

### Раздел III. МАТЕМАТИЧЕСКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ СЛОЖНЫХ СИСТЕМ

Подосенова Т.Б.

#### Проблемы элементного анализа излучения природных объектов в условиях асимметричной формы линий спектра.

Измерение состава и активности альфа- и гамма- излучающих нуклидов в природных объектах имеет большое значение в связи с обследованием территорий, подвергшихся в разное время радиоактивному загрязнению, и является также неотъемлемой частью радиационного мониторинга в районах расположения действующих ядерных установок. Радионуклидные методы элементного анализа проб, основанные на природной или наведенной активности вещества, позволяют быстро и сравнительно дешево оценить относительное содержание компонентов в анализируемых пробах. При этом надежные и высокочувствительные измерения возможны часто лишь при условии использования альфа-спектрометрического метода измерений в сочетании с радиохимическими методами выделения и концентрирования радионуклидов из проб природных объектов.

В работе рассматриваются вопросы математической обработки и основные этапы алгоритмов анализа состава и активности альфа- и гамма-излучающих нуклидов в пробах объектов окружающей среды. На примере обработки спектров альфа-излучения показаны проблемы анализа данных в условиях сильной асимметрии весовой функции регистрирующей аппаратуры.

1. Схема элементного анализа при определении элементного состава вещества/излучения методами ядерной спектроскопии (на концептуальном уровне) была описана ранее в [1]. Напомним основные ее этапы. Измеряется интенсивность радиационного (натурного или инициированного) излучения (альфа-, гамма- и др.) вещества  $y(E)$  как функция энергии. Требуется оценить содержание элементов в пробе.

Спектры  $f(E)$  альфа-, гамма- излучения (ядер, вещества) предполагаются линейчатыми, т.е. представляющими собой суперпозицию одиночных линий типа дельта-функций, положений которых совпадают с энергиями  $E_{kj}$  излучения ядер, а весовые коэффициенты пропорциональны их парциальным интенсивностям  $I_{kj}$  и числу ядер  $S_k$ :

$$f(E) = \sum_{k=1}^{k_0} S_k \sum_{j=1}^{j_k} I_{kj} \cdot \delta(E - E_{kj}) .$$

Измерительная аппаратура привносит значительные искажения в теоретическое представление спектра. Механизм регистрации излучения  $y(E)$  часто описывают интегральным оператором (интегралом свертки), где ядро интегрального преобразования  $z(E, \xi) > 0, \forall E, \xi > 0$ , представляет собой аппаратную функцию - функцию отклика прибора на излучение,  $\|z(E, \xi)\|_{L_2} = 1$ .

Исходные данные (измеряемые спектры)  $y(E)$  после регистрации преобразуются к дискретному виду и помещаются в буферную память экспериментальной установки, состоящую из набора ячеек (каналов). В  $i$ -м

канале накапливается информация о числе зарегистрированных частиц  $y_i$  с энергиями из соответствующего поддиапазона. В результате исследуемая зависимость  $y(x)$  определяется на конечном множестве точек  $\{x_i=i, i=1, \dots, n\}$ ,  $n$  - число каналов, т.е.  $\{y_i\}=\{y_i, i=1, \dots, n\}$ . Случайные величины  $y_i$  рассматривают как статистически независимые.

2. Математическая модель регистрируемых данных  $\{y_i\}$  рассматривается обычно [2] в виде суммы локальных резонансных унимодальных функций  $Y(x)$ , гладкой фоновой (базовой) компоненты  $B(x)$ , часто носящей мешающий характер, и шумовой компоненты:

$$y_i = Y(x_i) + B(x_i) + v_i, E v_i = 0, i=1, \dots, n.$$

При этом резонансные компоненты связаны с проявлением отдельных фрагментов "линейчатых" спектров интересующих нас компонент вещества, а фоновая компонента есть результат рассеянного (отраженного, тормозного и др.) излучения. Предполагается справедливость закона Пуассона распределения шума.

Вследствие наличия процесса дискретизации при регистрации данных в модели данных необходимо учитывать функцию эффективности (прибора, аппаратуры)  $\varepsilon=\varepsilon(E)$ ,  $0 \leq \varepsilon \leq 1$  и калибровочные зависимости  $E=\varphi(x)$ . Функции  $\varphi(x)$  представляют собой аппроксимационные модели и имеют вид полиномов невысоких степеней, быть может, с точкой разрыва (старшей) производной. Калибровка по эффективности обычно реализуется в виде полинома или гладкой совокупности полиномов в логарифмическом или полулогарифмическом масштабе, т.е.  $\ln \varepsilon = \psi(\ln E)$  либо  $\varepsilon = \psi(\ln E)$ .

В зависимости от используемой в эксперименте измерительной аппаратуры формы одиночных линий спектра могут модифицироваться от симметричных к асимметричным слева или справа относительно положения линии. Форма эта определяется и сложными процессами, характеристическими для изучаемого природного явления, и особенностями используемого для регистрации спектра спектроскопического устройства, и режимом регистрации. Наличие аддитивных процессов, протекающих при детектировании гамма-квантов или альфа-частиц, приводит к тому, что одиночная линия спектра является суммой компонент, моделирующих соответствующие процессы. Аналитические выражения для моделей формы пиков являются всего лишь более или менее удачно подобранными их математическими приближениями.

3. Проблема обработки результатов наблюдений в спектрометрии сводится к определению характеристик пиков спектральной кривой  $y(x)$ . К основным параметрам, характеризующим спектр, относят число пиков и их параметры: центры (положения), интенсивности и полуширины. За положение пика часто принимают положение его центра тяжести, за интенсивность - площадь под пиком, а полуширину (ширину пика на половине высоты, *fwhm*) вычисляют через второй центральный момент [2]. Определение характеристик пиков осложняется наличием базовой (фоновой) компоненты, перекрытием пиков (то есть наличием в спектре мультиплетов), влиянием шумовой компоненты (случайным разбросом спектральных данных в каналах детектора). Для успешного решения основной спектрометрической проблемы требуется предварительное решение таких задач, как выделение полезных участков спектра (локализация пиков), устранение базовой компоненты и разделение

мультиплетов на синглеты (одиночные пики). Однако перечисленные задачи являются некорректно поставленными [3], и для их решения требуется дополнительная априорная информация.

Задача обработки амплитудных альфа-спектров решалась в разное время многими авторами [4-6]. При этом форму аппаратной (весовой,  $WF$ ) линии детекторов, регистрирующих альфа- и гамма-излучение, в частности Ge(Li) (германий-литиевые) детекторов, часто описывали многокомпонентными параметрическими функциями [4], причем асимметрия весовой функции учитывалась, как правило, одной компонентой  $WF$ , а значения искоемых параметров формы линии определялись из одиночных линий спектра с применением нелинейного метода наименьших квадратов.

Однако задача анализа спектров альфа-излучения остается до сих пор до конца не решенной. Сложность задачи заключается в том, что аппаратная линия в амплитудном альфа-спектре имеет ярко выраженную асимметрию в низкоэнергетической части распределения и растянута практически до левой границы спектра. Форма аппаратной линии в значительной степени зависит как от качества приготовления измеряемого образца (и может меняться от одного экспериментального спектра к другому в широких пределах), так и тонкой структуры альфа-переходов конкретных радионуклидов, что приводит к изменению формы пиков в пределах одного альфа-спектра.

Кроме того, существует ряд изотопов, линейчатые спектры альфа-излучений которых накладываются друг на друга (точнее, линии одного из линейчатых спектров попадают в промежуток между линиями другого спектра), и потому вне зависимости от аппаратуры регистрации спектры альфа-излучения этих изотопов будут перекрываться, т.е. образовывать мультиплеты. Так, вопросам разделения спектров альфа-излучения изотопов плутония  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{240}\text{Pu}$ , америция  $^{241}\text{Am}$  и плутония  $^{238}\text{Pu}$ , изотопов урана  $^{234}\text{U}$  и  $^{233}\text{U}$  посвящено немало работ, в частности [6]. Данную проблему пытаются решить и аппаратно - путем выбора подходящих регистрирующих устройств. Однако в этом случае возникают другие задачи и вопросы.

Так, например, если использовать полупроводниковые детекторы альфа-излучения на основе кремния, то эффективность регистрации, хоть и постоянна, но невелика ( $\varepsilon = \varepsilon(E) \leq 0.2$ ), зато в регистрируемых спектрах практически отсутствует фоновая (базовая) компонента. Ge(Li)-полупроводниковые детекторы зачастую недоступны в силу их высокой стоимости. Для измерения спектров альфа-излучения пытаются использовать и более дешевую аппаратуру - ионизационные камеры. Эффективность регистрации у таких детекторов высока (доходит до 50%), но в альфа-спектрах, снятых этими детекторами, появляется базовая подложка (фон), а эффективность регистрации меняется с изменением энергии.

Вследствие того, что в спектрах альфа-излучения проб окружающей среды статистика отсчетов в максимумах пиков может меняться от нескольких импульсов до десятков тысяч, математический аппарат, используемый при обработке спектров, должен быть работоспособен в случаях как очень низкой, так и высокой статистики отсчетов.

