma termisessä fissiossa on isotrooppinen. Tiukalla kollimoinnilla (avaruuskulma kohtiosta dipolimagneetin suuntaan pääseville fissiotuotteille on pienempi kuin $3,2 \times 10^{-5}$ sr [16]) dipolimagneetille saapuvien fissiotuotteiden suihku saadaan riittävän yhden-suuntaiseksi. Dipolimagneetti lajittelee suihkun liikemäärä-varaussuhteen perusteella. Liikemäärä riippuu lähinnä fissiotuotteen massasta, joten magneettinen erottelu perustuu $\frac{m}{q}$ -suhteeseen. Dipolimagneetin jälkeen suihku lajitellaan sähködipolilla energia-varaussuhteen perusteella. Koska kaikilla fissiotuotteilla on likimain samanlainen energia, tällä valitaan eri $\frac{m}{q}$ -suhteesta tietyn varaustilan ionit ja samalla kiinnittyy läpi pääsevien ionien massa m . Lopulta suihku keskitetään fokusoivan dipolimagneetin avulla ja fissiotuotteiden protoniluku voidaan tunnistaa ionisaatiokammion avulla. Laitteen vahvuus on sen kyky mitata lyhytikäisiä isotooppeja lyhyen lentomatkan ansiosta. Toisaalta mittaukset täytyy tehdä useilla eri asetuksilla, sillä fissiotuotteet saavat jakauman eri varaustiloja, jolloin isotooppien massa-varaus suhteet vaihtelevat. Tällöin eri mittausten jakaumat täytyy summata yhteen. Laitteiston rajoitusten vuoksi riippumattomat tuottomittaukset voidaan toteuttaa vain kevyille tuotteille [4].

VERDI (VELOCITY foR Direct particle IDENTIFICATION) [18] ja FALSTAFF (FOUR



Kuva 2. LOHENGRIN laitteiston kuva. Kuva lähteestä [17].

Arm cLover for the Study of Actinide Fission Fragment) [19] ovat myös eräänlaisia suoran kinematiikan spektrometrejä. Kummallakin mitataan vastakkaisiin suuntiin lentävien fissionfragmenttien lentoaika ja kineettinen energia yhtäaikaaisesti.

VERDI-spektrometrissä fragmentit lentävät kohtion lähellä olevan ohuen kalvon läpi. Fragmentti menettää tässä kineettistä energiaansa ja kalvo emittoi elektroneja, jotka kiihdytetään ja ohjataan mikrokanavalevyille (microchannel plate, MCP). Kalvolta saatava elektronipulssi toimii lentoaikamittauksen aloituspisteenä. Fragmentti jatkaa matkaansa pii-ilmaisinyhmälle, joka toimii lentoaikamittauksen loppupisteenä ja mittaa fragmentin kineettisen energian. [18]

FALSTAFF-spektrometrissä fragmentit lentävät kahden kalvon läpi, jotka toimivat alku- ja loppupisteinä lentoaikamittauksille, emittoituvat elektronit ohjataan MWPC-ilmaisimille (multi-wire proportional chamber). Kalvojen jälkeen fragmentti pysäytetään ionisaatiokammioon, jolla saadaan selville fragmentin kineettisen energian suuruus. Lentoaikojen perusteella saadaan selville fragmenttien nopeudet, joiden avulla voidaan selvittää fragmenttien massat ennen neutronien emissiota, olettaen nopeuksien pysyvän muuttumattomana neutroniemissiassa. Kineettisen energian ja nopeuden avulla puolestaan saadaan selville fragmenttien massat neutronien emittoitumisen jälkeen. Näillä tiedoilla on mahdollista selvittää myös neutronimultiplisiteetti (neutron multiplicity) massan funktiona, jolloin saadaan tietoa energian jakautumisesta fragmenttien välillä skissiossa. [19]

Fissionuottoja voidaan mitata myös käänteisen kinematiikan avulla. Käänteisessä

kinematiikassa [20] raskas ydin toimii ammusytimenä, jolloin fissioituva ydin saa suuren kineettisen energian, joka säilymlakien nojalla päätyy fissiofragmenttien kineettiseksi energiaksi. Tämän avulla erittäin lyhytikäisten ytimien fissioreaktioiden tutkiminen helpottuu, kun muodostuneet fissiofragmentit ja emittoituvat neutronit lentävät suihkun suuntaisesti. Käänteisen kinematiikan menetelmiä ei käsitellä tämän tarkemmin tässä tutkielmassa.

3 Kokeelliset menetelmät ja aineisto

3.1 IGISOL

”Isotope-separator on-line” (ISOL) massaerotinlaitteistojen tarkoitus on lajitella ydinreaktioissa syntyvät isotoopit toisistaan massan perusteella. Tyypillisesti tämä tapahtuu magneettisella separoinnilla magneettiseen Lorentzin voimaan perustuen, jota voidaan kuvata yhtälöllä

$$\vec{F} = q\vec{v} \times \vec{B}, \quad (3)$$

missä q on ionin varaus, \vec{v} on ionin nopeus ja \vec{B} on magneettikentän magneettivuon tiheys. Kun kyseessä on homogeeninen magneettikenttä, joka on kohtisuorassa ionisuihkun etenemissuuntaa vastaan, ioni kulkee ympyrärataa, jonka keskihakuvoima Lorentzin voima on. Tällöin voidaan kirjoittaa yhtälö

$$F_a = qvB = \frac{mv^2}{\rho}, \quad (4)$$

missä F_a on keskihakuvoima, m on ionin massa ja ρ on ympyräradan säde. Tästä seuraa, että

$$\rho = \frac{mv^2}{qvB} = \frac{mv}{qB}. \quad (5)$$

Jos kaikilla ioneilla on sama varaus ja nopeus, ratasäde ρ on suoraan verrannollinen ionin massaan. Useimmiten ionit kiihdytetään samalla jännitteellä U , jolloin niiden energia on varauksen mukaan Uq . Kiihdytysjännite on niin pieni, kymmeniä kilovoltteja, että ionien liike-energia voidaan kuvata klassisesti yhtälöllä

$$Uq = \frac{1}{2}mv^2, \quad (6)$$

josta saadaan nopeudelle

$$v = \sqrt{\frac{q}{m}}\sqrt{2U}. \quad (7)$$

Tällöin yhtälö 5 voidaan kirjoittaa muotoon

$$\rho = \sqrt{\frac{m}{q}} \frac{\sqrt{2U}}{B}. \quad (8)$$

Tästä nähdään, että ratasäde on verrannollinen massan neliöjuureen. Jos ioneilla voi olla eri varaustiloja täytyy tarkastella suhdetta $\frac{m}{q}$.

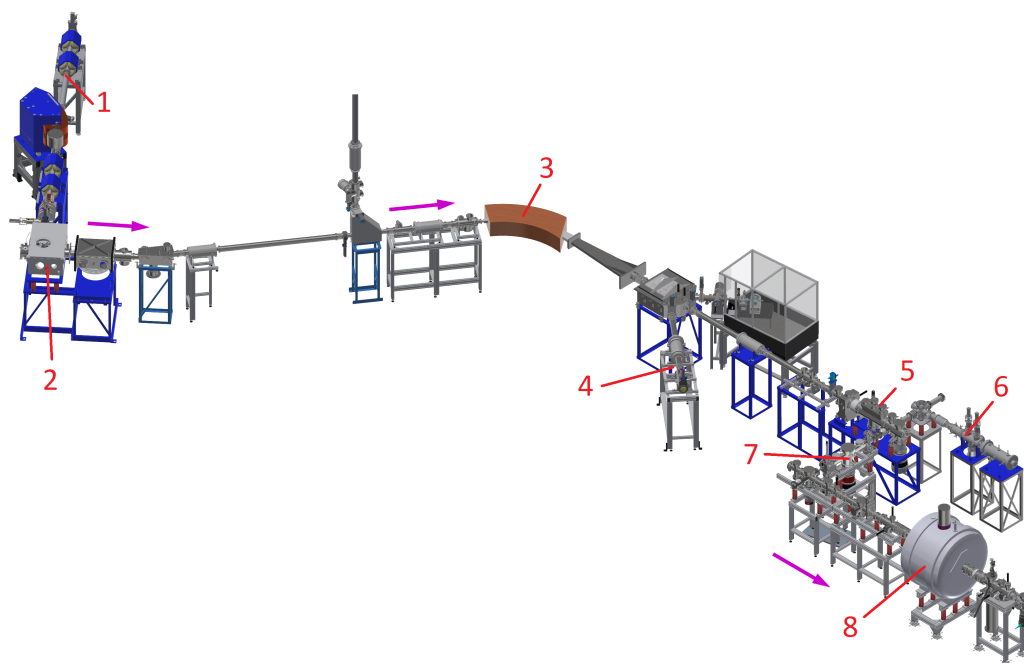
Koska magneettinen separointi vaatii varauksen, analysoitavien reaktiotuotteiden täytyy olla tällöin ioneja. Ionisaatio voi tapahtua esimerkiksi kuumalla pinnalla [21]. Isotooppien ionisointitehokkuus riippuu niiden kemiallisista ominaisuuksista, ja joidenkin alkuaineiden ionisoiminen on hankalaa.

Ioniohjainmassaerotin (Ion-guide isotope-separator on-line, IGISOL) [22] on Jyväskylän yliopiston kiihdytinlaboratoriossa sijaitseva ISOL-laite, jolla tutkitaan eksootisia radioaktiivisia isotooppeja massa-, laser- ja hajoamisspektroskopiaa käyttäen. IGISOL-laitteisto on esitetty kuvassa 3. Hiukkaskiihdyttimeltä tuleva ionisuihku törmäytetään IGISOL-laitteiston kohtiokammiossa olevaan ohueeseen kohtioon [23]. Suihkun ammusytimen ja kohtion kohtioytimen välillä tapahtuu ydinreaktio, jossa syntyvä reaktiotuote on tyypillisesti ionisoitunut korkeaan varaukseen. Reaktiotuote lentää ulos kohtiosta ennen kuin se ehtii neutraloitua. Kohtion ulkopuolella tuote pysähtyy jalokaasuun, jossa se ei pysty neutraloitumaan.

Tavallisesti IGISOL-massaerottimella käytetyt ydinreaktiot ovat kevyillä ammuksilla (protoni, deuteroni, ^3He tai alfahiukkanen) indusoidut fuusio- ja fissioreaktiot. Fuusioreaktion tapauksessa reaktiotuote lentää ulos kohtiosta ammushiukkasen liikemäärän voimin. Rekyyli-ionin nopeus on varsin pieni, jolloin tuotteen pysäyttämiseen tarvitaan vain ohut kerros pienipaineista kaasua. Fissioreaktiossa itsessään vapautuu paljon suurempi määrä energiaa, kuin mitä indusoivan ammuksen liike-energia on. Lisäksi fissiossa syntyvät fragmentit lähtevät vastakkaisiin suuntiin, jotka ovat lähes riippumattomia indusoivan ammuksen kulkusuunnasta. Näiden fragmenttien liikemäärät kompensoivat toisensa, joten niiden liikemäärien itseisarvot ja täten myös liike-energiat ovat niin suuret kuin reaktiossa vapautuva energia sallii. Fuusio-reaktiossa kohtion ei tarvitse olla kovin paksu, sillä reaktiotuotteet pääsevät pois kohtiosta ulkopuolella olevaan kaasuun vain ohuesta pintakerroksesta. Kohtion paksuudesta ei toisaalta ole muuta haittaa, kuin se, että kohtioon kertyy tarpeettoman paljon hyödyntämiskelvottomia reaktiotuotteita. Fissiokohtion puolestaan täytyy olla riittävän paksu, että edes jotkin fissiotuotteet hidastuisivat jo kohtiosta tarpeeksi

pysähtyäkseen kohtion ulkopuolella olevaan pysäytyskaasuun. Tarpeettoman paksuun fissiokohtioon pätee sama, kuin turhan paksuun fuusiokohtioonkin. Tässä työssä käytettiin ^{232}Th , eli luonnonthoriumkohtiota, jonka fissio indusoitiin käyttäen 25 MeV protoneita.

IGISOL:ssa reaktiotuotteiden pysäyttämiseen käytetään heliumkaasua, sillä $1+$ ionit eivät pysty irrottamaan elektroneja heliumatomeilta, joten reaktiotuotteen neutraloituminen on hidasta. Heliumkaasussa reaktiotuotteet menettävät liike-energiansa törmäillessään heliumkaasun atomeihin ja tuotteiden varaus laskee nopeasti, suurimmaksi osaksi $1+$ varaustilalle. Muodostuneet ionit poistuvat pysäytystilavuudesta heliumkaasun virtauksen mukana voimakkaasti pumpattuun tilavuuteen halkaisijaltaan noin 1 mm suuruisen suuttimen läpi. Pumpatussa tilavuudessa neutraali kaasu hajaantuu ja se pumpataan pois. Ionit fokusoidaan sekstupoli-ioniohjaimen (SPIG) [24] noin 3 MHz taajuisen sähkökentän avulla ohjaimen keskelle. Keskitetyt ionit kuljetetaan tasajännitteellä noin 10 mm läpimittaisen aukon läpi parempaan ($< 10^{-4}$ mbar) tyhjiöön, jossa ionit kiihdytetään 30 kV kiihdytysjännitteellä ionisuihkuksi ja ohjataan kohti dipolimagneettia.



Kuva 3. IGISOL laitteiston yleiskuva. (1) hiukkaskiihdyttimeltä tuleva linja, (2) kohtiokammio, (3) dipolimagneetti, (4) hajoamisspektroskopialinja, (5) RFQ ionikimputin, (6) laserlinja, (7) MR-TOF, (8) Penningin loukut. Muokattu lähteestä [25].

Dipolimagneetti (3) toimii ensimmäisenä massaerottimena kääntämällä ionien liikerataa, jonka kaarevuussäde riippuu ionien varauksesta ja massasta yhtälön 8 mukaisesti. Ioniohjaimen toimintaperiaatteen ansiosta yleisin varaustila on $1+$. Joillakin alkuaineilla on myös $2+$ varaustilan ioneja, mutta niilläkin useimmiten korkeintaan muutamia prosentteja kaikista ioneista. Käytännössä siis ionien radan kaarevuussäde dipolimagneetissa on verrannollinen niiden massojen neliöjuuriin. IGISOL:n magneetin massaresoluution $R = M/\Delta M$ suuruusluokka on noin 500, joka riittää erottamaan tutkittavan massaluvun isotoopit muiden massalukujen isotoopeista. ΔM on massapiikin eli M -massaisten ionien sijaintien jakauman puoliarvoveveys (FWHM, Full Width Half Maximum) magneetin fokusisteessä. IGISOL:n dipolimagneetin takareuna on muotoiltu siten, että magneetti fokusoi saman massaiset ionit samaan kohtaan tietyllä etäisyydellä magneetin takana. Tutkittava massaluku valitaan kyseiseen kohtaan sijoitetulla pystysuoralla raolla, jonka leveyttä voidaan säätää 0-10 mm välillä. Tutkittavaa massalukua vaihdetaan muuttamalla dipolimagneetin magneettikentän suuruutta.

Magneetin jälkeen suihku voidaan ohjata hajoamisspektroskopialinjalle (4), tai antaa suihkun jatkaa matkaa kohti RFQ-ionikimputinta (5) [26], radiotaaajuudella toimivaa sähköiseen kvadrupoliin (radiofrequency quadrupole) perustuvaa ionijäähdytintä ja -kimputinta. RFQ on korkeajännitteessä, jolloin ionit hidastuvat lähestyessään sitä ja saapuessaan niiden liike-energia on niin pieni, että ne pysähtyvät noin 1 mbar paineiseen heliumkaasuun. RFQ:n radiotaajuinen kenttä keskittää ionit RFQ:n akselille ja ne ohjataan pienelle alueelle lähellä RFQ:n loppupäätä tasajännitteiden avulla. Tässä alueessa ioneja jäähdytetään, eli pidetään paikoillaan, kunnes niiden liike on termisessä tasapainossa ympäröivän heliumkaasun kanssa. RFQ:n ansiosta ionisuihkun energiajakauman leveys saadaan pienennettyä kymmenistä elektronivolteista millielektronivolteihin. Lisäksi RFQ-ionikimputin nimensä mukaisesti kokoaa jatkuvan ionisuihkun kimpuiksi. Nämä kimput, joiden energiahajonta on useita kertalukuja pienempi kuin alkuperäisen suihkun, voidaan ohjata laserlinjaan (6), tai kohti tarkempaa massaerotusta käyttäen Multi-Reflection Time-Of-Flight (MR-TOF) massaerotinta (7) ja/tai Penningin loukkua (8).

3.2 MR-TOF

Lentoaikamassaerottelu (TOF-MS, Time Of Flight Mass Spectroscopy) on yksinkertainen menetelmä selvittää hiukkasen massa lentoajan perusteella. Kun saman varauksen omaavat ionit kiihdytetään tietyllä jännitteellä, eri massaiset ionit päätyvät eri nopeuksiin, jolloin niiden lentoajat samalla matkalla ovat erilaiset. Lentoaikaa kuvaa yhtälö

$$t = \frac{d}{\sqrt{2U}} \sqrt{\frac{m}{q}}, \quad (9)$$

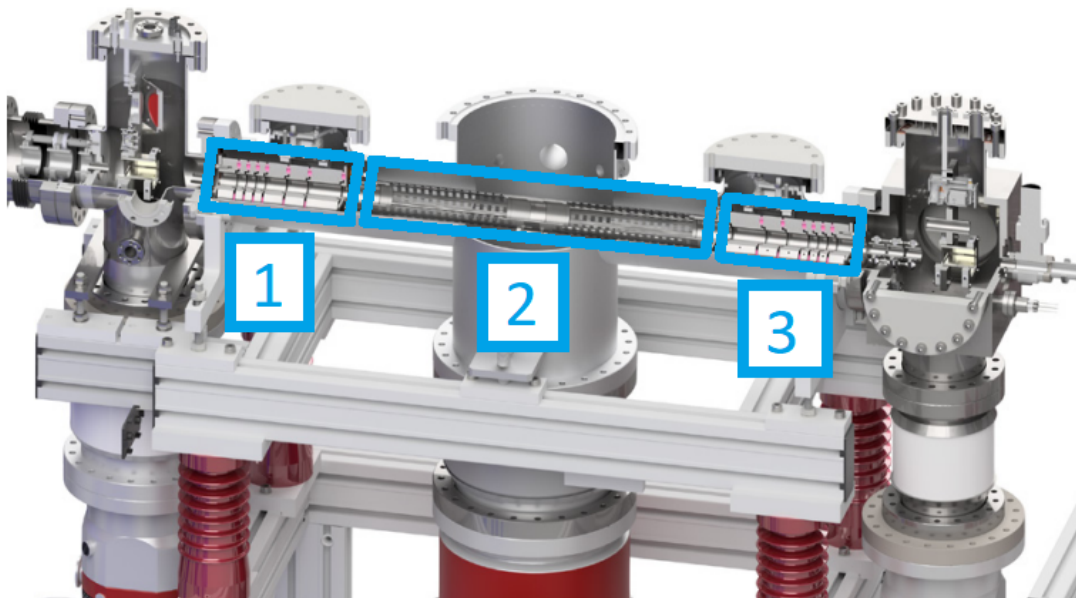
missä d on lentomatka, U on kiihdytysjännite, m on massa ja q on varaus. Menetelmän merkittävänä rajoittavana tekijänä toimii lentomatka. Lyhyellä matkalla massaluvun isotoopit eivät saa tarpeeksi suurta eroa lentoajalle, jotta isotoopit voitaisiin erottaa toisistaan [27]. Lisäksi tutkittavan ionisuihkun epäpuhtaudet voivat häiritä, etenkin jos niitä on enemmän kuin tutkittavia ioneja. Lentomatkan lyhyiden tuottamat ongelmat voidaan ratkaista käyttämällä sama matka useamman kerran, jolloin lentoaikaa voidaan kasvattaa lähes mielivaltaisesti. Näin toimii heijastelentoaikamassaerotin (Multi-Reflection Time Of Flight Mass Spectrometer, MR-TOF-MS, tavallisesti vain MR-TOF).

MR-TOF-massaerottimen [27] toimintaperiaate perustuu ionien heijastamiseen kahden sähköstaattisen peilin välillä. Elektrostaattiset peilit koostuvat rengasmaisista elektrodeista, joiden jännitteitä voidaan säätää (kuva 4). Peilit ovat isokoorisia, joka tarkoittaa sitä, että ionien kääntyminen takaisin tulosuuntaan kestää yhtä kauan kaikilla ioneilla. Sähkökentät ovat konservatiivisia, joten heijastuessaan sähkökentistä ionien liike-energia ei muutu. Tällöin peilien välillä ionin nopeus pysyy vakiona. Ionit kiihdytetään jännitteellä U_k massaerottimeen, jolloin ne saavat qU_k verran energiaa. Tällöin nopeutta peilien välillä voidaan kuvata yhtälöllä

$$v = \sqrt{2U_k} \sqrt{\frac{q}{m}}. \quad (10)$$

MR-TOF:n potentiaalissa ionien lentoaika riippuu ainoastaan massa-varaus suhteesta, jolloin niiden kineettisillä energioilla ei ole väliä. Ionien syötön ja ulosoton yhteydessä heijastuselektrodien jännitettä pienennetään hetkellisesti, jotta ionit saadaan joko sisään tai ulos lentoputkesta. Vaihtoehtoinen tapa on muuttaa heijastimien välissä olevan lentoputken jännitettä. Lentoputki toimii Faradayn häkkinä, joka suojaaa ioneja hajasähkökenttien aiheuttamilta häiriöiltä. Lentoputken jännitteen

muuttaminen ei vaikuta putken sisällä lentävien ionien liikkeeseen. Kun putken jännitettä pienennetään riittävästi, putkesta ulos tulevien ionien energia ei riitä elektrostaattisten peilien potentiaalin läpäisyyn. Ionit saadaan tässä tapauksessa poistettua putkesta nostamalla putken jännite takaisin, jolloin ionit saavat tarpeeksi energiaa läpäistäkseen peilien potentiaalin. Mittauksen aikana ioneja heijastetaan edestakaisin lentoputkessa peilien välillä, kunnes eri massaiset ionit voidaan erottaa toisistaan niiden lentoaikojen perusteella. MR-TOF massaerotinta voidaan käyttää sellaisenaan massojen ja tuottojen mittaukseen, tai ei-toivottujen isotooppien pois suodattamiseen Penningin loukkua varten. Kuvassa 4 on IGISOL:ssa sijaitsevan MR-TOF-massaerottimen kaviokuva.



Kuva 4. JYFL MR-TOF massaerottimen kuva, kohdassa 1 ja 3 ovat elektrodit, jotka muodostavat energiapotentiaalin. Kohdassa 2 on lentoputki, jossa ionit lentävät edestakaisin massaerotuksen aikana. Muokattu lähteestä [28].

MR-TOF:n lyhyt mittausaika on eräs monista sen eduista. Sen ansiosta voidaan mitata ja tutkia paljon lyhytikäisempiä isotooppeja, kuin monilla muilla tavoilla. Esimerkiksi Penningin loukulla yhden kimpun mittausyklin kesto on sekunnin luokkaa, kun taas MR-TOF:lla kimpun mittausykli voi olla joitakin millisekunteja. Mittausyklin kesto kasvaa heijastusmäärän mukana, mutta niin kasvaa myös massaresoluutio, joka on mahdollista saada yhtä hyväksi kuin Penningin loukulla. Toisaalta, jos ioneja lennätetään kauan, eri massaiset ionit voivat päätyä eri kierroksille, jolloin

joidenkin ionien lentoaika mitataan systemaattisesti väärin. Tällaisessa tilanteessa on parempi pienentää kierroslukua, jolloin lentomatka lyhenee ja eri massaiset ionit pysyvät samalla kierroksella. Toinen MR-TOF:n etu on se, että se on ei-skannaava menetelmä, eli samaan aikaan voidaan mitata laajaa aluetta massasta. Tällöin samasta isobaarista voidaan mitata useita eri isotooppeja ja mittauksen sisäinen kalibraatio voidaan suorittaa. Tämä tarkoittaa sitä, että tunnistamalla yhden isotoopin ja tietämällä massat, voidaan tarkistaa ja varmistua siitä, mitä isotooppeja on havaittu spektrikohtaisesti.

3.3 Hajoamisspektroskopia

Hajoamisspektroskopiassa tutkitaan radioaktiivisen aineen hajoamisia. Kun radioaktiivinen aine hajoaa, se tuottaa säteilyä. Tämän säteilyn energia siirtyy ilmaisimen materiaaliin kokonaan tai osittain, jolloin se havaitaan jossain muodossa, kuten esimerkiksi valona tai sähköisenä pulssina.

Useimmiten ytimen hajoaminen tapahtuu alfa- tai beetahajoamisena. Alfa- ja beetahajoamisia usein seuraa myös gammasäteilyn emissio, kun hajoamisessa muodostuneiden ytimien viritystilat purkautuvat. Emittoituneilla gammafotoneilla on diskreetit energiat, jotka ovat isotoopille ominaisia. Tällöin niiden energioiden perusteella voidaan tunnistaa, mitä isotooppeja hajoamisissa on syntynyt.

Gammaspektroskopiassa tutkitaan näiden fotonien energioiden muodostamia spektrejä. Spektrin muodostamiseksi jokaisen gammafotonin energia pyritään mittaamaan erikseen. Eri gammailmaisintyyppejä ovat ionisaatio-, tuike- ja puolijohdeilmaisimet. Ilmaisimilla on monia ominaisuuksia, joiden perusteella voidaan valita mittauksiin sopiva ilmaisim. Näitä ominaisuuksia ovat ilmaisimen tehokkuus, herkkyys, resoluutio, vastefunktio ja vasteaika. Ilmaisimen tehokkuudella tarkoitetaan sitä, mikä osuus gammafotoneista nähdään. Tehokkuus riippuu geometriasta, eli siitä, miten ilmaisim on aseteltu säteilylähteen läheisyyteen ja millainen ilmaisimen muoto on. Herkkyys kertoo sen, millä säteilytyypillä ja energialla ilmaisim tuottaa signaalin. Ilmaisim ei voi olla herkkä kaikille säteilytyypeille ja energioille. Resoluutio puolestaan kertoo, miten hyvin ilmaisimen tuottaman spektrin piikit voidaan erottaa toisistaan. Jos resoluutio on huono, piikit voivat sekoittua keskenään joko osittain tai kokonaan, eikä niitä voida välttämättä erottaa toisistaan. Vastefunktio kertoo sen, millaisen spektrin ilmaisim antaa monoenergeettiselle säteilylle, ja vasteaika sen, miten nopeasti signaali muodostuu säteilyn saapuessa. On tärkeää, että

monoenergeettisen gammasäteilyn spektri on mahdollisimman yksinkertainen. Jos näin ei ole, monien erilaisten gammafotonien spektristä voi olla vaikeampaa erottaa tietty fotoni. Nopea signaalin muodostuminen on myös erittäin tärkeää. Jos signaalin muodostuminen kestää kauemmin kuin seuraavan fotonin saapuminen, kaksi tai useampi tapaus yhdistyy yhdeksi signaaliksi väärään paikkaan. Eri mittauksissa ominaisuuksien tärkeysjärjestys vaihtelee. Joskus voidaan tarvita tarkka resoluutio, mutta säteilyn määrä on vähäistä, jolloin vasteaika voi olla hitaampi. Vastaavasti joskus säteily on runsasta, jolloin nopea vasteaika on erittäin tärkeä.

Tässä tutkimuksessa käytettiin germaniumilmaisimia, jotka ovat puolijohdeilmaisimia. Germaniumilmaisimet muodostuvat tyypillisesti suurikokoisesta germaniumkiteestä, jonka vastakkaisille pinnoille on asennettu johde-elektrodit. Puolijohdeiden johtavuusvyöllä on vain vähän elektroneja ja niiden määrää voidaan vähentää entistään jäädyttämällä puolijohdetta. Germaniumkiteen elektrodien välille voidaan muodostaa tyhjennysalue kytkemällä niiden välille jännite. Tyhjennysalueessa ei ole yhtään vapaasti liikkuvia elektroneja, jolloin elektrodien välillä ei voi kulkea virtaa. Gammafotonin vuorovaikuttaessa tyhjennysalueen aineen kanssa energiaa siirtyy aineeseen. Tämän energian siirtymisen seurauksena elektroneita nousee germaniumin johtavuusvyöhön. Samaan aikaan valenssivyöhön muodostuu vastaava määrä elektroniaukkoja, jotka toimivat myös varauksenkuljettajina. Fotonin absorboituessa ilmaisimeen elektrodien välille syntyy virtapulssi, joka voidaan mitata. Vuorovaikutukset, jotka voivat johtaa fotonin absorboitumiseen, ovat valosähköinen ilmiö, Comptonin sironta ja parinmuodostus. [29]

Valosähköisessä ilmiössä fotonin energia siirtyy germaniumatomin elektronille. Tyypillisesti tämä on atomin sisäkuoren elektroni, joka on tiukasti sidottu atomiin. Lähes kaikki fotonin energiasta siirtyy elektronille. Osa energiasta kuluu elektronin irrottamiseen atomista. Häviävän pieni osa energiasta siirtyy germaniumatomin liike-energiaksi, joka kuitenkin riittää tasapainottamaan elektronin saaman liikemäärän. Näin kaikki fotonin energia voi absorboitua. Emittoitunut elektroni vuorovaikuttaa germaniumin muiden elektronien kanssa. Vuorovaikutuksissa germaniumatomien elektroneihin siirtynyt energia on riittävän suuri nostamaan ne johtavuusvyöhön, jolloin muodostuu ilmaisimen virtapulssin aikaan saavia elektroni-aukko-pareja. [30]

Comptonin sironnassa fotoni vuorovaikuttaa atomin ulkokuorilla olevan löyhästi sidotun elektronin kanssa. Osa fotonin energiasta siirtyy elektronille. Koska elektroni on lähes vapaa, liikemäärän ja energian täytyy tasapainottua ilman atomin rekyy-

liä. Sironnassa muodostuukin uusi fotonin, jonka energia riippuu tulevan fotonin ja sironneen elektronin kulkusuunnista. Kuten valosähköisessä ilmiössä, myös compton-elektroni saa aikaan elektroni-aukko-parien muodostumisen. Comptonin sironnassa muodostuneen fotonin täytyy kuitenkin myös vuorovaikuttaa ilmaisimen tyhjenysalueen kanssa, jotta alkuperäisen fotonin koko energia muuttuisi havaittavaksi virtapulssiksi. [30]

Parinmuodostuksessa fotonin vuorovaikuttaa atomin ytimen lähettyvillä, voimakkaassa sähkökentässä, muodostaen alkeishiukkasen ja sitä vastaavan antihiukkasen. Parinmuodostus vaatii vähintään 1022 keV energisen fotonin, jotta muodostuu elektroni-positroni-pari. Fotonin energiasta loput jää muodostuneiden hiukkasten liike-energiaksi. Parinmuodostuksen täytyy tapahtua ytimen läheisyydessä, jolloin ydin saa sen verran energiaa, että liikemäärä säilyy. Jotta parinmuodostuksessa ilmaisimeen absorboituneen fotonin koko energia olisi käytettävissä elektroni-aukko-parien muodostumiseen, täytyy parinmuodostuksessa syntyneen positronin annihiloitua elektronin kanssa, ja annihilaatiofotonien täytyy absorboitua ilmaisimeen täydellisesti. [30]

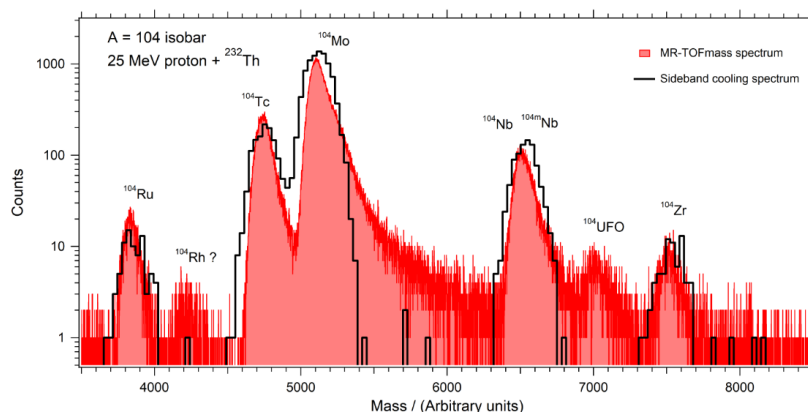
3.4 JYFLTRAP

Fissiotuottoja Penningin loukun avulla mitattaessa loukkuja käytetään massafiltterinä. Tässä tekniikassa käytetään JYFLTRAP:n ensimmäistä, niin sanottua ”ykkösloukku” tai ”puhdistusloukku”. Tutkittava ionikimppu lähetetään RFQ-ionikimputtimelta Penningin loukulle ja vangitaan loukun pituussuunnassa sähköiseen potentiaali-kuoppaan. Ionit jäävät värähtelemään edestakaisin kuoppaan samaan tapaan kuin MR-TOF:n sähköisten peilien väliin, mutta vain muutaman millimetrin mittaiselle alueelle. Loukun radiaalisuunnassa ionien liike määräytyy Penningin loukun 7 teslan suuruudesta magneettikentästä. Magneettikentän suunta on loukun pituussuuntaan, joten radiaalinen liike on kohtisuoraan magneettikenttään nähden. Ionien liike jakautuu kahteen ympyräliikkeeseen. Nämä ovat magnetroniliike, joka on ”iso” ympyräliike magneettikentälle kohtisuorassa suunnassa, ja syklotroniliike, joka on ympyräliike magnetroniliikkeelle kohtisuorassa suunnassa. Näitä liikkeitä voidaan muokata korkeataajuisilla sähköisillä virityksillä. Jotkin viritykset vaikuttavat kaikkiin ioneihin samalla tavalla, toiset viritykset vaikuttavat vain ioneihin, joiden massan ja varauksen suhde vastaa tiettyä resonanssitaajuutta. [23]

Ionit massafiltteröidään siten, että ensin kaikkien ionien magnetroniliikkeen sädet-

tä kasvatetaan massariippumattomalla virityksellä, sitten ionit keskistetään massasta riippuvalla virityksellä. Vain ne ionit, joiden massa-varaus suhteen resonanssitaajuus on lähellä käytettyä viritystaajuutta, siirtyvät pienemmälle magnetroniradalle. Tehokkain keskistys saadaan juuri resonanssitaajuuden kohdalla. Keskityksen jälkeen potentiaaliuopan takaseinä poistetaan, jolloin ionit pääsevät taas etenemään. Ykkösloukun jälkeen JYFLTRAP:ssa on 1,5 mm läpimittainen, 50 mm pitkä kanava, jonka läpi vain keskistyneet ionit pääsevät kulkemaan. Muuttamalla viritystaajuutta voidaan valita, mitkä ionit pääsevät kanavan läpi. [23]

Tutkittavan ionisuihkun massaspektri tuotetaan muuttamalla viritystaajuutta, kunnes koko tutkittava massa-alue on käyty läpi. Riittävän mittaustatistiikan saavuttamiseksi taajuus skannataan useita kertoja. Yhden kimpun analysoimiseen kuluva aika vaihtelee 200-1000 ms tavoitellusta resoluutiosta riippuen. Yhden massaluvun skannaamiseen tarvitaan 150-200 taajuuspistettä. Menetelmällä saavutettu FWHM massaresoluutio $R(FWHM) = \frac{m}{\Delta m(FWHM)}$ on JYFLTRAP:lla parhaimmillaan noin 150000. MR-TOF-lentoaikaerottimeen verrattuna JYFLTRAP:n massaresoluutio on siis samaa luokkaa, eikä spektrin piikeissä ole kiusallisia häntiä (kuva 5). Menetelmä on kuitenkin hidas, kun jokainen massapiste mitataan erikseen. Ionien havaitsemiseen käytetyn MCP-ilmaisimen saturoitumisen estämiseksi ionikimpun koko tulisi olla alle 20 ionia. Tyypillisessä mittauksessa, jossa massapiikin leveys FWHM on noin 10 Hz ja mittaus tehdään 2 Hz välein, yhdellä skannauksella piikkiin saadaan parhaassa tapauksessa noin 100 ionia. Jos massaspektrissä on 150 taajuuspistettä ja yhden kimpun analyysiin käytetty aika tyypillinen 350 ms, tietyn isotoopin ioneja saadaan parhaimmillaan massaspektriin 2 kappaletta sekunnissa. Tässä työssä MR-TOF:n toistotaajuus oli 20 ionikimppua sekunnissa. Jos kimpussa havaitaan edelleen 20 ionia, koko spektriin saadaan 400 ionia sekunnissa. Jos spektrissä on viisi samankokoista piikkiä, kuhunkin piikkiin kertyy 80 ionia sekunnissa. Kuvassa 5 verrataan massaluvun A=104 MR-TOF spektriä Penningin loukulla mitattuun. MR-TOF näyttäytyy noin 100 kertaa tehokkaampana.



Kuva 5. MR-TOF (lentoaika, punaisella) ja JYFLTRAP (taajuus, mustalla) spektrien vertailu massaluvulle $A=104$. MR-TOF:n spektriä mitattiin 30 minuuttia ja JYFLTRAP:n noin 2 tuntia. MR-TOF spektrin piikeillä on parempi resoluutio, mutta niissä esiintyy häntää, jota JYFLTRAP:n spektreissä ei ole. Esimerkiksi ^{104}Tc piikissä on noin 1200 ionia JYFLTRAP:n ja noin 32000 ionia MR-TOF:n spektrissä.

3.5 Mittaukset

3.5.1 Isobaaristen tuottojen mittaus

On tiedossa, että IGISOL:lla lajiteltujen reaktiotuotteiden läpäisy kohtiosta mitausalueelle riippuu reaktiotuotteen alkuaineesta ja sen kemiallisista ominaisuuksista. Riippumattomia fissionuotteita määritettäessä tämä otetaan huomioon, kuten kuvataan luvussa 3.5.2. Siksi ei ole edes odotettavissa, että tietyn massaluvun havaittu tuottojakauma aina vastaisi sitä, mikä fissionissa syntyy.

Tässä työssä haluttiin tutkia, kuinka paljon mitatut fissionuotteet vaihtelevat eri alkuaineilla sen mukaan, miten fissionuotteet massaerotellaan ja millä menetelmällä ne määritetään. Mittauspaikat olivat spektroskopialinjan päässä (kuvassa 3 paikka 4), RFQ-ionikimputtimen (5 kuvassa 3) jälkeen ja JYFLTRAP Penningin loukun (8 kuvassa 3) jälkeen. Spektroskopialinjassa tuotot mitattiin gammaspektroskopian avulla, RFQ-ionikimputtimen jälkeen MR-TOF lentoaikaerottimella, ja viimeisessä tapauksessa JYFLTRAP:ia käytettiin tuottojen mittaamiseen. Gamma- ja MR-TOF-mittaukset tehtiin maaliskuussa 2023. JYFLTRAP:n massaspektrit otettiin vuosina 2010-2014 tehdyistä mittauksista [1],[31].

Alustava työoletus oli, että merkittävimmät isotooppien häviöt tapahtuisivat kaasutäytteisissä loukuissa (RFQ ja JYFLTRAP). Häviöt aiheutuvat ionien neutraloitumisesta, jolloin niitä ei enää voida ohjailta sähkökentillä, ja kemiallisista reaktioista

kaasun epäpuhtauksien kanssa, esimerkiksi oksidien muodostumisesta. Häviöiden odotettiin olevan sitä suurempia, mitä kauemman fissiotuotteita pidettäisiin loukuissa. Tällöin myös erot alkuaineiden välillä korostuisivat.

Työssä mitattiin massaluvut $A=80, 86, 100, 104, 110, 124$ ja 136 . Massaluvut oli valittu siten, että ne kattoivat mahdollisimman monta alkuainetta. Lisäksi mihinkään näistä ei kuulu pitkäikäisiä isotooppeja. Tällöin mittausta yksinkertaistuu, koska kaikki tuotetut isotoopit ja niiden hajoamistuotteet ehtivät hajota mittausten aikana. Niiden kumulatiiviset tuotot saadaan gammaspektreistä ilman mittaussykliin liittyviä korjauksia. Tämä oli onnekas valinta myös siksi, että juuri ennen mittausta osoittautui, ettei IGISOL:n gammamittauksissa tavallisesti käytetty nauhakuljetin, jolla siirretään pitkäikäinen aktiivisuus pois ilmaisimen edestä, ollut toimintakunnossa.

Spektroskopiaalinjan päässä tehty gammamittaus toimi vertailun perustasona. Eri isotooppien fissiotuotot määritettiin hyvin kompaktissa geometriassa mitatuista gammaspektreistä. IGISOL:n dipolimagneetilla massaseparoitu ionisuihku implantoitiin linjan päässä alumiinifolioon. Folion taakse, suihkulinjan tyhjiön sisälle, oli sijoitettu $500 \mu\text{m}$ paksu 300 mm^2 PIPS-ilmaisim, jota käytettiin beetojen havaitsemiseen. Tyhjiöputken ohuen, alumiinisen päädyn taakse mahdollisimman lähelle suihkun implantointikohdasta oli sijoitettu 20 mm paksu planaarin germaniumilmaisim (Canberra BE2020) ja putken sivuseinän taakse koaksiaalinen 70% germaniumilmaisim (Canberra GC7020).

Samojen massalukujen fissiotuotteiden jakauma mitattiin RFQ-ionikimputtimen jälkeen MR-TOF lentoaikaerottimella. Ihanteellista olisi ollut suorittaa myös tämä mittausta gammaspektroskopiolla, etteivät mittaustavan erot vaikuttaisi tulokseen. Toisaalta oli tärkeää vertailla gammaspektroskopisia tuloksia myös MR-TOF-mittauksiin, ja kaikkea ei ollut mahdollista testata käytettävissä olevan mittaustavan puitteissa.

MR-TOF menetelmällä saatuun isotooppijakaumaan tehtiin radioaktiivisen hajoamisen korjaus. Gammaspektrit mitattiin vain pienellä viipeellä fissiotuotteiden muodostumisen jälkeen. Isotoopin keskimääräinen viipymä ioniohjaimessa on kymmeniä millisekunteja [32] ja lentoaika spektroskopiaalinjan päähän $500 \mu\text{s}$. MR-TOF-mittauksessa fissiotuotteita kerättiin tämän lisäksi RFQ:ssa kimpuksi 50 ms ajan, minkä jälkeen lentoaika MR-TOF läpi oli noin 35 ms . Tänä aikana fissiotuotteiden radioaktiivinen hajoaminen vähensi kaikkein lyhytikäisimpien isotooppien suhteellista osuutta. Korjaus tehtiin, ettei radioaktiivisesta hajoamisesta johtuvia häviöitä tulkittaisi alkuaineen kemiallisista ominaisuuksista johtuvaksi. Useimmille fissiotuot-

teille korjaus oli merkityksetön, mutta jo sekunnin puoliintumisajalle korjaus on yli 4 %. Analysoituja JYFLTRAP:n ykkösloukun massaspektrejä mitatessa fissiotuotteita oli kerätty RFQ-ionikimputtimeen 200-450 ms ajan ja ykkösloukun syklin pituus vaihteli 400-500 ms välillä. On siis ilmeistä, että JYFLTRAP- mittauksille on tehtävä vastaava hajoamiskorjaus kuin MR-TOF-datallekin.

Taulukko 1. Mittaukset, joilla tutkittiin fissiotuottojen massaerottelun ja mitausmenetelmän vaikutusta havaittujen tuottojen alkuainejakaumaan. Lihavoitulla merkityt ovat alkuaineiden stabiileja isotooppeja, joita tuotetaan fissiossa, mutta joita ionisoidaan myös esimerkiksi pysäytyskaasun epäpuhtauksista. Massalukujen A=104 ja A=110 samoja MR-TOF-mittauksia käytettiin myös riippumattomien isotooppituottojen määrittämiseen (3.5.2).

Menetelmä	Massaluku	Mittauaika (min)	Alkuaineet
MR-TOF	80	36	Ga, Ge, As, Se
MR-TOF	86	16	As, Se, Br, Kr
MR-TOF	100	59	Sr, Y, Zr, Nb, Mo
MR-TOF	104	61	Zr, Nb, Mo, Tc, Ru
MR-TOF	110	90	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd
Gamma	80	75	Ge, Ga, As
Gamma	86	46	As, Se, Br
Gamma	100	44	Sr, Y, Zr, Nb
Gamma	104	235	Nb, Mo, Tc
Gamma	110	48	Tc, Ru, Rh
Gamma	124	37	Ag, Cd, In
Gamma	136	58	Te, I

JYFLTRAP mittaukset 2010-2014

menetelmä	massaluku	Mittaus syklin kesto (ms)		alkuaineet
		RFQ + loukku		
TRAP	80	431 + 431	Ge, As, Se	
		250 + 450	Ge, As, Se	
TRAP	86	331 + 431	Se, Br	
		381 + 431	Br, Kr	
TRAP	100	381 + 431	Y, Zr, Nb	
		381 + 431	Zr, Nb	
TRAP	104	200 + 500	Zr, Nb, Mo, Tc, Ru	
TRAP	110	431 + 431	Tc, Ru, Rh	
TRAP	124	200 + 500	Cd, In, Sb+ Sn	
		250 + 450	Cd, In, Sb+ Sn	
TRAP	136	250 + 450	Te, I, Xe +Cs, Ba	

3.5.2 Riippumattomat isotooppiset tuottomittaukset

Toinen työn tavoite oli tutkia, kuinka MR-TOF-menetelmällä määritetyt fissiotuotot vertautuvat Penningin loukun avulla määritettyihin, sekä täydentää aikaisempaa Penningin loukulla tehtyihin mittauksiin jääneitä aukkoja. Tässä mittauksessa määritettiin riippumattomat, suhteelliset isotooppiset fissiotuotot molybdeenille, teknetiumille ja ruteniumille, ja osittaiset isotooppiset fissiotuotot niobiumille, rodiumille ja palladiumille. Fissiotuottojen riippumattomuus tarkoittaa, että se kertoo määrän, joka isotooppia tuotetaan suoraan fissiossa. Isotooppisuus tarkoittaa, että tarkasteltavana on tietyn alkuaineen isotooppien fissiotuotto. Tuotot ovat suhteellisia, koska ne saadaan vertaamalla fissiotuottoja toisiinsa, ilman absoluuttista normitusta.

Ioniohjainmenetelmän tehokkuus riippuu alkuaineesta, joten eri alkuaineiden isotooppien tuottojen suhde sisältää fissiotuottojen suhteen lisäksi tehokkuuksien suhteen. Saman alkuaineen isotoopeille tehokkuuksien suhteen on perusteltua uskoa olevan yksi. Mikäli fissiotuottojen massajakauma tunnetaan toisesta mittauksesta, voidaan absoluuttiset fissiotuotot määrittää tämän avulla, kuten esimerkiksi viitteessä [33] on tehty.

Tuottomittaus on vertailumittaus, joka suoritettiin seuraavalla tavalla. MR-TOF lentoaikaerottimen massaspektreistä tunnistetaan massapiikit ja määritetään massapiikin intensiteetti, eli sen muodostavien lentoaikahavaintojen lukumäärä. Tutkittavan isotoopin massapiikin intensiteettiä verrataan referenssi-isotoopin massapiikkiin. Mittaus toistetaan, kunnes alkuaineen fissiotuoton isotooppijakauma on mitattu.