4. В настоящее время в литературе отсутствует строгое теоретическое обоснование формы аппаратной линии в амплитудных альфа-спектрах,

учитывающее влияние различных факторов. Вместе с тем [7,8] на основе общих представлений о процессах потерь энергии альфа-частицей в результате упругого и неупругого взаимодействия с веществом, в том числе процессов ядерного рассеяния, имеет физический смысл предположение об экспоненциальном характере формы аппаратной линии в левой низкоэнергетичной части распределения. Причем целесообразно описывать левую асимметричную часть пика в спектре и низкоэнергетичную компоненту распределения двумя различными экспонентами. Третьей компонентой модели формы линии предполагается гауссиан.

Итак, модель аппаратной линии (аппаратной функции)  $z(x, u)$ , построенная на основании приведенных выше соображений, задается суммой гауссовой  $p_1 z_1(x, u; \Theta)$  (симметричная компонента) и асимметричных слева короткой  $p_2 z_2(x, u; \Theta)$  и длинной  $p_3 z_3(x, u; \Theta)$  компонент [9]:

$$z(x, u) \equiv z(x, u; \Theta, P) = \sum_{m=1}^3 p_m \cdot z_m(x, u; \Theta),$$

$$z_m(x, u) \equiv z_m(x, u; \Theta) > 0, \quad m=1, 2, 3, \quad \forall x, u > 0,$$

$$\Theta = \{\theta_m > 0, m=1, 2, 3\}, \quad P = \{p_m \geq 0, m=1, 2, 3\}, \quad \sum_{m=1}^3 p_m = 1.$$

Асимметричные компоненты  $z_m(x, u; \Theta)$ ,  $m=2, 3$  математически записываются как интегральная свертка [3] гауссовой функции  $z_1(x, u; \Theta) \equiv z_1(x, u; \theta_1)$  с квазиэкспоненциальными зависимостями  $\exp_{-}((x-u)/\Theta_m)/\Theta_m$ ,  $m=2, 3$  соответственно. Здесь  $z_1(x, u; \Theta) \equiv z_1(x, u; \theta_1)$  - нормированная (по интенсивности) гауссова функция с центром  $u$  и полушириной ( $fwhm$ )  $\theta_1$ ;  $\exp_{-}(x) = \exp(x)$  при  $x \leq 0$ ,  $\exp_{-}(x) = 0$  при  $x > 0$ . Параметры  $\theta_2$  и  $\theta_3$  - показатели (декременты) экспоненциальных функций короткой и длинной компонент соответственно (как правило,  $\theta_2 < \theta_3$ ). Названия длинной (т.е. медленной) и короткой (т.е. достаточно быстрой) компонент происходят из факта, что при  $x < u$  и фиксированном  $u$  скорость роста функции  $\exp_{-}((x-u)/\theta_3)$  значительно меньше, чем функции  $\exp_{-}((x-u)/\theta_2)$ .

Линейные параметры модели  $p_m$ ,  $m=1, 2, 3$  имеют смысл интенсивностей компонент весовой функции. При этом площадь под гауссовой компонентой  $WF$  равна  $p_1$ , а площади под короткой и длинной компонентами вследствие свойств интегральной свертки равны  $p_m \cdot (1 - \exp_{-}(-u/\theta_m))$ ,  $m=2, 3$  соответственно. Во многих случаях значениями  $\exp_{-}(-u/\theta_m)$ ,  $m=2, 3$  (при фиксированном  $u$ ) можно пренебречь в силу их малости и считать интенсивности короткой и длинной компонент равными значениям  $p_m$ ,  $m=2, 3$ .

5. На этапе предварительной обработки будем использовать упрощенную модель спектра - спектр будем представлять как совокупность пиков. При этом будем предполагать, что фоновая компонента отсутствует или уже вычтена из спектра [2]. Таким образом, первоначально модель  $Y(x)$ ,  $y_i = Y(x_i) + v_i$ ,  $i=1, \dots, l$  задается в виде:

$$Y(x) = \sum_{q=1}^{q_0} \sum_{m=1}^3 A_{qm} \cdot z_m(x, c_q; \Theta_q), \quad \Theta_q = \{\theta_{qm}, m=1, 2, 3\}, \quad q=1, \dots, q_0.$$

Здесь  $A_{qm} \geq 0$  - интенсивности гауссовой и асимметричных компонент линий  $q$ -го синглета,  $\Theta_q$  и  $c_q$  - нелинейные параметры и центр гауссовой компоненты модели  $q$ -го синглета,  $q_0$  - количество пиков в спектре.

На практике во многих реально измеренных спектрах альфа-излучения отсутствуют изолированные, хорошо разрешенные одиночные линии, по которым можно аппроксимировать  $WF$ , и параметры  $WF$  приходится определять из мультиплетов - суперпозиций одиночных линий. При этом естественно, что на сложных мультиплетных участках обрабатываемого спектра, где нет достаточно хорошо разрешенных мультиплетов, не всегда удастся оценить значения всех нелинейных параметров моделей всех одиночных линий, образующих мультиплет.

Задача декомпозиции мультиплетов, или оценивания параметров моделей одиночных линий в мультиплете, рассматривается в следующей постановке: по заданному спектру измерений  $\{y_j\}$ , оценкам ошибок измерений  $\{\Delta y_j\}$ , оценкам центров пиков  $c_q^0$ , фрагментам (участкам шкалы аргумента  $x$ )  $[i_{q1}, i_{q2}]$ ,  $q=1, \dots, q_0$  локализации проявлений пиков и по областям нестационарностей спектра  $[i_{v1}, i_{v2}]$ ,  $v=1, \dots, v_0$  требуется найти значения параметров одиночных линий  $c_q, \theta_{qm}, A_{qm}, m=1, 2, 3, q=1, \dots, q_0$ . Задача и алгоритм аппроксимации хорошо разрешенных одиночных линий спектра ранее были изложены в [9].

*Замечание 1.* Отметим, что оценки числа пиков  $q_0$  в спектре, центров пиков  $c_q^0$  и фрагменты  $[i_{q1}, i_{q2}]$  локализации проявлений пиков в наших системах обработки спектров определяются с помощью специальных нелинейных фильтров на основе взаимно-ковариационных функций для спектров с постоянной и монотонно изменяющейся шириной пиков [2]. В этой работе не рассматриваются вопросы автоматизированной разметки спектров. Стоит лишь отметить, что для получения нужных оценок обычно достаточно указать лишь весьма приблизительную оценку ширины пика в спектре.

6. Обработка синглетов в мультиплетах организована в описываемом здесь алгоритме в виде вложенных итерационных процедур. Основная идея метода обработки заключается в следующем: в представлении  $WF$  фигурируют две компоненты квазиэкспоненциального типа, отвечающие за асимметрию; эти компоненты существенно различаются между собой, и поэтому на некоторых фрагментах спектра длинную компоненту можно асимптотически описать экспоненциальной зависимостью, а влиянием (вкладом) короткой компоненты на этих фрагментах можно пренебречь.

Границы участков спектра, по которым оцениваются параметры отдельных компонент моделей линий, определяются в алгоритме как границами локализации проявлений пиков  $[i_{q1}, i_{q2}]$ , так и адаптивными параметрами расстановки границ фрагментов аппроксимации компонент моделей линий  $\tau_1 > 0, \tau_2 > 0, 0 < \tau_4 < \tau_3 < \tau_5 < \tau_6$ , которые отсчитываются вследствие асимметрии слева весовой функции в единицах  $fwhm(\theta_{q1})$  влево (для  $\tau_1, \tau_3, \tau_4, \tau_5, \tau_6$ ; для  $\tau_2$  - вправо) от центров линий  $c_q$ . Например,  $[c_q - \tau_4 \theta_{q1}, c_q - \tau_3 \theta_{q1}]$  - участок оси аргумента  $x$ , по которому будет проводиться аппроксимация короткой компоненты  $q$ -го синглета. Параметры синглетов определяются на шаге итерационной процедуры из анализа спектра  $s(x)$ , полученного из  $y(x)$  путем вычитания аппроксимаций ряда компонент моделей ранее обработанных синглетов (и базовой компоненты  $B(x)$ , если таковая имеется в спектре). На первом шаге алгоритма  $s(x) = y(x)$  (либо  $s(x) = y(x) - B(x)$ ). Процедура оценивания параметров линий вследствие левой асимметрии  $WF$  выполняется справа налево.