Mittaus toteutettiin siten, että ensin mitattiin referenssimassaksi valitun massaluvun lentoaikaspektri. Sen jälkeen mitattiin tutkittavan massaluvun spektri, ja uudelleen referenssimassan spektri. Näin nähdään, onko IGISOL-laitteiston, RFQ-ionikimputtimen ja MR-TOF:n läpäisyssä tapahtunut muutoksia, tai onko esimerkiksi fission indusoimiseen käytetyn protonisuihkun intensiteetti pysynyt vakaana. Käyttämällä mahdollisimman pitkälle samaa referenssimassaa näitä muutoksia on helpompi seurata. Toisen referenssimassan mittaamisen jälkeen mitattiin tutkittavan massaluvun spektri uudelleen, ennen siirtymistä seuraavaan massalukuun. Jokainen massaluku mitattiin siis kaksi kertaa, ja referenssimassa aina jokaisen mittauksen välissä. Samaa referenssimassaa ei voi käyttää loputtomiin, koska isobaarin muodostavien alkuaineiden jakauma muuttuu hiljalleen. Tässä työssä käytettiin kahta referenssimassaa, $A=105$ ja $A=109$. Massaluku $A=108$ mitattiin kumpaakin referenssimassaa vasten, jotta isotooppijakauman reunat saatiin liitettyä toisiinsa.

Ionisuihku ei pysynyt jostain syystä vakana. Referenssimittauksen jälkeen palatessa tutkittavaan massalukuun havaittujen ionien määrä muuttui, vaikka tutkittavan massaluvun molemmissa mittauksissa käytettiin samoja asetuksia. Suurimmaksi osaksi mittausten aikana suihku oli vakaa, ilman suurempia muutoksia. Poikkeuksena tähän on massaluvun $A=103$ toinen mittaus, jonka aikana suihkun teho laski selvästi. Massalukujen $A=106$ ensimmäisen, $A=107$ ensimmäisen mittauksen jälkeisen referenssin ja $A=110$ ensimmäisen mittauksen aikana suihkun teho puolestaan kasvoi selvästi. Myös $A=110$ toisen ja kolmannen mittauksen aikana on havaittavissa loivaa nousua. Referenssimittauksia tarkastellessa ionisuihkulla on huomattavissa laskeva trendi massalukujen $A=103$ ja $A=106$ mittausten välillä ja massaluvun $A=108$ eri mittausten välillä. Nouseva trendi puolestaan oli havaittavissa massalukujen $A=106$ ja $A=108$ mittausten ja massalukujen $A=110$ ja $A=112$ mittausten välillä. Massaluvun $A=110$ ensimmäistä mittausta ennemmin täytettiin kylmäloukku, joka on mahdollisesti syypää ionien määrän nousuun sen jälkeen.

Taulukko 2. Riippumattomien isotooppisten fissiotuottojen mittauksessa käytetyt spektrit.

Menetelmä	Massaluku/referenssi	Mittausaika (min)	Alkuaineet
MR-TOF	103 (105)	84	Nb, Mo, Tc, Ru
MR-TOF	104 (105)	110	Nb, Mo, Tc, Ru
MR-TOF	106 (105)	86	Nb, Mo, Tc, Ru
MR-TOF	107 (105)	91	Nb, Mo, Tc, Ru
MR-TOF	108 (105)	86	Mo, Tc, Ru, Rh
MR-TOF	108 (109)	83	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd
MR-TOF	110 (109)	121	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd
MR-TOF	111 (109)	80	Tc, Ru, Rh, Pd
MR-TOF	112 (109)	80	Tc, Ru, Rh, Pd

4 Analyysi

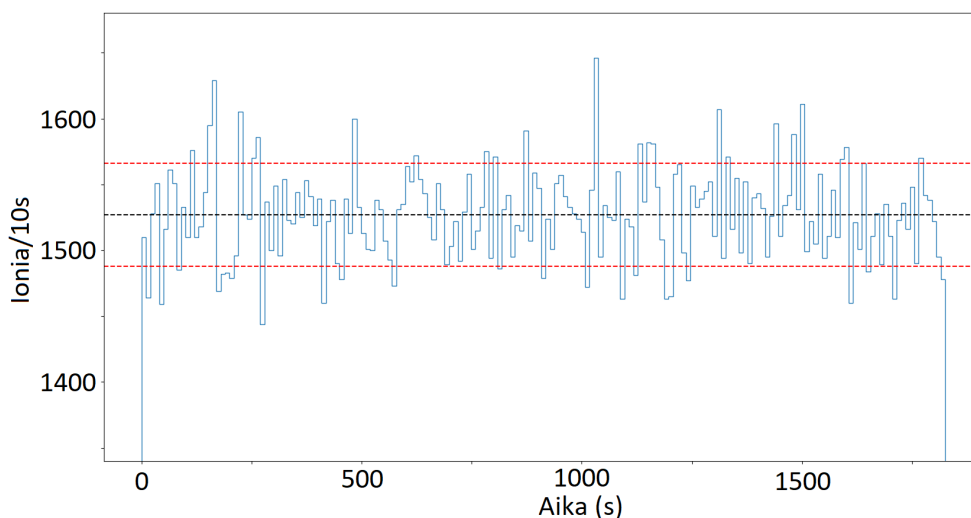
4.1 MR-TOF-spektrien analyysi

Työn tavoite oli määrittää eräiden fissiotuotteiden tuotto 25 MeV protonilla induoidussa ^{232}Th fissiossa. Tutkittavat isotoopit oli valittu ensinnäkin siten, että tuloksia voitaisiin systemaattisesti vertailla aikaisempaan, Penningin loukulla tehtyyn tuottomittaukseen [1]. Toiseksi, tutkituilla tuotoilla on tarkoitus täydentää Penningin loukulla tehtyjä mittauksia. Tätä varten MR-TOF:lla mitatuista lentoaikaspektreistä oli tunnistettava fissiotuotteet ja määritettävä kutakin isotooppia vastaavan massapiikin intensiteetti eli havaittujen isotooppien lukumäärä.

MR-TOF lentoaikadata talletettiin mittausten aikana levyille binäärimuotoisena. Binäärimuotoiseen dataan on talletettu jokaisen RFQ-kimputtimesta MR-TOF:iin syötetyn ionikimpun universaali lähtöaika ja jokaisen ilmaisimella havaitun ionin saapumisaika. Jokaisen ionin havaitsemishetki, päivä ja kellonaika ovat tiedossa. Binääridatasta lajitellaan analyysiä varten ascii-muotoinen lentoaikaspektri, jonka ensimmäisessä sarakkeessa on lentoaika 1 ns tarkkuudella ja toisessa niiden ionien lukumäärä, joilla on ollut tämä sama lentoaika. Binääridatan kellonaikojen universaalius mahdollistaa myös mittaushistorian tarkastelun. Kuvassa 6 on esimerkki massaluvun $A=108$ ensimmäisen mittauksen suihkun stabiilisuudesta, mustalla katkoviivalla merkitty suihkun keskiarvo ja punaisella datasta laskettu keskihajonta.

Kuvassa 7 on massaluvun $A=105$ spektri esimerkkinä, miltä lentoaikaspektri näyttää tapauksessa, jossa piikit ovat selvästi erillään. Isotooppien lentoaikapiikit muistuttavat muodoltaan pitkälti gaussista käyrää, mutta niiden oikealla, pidemmän lentoajan puolella on lisäksi ”häntä”, joka jatkuu seuraavien piikkien alle. Massapiikin muodon tarkka tunteminen on tarpeellista, kun piikit ovat päällekkäin massaspektrissä.

GSI:n FRS Ion Catcher- fragmenttiseparaattorin MR-TOF-laitteiston massapiikin muotoa on tutkittu hyvin yksityiskohtaisesti erilaisissa erottelutilanteissa [34]. Kuvassa 8 on esitetty massapiikin muoto tapauksessa, jonka massaresoluutio vastaa tämän työn mittauksia. Piikin muoto ei oikeastaan vastaa ollenkaan IGISOL:n

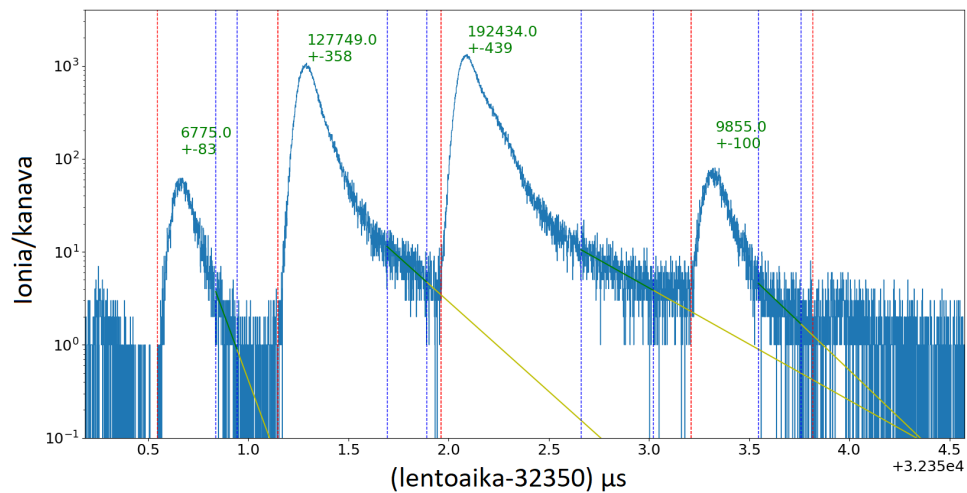


Kuva 6. Hiukkassuihkun stabiilisuus massaluvun $A=108$ ensimmäisen mittauksen aikana. Mustalla katkoviivalla on merkitty suihkun keskiarvo ja punaisella tilastollinen hajonta.

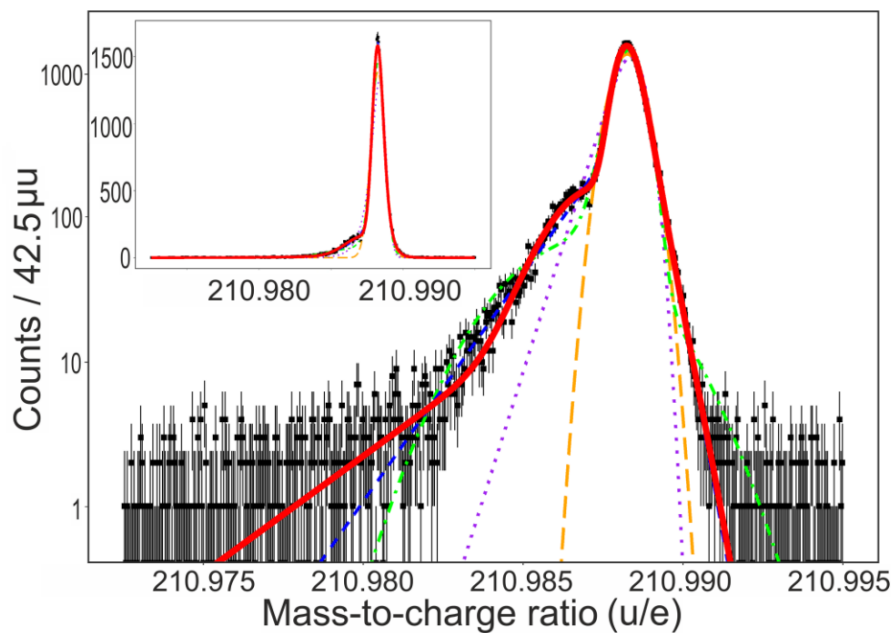
MR-TOF erottimen massapiikkiä. On mahdollista, että IGISOL-MR-TOF piikit voitaisiin sovittaa käyttäen viitteen [34] funktioita. Tämän työn tavoitteena ei ole kuitenkaan tarkkuusmassamittausten tekeminen, vaan massapiikkien intensiteettien määrittäminen, joten seuraavassa esiteltävä menettelyä voidaan pitää riittävänä. Tälläkin analyysimenetelmällä fissiotuotot saadaan määritettyä huomattavasti tarkemmin kuin gammaspektroskopiolla, ja MR-TOF:lla saavutetun suuren tilastoiikan ansiosta myös tarkemmin kuin JYFLTRAP Penningin loukulla.

Suurin MR-TOF mittausten epävarmuus osoittautui liittyvän siirtymiseen massaluvusta toiseen. Tämän epävarmuuden aiheuttajaa ei toistaiseksi tiedetä. Siitä aiheutuva epävarmuus on niin suuri, ettei massapiikkien intensiteetin määrittämistarkkuuden parantaminen ei siis oleellisesti paranna lopputuloksen tarkkuutta.

Massapiikkien intensiteetit määritettiin spektristä seuraavasti. Kuvan 7 spektrissä on punaisilla katkoviivoilla merkitty lentoajat, joiden välille osuneiden ionien lukumäärä otetaan kyseisen piikin intensiteettiin sellaisenaan. Sinisten katkoviivojen väliin jäävää aluetta on käytetty eksponentiaalisen hännän sovittamiseen. Piikin intensiteettiin lisätään punaisten katkoviivojen välin ulkopuolelle ulottuvan hännän eksponenttifunktiolla sovitettu pulssimäärä. Jokaisesta piikistä vähennetään sen alle mahdollisesti ulottuvan naapuripiikin sovitetun hännän pulssimäärä. On hyvä huomata, että spektrin y-akseli on logaritmisella asteikolla ja häntien vaikutus havaittujen



Kuva 7. Massaluvun $A=105$ MR-TOF-mittauksen spektri.



Kuva 8. Esimerkki GSI:n MR-TOF-laitteiston massapiikin muodosta. Kuva lähteestä [34].

hiukkasten lopulliseen lukumäärään on varsin pieni. Häntien vaikutus kuitenkin on suurempi, jos pieni piikki on lähempänä suurempaa piikkiä, jolloin pienempi piikki voi hukkua suuremman piikin hännän sekaan. Toisessa ongelmatapauksessa kaksi tai useampia piikkejä voi olla erittäin lähellä toisiaan, jolloin niiden hiukkasten lukumäärien erottaminen toisistaan on vaikeampaa.

Spektreistä saadut lukumäärät isotoopeille kertovat vain sen, kuinka monta isotooppia on havaittu. Lentomatkan pituus vaikuttaa näiden piikkien intensiteetteihin, koska osa ioneista siroaa matkalla, eikä tule havaituksi. Havaittuja määriä täytyy siksi korjata kierrosmäärän mukaisesti, jotta saataisiin selville MR-TOF:iin injektoidujen ionien lukumäärä. Ionikimppujen puoliintumismatkaksi on arvioitu noin 550 kierrosta. Lentomatkan lisäksi määriä täytyy korjata radioaktiivisen hajoamisen vuoksi isotooppien puoliintumisaikojen suhteen. Näiden korjattujen arvojen ja mitausaikojen avulla voidaan laskea suhteellisia fissiotuottoja. Lopulliset fissiotuotot määritetään kunkin alkuaineen suhteellisten isotooppijakaumien kautta, koska ionihajaimen tehokkuus eri alkuaineille vaihtelee mittauksesta toiseen ja jopa saman mittauksen aikana [35]. Tehokkuus saman alkuaineen eri isotoopeille pitäisi kuitenkin olla sama koko ajan. Isotooppijakaumat määritetään suhteessa referenssi-isotoopin tuottoon.

Taulukossa 3 on koottuna esimerkkinä massaluvun $A=104$ ja sitä vastaavan referenssimassaluvun $A=105$ havaitut ja korjatut isotooppimäärät ja näistä laskettu suhteellinen fissiotuotto. Isotooppien lukumäärän epävarmuutena on käytetty tilastollista virhettä. Lukumäärä on korjattu yhtälöllä

$$N_k = N_H e^{\frac{D \ln 2}{D_{1/2}}}, \quad (11)$$

missä N_k on korjattu ja N_H havaittu ionien lukumäärä, D lentomatkan kierrosten lukumäärä ja $D_{1/2}$ on puoliintumismatka 550 kierrosta. Puoliintumismatkan epävarmuus on jätetty huomioimatta korjatun lukumäärän epävarmuudessa. Referenssimittausten korjattujen arvojen epävarmuuksiin on lisätty ionisuihkun vaihtelun tuottama epävarmuus. Tämä epävarmuus on laskettu referenssimittausten isotooppien ionien määrien vaihteluista mittausten välillä isotoopin ionien vaihtelun keskiarvon ja -hajonnan avulla. Suhteellista tuottoa laskettaessa korjatut isotooppimäärät on normitettu mittausajoilla ja ilmoitettu muodossa ionia/sekunti. Suhteelliset isotooppiset fissiotuotot suhteessa referenssimittauksen tuottoihin on laskettu korjatuista

arvoista yhtälöllä

$$Y = \frac{Y_m}{Y_r}, \quad (12)$$

missä Y_m on mitatun massaluvun korjattu arvo ja Y_r on referenssin korjattu arvo. Suhteellisten isotooppisten fissiotuottojen epävarmuudet on laskettu keskivirheen kaasautumislaililla. Liitteessä A on koottuna muiden massalukujen MR-TOF-mittausten taulukoidut hiukkasmäärät ja suhteelliset fissiotuotot. Lopulliset suhteelliset isotooppiset fissiotuotot saadaan massaluvun eri mittausten painotetulla keskiarvolla. Nämä on koottuna luvussa 5.2 taulukossa 7.

Taulukko 3. Massaluvun A=104 ja vastaavien referenssien A=105 massapiikkien hiukkasmäärät. Massaluvun A=104 mittauksessa käytetty kierrosluku on 935. Zirkoniumia ei havaittu referenssimittauksessa.

	aika (min)	Ru	Tc	Mo	Nb	Zr
A=105	33	6775 ± 83	127749 ± 385	192434 ± 439	9855 ± 100	
A=104	30	2311 ± 49	33722 ± 184	170188 ± 413	15913 ± 127	1352 ± 37
A=105	15	3062 ± 56	60721 ± 247	91862 ± 304	4949 ± 71	
A=104	31	2283 ± 48	32466 ± 181	167515 ± 124	15321 ± 124	1244 ± 36
A=105	15	2640 ± 52	47927 ± 219	75261 ± 275	3939 ± 93	
Korjatut arvot (ionia/s)						
Ensimmäinen mittaus						
A=104		4,1437±0,0879	60,4676±0,3299	305,3675±0,7410	28,7760±0,2297	2,5427±0,0686
A=105		11,0829±0,1822	212,3619±4,4399	320,6899±6,9685	16,9158±0,9035	
104/105 suhteellinen fissiotuotto		0,3739±0,0101	0,2847±0,0062	0,9523±0,0208	1,7011±0,0919	
Toinen mittaus						
A=104		4,0138±0,0844	57,0814±0,3182	294,7160±0,2182	27,1657±0,2199	2,2940±0,0664
A=105		10,3839±0,5457	197,8769±25,3557	304,7029±29,1369	16,4156±1,8534	
104/105 suhteellinen fissiotuotto		0,3865±0,0219	0,2885±0,0369	0,9672±0,0925	1,6549±0,1873	

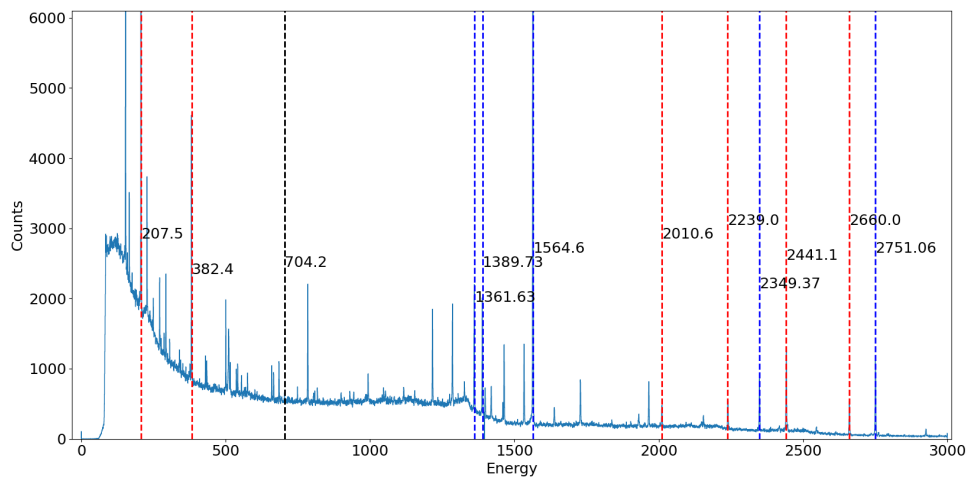
4.2 Gammaspektrien analyysi

Mitatut gammaspektrit on tallennettu listamuotoisena eventtidatana. Spektrit muodostettiin IGISOL-tutkimusryhmän versiolla GRAIN-ohjelmasta käyttäen on-line mittauksissa tehtyä energiakalibraatiota. Energiakalibraatio osoittautui riittävän tarkaksi gammapiikkien tunnistamiseen.

Kuvassa 9 on esitetty esimerkkinä massaluvun A=86 spektri. Valitsin merkityt piikit, koska ne liittyvät eri isotooppien suurimpien intensiteettien gammoihin. Spektreissä näkyy piikkien lisäksi ”pohja” piikkien alla, jota arvioin Asymmetric Least Square Smoothing-algoritmilla [36], jotta sen voi vähentää pois spektristä. Kuvassa 10 näkyy pohjan arvioitu käyrä, jonka parametrejä säädin, kunnes se seurasi

silvämääräisesti arvioitua pohjaa tutkittavien piikkien kohdalla. Pohjan arvioinnissa käytetty algoritmi ei saanut muodostettua sopivaa käyrää suoraan dataan spektrin alkuosassa ja jouduin asettamaan alkukorkeuden datalle energiavälille 0-80 keV. Tämä ei kuitenkaan haittaa datan analyysiä, sillä kyseisellä alueella ilmaisimet eivät kyenneet havaitsemaan gammoja.

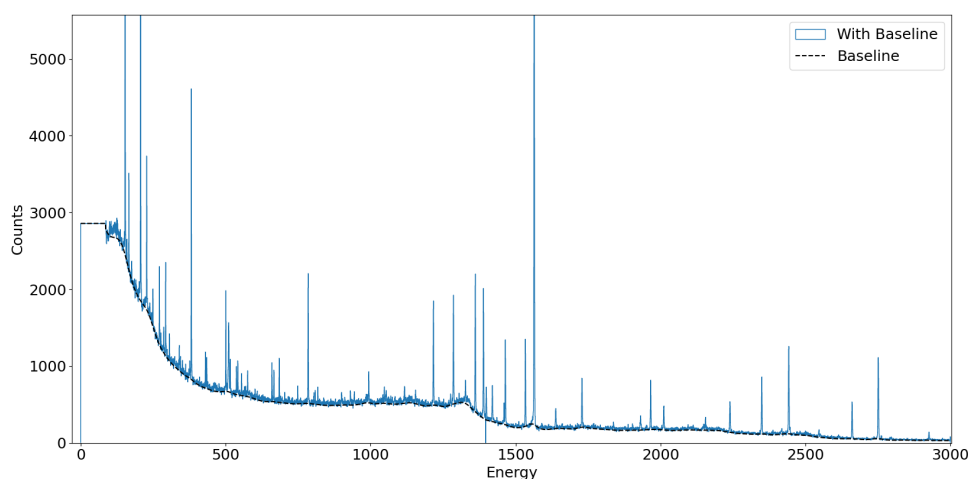
Kuvassa 11 spektrin arvioitu pohja on poistettu. Kuten kuvasta nähdään, pohjan poistaminen siisti spektriä varsin hyvin, mutta sovitin gaussiset käyrät varmuuden vuoksi piikkeihin. On hyvä huomata, että kuvassa 11 energian sijaan x-akselilla on käytetty kanavalukua. Tämä johtuu siitä, että Python-koodini laski gaussisen sovituksen pinta-alan väärin energian arvoilla. Huomasin tämän, kun vertasin pinta-alaa havaittujen gammojen lukumäärään kyseisellä välillä. Kuvassa 12 on esimerkki gaussisesta sovituksesta, joka on sovitettu massaluvun $A=86$ seleenin 382,4 keV energian piikkiin.



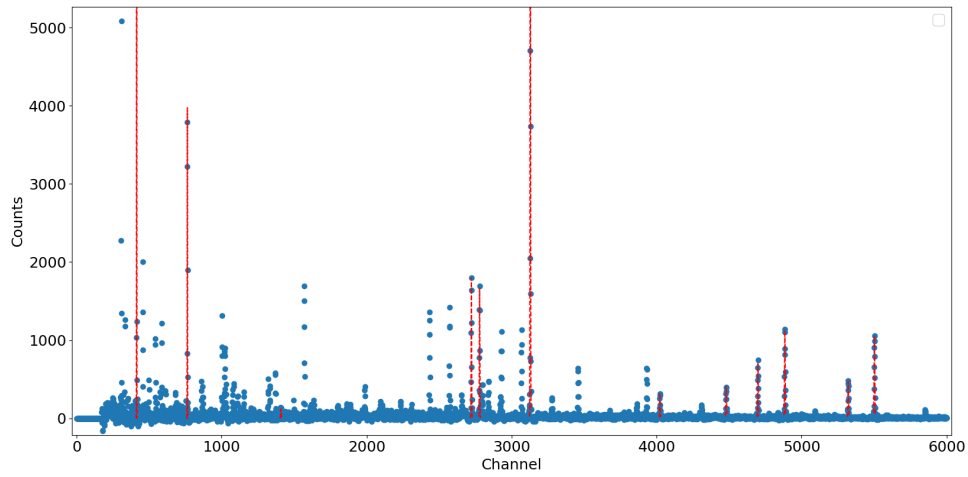
Kuva 9. Massaluvun $A=86$ gammaspektri, josta on tunnistettu isotooppien intensiivisimmät gammapiikit. Isotooppien piikit merkitty eri väreillä, arseeni mustalla, seleeni punaisella ja bromi sinisellä.

Tutkittavien massalukujen lisäksi tehtiin myös tehokkuuskalibraatiomittaus näiden mittausten geometriassa, jotta saatiin selville, kuinka tehokkaasti ilmaisin havaitsi gammat milläkin energialla. Tässä käytettiin kalibraatiolähdettä, jossa oli ^{133}Ba ja ^{152}Eu isotooppeja. Taulukossa 4 nähdään lähteen tarkemmat tiedot ja kuinka monta gammaa lähteestä olisi emittoitunut ja paljonko kutakin gammaa havaittiin. Havaittujen gammapiikkien ja lähteestä emittoituvien gammojen suhteesta lasketaan havaitsemistehokkuus kullakin energialla. Kuvassa 13 on kalibraatiolähteistä lasketut havaitsemistehokkuudet ja niihin tehdyt sovitukset. Alle 160 keV alueella tehokkuuskäyrä käyttäytyy paraabelin mukaisesti ja sen jälkeen sitä voi kuvata kahdella eri potenssifunktiolla 160-300 keV ja yli 300 keV alueilla. Kuvasta näkyy, että pienillä energioilla havaitsemistehokkuus muuttuu erittäin rajusti ja sovitukseen oli käytettävissä vain kolme mittauspistettä, joten kyseisen alueen tarkkuudesta ei voida olla niin varmoja. Lisäksi ^{133}Ba 160,6 keV gammapiikin intensiteetti on hyvin pieni, mutta se on kriittinen piste sovituksen kannalta, joten se täytyi ottaa mukaan sovitukseen.

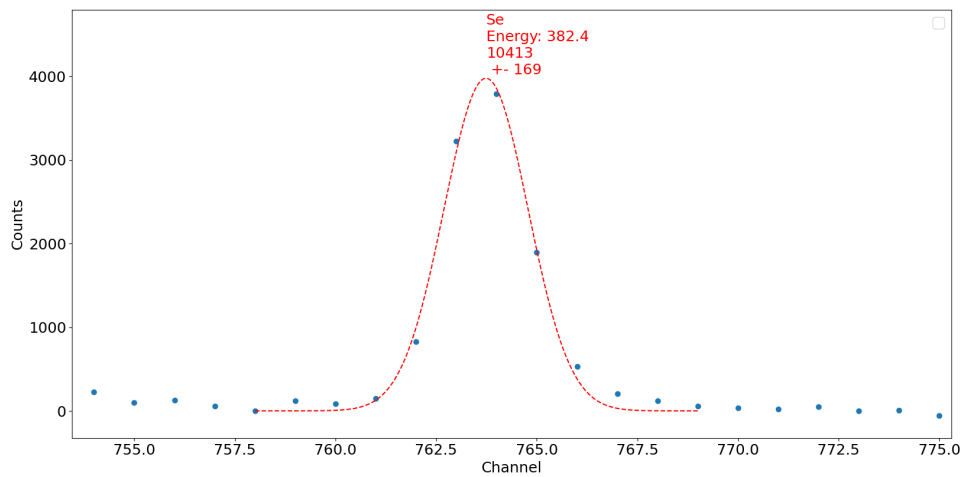
Tehokkuuskäyrän kulun tarkentamiseksi käytin ^{133}Ba ja ^{152}Eu lähteestä saamieni pisteiden lisäksi fissiotuotteiden gammaspektreistä saatuja tehokkuuksia. Nämä ”bootstrap”-pisteet määritin seuraavasti. Esimerkiksi ^{86}Se :ssä on viisi gammaa, joiden intensiteetti on yli 7 % kaikista hajoamisista. Nämä intensiteetit tunnetaan hyvällä tarkkuudella [37]. Laskin näille siirtymille mitatusta spektristä määritetyn gamma-



Kuva 10. Massaluvun $A=86$ gammaspektri, johon on sovitettu spektrissä esiintyvää pohjaa vastaava käyrä.



Kuva 11. Massaluvun $A=86$ gammaspektri, josta spektrin pohja on poistettu.



Kuva 12. Massaluvun $A=86$ gammaspektristä tarkennettu seleenin 382,4 keV energian piikkiin, johon on tehty gaussinen sovitus.

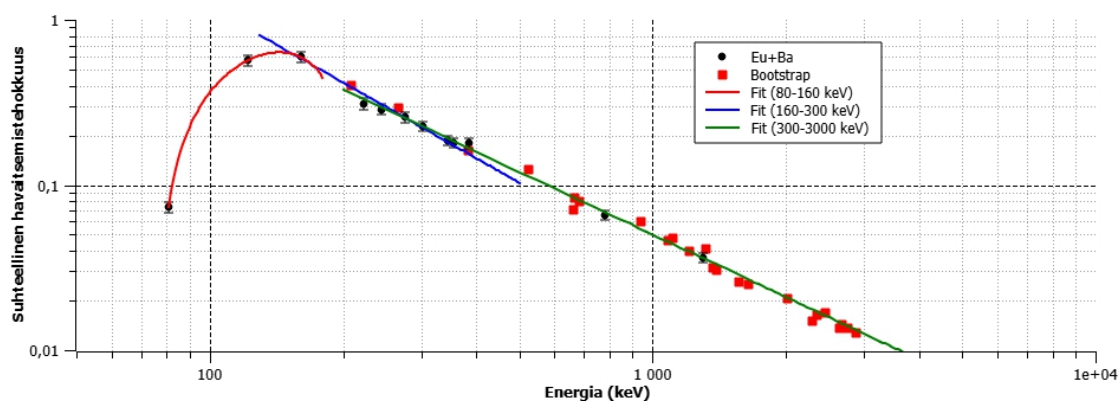
piikin pulssimäärän ja siirtymän tunnetun intensiteetin suhteen. Normitin laskemani suhteet siten, että 382 keV gammalle laskettu suhde osui yksiin lähteestä määritetyn tehokkuuskäyrän kanssa. 382 keV on ^{86}Se pisteistä lähimpänä ^{133}Ba kalibraatiopisteitä. Muiden neljän pisteen pitäisi myös osua tehokkuuskäyrälle. Toistin menettelyn ^{80}Ga , ^{80}Ge , ^{80}As , ^{86}As , ^{86}Br ja ^{136}I gammapiikeille. Lopuksi sovitin tehokkuuskäyrän uudelleen kalibraatiolähteestä ja ”bootstrappauksesta” saatuihin pisteisiin. Tällä tavoin tehokkuuskäyrän oikeellisuudesta voitiin varmistua ja parantaa etenkin suurille energioille ekstrapoloidun tehokkuuskäyrän tarkkuutta.

Laadittu tehokkuuskalibraatio on suhteellinen. Tämä on kuitenkin riittävä sen arvioimiseen, kuinka paljon isotooppien Z-jakauma mahdollisesti muuttuu RFQ:ssa ja MR-TOF:ssa. Absoluuttisen tehokkuuskalibraation avulla olisi ollut mahdollista arvioida ionien häviötä RFQ:ssa ja MR-TOF:ssa.

Taulukko 4. Kalibraatiolähteen tiedot ja havaitut gammat.

Mittauksen kesto 45 minuuttia				
Isotooppi	Aktiivisuus (Bq) (2.6.1986)	Puoliintumisaika (vuosina)	Aktiivisuus (Bq) (3.3.2023)	Hajoamisten määrä mittauksen aikana
Ba-133	109000	10,51	9640,4682	26029264
Eu-152	169000	13,54	25720,1272	69444424

Havaitut gammat				
Isotooppi	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [38]	Havaitsemistehokkuus
Ba-133	81,0	648352 ± 1121	$0,329 \pm 0,003$	$0,076 \pm 0,006$
Eu-152	121,78	11241062 ± 3620	$0,2841 \pm 0,0013$	$0,57 \pm 0,04$
Ba-133	160,612	98867 ± 1316	$0,00638 \pm 0,00005$	$0,60 \pm 0,05$
Eu-152	244,6974	1506911 ± 1509	$0,0755 \pm 0,0004$	$0,29 \pm 0,02$
Ba-133	276,4	479188 ± 1029	$0,0716 \pm 0,0005$	$0,26 \pm 0,02$
Ba-133	302,85	1081091 ± 1252	$0,1834 \pm 0,0013$	$0,23 \pm 0,02$
Eu-152	344,3	3436882 ± 1986	$0,2659 \pm 0,0012$	$0,186 \pm 0,013$
Ba-133	356,02	2918467 ± 1832	$0,6205 \pm 0,0019$	$0,181 \pm 0,013$
Eu-152	778,9	592473 ± 873	$0,1297 \pm 0,0006$	$0,066 \pm 0,005$
Eu-152	1299,142	41108 ± 244	$0,01633 \pm 0,00011$	$0,036 \pm 0,003$



Kuva 13. Kalibraatiolähteen avulla laskettu havaitsemistehokkuuskäyrä energian funktiona BeGe-gammailmäsimelle.

Spektreistä määritetyistä gammapiikkien intensiteeteistä saadaan laskettua lähteestä lähteneiden gammafotonien kokonaismäärä jakamalla intensiteetti piikin energiaa vastaavalla havaitsemistehokkuudella. Gammojen kokonaismäärästä saadaan beetahajoamisten lukumäärä jakamalla se kyseisen gammahaarauman suhteellisella intensiteetillä. Saatu beetahajoamisten lukumäärä on kyseessä olevan isotoopin kumulatiivinen tuotto, joka sisältää suoraan fissiosta tuotetun määrän kyseistä isotooppia ja kaiken, mikä on tullut hajoamisketjussa isotoopin yläpuolella.

Suoran tuoton saamiseksi on vähennettävä hajoamisketjussa yläpuolella olevan isotoopin kumulatiivinen tuotto saadusta kumulatiivisesta tuotosta. Esimerkiksi ^{86}Se suoran tuoton saamiseksi sen kumulatiivisesta tuotosta on vähennettävä ^{86}As kumulatiivinen tuotto. Osalla isotoopeista on myös isomeerisiä tiloja, joita tulee vain suoraan fissiosta. Niiden tuotto pitää lisätä kumulatiivisesta tuotosta laskettuun suoraan tuottoon.

Taulukossa 5 on koottuna esimerkkinä massaluvun $A=86$ spektristä havaittujen gammojen lukumäärät, gammojen suhteellinen intensiteetti, havaitsemistehokkuus kyseisellä energialla ja näiden vastaavat epävarmuudet. Lisäksi taulukossa on edellä mainittujen avulla lasketut kumulatiiviset tuotot kullakin energialla ja vastaavat epävarmuudet. Havaittujen gammojen lukumäärien epävarmuudet on laskettu neliöllisesti yhdistämällä gammojen ja pohjan statistiset epävarmuudet, suhteellisten intensiteettien epävarmuudet ovat kirjallisuuslähteiden mukaiset ja havaitsemistehokkuuden epävarmuus on laskettu käyttäen 68 %:n virherajoja. Kumulatiivisten tuottojen epävarmuudet on määritetty keskivirheen kasautumislain mukaisesti. Taulukossa 6 on massaluvun $A=86$ kumulatiivisten tuottojen keskiarvo ja vastaavat

suorat tuotot epävarmuuksineen. Kumulatiivisten tuottojen keskiarvo on laskettu painotetulla keskiarvolla, jonka painoina on käytetty gammapiikkien intensiteettien statistista epävarmuutta. Suorien tuottojen epävarmuus on saatu neliöllisesti yhdistämällä alkuaineen ja hajoamisketjussa sitä edeltävän alkuaineen kumulatiivisten tuottojen epävarmuudet. Suorien fissiotuottojen laskemisen jälkeen suhteutin ne massaluvuittain eri menetelmistä saatujen tuottojen vertailua varten. Liitteessä B on koottuna muiden massalukujen vastaavat taulukot.

Taulukko 5. Massaluvun $A=86$ taulukko, jossa on koottuna tutkittavien gammojen lukumäärä, intensiteetti, havaitsemistehokkuus ja niistä laskettu kumulatiivinen tuotto. Havaitsemistehokkuus on pyöristetty taulukkoon 15-yksikön säännöllä selvyyden vuoksi, laskut on tehty tarkoilla arvoilla.

Alkuaine	γ -energia	Havaittu määrä	Intensiteetti [37]	Havaitsemistehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
As	704,2	486 ± 88	1* $\pm 0,1$	0,078 $\pm 0,002$	6232 ± 1296
Se	207,5	25935 ± 258	0,07783 $\pm 0,00387$	0,39 $\pm 0,02$	844470 ± 56872
Se	382,4	10413 ± 169	0,07654 $\pm 0,00387$	0,168 $\pm 0,006$	809066 ± 50325
Se	2010,6	1750 ± 74	0,10191 $\pm 0,00516$	0,0208 $\pm 0,0008$	824315 ± 62379
Se	2441,1	6056 ± 93	0,43 $\pm 0,0215$	0,0163 $\pm 0,0007$	863002 ± 58167
Se	2660	2582 ± 61	0,21586 $\pm 0,01075$	0,0146 $\pm 0,0007$	816596 ± 58108
Br	1361,63	7367 ± 128	0,102 $\pm 0,009$	0,0340 $\pm 0,0010$	2123138 ± 199689
Br	1389,73	7099 ± 119	0,102 $\pm 0,008$	0,0332 $\pm 0,0010$	2099169 ± 178308
Br	1564,6	36587 ± 204	0,62 $\pm 0,05$	0,0286 $\pm 0,0009$	2066106 ± 178626
Br	2349,37	3607 ± 78	0,097 $\pm 0,008$	0,0171 $\pm 0,0007$	2171392 ± 205826
Br	2751,06	5929 ± 84	0,191 $\pm 0,016$	0,0140 $\pm 0,0007$	2210879 ± 213592

*Arseenin absoluuttisen intensiteetin kerrointa ei annettu, käytetty intensiteetti antaa alarajan tuotolle.

Taulukko 6. Massaluvun $A=86$ kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
As	6232 ± 1296	$6,2 \pm 1,3$
Se	822712 ± 54789	816 ± 55
Br	2117669 ± 191215	1291 ± 199

5 Tulokset

5.1 Isobaarijakaumat (Z-jakaumat)

Eri menetelmillä (hajoamisspektroskopia, lentoaikaerottelu ja massafiltteröinti Penningin loukulla) määritettyjen isobaaristen, eli saman massaluvun fissiotuottojen Z-jakaumat ovat esiteltynä kuvissa 14-20. Jakaumien gaussiset sovitukset on tehty gammamittausten pisteisiin. Kaikille jakaumille käytetty leveysparametri on massaluvun $A=100$ sovituksen leveysparametri. Tämä on paras arvaus jakaumien leveydelle, sillä kyseisessä massaluvussa on eniten mittapisteitä. On huomattava, että kuvissa esitetyt tuotot ovat havaittuja tuottoja, jotka on korjattu radioaktiivisen hajoamisen suhteen. Havaittuun tuottoon vaikuttaa kuitenkin isotooppien kemia.

Eri menetelmien suhteelliset tuotot on kiinnitetty toisiinsa suurimman yhteisen pisteen mukaisesti. Kuvista huomataan, että menetelmät antavat yleisesti samankaltaisia jakaumia ja vaikuttavat olevan kohtalaisen hyvin approksimoitavissa gaussisella jakaumalla. Huomattavan monessa tapauksessa muutkin kuin normituspisteen tuotto osuvat kaikilla menetelmillä aivan päällekkäin.

Menetelmien tuottamien tulosten välisistä eroista ilmeisimpiä ovat gammamittauksien huomattavasti suuremmat epävarmuudet. Statistisen epävarmuuden lisäksi gammamittauksiin liittyvät intensiteettien ja havaitsemistehokkuuksien epävarmuudet. Lisäksi gammamittaus antaa kumulatiiviset tuotot, joiden muuntaminen riippumattomiksi tuotoiksi lisää tuottojen virhettä. Toinen selvä ero gammamittauksissa on se, että stabiilien isotooppien tuotoista ei saada mitään tietoa. Toisaalta tiedetään, että ioniohjaimesta saadaan myös useiden alkuaineiden isotooppien ioneja. Nämä isotoopit ovat peräisin muun muassa pysäytyskaasun epäpuhtauksista, eikä niillä ole mitään tekemistä fissiotuotteiden kanssa. Tämä näkyy siinä, että stabiilien isotooppien intensiteettisuhteet samoilla asetuksilla saman alkuaineen isotoopeille noudattavat niiden luonnollista jakaumaa [33]. Siksi stabiilien isotooppien ionien havaittu lukumäärä ei välttämättä sekään kuvaa niiden fissiotuottoa.

MR-TOF ja Penningin loukun suhteelliset tuotot ovat enimmäkseen hyvin lähellä toisiaan, menetelmillä ei kuitenkaan aivan kaikista massaluvuista saanut samoja

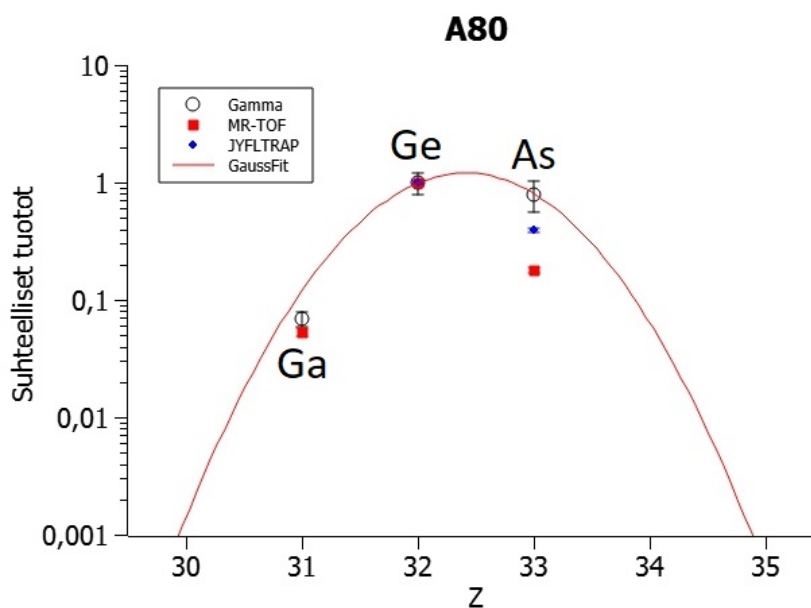
tietoja. Esimerkiksi massaluvussa $A=86$ stabiilia kryptonია oli reilusti enemmän MR-TOF-mittauksissa, eikä sen fissiotuotosta voida päätellä mitään.

Massaluvun $A=80$ tuottojakaumassa (kuva 14) arseenin tuotot eivät ole sopusoinnussa keskenään. ^{80}As havaittu tuotto näyttää riippuvan hyvin vahvasti mittausmenetelmästä. Kaikista mitatuista isotoopeista ^{80}As lisäksi vain ^{136}Te eri menetelmillä mitatut tuotot eivät ole yhteneväisiä virherajojen puitteissa. Erot ovat kuitenkin sikäli yllättäviä, että ^{80}As tuotto on pienin MR-TOF-menetelmässä, eikä JYFL-TRAP mittauksessa, jossa ioneja pidettiin jo RFQ-ionikimputtimessa viisi kertaa pidempään kuin lentoaikamittauksessa RFQ:ssa ja MR-TOF:ssa yhteensä. Lisäksi massaluvussa $A=86$ ^{86}As havaitut tuotot eri menetelmillä ovat lähes yhteneväiset. MR-TOF-mittauksissa havaittu arseenin piikki osittain hukkuu sitä edeltävään, stabiiliin seleenin piikkiin. Piikissä on seleenin lisäksi myös stabiilia kryptonია. Seleenin ja kryptonin fissiotuotoista ei tästä piikistä voida päätellä mitään. Piikin intensiteetti oli monta kertalukua jopa odotettua enemmän, joten jätin sen pois kuvasta 14.

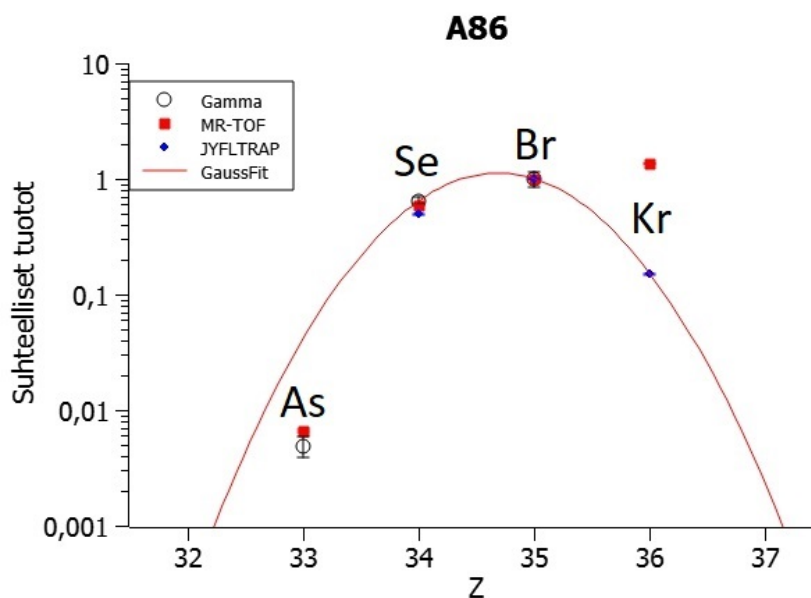
On erittäin mahdollista, että ioni-ilmaisimesta saatavien pulssien latoutuminen (pile-up) hävittää ioneja spektristä. Havaitsematta jäävät nimenomaan arseenista tulevat signaalit, koska keveämmät seleeni ja krypton osuvat ilmaisimeen ensiksi. Tämä ei kuitenkaan selitä JYFLTRAP-mittauksen ^{80}As pientä tuottoa. Saattaa olla, että tämä ero todella johtuu arseenin kemiallisista ominaisuuksista. Toisaalta massaluvun $A=86$ tehokkuudet menevät kokonaan toisin päin. Gammasppektristä määritetty ^{86}As suhteellinen tuotto perustuu kuitenkin vain yhteen gammaan, jonka intensiteetti on alle 500 pulssia 19. ^{86}As tuotto on lisäksi selvästi alle seleenin ja bromin tuottojen asettaman gaussisen, gammoihin tehdyn sovituksen tason. ^{80}As ja ^{86}As havaittujen tuottojen ristiriita voi siis johtua myös ^{86}As tuoton epätarkkuudesta.