6.1. Параметры гауссовых компонент линий вычисляются первоначально из правых склонов линий (т.е. при  $x > c_q$ ) спектра  $s(x)$ , в дальнейшем - из фрагментов  $[c_q - \tau_1 \theta_{q1}, c_q + \tau_2 \theta_{q1}]$ ,  $\tau_1 > 0$ ,  $\tau_2 > 0$ , включающих и точки левых склонов линий. Параметры гауссовой компоненты  $q$ -й линии оцениваются итерационно из логарифмов отношений значений спектра  $s(x)$  в различных точках участка обработки путем минимизации следующих квадратичных функционалов:

$$\theta_{q1}: \min_{\theta > 0} \sum_{k, j} \{ \ln(s_k / s_j) - ((j - c_q)^2 - (k - c_q)^2) / (2\theta)^2 \} \cdot w_k \cdot w_j,$$

$$c_q: \min_{\theta > 0} \sum_{k, j} \{ \ln(s_k / s_j) - ((j^2 - k^2) - 2\theta \cdot (j - k)) / (2\theta_{q1}^2)^2 \} \cdot w_k \cdot w_j,$$

$$A_{q1}: \min_{A > 0} \sum_j \{ s_j - A \cdot z_1(j, c_q; \theta_{q1}) \}^2.$$

Критерий отбора индексов  $j$  и  $k$  в функционалах - данные  $s_j$ ,  $s_k$  превышают заданный (через параметр  $\mu_1$ ) уровень ошибок данных:  $s_j > \mu_1 \Delta y_j$ ,  $s_k > \mu_1 \Delta y_k$ ,  $\mu_1 > 0$ . На каждом шаге итерационной процедуры используются оценки параметров с предыдущей итерации. При этом данные выравниваются весовыми коэффициентами  $w_k \geq 0$ ,  $w_j \geq 0$ . Для робастности (т.е. слабой чувствительности к резким "выбросам", или отклонениям в данных) процедуры используется мера типа Хубера [10, с.53-58]. Значения  $w_k$ ,  $w_j$  определяются величинами абсолютного уклонения  $\rho_i$ ,  $i = k, j$  гауссовой компоненты модели  $q$ -го синглета от значений спектра  $s(x)$  в точках  $k, j$  соответствующего фрагмента обработки:

$$\rho_i = |s_i - A_{q1} \cdot z_1(x_i, c_q; \theta_{q1})|, \quad w_i^2 = 1 \text{ при } 0 \leq \rho_i \leq \mu_{\min} \Delta y_i$$

$w_i^2 = 1/\rho_i$  при  $\mu_{\min} \Delta y_i \leq \rho_i \leq \mu_{\max} \Delta y_i$ , и  $w_i^2 = 1/\rho_i^2$  в остальных случаях,  $0 < \mu_{\min} < \mu_{\max}$ . Значения  $w_i$  определяются через оценки параметров  $A_{q1}$ ,  $c_q$ ,  $\theta_{q1}$ , вычисленные на предыдущей итерации.

6.2. В случае хорошо разрешенного одиночного пика (например, если  $q_0 = 1$ ) параметры  $\theta_{q3}$ ,  $A_{q3}$  длинной асимметричной компоненты  $q$ -й линии оцениваем из "дальнего" фрагмента оси аргумента левее центра  $c_q$  -  $[c_q - \tau_5 \theta_{q3}, c_q - \tau_3 \theta_{q3}]$  [9]. В силу того, что правая граница такого участка достаточно удалена от центра соответствующей линии (и потому называем его "дальним"), кривая  $z_3(x, u; \theta_q)$  асимптотически приближается на этом фрагменте экспонентой  $\exp((x - c_q)/\theta_{q3})/\theta_{q3}$ . Значение декремента  $\theta_{q3}$  вычисляем из экспоненциальной асимптотики итерационно - из условия минимума квадратичного функционала:

$$\theta_{q3}: \min_{\theta > 0} \sum_{k, j} \{ \ln(s_k / s_j) - (k - j) / \theta \}^2 \cdot w_k \cdot w_j, \quad s_j > \mu_3 \Delta y_j, \quad s_k > \mu_3 \Delta y_k, \quad 0 < \mu_3 < \mu_1.$$

Значения  $w_k \geq 0$ ,  $w_j \geq 0$  определяются величинами абсолютного уклонения длинной компоненты модели  $q$ -го синглета от значений спектра  $s(x)$  в точках  $k, j$  фрагмента. Интенсивность  $A_{q3}$  длинной компоненты вследствие свойства сохранения площадей в интегральных свертках [3] определяется линейной либо экспоненциальной экстраполяцией длинной асимметричной компоненты в точку центра кривой  $c_q$ . В случае линейной экстраполяции, естественно, приходится определять и параметры прямой, аппроксимирующей спектр  $s(x)$  на рассматриваемом участке.

Однако при сильной левой асимметрии весовой функции зачастую приходится сталкиваться с ситуацией, когда спектр  $\{y_j\}$  представляет собой один мультиплет, в котором нет, строго говоря, хорошо разделенных линий, но где отчетливо выделяются области локализации проявлений гауссовых компонент

пиков (как бы области локализации “верхушек” пиков). Здесь уже параметры длинной асимметричной компоненты удается оценить только из “дальнего” фрагмента левее самого левого пика в мультиплете.

Без ограничения общности будем считать, что  $q_0 > 1$  искомым линиям (пиков) образуют один мультиплет. Тогда из приведенного выше функционала оценим значение декремента  $\theta_{1,3} : \theta_{q_3} = \theta_{1,3}$ ,  $q = 1, \dots, q_0$  (значения декрементов длинных компонент всех пиков в мультиплете одинаковы), а затем путём линейной либо экспоненциальной экстраполяции этой компоненты в точку центра  $c_1$  вычислим и оценку совокупной интенсивности  $A^*$  длинных асимметричных компонент пиков. Действительно, на фрагменте

$[c_1 - \tau_c \theta_{1,3}, c_1 - \tau_s \theta_{1,3}]$  суммарная (по пикам мультиплета) длинная компонента  $\sum_{q=1}^{q_0} A_{q_3} \cdot \exp((x - c_q) / \theta_{q_3})$  может быть асимптотически описана одной экспонентой:

$$\sum_{q=1}^{q_0} A_{q_3} \cdot \exp((x - c_q) / \theta_{q_3}) / \theta_{q_3} = A^* \cdot \exp((x - c_1) / \theta_{1,3}) / \theta_{1,3},$$

где  $A^* = \sum_{q=1}^{q_0} A_{q_3} \cdot \exp((c_1 - c_q) / \theta_{1,3})$ .

Зная  $A^*$ , можно оценить долю (вклад) каждого из пиков в суммарной интенсивности. Для большей простоты изложения дальнейших выкладок введем обозначения  $\lambda_q = \exp((c_1 - c_q) / \theta_{1,3})$ ,  $0 < \lambda_q < 1$ ,  $q = 1, \dots, q_0$  и опустим знаки пределов суммирования.

Как нетрудно видеть, задача определения  $A_{q_3}$ ,  $A^* = \sum A_{q_3} \lambda_q$ , сводится к поиску таких весовых коэффициентов  $\beta_q > 0$ ,  $q = 1, \dots, q_0$ ,  $\sum \beta_q \cdot \lambda_q = 1$ , что  $A^* = \sum (\beta_q \cdot A^*) \cdot \lambda_q = \sum A_{q_3} \lambda_q$ , откуда  $A_{q_3} = \beta_q \cdot A^*$ . А поскольку в идеале должны выполняться соотношения  $A_{qm} / G_q = p_m > 0$ ,  $m = 1, 2, 3$  (хотя на начальном этапе обработки значения параметров  $p_m$  и не известны), где  $G_q > 0$  - оценка площади (интенсивности)  $q$ -го пика,  $G_q = A_{q1} + A_{q2} + A_{q3}$ ,  $q = 1, \dots, q_0$ , то естественно разделить величину  $A^*$  пропорционально значениям  $G_q$ , т.е. задать весовые множители  $\beta_q$  как  $\beta_q = G_q / [\sum G_q \lambda_q]$ . В силу того, что, с одной стороны, величины  $G_q$  неизвестны и подлежат определению, а, с другой стороны, теоретически должны выполняться соотношения  $G_q = A_{qm} / p_m$ , то для оценивания весов  $\beta_q$  (в зависимости от номера итерации) могут быть использованы и значения интенсивностей отдельных компонент моделей пиков. Так, например, первоначальная оценка значений  $\beta_q$  выглядит как  $\beta_q = A_{q1} / [\sum A_{v1} \lambda_v]$ , а на последующих итерациях возможно использовать и более сложные оценки для  $\beta_q$ , например,  $\beta_q = g(A_{q1}, A_{q2}, A_{q3}) / [\sum_v g(A_{v1}, A_{v2}, A_{v3}) \cdot \lambda_v]$ ,

где  $g(A_{q1}, A_{q2}, A_{q3}) = [\sum_m \sigma_m \cdot A_{qm}] > 0$ ,  $\sigma_m > 0$ ,  $m = 1, 2, 3$ .

Таким образом, интенсивности длинных асимметричных компонент моделей пиков вычисляются в алгоритме как  $A_{q_3} = \beta_q \cdot A^*$ ,  $q = 1, \dots, q_0$ .

6.3. Параметры  $\theta_{q2}$ ,  $A_{q2}$  короткой компоненты  $q$ -й линии предварительно оцениваются из экспоненциальной асимптотики из ближнего фрагмента левее центра  $c_q$  линии; предполагается, что левая граница этого фрагмента расположена правее правой границы фрагмента спектра для нахождения параметров длинной компоненты. Декремент  $\theta_{q2}$  короткой компоненты оценивается аналогично предыдущему из экспоненциальной асимптотики из условия минимума функционала:

$$\theta_{q2} : \min_{k,j} \{ \ln (s_k / s_j) - (k - j) / \theta \}^2 \cdot w_k \cdot w_j, \quad s_j > \mu_2 \cdot \Delta y_j, \quad s_k > \mu_2 \cdot \Delta y_k, \quad \mu_2 > 0.$$

Данные выравниваются здесь весовыми коэффициентами  $w_k \geq 0, w_j \geq 0$ ; значения  $w_k, w_j$  определяются величинами абсолютного уклонения короткой компоненты модели  $q$ -го синглета от значений спектра  $s(x)$  в точках  $k, j$  фрагмента. Линейный параметр  $A_{q2}$  может быть вычислен несколькими способами, в частности, из условия подгонки (аппроксимации) кривой  $s(x)$  экспоненциальной зависимостью либо из условия подобия площадей криволинейных трапеций (ограничены осью аргумента  $x$ , экспоненциальной кривой  $A_{q2} \cdot \exp((x - c_q) / \theta_{q2}) / \theta_{q2}$  и парами вертикальных кривых  $x = i_1, x = i_2$  и  $x = i_1, x = c_q$  соответственно, где  $i_1, i_2$  - границы фрагмента обработки,  $i_1 < i_2 < c_q$ ; площадь меньшей криволинейной трапеции оценивается через площадь под кривой  $s(x)$  на указанном фрагменте).