Massaluvun $A=80$ tuotoissa myös ^{80}Ga havaitaan vähemmän, kuin pääosin Ge ja As pisteiden määrittämä gaussinen sovitus ennustaa. Tämä oli myös ^{86}As tilanne, ja sekä ^{80}Ga , että ^{86}As ovat kauimpana jakauman neutronirikkaalla laidalla. On siis mahdollista, että käytetty leveysparametri on hieman liian suuri sekä massaluvulle $A=80$ ja $A=86$. ^{80}Ga suhteellinen tuotto MR-TOF menetelmällä vaikuttaa hieman pienemmältä kuin gammamittauksessa. Ero ei ole kuitenkaan merkittävä.

Massaluvun $A=86$ (kuva 15) MR-TOF data sisälsi stabiilia kryptonია paljon enemmän kuin odotettiin. Penningin loukusta saatu kryptonin tuotto näyttäisi olevan huomattavasti lähempänä tehtyä sovitusta. Kryptonin stabiilit isotoopit ovat heliumkaasun epäpuhtauksia, joten niiden määrä voi vaihdella voimakkaasti.

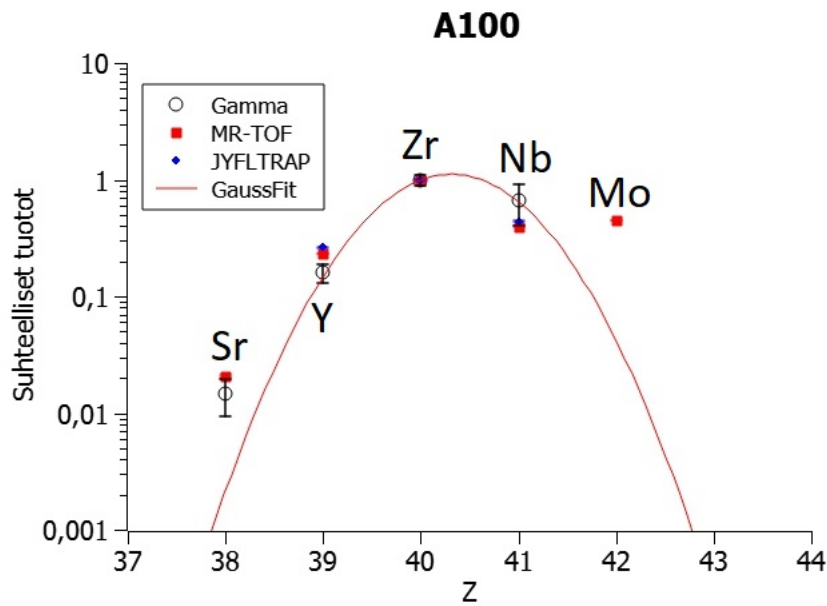


Kuva 14. Massaluvun $A=80$ suhteelliset fissiotuotot gamma-, MR-TOF- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on normitettu ^{80}Ge kohdalta.



Kuva 15. Massaluvun $A=86$ suhteelliset fissiotuotot gamma-, MR-TOF- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on normitettu ^{86}Br kohdalta. ^{86}Kr on stabiili isotooppi.

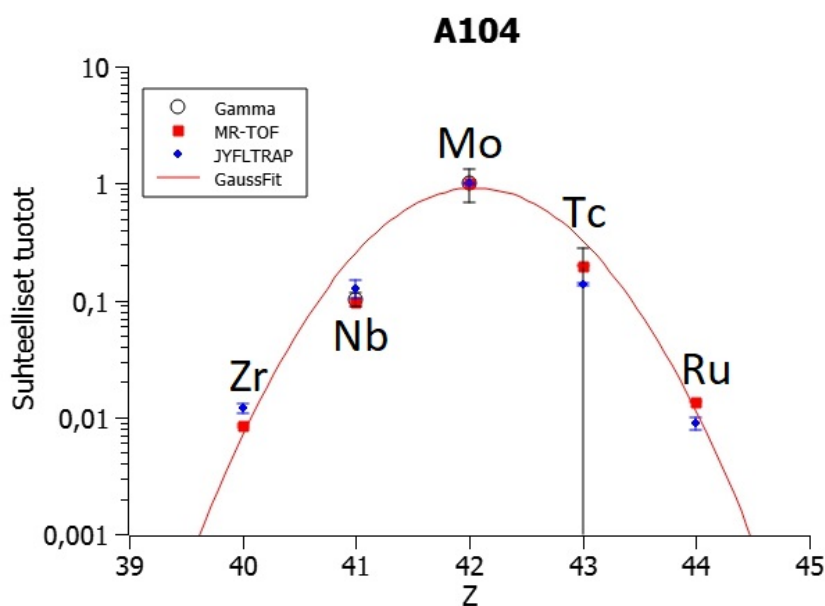
Massaluvussa $A=100$ (kuva 16) eri menetelmät ovat enimmäkseen sopusoinnussa keskenään, mutta strontiumia ja yttriumia on havaittu enemmän kuin sovitus ennustaa. Strontiumin gammoista on havaittavissa vain yksi piikki, joka on hyvin pieni. MR-TOF spektrissä sen piikin intensiteetti on pieni ja se on kahden massalukuun kuulumattoman hiukkasen piikin välissä. Tähän viittaa se, että piikit ovat noin kaksi kertaa strontiumin piikkiä leveämpiä, joten on todennäköistä, että ne kuuluvat jollekin raskaamman isotoopin $+2$ ionille. MR-TOF spektrissä molybdeeni ja teknetium ovat täysin päällekkäin, eikä niitä voida erottaa toisistaan. Teknetiumin määrän oletetaan kuitenkin olevan hyvin vähäistä, joten kaikki intensiteetti on annettu molybdeenille. Molybdeeni on stabiilia ja sitä on havaittavissa selvästi enemmän kuin sovitus ennustaa. Molybdeeni kuuluu alkuaineisiin, jota havaitaan IGISOL:n ionisuihkussa luonnollisten isotooppien pitoisuussuhteessa [33].



Kuva 16. Massaluvun $A=100$ suhteelliset fissionituotot gamma-, MR-TOF- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on normitettu ^{100}Zr kohdalta. ^{100}Mo on stabiili isotooppi.

Massaluvussa $A=104$ (kuva 17) gammoista saatu fissionituotto teknetiumille poikkeaa muista menetelmistä erittäin paljon. Teknetiumin suhteellinen riippumaton tuotto on itse asiassa negatiivinen, mikä johtuu molybdeenille määritetystä teknetiumia korkeammasta kumulatiivisesta tuotosta. Kaikkein pienenergisimmistä gammoista määritetyt molybdeenin fissionituotot ovat jopa kaksinkertaiset muista gammoista määritettyihin verrattuna 21. Koska ilmaisimen tehokkuuskalibraatio on

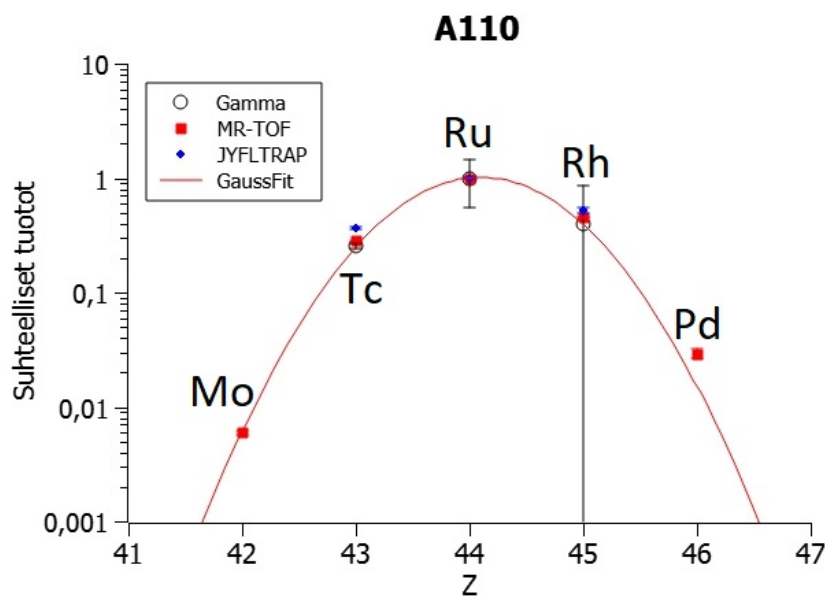
tällä alueella suhteellisen epäluotettava datapisteiden vähyyden takia, jätin 86 keV ja 91 keV pisteistä lasketut tuotot huomioon ottamatta. Teknetiumin tuotto jää silti negatiiviseksi, mikä ei tietenkään ole mahdollista. Toisaalta teknetiumin gammoista lasketun tuoton yläraja on sopusoinnussa muiden menetelmien kanssa. Menetelmät ovat sopusoinnussa keskenään niobiumin tuoton kannalta, mutta tuotto on huomattavasti alhaisempi kuin sovitus ennustaa. Tämä voisi johtua siitä, että niobiumin gammaintensiteettien normituskerrointa ei ole ilmoitettu (ks 21). Käytetyt intensiteetit antavat tällöin vain alarajan niobiumin tuotolle. Kuitenkin myös MR-TOF ja JYFLTRAP mittaukset antavat niobiumille yhtäpitävästi sovituskäyrää pienemmän tuoton. Tämän voi tulkita siten, että niobiumin tuotto kärsii kemiallisista efekteistä viereisiä alkuaineita enemmän, mutta nämä efektit tapahtuvat jo ionihjaimessa. Gammamittausten ongelmien vuoksi gaussinen sovitus on tehty poikkeuksellisesti MR-TOF:n pisteisiin.



Kuva 17. Massaluvun $A=104$ suhteelliset fissionituotot gamma-, MR-TOF- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on kiinnitetty ^{104}Mo kohdalta. ^{104}Ru on stabiili isotooppi. Gammamittausten ongelmien vuoksi gaussinen sovitus on tehty poikkeuksellisesti MR-TOF:n pisteisiin.

Massaluvussa $A=110$ (kuva 18) gammamittauksissa havaittiin ruteniumista vain yksi gamma, joka sijaitsee havaitsemistehokkuuden epävarmimmalla alueella 22. Tämän seurauksena ruteniumin tuoton määrästä ei voida olla täysin varmoja. Näyttäisi kuitenkin siltä, että eri menetelmillä lasketut tuotot ovat sopusoinnussa keskenään

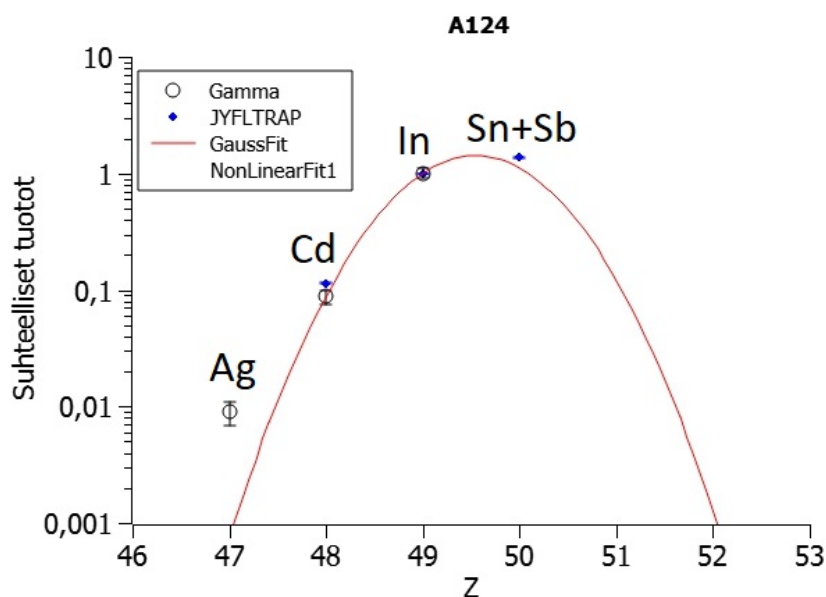
kiinnitettäessä tuotot ruteniumiin, joka parantaa luottamusta gammamittauksen antamaan ruteniumin tuottoon. MR-TOF spektreissä stabiili palladium on stabiilin kadmiumin hännässä hopean kanssa, eikä hopeaa saatu erotettua hännistä. Kadmiumin ja hopean fissionituotot ovat sovituksen perusteella mitättömän pienet, joten suurta ongelmaa tämä ei tuota. Vaikka palladium ei kuulu alkuaineisiin, joiden luonnollisten isotooppien ioneja olisi IGISOL:n suihkussa, parhaankin palladiumin massapiikin intensiteettiärvion jälkeen laskin palladiumia edelleen havaittavan enemmän kuin sovitus ennustaa fissionista tulevan.



Kuva 18. Massaluvun $A=110$ suhteelliset fissionituotot gamma-, MR-TOF- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on kiinnitetty ^{110}Ru kohdalta. ^{110}Pd on stabiili isotooppi.

Massaluvuista $A=124$ (kuva 19) ja $A=136$ (kuva 20) ei mitattu MR-TOF dataa, joten niistä on vertailtu vain gammojen ja Penningin loukun tuottoja. Massaluvussa $A=124$ indiumin intensiivisin piikki sijaitsee havaitsemistehokkuuskäyrän epätarkimmalla alueella. Kyseinen piikki antaa huomattavasti suuremman tuoton kuin muut piikit, joten jätin sen huomioimatta 23. Penningin loukun mittauksissa antimonin ja stabiilin tinan piikit ovat päällekkäin. Näiden tuotto on merkitty tinan kohdalle. Hopean puoliintumisaika puolestaan on liian lyhyt mittaamiseen Penningin loukulla. Gammamittauksesta laskettu hopean tuotto poikkeaa sovituksesta huomattavan paljon.

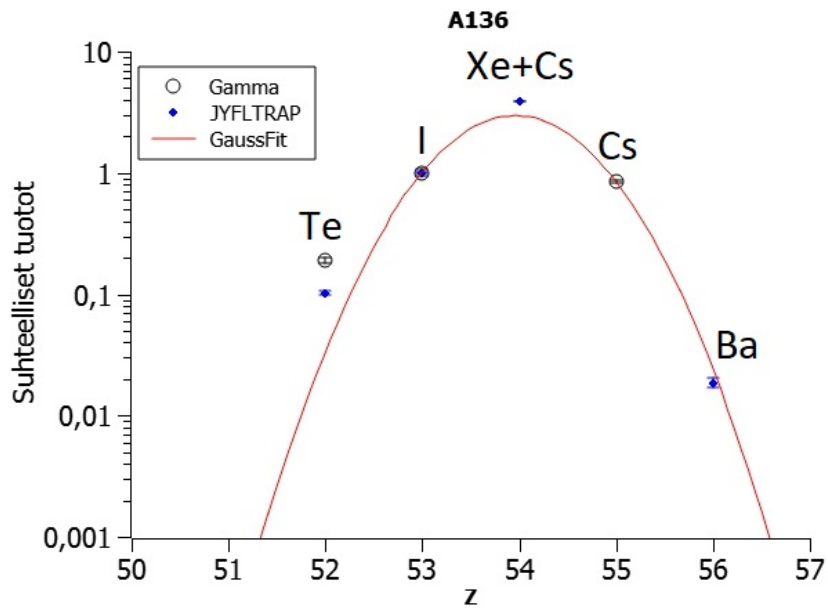
Massaluvussa $A=136$ telluurin epäluotettavat gammapiikit 24 on myös jätetty



Kuva 19. Massaluvun $A=124$ suhteelliset fissiotuotot gamma- ja Penning-loukku-mittauksista. Jakaumat on normitettu ^{124}In kohdalta. Stabiilin ^{124}Sn ja ^{124}Sb massapiikit ovat spektrissä päällekkäin, tuotot asetettu tinan tuotoksi.

huomiotta samoin perustein kuin aiemmissa tapauksissa. ^{136}Cs isotooppi sijaitsee kahden stabiilin isotoopin välissä, joten sen kumulatiivinen tuotto on sama kuin sen riippumaton tuotto. ^{136}Cs perustilan puoliintumisaika on 13 päivää, minkä vuoksi vain sen intensiivisin 818 keV siirtymä on havaittavissa gammaspektrissä. Tästä piikistä laskettu tuotto on kuitenkin paljon suurempi kuin minkään muun isotoopin tuotto, joten sen oikeellisuudesta ei voida olla varmoja. Sen sijaan ^{136}Cs isomeerisen tilan puoliintumisaika on 17 sekuntia. Tästä oli havaittavissa 517,9 keV siirtymä gammaspektrissä, josta saatiin alaraja ^{136}Cs tuotolle. Ksenon ja barium ovat stabiileja, joten niistä gammoja ei voida havaita. Penningin loukun mittauksissa esiintyy enemmän stabiilia ksenonia gaussinen sovitus ennustaa. Telluuria puolestaan Penningin loukun mittauksista saatiin vähemmän.

Yhteenvedon voidaan todeta, että havaittu fissiotuottojen jakauma ei oleellisesti riipu mittausmenetelmästä, eikä fissiotuotteiden ioneille tehdyn massa-analyysin kestosta. Havaitut riippumattomat isobaariset tuotot poikkeavat siinä määrin odotetusta suunnilleen gaussisesta jakaumasta, että fissiotuotteen alkuaineella on selvästi merkitystä. Havaittujen isobaaristen jakaumien perusteella Ga, As, Nb ja Tc tuotto saattaisi olla naapurialkuaineita heikompi kemiallisten ominaisuuksiensa takia, kun taas Sr, Pd ja Ag tuotto naapureita parempia. Käytetyllä analyysimenetelmällä ja



Kuva 20. Massaluvun $A=136$ suhteelliset fissionituotot gamma- ja Penning-loukkumittauksista. Jakaumat on normitettu ^{136}I kohdalta. ^{136}Xe ja ^{136}Ba ovat stabiileja isotooppeja.

tehdyllä massaerottelulla ei näytä olevan vaikutusta tulokseen. Mahdolliset poikkeukset tästä saattavat olla arseeni ja telluuri. Alkuaineesta johtuvat erot jakaumiin syntyvät siis ilmeisesti jo ioniohjaimessa.

5.2 Riippumattomat isotooppiset fissiotuotot

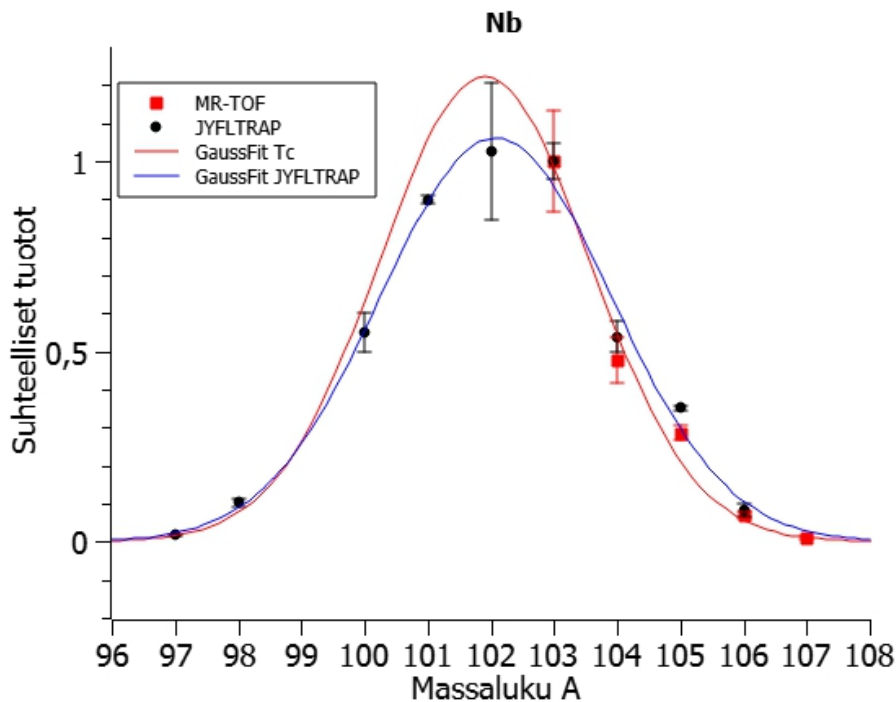
MR-TOF spektreistä saadut alkuaineiden suhteelliset tuottojakaumat on esiteltynä kuvissa 21-26 ja taulukossa 7 on koottuna mittauksista lasketut suhteelliset tuotot. Jos mitatut fissiotuotot ovat vain toisella puolella jakaumaa, niihin ei saa tehtyä gaussista sovitusta, joka kuvaa todellista jakaumaa. Näissä tapauksissa gaussisten sovitusten leveysparametrina on käytetty teknetiumin sovituksesta saatua leveysparametria. Tämä on paras arvio sille, miten jakaumat käyttäytyvät mitattujen isotooppien fissiotuottojen ulkopuolella. Molybdeenin ja ruteniumin jakaumiin on tehty gaussiset sovitukset datapisteiden perusteella. Nämä sovitukset ovat erittäin lähellä teknetiumin leveysparametria, joten se todennäköisesti kuvaa muitakin jakaumia hyvin.

Kuten kuvista 21-26 nähdään, isotoopit asettuvat yleisesti erittäin nätisti gaussisille sovituksille. Kuvissa on myös vertailun vuoksi merkitty aikaisempien JYFLTRAP:lla tehtyjen mittausten tuotot [1] ja niihin tehdyt sovitukset. JYFLTRAP-tuotot on suhteutettu siten, että kiinnityspisteessä (MR-TOF-mittausten maksimituotto) suhteellinen tuotto on yksi. Poikkeuksena tähän on palladiumin jakauma (kuva 26), joka on suhteutettu JYFLTRAP:n jakauman mukaan.