Значение  $\theta_{q2}$ , полученное из экспоненциальной асимптотики, затем корректируется по фрагменту спектра, включающему как правый, так и левый склоны  $q$ -й линии спектра. Алгоритм уточнения опирается на явный вид асимметричной зависимости  $z_2(x, u; \Theta)$  [9] (при фиксированном  $u$ ):

$$z_2(x, u; \Theta) = \exp(\theta_1^2 / (2 \cdot \theta_2^2)) / (2 \cdot \theta_2) \cdot \exp((x - u) / \theta_2) \cdot (1 - \operatorname{erf}(\arg(x, u))) ,$$

$$\arg(x, u) \equiv \arg(x, u; \theta_1, \theta_2) = (x - u) / (\sqrt{2} \cdot \theta_1) + \theta_1 / (\sqrt{2} \cdot \theta_2) ,$$

$\operatorname{erf}(x)$  - интеграл ошибок, а  $u = c_q$  для  $q$ -го синглета. Декремент  $\theta_{q2}$  вычисляется (на фрагменте)

$$\text{итерационно } (r - \text{ номер итерации}): \theta_{q2} \equiv \theta_{q2,r} = \sum_k (j - k) / \ln f(j, k) ,$$

$f(j, k) \equiv f(j, k; \theta_{q2,r-1}) = \{s_j / (1 - \operatorname{erf}(\arg(j, u)))\} / \{s_k / (1 - \operatorname{erf}(\arg(k, u)))\}$ , величины  $\arg(j, u), \arg(k, u)$  вычисляются при значениях параметров  $u = c_q, \theta_2 = \theta_{q2,r-1}$ . Индексы  $j, k$  выбираются из совокупности двух условий: 1) значение  $s_j$  максимально на фрагменте среди  $s_k$ , превышающих заданный уровень ошибки:  $s_k > \mu_r \cdot \Delta y_k, \mu_r > 0$ ; 2)  $f(j, k) > \alpha_0 > 1$  при  $k < j, f(j, k) < \alpha_1, 0 < \alpha_1 < 1$  при  $k > j$ . Здесь  $\theta_{q2,0}$  есть значение декремента, полученное из экспоненциальной асимптотики, а параметры  $\alpha_0, \alpha_1$  имеют смысл уровней доверия к значимости величины  $f(j, k)$  слева и справа от точки  $j$ . Действительно, если  $s(x) \approx z_2(x, c_q; \Theta_q)$ , то  $f(j, k) = \exp((j - k) / \theta_{q2})$ , и  $f(j, k)$  при фиксированном  $j$  есть убывающая функция аргумента  $k$ , а параметры  $\alpha_0, \alpha_1$  определяют величину отступа влево и вправо от особой точки  $k = j$ :  $f(j, j) = 1, \ln\{f(j, j)\} = 0$ . Линейный параметр  $A_{q2}$  корректируется (на указанном фрагменте) из условия подгонки спектра  $s(x)$  кривой  $z_2(x, c_q; \Theta_q)$ .

6.4. Выпишем теперь кратко общую схему (структуру) алгоритма декомпозиции мультиплетов.

(1) Из анализа данных  $s(x) = y(x)$  (либо  $s(x) = y(x) - B(x)$ ) вычисляем параметры гауссовых компонент пиков. Обработке подлежат фрагменты  $[c_q^0, c_q^0 + \tau_2 \theta_{q1}]$ ,  $\tau_2 > 0$ , т.е. параметры  $c_q, \theta_{q1}, A_{q1}$  определяем из правых ( $x > c_q^0$ ) "склонов" пиков,  $q = 1, \dots, q_0$ .

(2) Из фрагмента  $[c_1 - \tau_5 \theta_{1,1}, c_1 - \tau_5 \theta_{1,1}]$  оцениваем (корректируем) параметры  $\theta_{q3} = \theta_{1,3}, A_{q3}, q = 1, \dots, q_0$  длинных компонент пиков в мультиплете; на первой итерации - из анализа кривой  $s(x) = y(x)$  (либо  $s(x) = y(x) - B(x)$ ), на последующих - из кривой  $s(x)$ , полученной вычитанием из  $y(x)$  ( $y(x) - B(x)$ ) суммы гауссовых и коротких асимметричных компонент пиков. Предполагаем,



что  $\theta_{q3} > \theta_{q1}$ ,  $\theta_{q3} > \theta_{q2}$ . При обработке проверяем условие  $\theta_{q3} > \chi \cdot \theta_{q1}$ , где параметр  $\chi > 0$  задан (на входе алгоритма). Если указанное условие не выполняется, то увеличиваем значение параметра  $\tau_3$  (т.е. сдвигаем правую границу фрагмента обработки влево) и возвращаемся на начало шага (2).

После аппроксимации длинной компоненты моделируем суммарную длинную компоненту пиков и вычитаем ее из  $y(x)$  ( $y(x) - B(x)$ ), т.е. получаем новую кривую  $s(x)$ .

(3) Далее проводим организованный в виде цикла анализ пиков. При обработке  $q$ -го (очередного) пика из  $s(x)$  дополнительно вычитаются смоделированные по параметрам, найденным на предыдущей (либо текущей) итерации, суммы гауссовых и коротких асимметричных компонент  $v$ -х пиков

$$(v - \text{номер пика}), v \neq q: s^*(x) = s(x) - \sum_{v \neq q} \left\{ \sum_{m=1}^2 A_{vm} \cdot Z_m(x, c_v; \Theta_v) \right\}.$$

(3-1) Вычитаем короткую компоненту  $q$ -го пика из  $s^*(x)$  и из фрагмента  $[c_q - \tau_1 \theta_{q1}, c_q + \tau_2 \theta_{q1}]$ ,  $\tau_1 > 0$ ,  $\tau_2 > 0$  оцениваем (корректируем) параметры гауссовой компоненты.

(3-2) Вычитаем гауссову компоненту  $q$ -го пика из  $s^*(x)$  и из фрагмента  $[c_q - \tau_4 \theta_{q1}, c_q + \tau_2 \theta_{q1}]$  из экспоненциальной асимптотики оцениваем параметры короткой компоненты  $q$ -го пика.

(3-3) На фрагменте  $[c_q - \tau_4 \theta_{q1}, c_q + \tau_2 \theta_{q1}]$  (на первой итерации - из  $[c_q - \tau_4 \theta_{q1}, c_q]$ ) корректируем значение декремента короткой компоненты  $q$ -го пика, используя величины  $I(j, k)$  и опираясь на явный вид асимметричной зависимости  $Z_2(x, c_q; \Theta_q)$ . В итерационной робастной процедуре используется мера типа Хубера. После уточнения параметра  $\theta_{q2}$  корректируется и линейный параметр  $A_{q2}$ .

(3-4) Из анализа кривой  $s(x)$  на фрагменте  $[c_q - \tau_4 \theta_{q1}, c_q + \tau_2 \theta_{q1}]$  из соответствующей СЛАУ оцениваем (совместно) линейные параметры  $A_{q1}$ ,  $A_{q2}$  гауссовой и короткой компоненты  $q$ -го пика. Допустимы только неотрицательные значения регрессоров.

Для достижения лучшей аппроксимации  $q$ -го пика в алгоритме могут быть повторены шаги (3-2) - (3-4). Затем осуществляем переход к шагу (3), т.е. переходим к обработке следующего,  $(q+1)$ -го пика,  $q < q_0$ .

(4) После оценивания всех параметров пиков в алгоритме строится модель спектра и проводится проверка адекватности (соответствия) полученной модели спектру  $y(x)$ , для чего вычисляется взвешенная на оценки ошибок измерений невязка уклонения модельного спектра  $Y(x)$  от исходной кривой  $y(x)$ . При этом используются как классические, так и робастные статистики хи-квадрат и Пирсона [10], определяемые как по всей области обработки спектра, так и по фрагментам проявлений отдельных резонансных компонент (пиков).

Выход из итерационной процедуры осуществляется либо по критерию выполнения заданного числа итераций, либо при хорошем соответствии модели исходному спектру. В противном случае осуществляется переход на шаг (2) алгоритма.

*Замечание 2.* Для того, чтобы обеспечить устойчивость итерационных процедур аппроксимации, линейные и нелинейные параметры компонент моделей пиков корректируются на шагах итерационных процедур как

взвешенные средние значений, полученных на предыдущей и очередной (текущей) итерациях.

*Замечание 3.* На шагах итерационных процедур алгоритма идет дополнительная корректировка линейных параметров моделей с тем, чтобы модельный спектр  $Y(x)$  или отдельные его компоненты и исходный спектр  $y(x)$  (либо  $s(x)$ ) находились в пределах заданного коридора ошибок  $\Delta y_i$ . Это **уточнение весьма важно при оценивании линейных параметров асимметричных компонент** путем экстраполяции. Для робастности процедур используется мера типа Хубера (см п.6.1.).