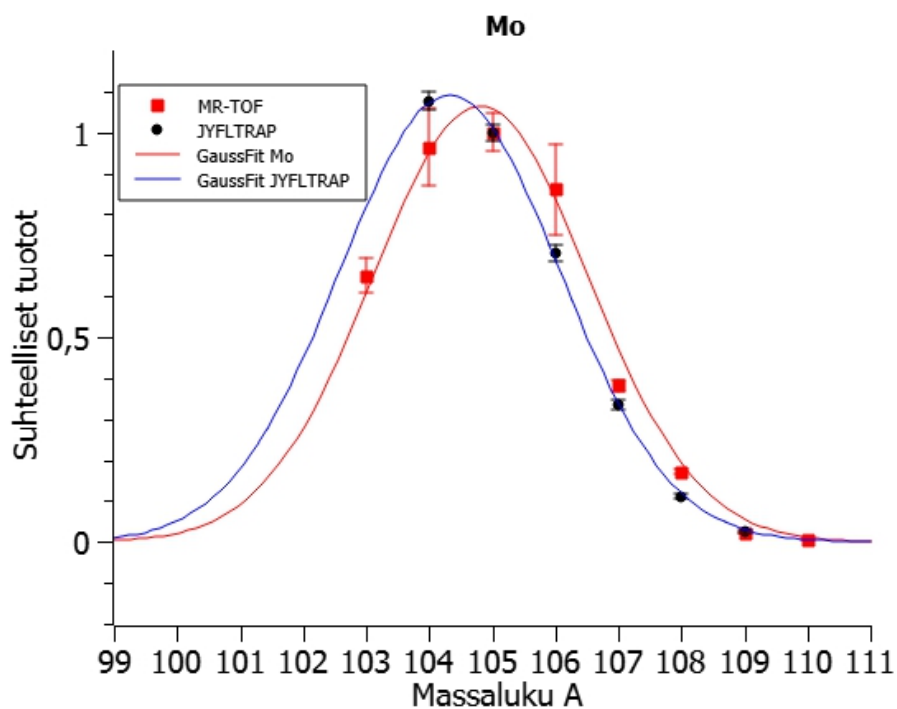
Saamani tuottojakaumat näyttäisivät olevan enimmäkseen samaa mieltä aiempien mittausten jakaumien kanssa. MR-TOF:n datapisteet asettuvat lähemmäksi niihin tehtyjä sovituksia, kuin JYFLTRAP:n datapisteet omia sovituksiaan. JYFLTRAP tuotoissa on havaittavissa yksittäisten datapisteiden heittelyä. Rodiumin (kuva 25) suhteelliset tuotot eri menetelmillä ovat erityisen lähellä toisiaan. Lisäksi JYFLTRAP Penningin loukulla mitatut tuotot seuraavat MR-TOF-mittauksen tuottoihin tehtyä sovitusta. Myös niobiumin (kuva 21), molybdeenin (kuva 22) ja teknetiumin (kuva 23) mitatut tuotot ovat lähellä toisiaan. Niobiumin eri mittausten datapisteet ovat lähellä toisiaan, mutta tehdyt sovitukset ovat hieman eri mieltä jakauman huipun korkeudesta. JYFLTRAP:lla molybdeenin tuottojakauman huippu näyttäisi puolestaan olevan hieman eri kohdassa kuin MR-TOF:n. Teknetiumin jakaumat ovat muuten lähellä toisiaan, mutta ^{106}Tc tuotto JYFLTRAP:lla poikkeaa erityisen paljon sekä sovituksesta, että MR-TOF:n antamasta tuotoista. JYFLTRAP pisteisiin sovitusta tehdessä jätiin ^{106}Tc tuoton huomiotta. Kyseisen isotoopin tuotto on ollut vähäisempää myös käyttäessä uraanioktiota [33]. On mahdollista, että ^{106}Tc :lla on tuntematon lyhytikäinen isomeeri. Tämä selittäisi sen, miksi tuotto on vähentynyt, ja

miksi sitä havaitaan enemmän MR-TOF:lla mitatessa. ^{108}Tc tuotto JYFLTRAP:lla on myös huomattavasti vähäisempää.

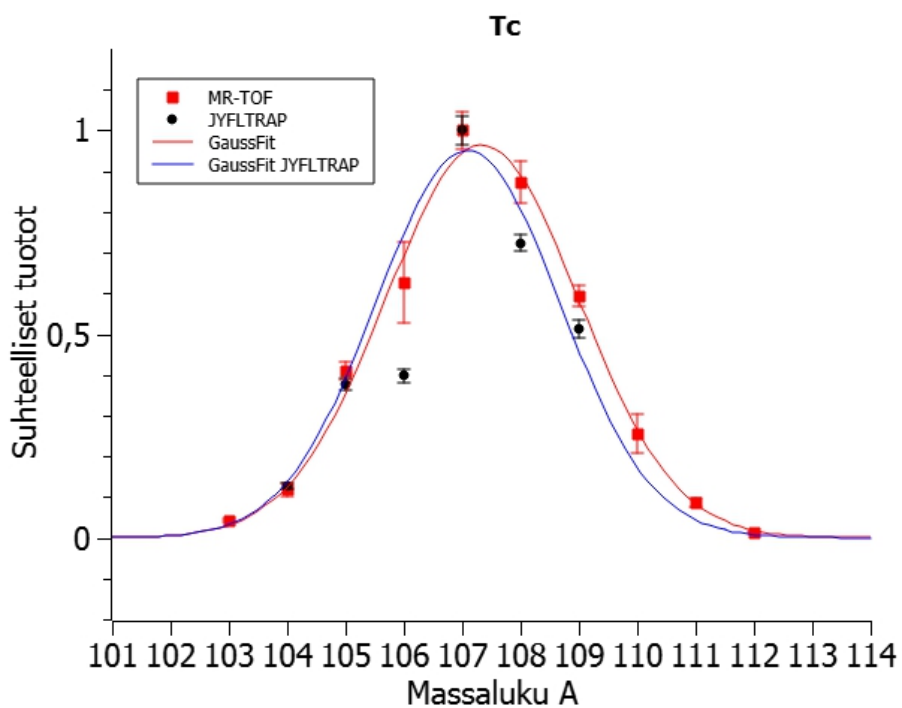
Ruteniumin (kuva 24) ja palladiumin (kuva 26) jakaumissa on enemmän eroja. Ruteniumin JYFLTRAP-mittauksissa ^{106}Ru , ^{108}Ru ja ^{110}Ru tuotot ovat paljon suuremmat kuin MR-TOF:n mittauksissa. Nämä olivatkin tarkennusta vaativia isotooppeja aikaisemmista mittauksista [1]. JYFLTRAP datapisteisiin sovitusta tehdessä jätin ^{106}Ru ja ^{108}Ru tuotot huomiotta. Palladiumin jakaumassa kevyemmät isotoopit asettuvat melko nätisti MR-TOF-mittausten tuottoihin tehtyyn sovitukseen. Sovituksen huipun jälkeen JYFLTRAP:n tuotot kuitenkin eroavat MR-TOF:n sovituksesta. JYFLTRAP dataan tehty sovitus on hieman leveämpi, mutta myös MR-TOF:n tuotot asettuvat nätisti tälle sovitukselle.



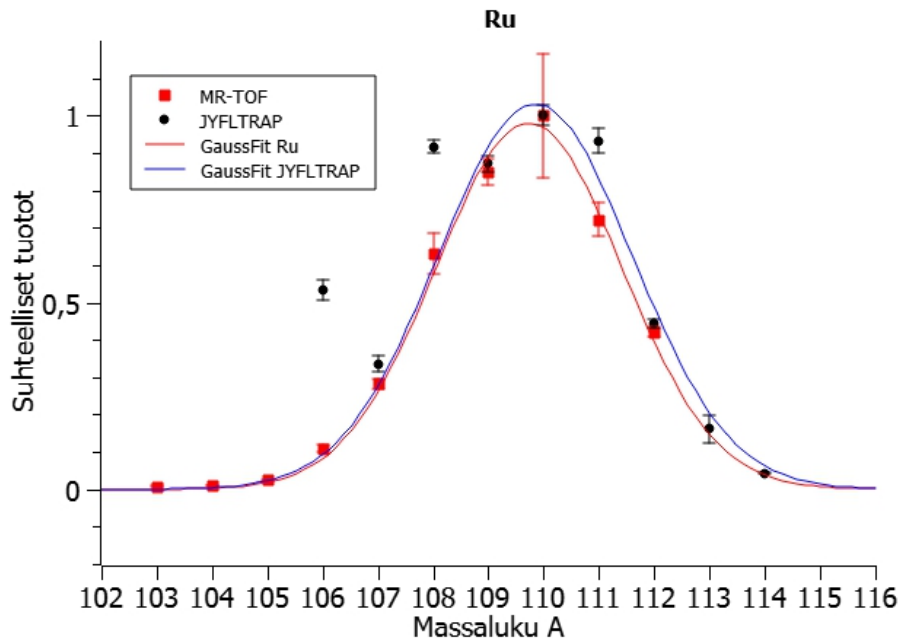
Kuva 21. Niobiumin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen. MR-TOF datapisteiden sovituksen leveysparametri Tc jakaumasta.



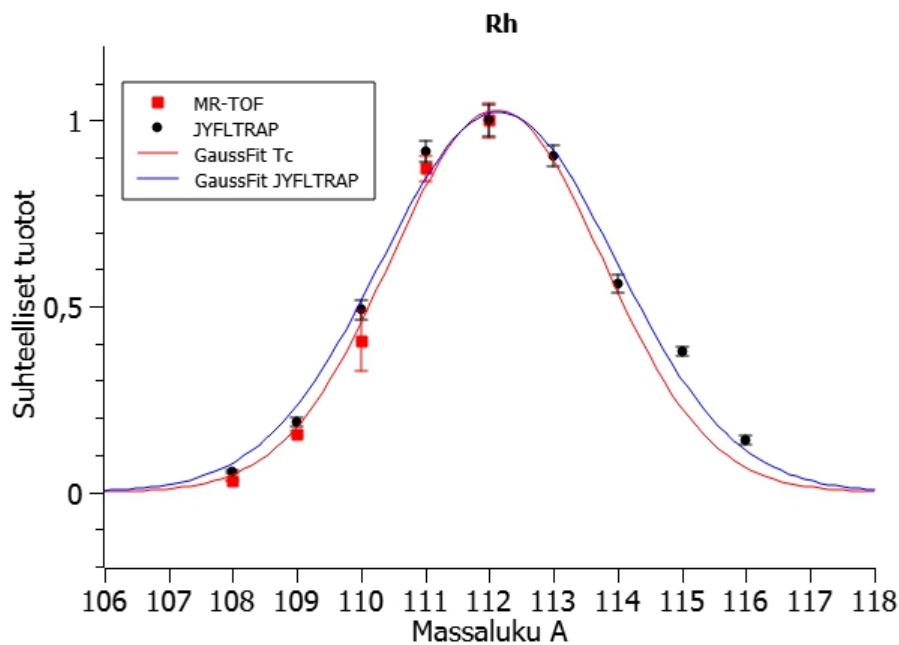
Kuva 22. Molybdeenin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen.



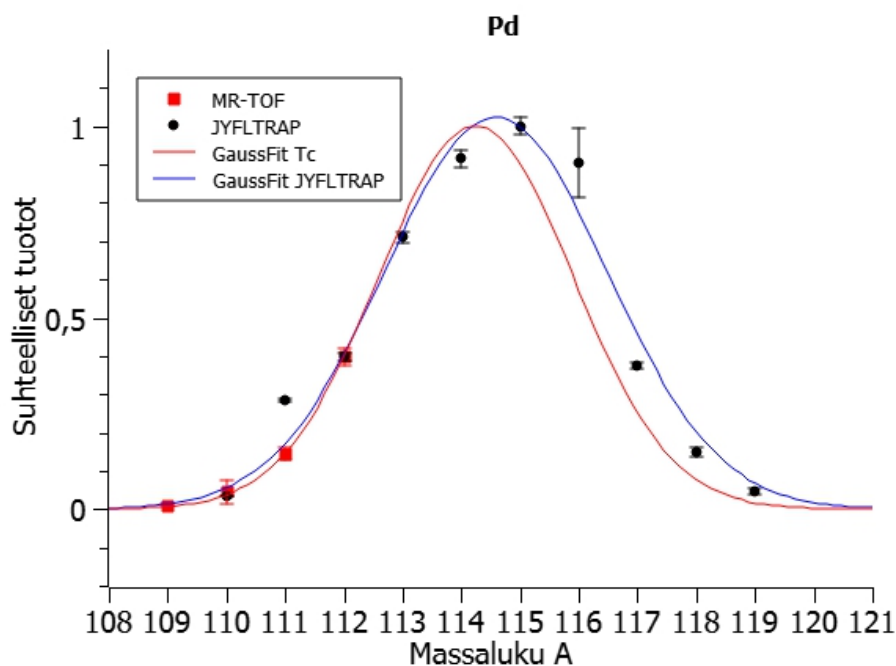
Kuva 23. Teknetiumin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen. ^{106}Tc jätetty huomiotta JYFLTRAP:n sovitusta tehdessä.



Kuva 24. Ruteniumin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen. ^{106}Ru ja ^{108}Ru jätetty huomiotta JYFLTRAP:n sovitusta tehdessä.



Kuva 25. Rodiumin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen. MR-TOF datapisteiden sovituksen leveysparametri Tc jakaumasta.



Kuva 26. Palladiumin suhteellinen tuottojakauma massaluvun suhteen. MR-TOF datapisteiden sovituksen leveysparametri Tc jakaumasta.

Taulukko 7. MR-TOF mittauksista lasketut suhteelliset riippumattomat isotooppiset fissiotuotot. Massaluvun $A=108$ isotooppien tuotot on laskettu käyttäen referenssejä $A=105$ ja $A=109$. Näistä lasketut tuotot ovat omilla riveillään (referenssi $A=105$ ylempi ja $A=109$ alempi) ja niiden avulla on laskettu alkuaineille kertoimet, joilla eri referenssien avulla lasketut tuotot on yhdistetty.

Isotooppi	Ensimmäinen mittaus	Toinen mittaus	Painotettu keskiarvo	Isotoopin suhteellinen tuotto
^{103}Nb	$3,3989 \pm 0,1028$	$3,5241 \pm 0,4424$	$3,5005 \pm 0,4542$	$1,0000 \pm 0,1330$
^{104}Nb	$1,7011 \pm 0,0919$	$1,6549 \pm 0,1873$	$1,6701 \pm 0,2086$	$0,4771 \pm 0,0603$
^{105}Nb			$1,0000 \pm 0,0634$	$0,2859 \pm 0,0181$
^{106}Nb	$0,2399 \pm 0,0309$	$0,2582 \pm 0,0112$	$0,2448 \pm 0,0329$	$0,0699 \pm 0,0095$
^{107}Nb	$0,0243 \pm 0,0019$	$0,0438 \pm 0,0025$	$0,0355 \pm 0,0032$	$0,0101 \pm 0,0025$
^{103}Mo	$0,6556 \pm 0,1028$	$0,6491 \pm 0,0416$	$0,6503 \pm 0,0427$	$0,6503 \pm 0,0430$
^{104}Mo	$0,9523 \pm 0,0208$	$0,9672 \pm 0,0925$	$0,9645 \pm 0,0948$	$0,9645 \pm 0,0956$
^{105}Mo			$1,0000 \pm 0,0473$	$1,0000 \pm 0,0473$
^{106}Mo	$0,8639 \pm 0,1086$	$0,8472 \pm 0,0202$	$0,8613 \pm 0,1105$	$0,8613 \pm 0,1105$

Taulukko 7. (jatkuu)

Isotooppi	Isotoopin			
	Ensimmäinen mittaus	Toinen mittaus	Painotettu keskiarvo	suhteellinen tuotto
¹⁰⁷ Mo	0,3817 ± 0,0110	0,3810 ± 0,0099	0,3814 ± 0,0148	0,3814 ± 0,0148
¹⁰⁸ Mo	0,1756 ± 0,0023	0,1705 ± 0,0063	0,1719 ± 0,0077	
	7,9407 ± 0,4258	7,4059 ± 0,6142	7,6249 ± 0,7473	0,1719 ± 0,0077
¹⁰⁹ Mo			1,0000 ± 0,0934	0,0225 ± 0,0021
¹¹⁰ Mo	0,2924 ± 0,0611	0,2731 ± 0,0260		
		0,3285 ± 0,0389	0,2995 ± 0,0769	0,0068 ± 0,0018
¹⁰³ Tc	0,1058 ± 0,0022	0,1028 ± 0,0072	0,1035 ± 0,0075	0,0424 ± 0,0032
¹⁰⁴ Tc	0,2847 ± 0,0062	0,2885 ± 0,0369	0,2879 ± 0,0375	0,1180 ± 0,016
¹⁰⁵ Tc			1,0000 ± 0,0570	0,4097 ± 0,0234
¹⁰⁶ Tc	1,5333 ± 0,2389	1,4797 ± 0,0316	1,5271 ± 0,2410	0,6256 ± 0,0988
¹⁰⁷ Tc	2,4261 ± 0,0832	2,4597 ± 0,0669	2,4411 ± 0,1068	1,0000 ± 0,0444
¹⁰⁸ Tc	2,1075 ± 0,0146	2,1363 ± 0,1228	2,1333 ± 0,1237	
	1,4750 ± 0,0492	1,4632 ± 0,0078	1,4734 ± 0,0498	0,8739 ± 0,0518
¹⁰⁹ Tc			1,0000 ± 0,0451	0,5931 ± 0,0267
¹¹⁰ Tc	0,4165 ± 0,0646	0,4461 ± 0,0386		
		0,4469 ± 0,0178	0,4304 ± 0,0773	0,5931 ± 0,0267
¹¹¹ Tc	0,1450 ± 0,0048	0,1457 ± 0,0041	0,1453 ± 0,0063	0,2553 ± 0,0468
¹¹² Tc	0,0227 ± 0,0006	0,0231 ± 0,0004	0,0228 ± 0,0007	0,0136 ± 0,0004
¹⁰³ Ru	0,2576 ± 0,0132	0,3624 ± 0,0132	0,3099 ± 0,0187	0,0077 ± 0,0014
¹⁰⁴ Ru	4,0138 ± 0,0101	0,3865 ± 0,0219	0,3826 ± 0,0241	0,0095 ± 0,0007
¹⁰⁵ Ru			1,0000 ± 0,0405	0,0249 ± 0,0010
¹⁰⁶ Ru	4,5713 ± 0,1682	4,2956 ± 0,2422	4,4086 ± 0,2949	0,1100 ± 0,0084
¹⁰⁷ Ru	11,2882 ± 0,3255	11,3737 ± 0,3985	11,3353 ± 0,5145	0,2827 ± 0,0129
¹⁰⁸ Ru	27,0806 ± 0,6259	24,2102 ± 1,0532	25,2802 ± 1,2252	
	0,7459 ± 0,0184	0,7356 ± 0,0091	0,7425 ± 0,0205	0,6305 ± 0,0543
¹⁰⁹ Ru			1,0000 ± 0,0416	0,8492 ± 0,0353

Taulukko 7. (jatkuu)

Isotooppi	Ensimmäinen mittaus	Toinen mittaus	Painotettu keskiarvo	Isotoopin suhteellinen tuotto
¹¹⁰ Ru	1,1421 ± 0,1639	1,2227 ± 0,0908	1,1776 ± 0,1920	1,0000 ± 0,1667
		1,2190 ± 0,0421		
¹¹¹ Ru	0,8431 ± 0,0291	0,8630 ± 0,0132	0,8493 ± 0,03194	0,7212 ± 0,0295
¹¹² Ru	0,4966 ± 0,0139	0,4964 ± 0,0042	0,4965 ± 0,0145	0,4216 ± 0,0123
¹⁰⁸ Rh	0,1951 ± 0,0061	0,2027 ± 0,0034	0,1978 ± 0,0070	0,0313 ± 0,0014
¹⁰⁹ Rh			1,0000 ± 0,0493	0,1581 ± 0,0078
¹¹⁰ Rh	2,5087 ± 0,4233	2,6492 ± 0,2600	2,5744 ± 0,5089	0,4070 ± 0,0813
		2,6502 ± 0,1106		
¹¹¹ Rh	5,4307 ± 0,1474	5,6278 ± 0,0921	5,5065 ± 0,1738	0,8705 ± 0,0335
¹¹² Rh	6,3381 ± 0,2819	6,2350 ± 0,0378	6,3259 ± 0,2844	1,0000 ± 0,0450
¹⁰⁹ Pd			1,0000 ± 0,1712	0,0267 ± 0,0046
¹¹⁰ Pd	4,1582 ± 2,0599	1,4775 ± 0,2123	4,2572 ± 2,4208	0,1137 ± 0,0782
		4,8903 ± 1,2538		
¹¹¹ Pd	13,2765 ± 0,7408	13,9977 ± 1,1761	13,7190 ± 1,3900	0,3664 ± 0,0379
¹¹² Pd	37,5128 ± 2,0288	37,2277 ± 0,3135	37,4466 ± 2,1195	1,0000 ± 0,0566

6 Päätäntö

Tämän tutkielman tavoite oli selvittää, onko massaerottelun kestolla ja käytetyllä menetelmällä vaikutusta havaittuihin fissiotuottoihin. Kuvien 14-20 perusteella vaikuttaisi siltä, että niillä ei ole suurta vaikutusta fissiotuottoihin. Eri menetelmien antamat suhteelliset fissiotuotot ovat enimmäkseen luotettavuusarvioiden sisällä. Poikkeuksena tähän on arseeni, jonka läpäisy kohtiosta mittausalueelle näyttäisi olevan vähäisempää MR-TOF:lla ja Penningin loukulla mitattaessa. Omituista on kuitenkin se, että useissa tapauksissa, ^{80}As mukaan lukien, Penningin loukulla suhteellinen fissiotuotto on MR-TOF:lla mitattua suurempi. Suurimpien isotooppien häviöiden odotettiin tulevan kaasutäytteisistä loukuista (RFQ ja Penningin loukku), jolloin Penningin loukulla mitattaessa häviöt tulisi olla MR-TOF-mittauksia suuremmat.

Tässä työssä oletettiin MR-TOF:n puoliintumismatkan olevan sama kaikille alkuaineille. On mahdollista, että näin ei kuitenkaan ole, jolloin MR-TOF-mittauksissa tehty kierroslukukorjaus ei vastaa täysin todellista tilannetta. Puoliintumismatkaan liittyy muutenkin epävarmuutta. Tässä sen oletettiin olevan 550 kierrosta ilman epävarmuusarviota. Todellisen puoliintumismatkan selvittämiseksi olisikin hyvä tehdä jatkotutkimus, jossa keskitytään MR-TOF:n kierrosluvun aiheuttamaan isotooppihäviöön. Tällöin saataisiin selville puoliintumismatka epävarmuusarvioineen ja mahdolliset erot eri alkuaineilla.

Tutkielman toinen tavoite oli selvittää, eroavatko MR-TOF:lla mitatut fissiotuotot Penningin loukulla mitatuista tuottoista, sekä täydentää aikaisempiin Penningin loukulla tehtyihin mittauksiin jääneitä aukkoja. Kuvien 21-26 perusteella erot menetelmien välillä eivät ole erityisen suuria. JYFLTRAP datassa näyttäisi olevan enemmän yksittäisten datapisteiden heittelyä, ja suurimmat erot ovat näiden datapisteiden isotoopeilla, jotka ovat olleet tarkennusta vaativia tapauksia. MR-TOF tuottojakaumat näyttävät yleisesti asettuvan paremmin niihin tehtyihin sovituksiin, kuin JYFLTRAP:n jakaumat omiin sovituksiinsa. Tämä johtuu ilmeisesti merkittävästi paremmasta statistiikasta.

Havaittujen isotooppien tuottoa on mahdollista seurata MR-TOF mittauksen ai-

kana. Tuotto pysyi mitatessa pääasiassa tasaisena, mutta muuttui palatessa takaisin samaan massalukuun. Ennen massaluvun $A=110$ ensimmäistä mittausta kylmäloukku täytettiin, joka mahdollisesti selittää tuoton nousua kyseisen massaluvun mittaus-
ten aikana. Muiden massalukujen kohdalla ilmeistä syytä tuoton vaihtelulle ei ole. Tämä vaihtelu on otettu huomioon riippumattomien isotooppisten fissiotuottojen luotettavuusarvioissa.