6.5. Описанный алгоритм декомпозиции мультиплетов успешно эксплуатируется при обработке реальных наблюдений, причем не только спектров альфа-, но и гамма- и рентгеновского излучений. Алгоритм эффективен, в частности, на средних и малых статистиках. Особо отметим, что данный алгоритм не требует задания начальных приближений для нелинейных параметров  $\theta_q$ .

В случае обработки тестовых (симулированных) данных, как правило, уже на 2-й-3-й итерации процедуры аппроксимации хорошо разрешенных одиночных линий спектра значение взвешенной невязки составляет величину порядка 0.4 - 1.0 [9]. Примеры обработки модельных и реальных данных - результаты наблюдений - приведены ниже (см п.12).

7. В альфа-спектрах часто принято считать, что значения нелинейных параметров  $WF$  - полуширины гауссовой компоненты и декрементов асимметричных компонент - практически постоянны для достаточно коротких фрагментов обработки спектра. И соотношения между интенсивностями компонент модели аппаратной функции  $WF$   $p_1:p_2:p_3$  есть также характеристика регистрирующей аппаратуры. В дальнейшем мы предполагаем, что "линейные" параметры  $WF p_m$ ,  $m=1,2,3$  не зависят от аргумента  $x$ .

Найденные при обработке синглетов (мультиплетов) соотношения  $a_{q1}:a_{q2}:a_{q3}$ ,  $a_{qm}=A_{qm}/G_q$ ,  $m=1,2,3$ ,  $G_q=A_{q1}+A_{q2}+A_{q3}$ ,  $q=1,\dots,q_0$  для различных  $q$  могут сильно различаться, а параметры асимметричных компонент линий могут быть определены не для всех пиков. Но поскольку характеристики  $WF$  имеют отношение именно к приборным данным и никак не "привязаны" к конкретным элементам (нуклидам), спектры излучений которых измеряются, то в качестве оценок параметров  $WF p_m$ ,  $\theta_m$ ,  $m=1,2,3$  можно задавать усредненные по некоторым непустым подмножествам индексов  $\{1,2,\dots,q_0\}$  значения параметров  $a_{qm}$ ,  $\theta_{qm}$ ,  $m=1,2,3$ , т.е. оценивание параметров  $WF$  следует проводить не по всем линиям спектра, а лишь по тем линиям, по которым достаточно хорошо с точки зрения статистик Пирсона и взвешенной невязки вычисляются параметры моделей пиков.

8. На этапе оценивания параметров пиков была использована упрощенная модель спектра: в модели не была учтена тонкая структура альфа-линий, а ведь даже линии спектра, рассматриваемые на предварительных этапах обработки как одиночные, часто есть мультиплеты.

Дальнейшее уточнение параметров модели аппаратной функции проводится с учетом тонкой структуры альфа-переходов. В общем случае модель данных с использованием априорной информации о структуре линейчатых спектров (из БАЯД - банков атомно-ядерных данных) выписывается следующим образом:

$$\begin{aligned}
Y(x) &= \sum_{k=1}^{k_0} S_k \sum_{j=1}^{j_k} R_{kj} \cdot z(x, C_{kj}; \Theta, P), \quad z(x, u) \equiv z(x, u; \Theta, P) = \sum_{m=1}^{m_0} p_m \cdot z_m(x, u; \Theta), \\
\|z(x, u)\|_{L_2} &= \|z_m(x, u; \Theta)\|_{L_2} = 1, \quad z(x, u) \geq 0, \quad z_m(x, u; \Theta) \geq 0, \quad \forall x, u > 0, \quad m = 1, \dots, m_0; \\
\Theta &= \{\Theta_m \geq 0, \quad m = 1, \dots, m_0\}, \quad P = \{p_m \geq 0, \quad m = 1, \dots, m_0\}, \quad \sum_{m=1}^{m_0} p_m = 1; \\
E = \varphi(x) &= \sum_{r=1}^n e_r \cdot x^{r-1}, \quad 2 \leq r \leq 3; \\
\{E_{kj} > 0, \quad I_{kj} > 0, \quad j = 1, \dots, j_k, \quad \sum_{j=1}^{j_k} I_{kj} = 1, \quad k = 1, \dots, k_0 \geq 1\}, \quad S_k \geq 0; \\
R_{kj} &= I_{kj} \cdot \varepsilon(E_{kj}) \geq 0, \quad 1 \leq j \leq j_k, \quad 1 \leq k \leq k_0; \\
C_{kj} &= \arg \min_{1 \leq x \leq n} (\varphi(x) - E_{kj})^2, \quad 0 \leq C_{kj} \leq n, \quad 1 \leq j \leq j_k, \quad 1 \leq k \leq k_0; \quad \varepsilon = \varepsilon(E); \\
\ln \varepsilon &= \psi(\ln E), \quad 0 \leq \varepsilon(E) \leq 1, \quad \forall E > 0.
\end{aligned}$$

Компоненты  $z_m(x, u; \Theta)$  модели аппаратной функции - нормированные по интенсивности унимодальные симметричные либо асимметричные финитные функции резонансного типа, характеризующиеся набором  $\Theta$  нелинейных параметров и зависящие от разности аргументов:  $z_m(x, u; \Theta) \equiv z_m(x - u; \Theta)$ . Предполагаем также, что нелинейные параметры  $\Theta_m$  весовой функции (в том числе параметры ширины и асимметрии) либо постоянны, либо достаточно гладко зависят от аргумента  $E$  или номера канала  $x$ , т.е. допускается слабый тренд аппаратуры. Аппроксимационные зависимости вида  $\Theta_m = \Theta_m(E)$  либо  $\Theta_m = \Theta_m(x)$ ,  $m = 1, \dots, m_0$  часто называют калибровкой по форме линии.

Заметим, что в модели  $Y(x)$  для альфа-спектров значение  $m_0 = 3$ , а функция эффективности  $\varepsilon = \varepsilon(E)$  часто представляет собой константу:  $\varepsilon(E) \equiv \varepsilon_0$ ,  $0 < \varepsilon_0 < 1$ .

Нетрудно видеть, что в рамках предложенной модели функция  $Y(x)$  представляет собой билинейную форму относительно линейных (квазилинейных) параметров  $S_k$  и  $p_m$  (достаточно поменять пределы суммирования):

$$Y(x) = \sum_{k=1}^{k_0} S_k \sum_{j=1}^{j_k} R_{kj} \sum_{m=1}^{m_0} p_m \cdot z_m(x, C_{kj}; \Theta) = \sum_{k=1}^{k_0} S_k \sum_{m=1}^{m_0} p_m \sum_{j=1}^{j_k} R_{kj} \cdot z_m(x, C_{kj}; \Theta).$$

Далее в работе рассматривается технология решения билинейной задачи совокупного определения квазилинейных параметров весовой функции аппаратуры  $p_m$ ,  $m = 1, \dots, m_0$  и содержания веществ  $S_k$ ,  $k = 1, \dots, k_0$  из анализа интенсивности излучения при линейных ограничениях на решение [11]. В технологию решения включена и прецизионная коррекция энергетической калибровки - функции  $\varphi(x)$ . Эффективность данной методики обеспечивается использованием накопленной в БАЯД фактографической оцененной информации о пропорциональных соотношениях между интенсивностями компонент в линейчатых спектрах для ансамблей (серий) каждого элемента, изотопа, изомера и применением компьютерного моделирования (симуляции) процессов и данных. Заметим, что рассматриваемые ниже билинейные задачи возможно решить, имея всего лишь один набор данных (т.е. при наличии

одного-единственного спектра) и часто даже в условиях отсутствия в спектре хорошо разрешенных пиков.

9. Проблема определения элементного состава вещества/излучения относится к категории так называемых обратных задач и для своего решения требует построения регулярных или регуляризирующих алгоритмов [3]. Основная задача элементного анализа заключается в оценивании содержания (долей, интенсивностей излучения)  $S_k$ ,  $k=1, \dots, k_0$  заданных элементов (нуклидов) по регистрируемому альфа- или гамма-спектру  $y(x)$  при заданных оценках параметров модели весовой функции  $WF$  (задача 1). Одна из основных задач коррекции модели  $WF$  состоит, наоборот, в уточнении "линейных" коэффициентов  $p_m$ ,  $m=1, \dots, m_0$  по регистрируемому спектру  $y(x)$  при указанных (заданных) оценках как интенсивностей излучения нуклидов в пробе, так и нелинейных параметров  $WF$  (задача 2). Указанные две задачи как бы дополняют одна другую при комплексной обработке спектра.

Приведем более строгие формулировки. В задачах 1 и 2 считаются заданными: спектр измерений  $\{y_j\}$ , оценки ошибок измерений  $\{\Delta y_j\}$ , фрагменты  $[i_{v1}, i_{v2}]$ ,  $v=1, \dots, v_0$  локализации нестационарностей в спектре, коэффициенты полинома энергетической калибровки  $e_r$ ,  $r=1, \dots, r_0$  и кривая эффективности  $\varepsilon(E)$ , оценки нелинейных параметров  $WF$   $\theta_m$ ,  $m=1, \dots, m_0$ , линейчатые спектры  $k_0 \geq 1$  нуклидов (данные БАЯД)  $\{(E_{kj}, I_{kj})\}$ ,  $j=1, \dots, j_k$ ,  $k=1, \dots, k_0$ . Будем предполагать, что при заданных условиях спектр  $y(x)$  и искомые параметры  $S_k$ ,  $k=1, \dots, k_0$  и  $p_m$ ,  $m=1, \dots, m_0$  связаны в пределах погрешностей  $\{\Delta y_j\}$  измерений соответствующими СЛАУ (системами линейных алгебраических уравнений). Тогда в задаче 1 требуется оценить параметры  $S_k$ ,  $k=1, \dots, k_0$ , а в задаче 2 - параметры  $p_m$ ,  $m=1, \dots, m_0$ .

Для решения задач 1-2 используется метод наименьших квадратов. При этом на решения соответствующих СЛАУ налагаются естественные ограничения на неотрицательность:  $S_k \geq 0$ ,  $k=1, \dots, k_0$  (задача 1) либо  $p_m \geq 0$ ,  $m=1, \dots, m_0$  (задача 2). Ограничения на решения СЛАУ могут быть заданы и в виде двусторонних неравенств, когда наряду с ограничениями на неотрицательность используются и мажорантные оценки значений искомых параметров. Указанные СЛАУ решаются на совокупности областей нестационарности спектра с использованием метода сингулярного разложения (SVD) [10, с.80]. Однако заметим, что исходные данные  $y_j$  неравноточны, и потому для получения действительно несмещенных линейных оценок коэффициентов регрессии с минимальной дисперсией компонент, или обобщенных МНК-оценок, необходимо матрицу и правую часть этих СЛАУ "взвешивать" на оценки ошибок измерений  $\Delta y_j$  [10, с.67].

Технология обработки спектра, включающая в себя оценивание и уточнение как содержания нуклидов в пробе, так и параметров весовой функции аппаратуры, может быть реализована последовательно, например, по схеме: предварительный анализ спектра  $\rightarrow$  решение задачи 1  $\rightarrow$  решение задачи 2  $\rightarrow$  решение задачи 1  $\rightarrow \dots$  При этом анализ качества приближения спектра  $y(x)$  модельным контуром  $Y(x)$  проводится с использованием кривых остатков либо взвешенных остатков. Однако только многократное решение задач 1-2 не всегда приводит к существенному улучшению качества подгонки спектра, если в

обработку спектра не включены этапы уточнения нелинейных параметров  $WF$  и коррективы коэффициентов энергетической калибровки.

10. Как выше уже было указано, измерения  $y(x)$  являются функциями не физического аргумента  $E$  (энергии), а искусственного целочисленного параметра группировки в каналах измерений  $x$ ; при этом связь между  $E$  и  $x$  обычно задается моделью полиномиальной зависимости  $E=\varphi(x)$ . Рассмотрим подробнее задачи, связанные с аппроксимацией и коррекцией в рамках заданных в п.9 полиномиальных моделей кривой энергетической калибровки.

Задача  $K_0$  калибровки по энергии ставится следующим образом: по заданному спектру  $\{y_j\}$ , фрагментам  $[i_{v1}, i_{v2}]$ ,  $v=1, \dots, v_0$  локализации нестационарностей в спектре, центрам  $c^*$ , реперных пиков (указаны в каналах) и соответствующим значениям энергий реперов  $E^*, c^*_t \leftrightarrow E^*_t$ ,  $t=1, \dots, t_0$ , а также при заданном значении  $r_0$  (т.е. задан порядок калибровки  $r_0 - 1$ ) требуется оценить коэффициенты  $e_r$ ,  $r=1, \dots, r_0$  полинома энергетической калибровки. При этом на совокупности нестационарностей спектра уравнение  $E=\varphi(x)$  должно быть однозначно разрешимо.

Задача  $K_0$  сводится к решению соответствующей СЛАУ методом наименьших квадратов. Отметим, что, как правило,  $\varphi(x)$  - полином 1-й или 2-й степени, а в качестве центров реперных пиков обычно указывают абсциссы точек максимумов реперных пиков. В случае асимметрии весовой функции аппаратуры справедливы следующие три важные замечания.

*Замечание 4.* Наличие асимметричных слева компонент  $WF$  приводит к смещению абсциссы максимума весовой функции относительно центра гауссовой (симметричной) компоненты  $WF$ . Величина смещения зависит как от значений соотношений  $\theta_2/\theta_1$ ,  $\theta_3/\theta_1$  нелинейных параметров  $WF$ , так и от соотношения линейных коэффициентов  $p_1, p_2, p_3$ ; чем больше асимметрия пиков, тем больше это смещение.

*Замечание 5.* Наличие тонкой структуры линий, особенно в альфа-спектрах, также влечет за собой смещение максимума пика (а он есть суперпозиция нескольких линий, т.е. мультиплет) относительно центров гауссовых компонент моделей линий.

*Замечание 6.* Случай, когда пик есть мультиплет, определяемый положениями спектральных линий нескольких нуклидов (не всегда известно, каких), также может повлечь смещение максимума пика относительно центров гауссовых компонент линий (замечание справедливо и для случая симметричной формы линии).

Неучет перечисленных в замечаниях 4-6 факторов приводит к систематической ошибке (ошибке метода) при обработке спектра вследствие того, что при использовании БАЯД энергии реперных спектральных линий, как правило, приписывают (ставят в соответствие) центрам гауссовых компонент линий. В частности, ошибка метода может проявляться при симуляции модельного спектра: спектр будет как бы "смещен" влево относительно положений центров пиков истинного спектра  $y(x)$ . Эта систематическая ошибка обычно отчетливо видна при проведении модельных экспериментов и обработке квазиреальных невозмущенных данных  $Y(x)$ . Указанные смещения практически невозможно вычислить заранее по каким-либо математическим формулам.

Как следствие приведенных выше соображений, возникает необходимость постановки и решения задачи коррекции энергетической калибровки, используя методику "машинного эксперимента симуляции".

11. В работе [11] рассмотрена и решена в рамках заданных здесь моделей задача коррекции энергетической калибровки, и для асимметричной модели  $z(x, u)$  аппаратной линии предложен метод уточнения коэффициентов **КАЛИБРОВКИ В ИТЕРАЦИОННОМ ПРОЦЕССЕ ДОСТАТОЧНО СЛОЖНОГО КОМПЬЮТЕРНОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ ИСХОДНЫХ ДАННЫХ.**

Задача  $K_1$  коррекции коэффициентов полинома энергетической калибровки ставится следующим образом. Дано: спектр измерений  $\{y_j\}$ , оценки ошибок измерений  $\{\Delta y_j\}$ , фрагменты  $[i_{v1}, i_{v2}]$ ,  $v=1, \dots, v_0$  локализации нестационарностей в спектре, линейчатые спектры  $k_0 \geq 1$  нуклидов (из БАЯД)  $\{(E_{kj}, I_{kj}), j=1, \dots, j_k, k=1, \dots, k_0\}$ , оценки содержания (интенсивностей излучения)  $S_k$ ,  $k=1, \dots, k_0$  указанных элементов (нуклидов), оценки параметров весовой функции  $WF \theta_m, p_m$ ,  $m=1, \dots, m_0$ , значения коэффициентов исходного полинома энергетической калибровки  $e_r$ ,  $r=1, \dots, r_0$  (порядок калибровки  $-r_0 - 1$ ), кривая эффективности  $\varepsilon(E)$ , центры  $c_t^*$  реперных пиков и энергии реперов  $E_t^*$ ,  $c_t^* \leftrightarrow E_t^*$ ,  $t=1, \dots, t_0$ , допуск по точности  $0 < h_x \leq 1$  (или шаг мелкой сетки на оси  $x$ ) при определении аргументов точек локальных максимумов в модельном спектре  $Y(x)$ . При этом будем предполагать, что реперный пик определяется спектральными линиями одного какого-либо нуклида. В задаче  $K_1$  требуется в заданных условиях и в рамках полиномиальной модели  $\varphi(x)$  откорректировать коэффициенты энергетической калибровки с учетом уклонов абсцисс точек локальных максимумов функции  $Y(x)$  от центров гауссовых компонент реперных линий.

В силу того, что обычно энергии реперов приписывают именно центрам гауссовых компонент линий, вычислим соответствующие заданной калибровке "теоретические" положения центров гауссовых компонент реперных линий  $c_t$ , для чего решим уравнения  $\varphi(x) = E_t^*$ ,  $t=1, \dots, t_0$ . Далее на фрагментах, содержащих как значения  $c_t$ , так и локальные максимумы гладкой функции  $Y(x) = Y(x; \varphi, r_0)$ ,  $0 \leq x \leq n$ , оценим с заданной точностью  $h_x$  (т.е. на "мелкой" сетке с шагом  $h_x$ ; обычно достаточно значений  $h_x \sim h/10$ , где  $h=1$  - ширина канала) положения точек локальных максимумов  $x_t^*$  функции  $Y(x)$ . Теперь решение задачи  $K_1$  фактически сводится к решению задачи  $K_0$  нахождения коэффициентов  $e_r^*$ ,  $r=1, \dots, r_0$  полинома  $\varphi^*(x)$  "откорректированной" энергетической калибровки, с тем лишь отличием, что значения энергий реперов  $E_t^*$  здесь ставятся в соответствие другим оценкам  $c_t^*$  положений центров реперных линий, в которых учитываются уклоны абсцисс точек локальных максимумов функции  $Y(x)$  от центров гауссовых компонент:

$$c_t^* = c_t^* + (x_t^* - c_t) \geq c_t^*, c_t^* \leftrightarrow E_t^*, t=1, \dots, t_0.$$

С помощью численных экспериментов установлено, что при решении задач  $K_0, K_1$  на квазиреальных невозможных данных  $y(x) \cong Y(x; \varphi, r_0)$ ,  $x \geq 0$  и соблюдении всех исходных предпосылок задач  $K_0, K_1$  кривые  $y(x)$  и  $Y(x; \varphi^*, r_0)$  совпадают в рамках заданной точности вычислений, а значения взвешенных невязок, полученные за одну итерацию, до и после коррекции калибровки различаются на 1-3 порядка [11].