Lähteet

- [1] D. Gorelov. ”Nuclear fission studies with the IGISOL method and JYFLTRAP”. Väitöskirja. Jyväskylä: Jyväskylän yliopisto, Fysiikan laitos, 2015. URL: <http://urn.fi/URN:ISBN:978-951-39-6450-4> (viitattu 19.05.2024).
- [2] F. Gönnerwein. ”Ternary and quaternary fission”. *Nuclear Physics A* 734 (2004), s. 213–216. ISSN: 0375-9474. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2004.01.037>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947404000429>.
- [3] N. Schunck ja D. Regnier. ”Theory of nuclear fission”. *Progress in Particle and Nuclear Physics* 125 (2022), s. 103963. ISSN: 0146-6410. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.pnpnp.2022.103963>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0146641022000242>.
- [4] K.-H. Schmidt ym. ”Extensive Study of the Quality of Fission Yields from Experiment, Evaluation and GEF for Antineutrino Studies and Applications”. *Nuclear Data Sheets* 173 (2021). Special Issue on Nuclear Reaction Data, s. 54–117. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2021.04.004>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375221000144>.
- [5] K.-H. Schmidt ym. ”General Description of Fission Observables: GEF Model Code”. *Nuclear Data Sheets* 131 (2016). Special Issue on Nuclear Reaction Data, s. 107–221. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2015.12.009>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375215000745>.
- [6] U. Brosa, S. Grossmann ja A. Müller. ”Four Channels in the Fission of ^{252}Cf ”. *Zeitschrift für Naturforschung A* 41.12 (1986), s. 1341–1346. DOI: [doi:10.1515/zna-1986-1201](https://doi.org/10.1515/zna-1986-1201). URL: <https://doi.org/10.1515/zna-1986-1201>.

- [7] K.-H. Schmidt ja B. Jurado. "Entropy Driven Excitation Energy Sorting in Superfluid Fission Dynamics". *Phys. Rev. Lett.* 104 (21 toukokuu 2010), s. 212501. DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.212501. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.212501>.
- [8] R. Watson ja J. Wilhelmy. *Calculated fractional independent yields OP products formed in the spontaneous fission of 252cf*. LBL Publications. 1969. URL: <https://escholarship.org/uc/item/6w98k0qt>.
- [9] J. Randrup, P. Möller ja A. J. Sierk. "Fission-fragment mass distributions from strongly damped shape evolution". *Phys. Rev. C* 84 (3 syyskuu 2011), s. 034613. DOI: 10.1103/PhysRevC.84.034613. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.84.034613>.
- [10] P. Möller ym. "Heavy-element fission barriers". *Phys. Rev. C* 79 (6 kesäkuu 2009), s. 064304. DOI: 10.1103/PhysRevC.79.064304. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.79.064304>.
- [11] J. Rayford Nix. "Further studies in the liquid-drop theory on nuclear fission". *Nuclear Physics A* 130.2 (1969), s. 241–292. ISSN: 0375-9474. DOI: [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(69\)90730-1](https://doi.org/10.1016/0375-9474(69)90730-1). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947469907301>.
- [12] A. C. Wahl. "Systematics of Fission-Product Yields" (toukokuu 2002). DOI: 10.2172/809946. URL: <https://www.osti.gov/biblio/809946>.
- [13] S. J. Balestrini ja L. Forman. "Independent fission yields of Rb and Cs from ^{238}U induced by fission-spectrum neutrons". *Phys. Rev. C* 10 (5 marraskuu 1974), s. 1872–1879. DOI: 10.1103/PhysRevC.10.1872. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.10.1872>.
- [14] J. Goda ym. "A New Era of Nuclear Criticality Experiments: The First 10 Years of Godiva IV Operations at NCERC". *Nuclear Science and Engineering* 195.sup1 (2021), S55–S79. DOI: 10.1080/00295639.2021.1947103. eprint: <https://doi.org/10.1080/00295639.2021.1947103>. URL: <https://doi.org/10.1080/00295639.2021.1947103>.
- [15] U. Köster ym. "Experience with in-pile fission targets at LOHENGRIN". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 613.3 (2010). Target and

- Stripper Foil Technologies for High Intensity Beams, s. 363–370. ISSN: 0168-9002. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.09.078>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209018361>.
- [16] *PN1 (Lohengrin) - an exotic-isotope spectrometer*. URL: <https://www.ill.eu/users/instruments/instruments-list/pn1/characteristics> (viitattu 19.05.2024).
- [17] *PN1 (Lohengrin) - an exotic-isotope spectrometer*. URL: <https://www.ill.eu/users/instruments/instruments-list/pn1/description/instrument-layout> (viitattu 30.04.2024).
- [18] M. Fréreau ja S. Oberstedt. "The Fission-fragment Spectrometer VERDI". *Physics Procedia* 64 (2015). Scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, THEORY-3, s. 197–203. ISSN: 1875-3892. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.phpro.2015.04.027>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389215001431>.
- [19] Deshayes, Quentin ym. "FALSTAFF, an apparatus to study fission fragment properties First arm results". *EPJ Web Conf.* 239 (2020), s. 05012. DOI: 10.1051/epjconf/202023905012. URL: <https://doi.org/10.1051/epjconf/202023905012>.
- [20] L. Audouin ym. "Fission in inverse kinematics". *Nuovo Cimento C Geophysics Space Physics C* 41.5, 176 (syyskuu 2019), s. 176. DOI: 10.1393/ncc/i2018-18176-6.
- [21] R. Kirchner ym. "The ion sources for the GSI on-line separator". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 186.1 (1981), s. 295–305. ISSN: 0167-5087. DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(81\)90917-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(81)90917-4). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X81909174>.
- [22] J. Äystö ym. *Three decades of research using IGISOL technique at the University of Jyväskylä*. Tammikuu 2014. DOI: 10.1007/978-94-007-5555-0. URL: <https://doi.org/10.1007/978-94-007-5555-0>.
- [23] T. Eronen ym. "JYFLTRAP: a Penning trap for precision mass spectroscopy and isobaric purification". *The European Physical Journal A* 48.4 (huhtikuu

- 2012), s. 46. ISSN: 1434-601X. DOI: 10.1140/epja/i2012-12046-1. URL: <https://doi.org/10.1140/epja/i2012-12046-1>.
- [24] P. Karvonen ym. "A sextupole ion beam guide to improve the efficiency and beam quality at IGISOL". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 266.21 (2008), s. 4794–4807. ISSN: 0168-583X. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.07.022>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X08009191>.
- [25] D. A. Nesterenko ym. "Study of radial motion phase advance during motion excitations in a Penning trap and accuracy of JYFLTRAP mass spectrometer". *The European Physical Journal A* 57.11 (marraskuu 2021), s. 302. ISSN: 1434-601X. DOI: 10.1140/epja/s10050-021-00608-3. URL: <https://doi.org/10.1140/epja/s10050-021-00608-3>.
- [26] A. Nieminen ym. "Beam cooler for low-energy radioactive ions". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 469.2 (2001), s. 244–253. ISSN: 0168-9002. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(00\)00750-6](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(00)00750-6). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900200007506>.
- [27] W. R. Plaß, T. Dickel ja C. Scheidenberger. "Multiple-reflection time-of-flight mass spectrometry". *International Journal of Mass Spectrometry* 349-350 (2013). 100 years of Mass Spectrometry, s. 134–144. ISSN: 1387-3806. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijms.2013.06.005>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S138738061300239X>.
- [28] Penttilä, Heikki ym. "Radioactive ion beam manipulation at the IGISOL-4 facility". *EPJ Web Conf.* 239 (2020), s. 6. DOI: 10.1051/epjconf/202023917002. URL: <https://doi.org/10.1051/epjconf/202023917002>.
- [29] D. Alexiev ym. "Review of Ge detectors for gamma spectroscopy". *Australasian Physics & Engineering Sciences in Medicine* 25.3 (syyskuu 2002), s. 102–109. ISSN: 1879-5447. DOI: 10.1007/BF03178770. URL: <https://doi.org/10.1007/BF03178770>.
- [30] K. Krane. *Introductory Nuclear Physics*. Wiley, 1988. ISBN: 9780471859147.

- [31] H. Penttilä ym. "Independent Isotopic Product Yields in 25 MeV and 50 MeV Charged Particle Induced Fission of ^{238}U and ^{232}Th ". *Nuclear Data Sheets* 119 (2014), s. 334–337. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.08.092>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375214006267>.
- [32] Pomp, Stephan ym. "Measurement of fission yields and isomeric yield ratios at IGISOL". *EPJ Web Conf.* 169 (2018), s. 00017. DOI: 10.1051/epjconf/201816900017. URL: <https://doi.org/10.1051/epjconf/201816900017>.
- [33] H. Penttilä ym. "Independent isotopic yields in 25 MeV and 50 MeV proton-induced fission of natU". *The European Physical Journal A* 52.4 (huhtikuu 2016), s. 104. ISSN: 1434-601X. DOI: 10.1140/epja/i2016-16104-4. URL: <https://doi.org/10.1140/epja/i2016-16104-4>.
- [34] S. Ayet San Andrés ym. "High-resolution, accurate multiple-reflection time-of-flight mass spectrometry for short-lived, exotic nuclei of a few events in their ground and low-lying isomeric states". *Phys. Rev. C* 99 (6 kesäkuu 2019), s. 064313. DOI: 10.1103/PhysRevC.99.064313. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.99.064313>.
- [35] H. Penttilä ym. "Fission yield studies at the IGISOL facility". *The European Physical Journal A* 48.4 (huhtikuu 2012), s. 43. ISSN: 1434-601X. DOI: 10.1140/epja/i2012-12043-4. URL: <https://doi.org/10.1140/epja/i2012-12043-4>.
- [36] P. H. Eilers ja H. F. Boelens. "Baseline correction with asymmetric least squares smoothing". *Leiden University Medical Centre Report* 1.1 (2005), s. 5.
- [37] A. Negret ja B. Singh. "Nuclear Data Sheets for $A = 86$ ". *Nuclear Data Sheets* 124 (2015), s. 1–156. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.12.045>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375214007455>.
- [38] M.-M. Bé ja V. Chechev. "Recommended standards for gamma ray intensities". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 728 (marraskuu 2013), s. 157–172. DOI: 10.1016/j.nima.2013.05.134. URL: <https://cea.hal.science/cea-01802664>.

- [39] B. Singh. "Nuclear Data Sheets for $A = 80$ ". *Nuclear Data Sheets* 105.2 (2005), s. 223–418. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2005.06.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S009037520500044X>.
- [40] B. Singh ja J. Chen. "Nuclear Data Sheets for $A=100$ ". *Nuclear Data Sheets* 172 (2021), s. 1–542. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2021.02.001>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375221000016>.
- [41] J. Blachot. "Nuclear Data Sheets for $A = 104$ ". *Nuclear Data Sheets* 108.10 (2007), s. 2035–2172. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2007.09.001>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375207000798>.
- [42] G. Gürdal ja F. Kondev. "Nuclear Data Sheets for $A = 110$ ". *Nuclear Data Sheets* 113.5 (2012), s. 1315–1561. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2012.05.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375212000415>.
- [43] J. Katakura ja Z. Wu. "Nuclear Data Sheets for $A = 124$ ". *Nuclear Data Sheets* 109.7 (2008), s. 1655–1877. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2008.06.001>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375208000458>.
- [44] E. Mccutchan. "Nuclear Data Sheets for $A=136$ ". *Nuclear Data Sheets* 152 (2018), s. 331–667. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.10.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375218300711>.
- [45] R. D. Knight. *Physics for Scientists and Engineers: A Strategic Approach with Modern Physics*. Ebsco MUPO/SUPO. Pearson Education Limited, 2016. URL: <http://search.ebscohost.com/login.aspx?direct=true&scope=site&db=nlebk&AN=1419859>.

A MR-TOF- mittaustulokset

Referenssimassaluvussa A=105 käytetty kierrosluku on kaikissa mittauksissa 946 ja referenssissä A=109 982.

Taulukko 8. Massalukujen A=80, 86 ja 100 MR-TOF mittausten hiukkasmäärät isobaarijakaumia varten. Mittauksissa käytetyt kierrosluvut ovat 881, 775 ja 898. Mittaukset kestivät 36, 16 ja 59 minuuttia.

A=80	Alkuaine	Sr	As	Ge	Ga	
	määrä	137175 ± 371	484 ± 22	2714 ± 53	141 ± 12	
	korjattu määrä	416361 ± 1126	1473 ± 67	8249 ± 161	437 ± 37	
A=86	Alkuaine	Kr	Br	Se	As	
	määrä	301901 ± 550	223414 ± 473	132869 ± 365	1403 ± 38	
	korjattu määrä	801758 ± 1461	593768 ± 1257	353888 ± 972	3893 ± 105	
A=100	Alkuaine	Mo	Nb	Zr	Y	Sr
	määrä	68338 ± 262	59854 ± 245	152550 ± 391	33821 ± 184	2595 ± 51
	korjattu määrä	211915 ± 812	189075 ± 774	475834 ± 1220	110210 ± 600	9875 ± 194

Taulukko 9. Massaluvun A=103 ja vastaavien referenssien A=105 massapiikkien hiukkasmäärät. Massaluvun A=103 mittauksessa käytetty kierrosluku on 922. Zirkoniumia ei havaittu referenssimittauksessa.

	aika (min)	Ru	Tc	Mo	Nb	Zr
A=105	10	2465 ± 50	43212 ± 208	65523 ± 256	3623 ± 61	
A=103	32	1887 ± 44	14439 ± 121	135495 ± 369	38703 ± 197	4583 ± 68
A=105	12	2501 ± 51	49378 ± 223	74489 ± 273	4201 ± 65	
A=103	30	2332 ± 49	12618 ± 113	120241 ± 347	33894 ± 185	4251 ± 65
A=105	33	6775 ± 83	127749 ± 385	192434 ± 439	9855 ± 100	
Korjatut arvot (ionia/s)						
Ensimmäinen mittaus						
A=103		3,1777±0,0741	24,338±0,2039	228,3129±0,6218	67,0063±0,3411	7,9645±0,1180
A=105		12,3378±0,5640	230,0551±4,2790	348,2576±4,8719	19,7141±0,5876	
103/105 suhteellinen fissionuotto		0,2576±0,0132	0,1058±0,0022	0,6556±0,0093	3,3989±0,1028	
Toinen mittaus						
A=103		4,1021±0,0862	22,2129±0,1989	211,6416±0,6108	61,2964±0,3346	7,7169±0,1180
A=105		11,3179±0,3360	216,1389±14,8709	326,0629±20,8889	17,3936±2,1816	
103/105 suhteellinen fissionuotto		0,3624±0,0132	0,1028±0,0072	0,6491±0,0416	3,5241±0,4424	

Taulukko 10. Massaluvun A=104 ja vastaavien referenssien A=105 massapiikien hiukkasmäärät. Massaluvun A=104 mittauksessa käytetty kierrosluku on 935. Zirkoniumia ei havaittu referenssimittauksessa.

	aika (min)	Ru	Tc	Mo	Nb	Zr
A=105	33	6775 ± 83	127749 ± 385	192434 ± 439	9855 ± 100	
A=104	30	2311 ± 49	33722 ± 184	170188 ± 413	15913 ± 127	1352 ± 37
A=105	15	3062 ± 56	60721 ± 247	91862 ± 304	4949 ± 71	
A=104	31	2283 ± 48	32466 ± 181	167515 ± 124	15321 ± 124	1244 ± 36
A=105	15	2640 ± 52	47927 ± 219	75261 ± 275	3939 ± 93	
Korjatut arvot (ionia/s)						
Ensimmäinen mittaus						
A=104		4,1437±0,0879	60,4676±0,3299	305,3675±0,7410	28,7760±0,2297	2,5427±0,0686
A=105		11,0829±0,1822	212,3619±4,4399	320,6899±6,9685	16,9158±0,9035	
104/105 suhteellinen fissionuotto		0,3739±0,0101	0,2847±0,0062	0,9523±0,0208	1,7011±0,0919	
Toinen mittaus						
A=104		4,0138±0,0844	57,0814±0,3182	294,7160±0,2182	27,1657±0,2199	2,2940±0,0664
A=105		10,3839±0,5457	197,8769±25,3557	304,7029±29,1369	16,4156±1,8534	
104/105 suhteellinen fissionuotto		0,3865±0,0219	0,2885±0,0369	0,9672±0,0925	1,6549±0,1873	

Taulukko 11. Massaluvun A=106 ja vastaavien referenssien A=105 massapiikien hiukkasmäärät. Massaluvun A=106 mittauksessa käytetty kierrosluku on 950. A=106 rutenium ja rodium ovat päällekkäin, rodiumin osuus oletetaan olevan mitättömän pieni. Kadmiumin ja hopean piikit ovat myös päällekkäin, jätetty taulukoimatta, sillä niitä ei havaittu referenssimittauksessa. Ne ovat ruteniumin piikin lähetyksillä, joten niiden vaikutus siihen on huomioitu.

	aika (min)	Ru	Tc	Mo	Nb
A=105	15	2640 ± 52	47927 ± 219	75261 ± 275	3939 ± 93
A=106	30	25133 ± 118	164654 ± 406	143455 ± 379	2039 ± 46
A=105	10	1898 ± 44	40802 ± 202	62296 ± 250	3264 ± 58
A=106	31	27104 ± 165	191494 ± 438	167633 ± 410	2644 ± 52
A=105	11	2402 ± 50	47484 ± 218	73036 ± 271	3903 ± 63
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=106		46,0512±0,2153	302,0525±0,7448	264,1114±0,6978	3,8914±0,0878
A=105		10,0739±0,3677	196,9889±30,6857	305,7230±38,4127	16,2169±2,0524
106/105 suhteellinen fissionuotto		4,5713±0,1682	1,5333±0,2389	0,8639±0,1086	0,2399±0,0309
Toinen mittaus					
A=106		47,9133±0,2917	338,9110±0,7752	297,7497±0,7282	4,8682±0,0957
A=105		11,1542±0,6252	229,0341±4,8611	351,4601±8,3325	18,8550±0,7310
106/105 suhteellinen fissionuotto		4,2956±0,2422	1,4797±0,0316	0,8472±0,0202	0,2582 ±0,0112

Taulukko 12. Massaluvun A=107 ja vastaavien referenssien A=105 massa-
piikkien hiukasmäärät. Massaluvun A=107 mittauksessa käytetty kierrosluku
on 963. A=107 rutenium ja kadmiumin ovat päällekkäin, myös palladiumin ja
hopean piikit ovat myös päällekkäin. Nämä jätetty taulukoimatta, sillä niitä ei
havaittu referenssimittauksessa.

	aika (min)	Ru	Tc	Mo	Nb
A=105	11	2402 ± 50	47484 ± 218	73036 ± 271	3903 ± 63
A=107	31	74756 ± 274	317665 ± 564	75964 ± 276	231 ± 16
A=105	17	3773 ± 62	74811 ± 274	114504 ± 339	6132 ± 79
A=107	32	82630 ± 288	350149 ± 592	82343 ± 287	453 ± 22
A=105	11	2561 ± 51	49513 ± 223	75900 ± 276	4082 ± 64
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=107		136,7681±0,5013	582,2100±1,0337	140,6128±0,5109	0,4851±0,0336
A=105		12,1160±0,3465	239,9770±8,2198	±368,4019±10,5029	19,9691±0,6511
107/105 suhteellinen fissiotuotto		11,2882±0,3255	2,4261±0,0832	0,3817±0,0110	0,0243 ±0,0019
Toinen mittaus					
A=107		144,2737±0,5029	612,4547±1,0355	145,4637±0,5070	0,9079±0,0441
A=105		12,6848±0,4423	249,0011±6,7606	381,7589±9,8428	20,7454±0,6487
107/105 suhteellinen fissiotuotto		11,3737±0,3985	2,4597±0,0669	0,3810±0,0099	0,0438±0,0025

Taulukko 13. Massaluvun A=108 ja vastaavien referenssien A=105 massapiikkien hiukasmäärät. Huomaa, että A=108 mitattiin myös käyttäen referenssinä A=109. Massaluvun A=108 mittauksessa käytetty kierrosluku on 982. A=108 palladium ja kadmium ovat päällekkäin, jätetty taulukoimatta, sillä niitä ei havaittu referenssimittauksessa. Rodium piikki erittäin lähellä ruteniumin piikkiä, vaikutus ruteniumiin otettu huomioon, referenssimittauksessa ei havaittu rodiumia. Referenssimittauksen niobium jätetty taulukosta, ei havaittu A=108 mittauksessa.

	aika (min)	Rh	Ru	Tc	Mo
A=105	11		2561 ± 51	49513 ± 223	75900 ± 276
A=108	30	10425 ± 24	186293 ± 420	281464 ± 531	34707 ± 187
A=105	13		3093 ± 55	61115 ± 248	92629 ± 305
A=108	32	9471 ± 98	183213 ± 429	280490 ± 530	33539 ± 184
A=105	28		7113 ± 85	117343 ± 343	602396 ± 368
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=108		19,7302±0,0445	351,7523±0,7939	535,6612±1,0106	68,0681±0,3667
A=105			12,9891±0,2988	254,1721±1,6985	387,6180±4,6565
108/105 suhteellinen fissiotuotto			27,0806±0,6259	2,1075±0,0146	0,1756±0,0023
Toinen mittaus					
A=108		17,1142±0,1771	330,8963±0,7748	510,5986±0,9648	62,9175±0,3452
A=105			13,6676±0,5937	239,0079±13,7336	369,0679±13,4658
108/105 suhteellinen fissiotuotto			24,2102±1,0532	2,1363±0,1228	0,1705±0,0063

Taulukko 14. Massaluvun A=108 ja vastaavien referenssien A=109 massapiikkien hiukkasmäärät. Huomaa, että A=108 mitattiin myös käyttäen referenssinä A=105. Massaluvun A=108 mittauksessa käytetty kierrosluku on 982. A=108 palladium ja kadmium ovat päällekkäin, jätetty taulukoimatta. Rodium piikki erittäin lähellä ruteniumin piikkiä, vaikutus ruteniumiin otettu huomioon. Hopean ja kadmiumin piikit ovat täysin päällekkäin referenssimittauksessa, jätetty taulukoimatta.

	aika (min)	Rh	Ru	Tc	Mo
A=109	10	13396 ± 116	65148 ± 256	47689 ± 219	1127 ± 34
A=108	31	7590 ± 86	141531 ± 377	211854 ± 461	26029 ± 162
A=109	11	13128 ± 115	63835 ± 253	46197 ± 215	1049 ± 33
A=108	31	7662 ± 88	134470 ± 367	202767 ± 451	24872 ± 158
A=109	10	12599 ± 113	60846 ± 247	44693 ± 212	1188 ± 35
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=108		14,1323±0,1601	262,9149±0,7003	396,6677±0,8632	50,2235±0,3126
A=109		72,4331±2,0998	352,4749±8,6250	268,9340±8,9457	6,3248±0,3369
108/109 suhteellinen fission tuotto		0,1951±0,0061	0,7459±0,0184	1,4750±0,0492	7,9407±0,4258
Toinen mittaus					
A=108		14,3309±0,1655	252,2443±0,6884	383,3716±0,8527	48,4610±0,3078
A=109		70,7044±0,8426	342,8899±4,1096	262,0119±1,2729	6,5436±0,5410
108/109 suhteellinen fission tuotto		0,2027±0,0034	0,7356 ±0,0091	1,4632±0,0078	7,4059±0,6142

Taulukko 15. Massaluvun A=110 ja vastaavien referenssien A=109 hiukkas-
määrät. Massaluvun A=110 mittauksessa käytetty kierrosluku on 989. Hopean
ja kadmiumin piikit ovat täysin päällekkäin referenssimittauksessa, jätetty taulu-
koimatta.