**Замечание 7.** При кажущейся простоте задача коррекции калибровки требует аккуратности и внимания, особенно в нашем случае, когда данные измерений  $\{y_i\}$  представляют собой не функцию  $y(x)$  в точке  $x=i$ , а результат группировки данных  $y(x)$ ,  $i-1 < x \leq i$  в узлах целочисленной равномерной сетки  $x=1, \dots, p$ . В последнем случае погрешность указания центров реперных линий (на шкале аргумента  $x$ ) часто велика и составляет величину порядка  $h/2$  либо  $h$ , где  $h=1$ ; в связи с этим задача калибровки может иметь не единственное решение. Однако все эти решения - калибровочные полиномы - эквивалентны в смысле слабой сходимости по функционалу уклонения модельного контура  $Y(x; \varphi^*, r_0)$  от данных  $y(x)$  (или же с точки зрения значений статистик Пирсона и хи-квадрат). Поэтому сначала всегда стоит исходить из "простейшей" модели калибровки, ведь во многих случаях достаточно использовать линейную, а не квадратичную модель калибровочной зависимости.

**Замечание 8.** Даже в случае симуляции "точных" данных коррекцию калибровки часто не удастся провести абсолютно точно вследствие конечной точности задания информации в банках фактографических данных, конечного допуска  $h_x > 0$  по точности определения локальных максимумов функции  $Y(x)$  и конечности разрядной сетки ЭВМ (при проведении машинных вычислений).

С учетом решения задач  $K_0, K_1$  технология обработки спектра, включающая в себя процессы оценивания и уточнения содержания нуклидов (в пробе), весовой функции аппаратуры и калибровки по энергии, может быть реализована последовательно, например, по схеме:

предварительный анализ спектра  $\rightarrow$  решение задачи  $K_0 \rightarrow$  решение задачи 1  $\rightarrow$  решение задачи  $K_1 \rightarrow$  решение задачи 1  $\rightarrow$  решение задачи 2  $\rightarrow$  решение задачи 1  $\rightarrow$  решение задачи  $K_1 \rightarrow \dots$

Многократное решение задач  $K_0 - 1 - 2 - K_1$  при задании различных приближений для параметров  $WF$  может привести к существенному улучшению качества подгонки спектра часто только при уточнении нелинейных параметров  $WF$ .

Алгоритм уточнения нелинейных параметров  $WF$  во многом подобен описанному выше алгоритму декомпозиции мультиплетов, но в качестве исходных данных используется информация и о линейчатых спектрах элементов, и об оценках содержания (интенсивностей) элементов, и о параметрах весовой функции, и о параметрах калибровки по энергии, и о кривой эффективности. Нелинейные параметры корректируются по "сильным" линиям (в линейчатых спектрах элементов это линии с наибольшей интенсивностью) некоторых наиболее значимых элементов, после вычитания из исходных данных моделей спектров остальных нуклидов. Подробности алгоритма корректировки нелинейных параметров весовой функции здесь не рассматриваются.

12. Проиллюстрируем работу алгоритмов на достаточно простом модельном примере. Пусть заданы параметры 4-х элементов (нуклидов): интенсивности (излучения)  $S_k > 0$  и линейчатые спектры  $\{(E_{kj}, I_{kj})\}$ ,  $j=1, \dots, j_k$ ,  $1 \leq k \leq 4$ ,  $k_0=4$ . Пусть, кроме того, каждый из этих линейчатых спектров состоит из одной линии, т.е.  $j_k=1$ ,  $E_{k1}=c_k$  (величины  $c_k$  заданы),  $I_{k1}=1$ ,  $1 \leq k \leq 4$ . Для простоты проведения модельного эксперимента полагаем  $E=\varphi(x)=x$ ,  $\varepsilon=\varepsilon(E)=1$  и считаем, что энергетическая калибровка задана. Вследствие этого задачи  $K_0, K_1$  в модельном эксперименте не решаются. В указанных условиях (см п.8)  $C_{k1}=c_k$ ,

$R_{k1}=I_{k1}=1$ , а  $S_k=G_k$ , где  $G_k$  - площадь под модельным спектром  $z(x, C_{k1}; \Theta, P)$   $k$ -го элемента. Заметим, что спектры элементов представляют собой синглеты с центрами гауссовых компонент  $c_k$  (в каналах),  $q_0=k_0=4$ . Данные модельного эксперимента - параметры  $WF \theta_m, p_m, m=1,2,3$  и точные значения  $c_q, G_q, 1 \leq q \leq 4$ , а также полученные в результате разметки квазиреального спектра  $y(x)=Y(x)$  оценки центров пиков  $c_q^o$  и границы локализации пиков  $i_{q1}, i_{q2}$  приведены в табл.1 и 2. Отметим, что оценки центров пиков  $c_q^o$  смещены влево относительно истинных положений центров пиков  $c_q$  не менее чем на 4 единицы (канала).

На рис.1а показаны графики одиночной линии и трех ее компонент, смоделированные по указанным в табл.1-2 значениям параметров; штриховой и пунктирной вертикальными линиями отмечены соответственно положение максимума линии и правее - положение центра гауссовой компоненты. Мелким пунктиром отображена также координатная сетка.

В результате декомпозиции мультиплетов (квазиреального спектра  $y(x)$ ) на отдельные синглеты уже на 2-й итерации были получены вполне удовлетворительные начальные приближения для параметров весовой функции (см табл.3, а особенно параметры модели 1-го пика). Значение статистики Пирсона  $\chi^2$ , вычисленное по всей области обработки спектра, составило величину 0.311. Значения  $\chi_q^2$ , вычисленные по фрагментам локализации пиков, приведены в табл.3,  $\chi_q^2 = \sum_{i_{q1} \leq i \leq i_{q2}} (y_i - Y(x_i))^2 / Y(x_i)$ ,  $1 \leq q \leq 4$ . Однако из табл.3

видно, что произошло перераспределение площадей - на этом предварительном этапе обработки спектра относительные ошибки определения площадей пиков (относительно истинно заданных) велики и составляют величины 30.94%, 14.28%, 5.03%, 15.10%.

Таблица 1.

	$m=1$	$m=2$	$m=3$
$\theta_m$	10.	20.	50.
$p_m$	0.1	0.5	0.4

Таблица 2.

	$q=1$	$q=2$	$q=3$	$q=4$
$c_q$	450.	500.	580.	640.
$G_q$	3500.	7500.	6000.	5000.
$c_q^o$	445.51	493.50	574.43	632.29
$i_{q1} - i_{q2}$	293 - 461	462 - 527	528 - 596	603 - 664

Таблица 3.

	$q=1$	$q=2$	$q=3$	$q=4$
оценка центра $c_q$	446.05	490.92	572.73	629.97
площадь под пиком $G_q$	4583.	6429.	6302.	4245.
полуширина $\theta_{q1}$	13.387	12.865	13.387	12.763
$a_{q1}=A_{q1}/G_q$	0.427	0.706	0.483	0.653
декремент кор.комп-ты $\theta_{q2}$	24.100	14.199	24.302	12.337
$a_{q2}=A_{q2}/G_q$	0.229	0.000	0.171	0.048
декремент дл.комп-ты $\theta_{q3}$	49.792	49.792	49.792	49.792
$a_{q3}=A_{q3}/G_q$	0.345	0.294	0.346	0.299
$\chi_q^2$	0.033	0.350	0.462	0.764

На рис.1б показаны модельный спектр  $y(x)$  (отрисован жирной линией) и результаты его декомпозиции на отдельные синглеты - спектр  $Y(x)$  и три его



компоненты: сумма гауссовых (симметричных) компонент пиков и суммы соответственно асимметричных длинных и коротких компонент пиков. Штриховыми и пунктирными вертикальными линиями отрисованы соответственно положения оценок центров пиков  $s^o_q$  и границы  $i_{q1}$ ,  $i_{q2}$  локализации пиков. В нижней части рис.1b приведен график взвешенных остатков, вычисленных по результатам аппроксимации.

Далее в модельном эксперименте последовательно решаются задачи 1-2 и проводится коррекция нелинейных параметров  $WF$ . В табл.4 приведены полученные на первых 5 итерациях комплексной процедуры обработки симулированного спектра  $y(x)$  оценки параметров весовой функции и доли (вклады)  $d_k$  элементов в общей интенсивности (излучения),  $d_k = S_k / [\sum_q S_q] \cdot 100\%$ ,  $1 \leq k \leq 4$ . Значения статистики Пирсона, вычисляемые по всему спектру на итерациях, свидетельствуют о сходимости предложенного комплексного алгоритма обработки спектра на модельных данных.