	aika (min)	Pd	Rh	Ru	Tc	Mo
A=109	10	370 ± 20	12599 ± 113	60846 ± 247	44693 ± 212	1188 ± 35
A=110	31	6856 ± 83	106531 ± 327	233228 ± 483	63063 ± 252	1207 ± 35
A=109	10	730 ± 28	15758 ± 126	75723 ± 276	56016 ± 237	1787 ± 43
A=110	29	2742 ± 53	124296 ± 353	272711 ± 523	74527 ± 273	1379 ± 38
A=109	11	631 ± 29	18682 ± 137	88239 ± 298	66128 ± 258	2213 ± 48
A=110	30	10348 ± 102	141722 ± 377	307111 ± 555	85072 ± 292	1684 ± 42
A=109	11	886 ± 30	19692 ± 141	92813 ± 305	69922 ± 265	1757 ± 42
Korjatut arvot (ionia/s)						
Ensimmäinen mittaus						
A=110		12,7987±0,1549	199,1606±0,6113	436,9496±0,9049	123,1616±0,4922	2,5916±0,0752
A=109		3,0779±1,5243	79,3872±13,3934	382,5959±54,8901	295,7370±45,8637	8,8648±1,8338
110/109 suhteellinen fissiotuotto		4,1582±2,0599	2,5087±0,4233	1,1421 ±0,1639	0,4165±0,0646	0,2924±0,0611
Toinen mittaus						
A=110		5,5411±0,1071	251,5456±0,7144	553,0767±1,0607	157,5601±0,5772	3,2052±0,0883
A=109		3,75039±0,5339	94,9526±9,3138	452,3610±33,5615	353,2340±30,5269	11,7379±1,0685
110/109 suhteellinen fissiotuotto		1,4775 ±0,2123	2,6492±0,2600	1,2227±0,0908	0,4461±0,0386	0,2731±0,0260
Kolmas mittaus						
A=110		20,1053±0,1982	275,7558±0,7335	598,8332±1,0822	172,9207±0,5935	3,7633±0,0939
A=109		4,1113±1,0533	104,0520±4,3315	491,2641±16,9332	386,9539±15,3420	11,4576±1,3257
110/109 suhteellinen fissiotuotto		4,8903±1,2538	2,6502±0,1106	1,2190±0,0421	0,4469±0,0178	0,3285±0,0389

Taulukko 16. Massaluvun A=111 ja vastaavien referenssien A=109 hiukkas-
määrät. Massaluvun A=111 mittauksessa käytetty kierrosluku on 1000. Hopean
ja kadmiumin piikit ovat täysin päällekkäin referenssimittauksessa, jätetty tau-
lukoimatta. Molybdeenä ei havaittu massaluvun A=111 mittauksessa, jätetty
taulukoimatta.

	aika (min)	Pd	Rh	Ru	Tc
A=109	11	886 ± 30	19692 ± 141	92813 ± 305	69922 ± 265
A=111	30	32884 ± 182	294544 ± 543	214192 ± 463	26278 ± 163
A=109	10	885 ± 30	19215 ± 139	92218 ± 304	69093 ± 263
A=111	30	38258 ± 196	319044 ± 565	231655 ± 482	28068 ± 168
A=109	10	955 ± 31	19075 ± 139	91850 ± 304	70049 ± 265
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=111		65,7375±0,3638	591,0452±1,0896	436,6634±0,9439	59,1356±0,3668
A=109		4,95144±0,2749	108,834±2,9473	517,9410±17,8381	407,8931±13,2377
111/109 suhteellinen fissiotuotto		13,2765 ±0,7408	5,4307 ±0,1474	0,8431±0,0291	0,1450±0,0048
Toinen mittaus					
A=111		75,2435±±0,3855	629,8532±1,1154	464,6260±0,9667	62,1421±0,3719
A=109		5,3754±0,4508	111,9189±1,8204	538,3879±8,1540	426,6029±11,7832
111/109 suhteellinen fissiotuotto		13,9977±1,1761	5,6278±0,0921	0,8630±0,0132	0,1457±0,0041

Taulukko 17. Massaluvun A=112 ja vastaavien referenssien A=109 massapiikkien hiukkasmäärät. Massaluvun A=112 mittauksessa käytetty kierrosluku on 1011. Hopean ja kadmiumin piikit ovat täysin päällekkäin referenssimittauksessa, jätetty taulukoimatta. Molybdeenä ei havaittu massaluvun A=111 mittauksessa, jätetty taulukoimatta. Hopean ja palladiumin piikit ovat päällekkäin, koko tuotto annettu palladiumille.

	aika (min)	Pd	Rh	Ru	Tc
A=109	10	955 ± 31	19075 ± 139	91850 ± 304	70049 ± 265
A=112	30	110136 ± 332	369255 ± 608	136045 ± 369	4325 ± 66
A=109	10	1007 ± 32	20144 ± 142	95400 ± 309	71585 ± 268
A=112	31	115087 ± 340	382189 ± 619	142858 ± 378	4594 ± 68
A=109	9	974 ± 32	19571 ± 140	93235 ± 306	69878 ± 265
Korjatut arvot (ionia/s)					
Ensimmäinen mittaus					
A=112		218,5357±0,6588	738,4593±1,2159	276,4328±0,7498	9,9984±0,1526
A=109		5,8256±0,3146	116,5110±5,1776	556,6580±15,4385	441,3499±8,0987
112/109 suhteellinen fissiotuotto		37,5128±2,0288	6,3381±0,2819	0,4966±0,0139	0,0227±0,0006
Toinen mittaus					
A=112		223,4007±0,6600	750,5021±1,2155	283,9728±0,7514	10,3897±0,1538
A=109		6,0009±0,0973	120,3689±0,7037	572,1089±4,5582	449,7271±3,4184
112/109 suhteellinen fissiotuotto		37,2277±0,3135	6,2350±0,0378	0,4964±0,0042	0,0231±0,0004

B Gammamittausten mittaustulokset

Taulukoihin 18-24 on koottuna massaluvuittain tutkittavien gammojen lukumäärä, intensiteetti, havaitsemistehokkuus ja niistä laskettu kumulatiivinen tuotto. Havaitsemistehokkuus on pyöristetty taulukkoon 15-yksikön säännöllä selvyyden vuoksi, laskut on tehty tarkoilla arvoilla.

Taulukoissa 25-31 on esitetty fissiotuotteiden havaittu kumulatiivinen tuotto, ja siitä laskettu riippumaton tuotto. Kumulatiivinen tuotto on laskettu eri gammasiirtymistä laskettujen tuottojen painotettuna keskiarvona. Koska gammamittausten osalta tarkastellaan kunkin massaluvun jakaumia erikseen, tuottoja ei ole normitettu mittaussajalla.

Taulukko 18. Massaluvun A=80 gammamittaukset.

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [39]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Ga	523,18	809 ± 74	0,101 $\pm 0,012$	0,113 $\pm 0,003$	70667 ± 10749
Ga	659,14	3582 ± 82	0,78 $\pm 0,09$	0,085 $\pm 0,002$	54183 ± 6487
Ga	1083,47	1447 ± 51	0,48 $\pm 0,06$	0,0454 $\pm 0,0011$	66472 ± 8774
Ga	1109,36	571 ± 40	0,186 $\pm 0,022$	0,0440 $\pm 0,0011$	69733 ± 9729
Ga	1313	175 ± 31	0,066 $\pm 0,008$	0,0356 $\pm 0,0010$	74457 ± 16106
Ge	265,36	74403 ± 297	0,27 $\pm 0,05$	0,271 $\pm 0,009$	1015844 ± 190678
Ge	680,16	1653 ± 64	0,022 $\pm 0,004$	0,0815 $\pm 0,0012$	922217 ± 171969
Ge	936,97	2323 ± 62	0,041 $\pm 0,008$	0,0545 $\pm 0,0012$	1040622 ± 206208
As	666,2	62206 ± 255	0,42 *	0,084 $\pm 0,002$	1771060 ± 40006
As	1207,1	3017 ± 64	0,043 $\pm 0,006$	0,040 $\pm 0,001$	1772421 ± 254121
As	1645,2	3352 ± 61	0,075 $\pm 0,010$	0,0268 $\pm 0,0009$	1666902 ± 230521

*Intensiteetin epävarmuutta ei ilmoitettu.

Taulukko 19. Massaluvun A=86 gammamittaukset.

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [37]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
As	704,2	486 ± 88	1* $\pm 0,1$	0,078 $\pm 0,002$	6232 ± 1296
Se	207,5	25935 ± 258	0,07783 $\pm 0,00387$	0,39 $\pm 0,02$	844470 ± 56872
Se	382,4	10413 ± 169	0,07654 $\pm 0,00387$	0,168 $\pm 0,006$	809066 ± 50325
Se	2010,6	1750 ± 74	0,10191 $\pm 0,00516$	0,0208 $\pm 0,0008$	824315 ± 62379
Se	2441,1	6056 ± 93	0,43 $\pm 0,0215$	0,0163 $\pm 0,0007$	863002 ± 58167
Se	2660	2582 ± 61	0,21586 $\pm 0,01075$	0,0146 $\pm 0,0007$	816596 ± 58108
Br	1361,63	7367 ± 128	0,102 $\pm 0,009$	0,0340 $\pm 0,0010$	2123138 ± 199689
Br	1389,73	7099 ± 119	0,102 $\pm 0,008$	0,0332 $\pm 0,0010$	2099169 ± 178308
Br	1564,6	36587 ± 204	0,62 $\pm 0,05$	0,0286 $\pm 0,0009$	2066106 ± 178626
Br	2349,37	3607 ± 78	0,097 $\pm 0,008$	0,0171 $\pm 0,0007$	2171392 ± 205826
Br	2751,06	5929 ± 84	0,191 $\pm 0,016$	0,0140 $\pm 0,0007$	2210879 ± 213592

*Arseenin absoluuttisen intensiteetin kerrointa ei annettu, käytetty intensiteetti antaa alarajan tuotolle.

Taulukko 20. Massaluvun A=100 gammamittaukset.

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [40]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Sr	898,5	156 ± 54	0,189 $\pm 0,012$	0,0574 $\pm 0,0013$	14381 ± 5071
Y	118,59	12007 ± 251	0,154 $\pm 0,023$	0,55 $\pm 0,03$	142813 ± 22271
Y	212,531	57569 ± 305	0,73 $\pm 0,11$	0,38 $\pm 0,02$	207283 ± 32437
Y	616,67	636 ± 76	0,069 $\pm 0,009$	0,092 $\pm 0,002$	100009 ± 17840
Y	665,98	1802 ± 80	0,077 $\pm 0,011$	0,084 $\pm 0,002$	279727 ± 42305
Y	741,99	357 ± 66	0,044 $\pm 0,007$	0,073 $\pm 0,002$	111108 ± 24205
Y	2515,13	100 ± 19	0,061 $\pm 0,009$	0,0157 $\pm 0,0007$	104301 ± 25495
Y	2600,95	122 ± 19	0,045 $\pm 0,007$	0,0151 $\pm 0,0007$	179930 ± 40401
Y	2770,4	92 ± 16	0,057 $\pm 0,009$	0,0139 $\pm 0,0007$	115973 ± 27764
Zr	400,5	35959 ± 220	0,193 $\pm 0,008$	0,159 $\pm 0,005$	1174407 ± 61392
Zr	504,27	40150 ± 220	0,30 $\pm 0,04$	0,119 $\pm 0,003$	1127293 ± 153312
Nb	159,5	85484 ± 363	0,089 $\pm 0,013$	0,59 $\pm 0,04$	1630228 ± 259644
Nb	528,263	15065 ± 152	0,091 $\pm 0,012$	0,112 $\pm 0,003$	1478431 ± 199096
Nb	535,666	79574 ± 295	0,46 $\pm 0,06$	0,110 $\pm 0,003$	1572141 ± 208901
Nb	600,5	10464 ± 126	0,54 $\pm 0,06$	0,095 $\pm 0,003$	203337 ± 23218
Nb	622,5	2232 ± 85	0,015 $\pm 0,004$	0,091 $\pm 0,002$	1633720 ± 441672
Nb	768,7	4124 ± 90	0,034 $\pm 0,005$	0,0698 $\pm 0,0015$	1736580 ± 260833
Nb	928,3	2671 ± 73	0,025 $\pm 0,003$	0,0551 $\pm 0,0012$	1939462 ± 242440
Nb	1022,5	3845 ± 78	0,049 $\pm 0,009$	0,0488 $\pm 0,0011$	1608658 ± 299518
Nb	1063,7	2977 ± 72	0,033 $\pm 0,005$	0,0464 $\pm 0,0011$	1943637 ± 301629
Nb	1280,4	1437 ± 55	0,174 $\pm 0,022$	0,037 $\pm 0,001$	224689 ± 30265
Nb	1501,9	2069 ± 56	0,044 $\pm 0,006$	0,0301 $\pm 0,0009$	1563779 ± 222310

Taulukko 21. Massaluvun A=104 gammamittaukset. Niobiumin intensiteettejä ei normitettu läheteessä [41].

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [41]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Nb	192,2	45870 \pm 345	1,000 \pm 0,198	0,44 \pm 0,03	103440 \pm 21132
Nb	368,4	4792 \pm 161	0,20 \pm 0,02	0,176 \pm 0,006	135957 \pm 15039
Nb	477,5	4471 \pm 129	0,170 \pm 0,018	0,127 \pm 0,004	206833 \pm 23386
Nb	620,2	2063 \pm 107	0,192 \pm 0,020	0,092 \pm 0,002	117422 \pm 13928
Nb	812,4	1404 \pm 85	0,170 \pm 0,018	0,0652 \pm 0,0014	126762 \pm 15696
Mo	86	10254 \pm 294	0,020 \pm 0,004	0,159 \pm 0,011	3217229 \pm 684492
Mo	91	27050 \pm 324	0,049 \pm 0,004	0,238 \pm 0,012	2315329 \pm 221335
Mo	335	1988 \pm 171	0,006 \pm 0,0023	0,199 \pm 0,007	1668186 \pm 657999
Mo	376	10535 \pm 172	0,047 \pm 0,011	0,172 \pm 0,006	1304998 \pm 309132
Mo	393	2681 \pm 137	0,013 \pm 0,003	0,162 \pm 0,005	1269380 \pm 302707
Mo	421	5198 \pm 140	0,026 \pm 0,006	0,149 \pm 0,005	1341870 \pm 314352
Tc	358	210484 \pm 485	0,89 *	0,183 \pm 0,006	1294479 \pm 43894
Tc	530,3	23161 \pm 187	0,156 \pm 0,012	0,111 \pm 0,003	1332322 \pm 108429
Tc	535,1	21965 \pm 183	0,147 \pm 0,012	0,110 \pm 0,003	1356171 \pm 116389
Tc	884,4	8854 \pm 120	0,109 \pm 0,012	0,0586 \pm 0,0013	1387352 \pm 156779
Tc	893,1	8241 \pm 117	0,102 \pm 0,011	0,0578 \pm 0,0013	1397021 \pm 154937
Tc	1612,4	2421 \pm 65	0,058 \pm 0,006	0,0275 \pm 0,0009	1517852 \pm 169072
Tc	1676,8	2937 \pm 67	0,078 \pm 0,008	0,0262 \pm 0,0009	1438379 \pm 158129

*Intensiteetin epävarmuutta ei ilmoitettu.

Taulukko 22. Massaluvun A=110 gammamittaukset

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [42]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Tc	240,7	70829 ± 324	0,766 *	0,315 $\pm 0,011$	293792 ± 9958
Tc	612,9	4186 ± 107	0,146 $\pm 0,005$	0,093 $\pm 0,002$	308694 ± 14995
Tc	619,2	2890 ± 100	0,115 $\pm 0,004$	0,092 $\pm 0,002$	274075 ± 14850
Tc	1155,8	749 ± 55	0,053 $\pm 0,003$	0,042 $\pm 0,001$	338014 ± 32414
Tc	1806,4	224 ± 34	0,0291 $\pm 0,0023$	0,0238 $\pm 0,0008$	322925 ± 56358
Tc	2046,8	173 ± 30	0,029 $\pm 0,005$	0,0204 $\pm 0,0008$	292868 ± 72456
Ru	112,2	166459 ± 485	0,23 $\pm 0,08$	0,49 $\pm 0,02$	1464684 ± 513052
Rh	373,8	158393 ± 419	0,53 *	0,173 $\pm 0,006$	1727136 ± 56894
Rh	398,5	12441 ± 159	0,19758 $\pm 0,01068$	0,160 $\pm 0,005$	394407 ± 25162
Rh	439,8	25016 ± 190	0,29281 $\pm 0,01869$	0,141 $\pm 0,004$	605833 ± 42720
Rh	546,9	16803 ± 158	0,38537 $\pm 0,02670$	0,107 $\pm 0,003$	406751 ± 30170
Rh	572,6	2026 ± 98	0,01166 $\pm 0,00318$	0,101 $\pm 0,003$	1717336 ± 477457
Rh	584,6	5133 ± 113	0,13528 $\pm 0,01068$	0,099 $\pm 0,003$	384934 ± 32842
Rh	653,3	5463 ± 109	0,16287 $\pm 0,01424$	0,086 $\pm 0,002$	391341 ± 36174
Rh	687,7	8995 ± 122	0,29014 $\pm 0,02136$	0,080 $\pm 0,002$	385834 ± 30096
Rh	796,7	3496 ± 88	0,03975 $\pm 0,00530$	0,0668 $\pm 0,0015$	1317165 ± 180921
Rh	813,6	3881 ± 90	0,10235 $\pm 0,01246$	0,0650 $\pm 0,0014$	583086 ± 73324
Rh	838,2	5632 ± 98	0,21271 $\pm 0,01691$	0,0626 $\pm 0,0014$	422697 ± 35569
Rh	890,5	2758 ± 80	0,08900 $\pm 0,01068$	0,0580 $\pm 0,0013$	533868 ± 66914
Rh	904,5	5066 ± 93	0,17355 $\pm 0,0178$	0,0569 $\pm 0,0013$	512855 ± 54585
Rh	1230,9	1723 ± 63	0,07209 $\pm 0,01335$	0,0386 $\pm 0,001$	618785 ± 117869

*Intensiteetin epävarmuutta ei ilmoitettu.

Taulukko 23. Massaluvun A=124 gammamittaukset. Hopean intensiteettejä ei normitettu lähteessä [43].

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [43]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Ag	460,8	1174 ± 150	0,39 $\pm 0,11$	0,133 $\pm 0,004$	22637 ± 7038
Ag	612,8	1388 ± 146	1 *	0,093 $\pm 0,002$	14941 ± 1609
Cd	143,33	23591 ± 303	0,1806 $\pm 0,0224$	0,64 $\pm 0,03$	205301 ± 26662
Cd	179,91	69066 ± 358	0,70 $\pm 0,07$	0,49 $\pm 0,03$	201187 ± 23556
In	102,91	305641 ± 642	0,45 $\pm 0,05$	0,40 $\pm 0,02$	1706868 ± 203276
In	120,34	271473 ± 602	0,38 $\pm 0,04$	0,56 $\pm 0,02$	1280075 ± 143727
In	253,45	15005 ± 239	0,044 $\pm 0,005$	0,29 $\pm 0,01$	1172186 ± 139514
In	363,54	38983 ± 258	0,170 $\pm 0,019$	0,180 $\pm 0,006$	1279629 ± 149514
In	969,94	33238 ± 218	0,52 $\pm 0,06$	0,0521 $\pm 0,0012$	1226189 ± 144311
In	997,79	9954 ± 144	0,211 $\pm 0,021$	0,0503 $\pm 0,0012$	937801 ± 96651
In	1072,85	26537 ± 187	0,47 $\pm 0,07$	0,0459 $\pm 0,0011$	1229659 ± 185587
In	1131,64	77797 ± 294	0,68 $\pm 0,08$	0,0430 $\pm 0,0011$	2664638 ± 320184
In	1314,73	1526 ± 65	0,045 $\pm 0,008$	0,036 $\pm 0,001$	953840 ± 176239
In	1359,86	16032 ± 137	0,39 $\pm 0,04$	0,034 $\pm 0,001$	1206424 ± 128527
In	1470,7	1598 ± 60	0,060 $\pm 0,007$	0,0309 $\pm 0,0009$	862624 ± 108687

*Intensiteetin epävarmuutta ei ilmoitettu.

Taulukko 24. Massaluvun A=136 gammamittaukset.

Alkuaine	γ -energia (keV)	Havaittu määrä	Intensiteetti [44]	Havaitsemis-tehokkuus	Kumulatiivinen tuotto
Te	87,3	32793 ± 520	0,119 *	0,181 $\pm 0,011$	1525804 ± 93410
Te	135,385	9649 ± 519	0,028 *	0,63 $\pm 0,03$	550165 ± 35239
Te	333,99	24708 ± 358	0,200 *	0,20 $\pm 0,007$	666276 ± 25392
Te	578,75	23989 ± 232	0,182 *	0,100 $\pm 0,003$	1320362 ± 33995
Te	630,7	4380 ± 172	0,104 *	0,090 $\pm 0,002$	470075 ± 21332
Te	2077,9	1518 ± 61	0,221 *	0,0200 $\pm 0,0008$	343671 ± 19002
Te	2569,4	8255 ± 40	0,153 *	0,0153 $\pm 0,0007$	352410 ± 23072
I	197,316	698428 ± 974	0,78 $\pm 0,05$	0,43 $\pm 0,02$	2101701 ± 167952
I	381,359	382122 ± 681	1,00 $\pm 0,06$	0,169 $\pm 0,006$	2264691 ± 154533
I	1313,02	121685 ± 368	1 *	0,036 $\pm 0,001$	3417114 ± 92187
I	1321,08	9850 ± 146	0,248 $\pm 0,018$	0,035 $\pm 0,001$	1123961 ± 88593
I	2289,6	2707 ± 66	0,104 $\pm 0,006$	0,0177 $\pm 0,0008$	1471419 ± 109890
I	2634,2	1588 ± 48	0,067 $\pm 0,004$	0,0148 $\pm 0,0007$	1598352 ± 128647
I	2868,9	854 ± 36	0,039 *	0,0133 $\pm 0,0007$	1644107 ± 104074
Cs	517,9	281992 ± 570	0,9757 *	0,115 $\pm 0,003$	2525062 ± 64852

*Intensiteetin epävarmuutta ei ilmoitettu.

Taulukko 25. Massaluvun $A=80$ kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Ga	65324 ± 9580	65 ± 10
Ge	1005310 ± 190124	940 ± 190
As	1754569 ± 106650	749 ± 218

Taulukko 26. Massaluvun $A=86$ kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
As	6232 ± 1296	$6,2 \pm 1,3$
Se	822712 ± 54789	816 ± 55
Br	2117669 ± 191215	1291 ± 199

Taulukko 27. Massaluvun $A=100$ kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Sr	14381 ± 5071	$14,4 \pm 5,1$
Y	172638 ± 28504	158 ± 29
Zr	1150850 ± 107352	993 ± 111
Nb	1808111 ± 254144	657 ± 276
Tc	37329 ± 14222	37 ± 15

Taulukko 28. Massaluvun $A=104$ kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Nb	130104 ± 18807	130 ± 19
Mo	1405623 ± 405111	1276 ± 406
Tc	1348130 ± 99174	-57 ± 417

Taulukko 29. Massaluvun A=110 kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Tc	298435 ± 18752	298 ± 19
Ru	1464684 ± 513052	1166 ± 514
Rh	1928723 ± 149684	464 ± 535

Taulukko 30. Massaluvun A=124 kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Ag	18841 ± 4360	$18,8 \pm 4,4$
Cd	203073 ± 24980	184 ± 26
In	2299962 ± 201771	2097 ± 204

Taulukko 31. Massaluvun A=136 kumulatiiviset ja vastaavat suorat tuotot alkuaineittain.

Alkuaine	Kumulatiivinen tuotto	Suora tuotto (tuhansia)
Te	561712 ± 28809	562 ± 29
I	3510392 ± 191652	2949 ± 194
Cs	2525062 ± 64852	1291 ± 764