В результате обработки спектра получены следующие значения интенсивностей элементов:  $S^o_1=3531$ ,  $S^o_2=7488$ ,  $S^o_3=6001$ ,  $S^o_4=4980$ . Относительные ошибки (относительно исходных точно заданных значений параметров модели)  $\delta(S^o_k) = (S^o_k - S_k) / S_k \cdot 100\%$  определения величин  $S^o_k$  равны соответственно 0.89%, 0.17%, 0.02%, 0.40%, нелинейных параметров  $WF$   $\theta_m$  - 0.58%, 0.13%, 0.05%, а линейных параметров  $WF$   $p_m$  - 0.4%, 1.6%, 2.1%.

Таблица 4.

	1 итерация	2 итерация	3 итерация	4 итерация	5 итерация
$\theta_1$	12.865	12.865	9.705	9.705	10.058
$p_1$	0.427	0.147	0.115	0.108	0.100
$\theta_2$	24.100	24.100	20.815	20.815	19.974
$p_2$	0.229	0.677	0.543	0.508	0.508
$\theta_3$	49.792	49.792	49.516	49.516	49.974
$p_3$	0.345	0.176	0.342	0.384	0.392
$d_1, \%$	21.66	18.20	16.70	16.06	16.05
$d_2, \%$	31.69	33.87	33.74	34.03	34.04
$d_3, \%$	29.68	27.56	27.26	27.23	27.28
$d_4, \%$	16.97	20.37	22.30	22.69	22.63
$\chi^2$	2.13	0.68	0.05	0.01	0.001

На рис.1c-1d показаны окончательные результаты обработки - спектр  $y(x)$  (жирной линией), аппроксимирующая кривая  $Y(x)$ , смоделированные спектры (излучения) элементов (рис.1c), три компоненты (гауссова, длинная и короткая) спектра  $Y(x)$  (рис.1d) и график взвешенных остатков (нижняя часть рис.1d). Штриховыми и пунктирными вертикальными линиями показаны соответственно положения максимумов пиков в спектре  $y(x)$  и найденные в результате обработки положения центров гауссовых компонент спектров отдельных элементов.

На рис.2a-2c приведены результаты обработки реально измеренных спектров альфа-излучения. На рис.2a-2b показаны экспериментальный спектр  $y(x)$  (жирной линией) и аппроксимирующие спектры  $Y(x)$ . На рис.2a отрисованы также полученные на этапе декомпозиции мультиплетов на отдельные пики три компоненты спектра  $Y(x)$  - суммы смоделированных соответственно гауссовых и двух асимметричных компонент пиков мультиплета.

В нижней части рис.2а-2б показаны графики функций взвешенных остатков. На рис.2б отрезками вертикальных (жирных) линий показаны заданные в энергетических единицах кэВ (keV) линейчатые спектры трех искомым нуклидов - нептуния  $^{237}\text{Np}$  и изотопов плутония  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Высота вертикальных линий в дискретных спектрах на рисунке пропорциональна интенсивности излучения соответствующих нуклидов. Кроме того, на рис.2а-2б мелким пунктиром *отображены две шкалы измерения - в каналах и в кэВ.*

На рис.2с показаны результаты обработки спектра  $y(x)$  с очень сильной левой асимметрией пиков. На картинке видны результирующий спектр  $Y(x)$  и смоделированные спектры трех изотопов - плутония  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  и урана  $^{234}\text{U}$ ; жирными вертикальными линиями показаны положения максимумов этих спектров. В нижней части рисунка приведен график взвешенных остатков. Стоит заметить, что в исходном спектре присутствуют резко выделяющиеся наблюдения - выбросы. Однако вследствие использования при обработке спектра робастных процедур эти выбросы не оказали практически никакого влияния на результат аппроксимации. На картинке не показана сетка по второй - энергетической - шкале измерений. Однако видно, что положение курсора соответствует значениям 736 (в каналах) и 4889 (в кэВ).

Рис.1а+1д,2а+2д получены путем "перехвата" графической картинка (вида) экрана во время работы созданной при активном участии автора компьютерной системы обработки спектров.

13. Предложенная нами [1,11] технология решения проблем элементного анализа (от предварительного оценивания калибровки до оценивания количественного содержания нуклидов и коррекции параметров весовой функции и калибровки), базируясь на билинейной связи квазилинейных параметров и квазиэкспоненциальной зависимости от нелинейных параметров в аппроксимирующей модели, заключается в поочередном применении соответствующих групп вычислительных алгоритмов оценивания и компьютерного моделирования с использованием банков фактографических данных, тогда как в разработках других авторов (отечественных и зарубежных) обычно используются алгоритмы нелинейного метода наименьших квадратов. Этот оригинальный подход обеспечил большую надежность и достоверность результатов обработки.

Описанные в работе задачи успешно решаются в разработанных при активном участии автора пакетах прикладных программ обработки альфа- и гамма-спектров. Программные средства, реализующие методики обработки данных, позволяют осуществить как пошаговую обработку, так и более сложные схемы анализа данных [1]. Разработанные компьютерные системы иллюстрируют возможности достаточно надежного обнаружения на не слишком дорогостоящей аппаратуре даже малых доз примесей в анализируемых пробах (для альфа-спектрометрии) и при полном отсутствии одиночных откликов (линий) в наблюдаемых спектрах, а также количественного оценивания содержания этих примесей как на бедной, так и достаточно высокой статистике при значительном гладком дрейфе аппаратной функции.

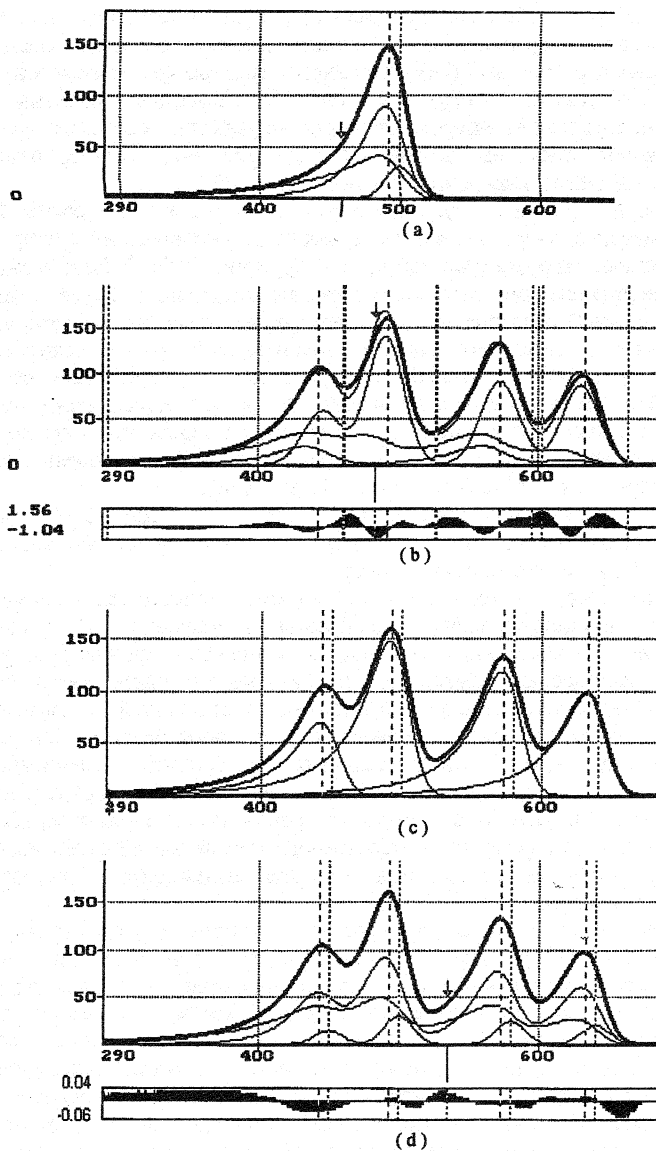
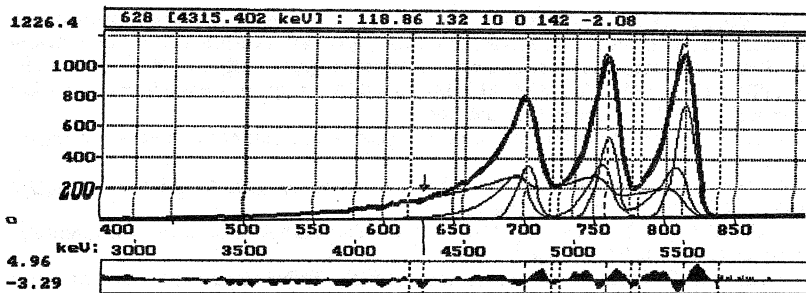
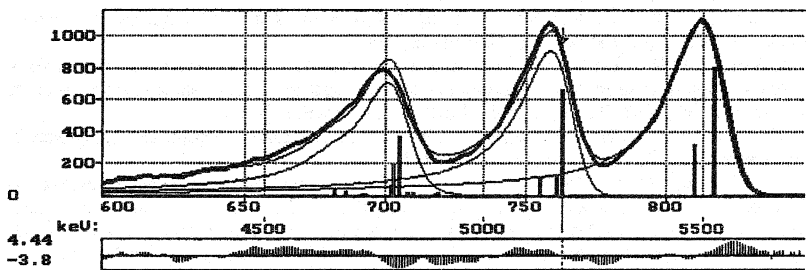


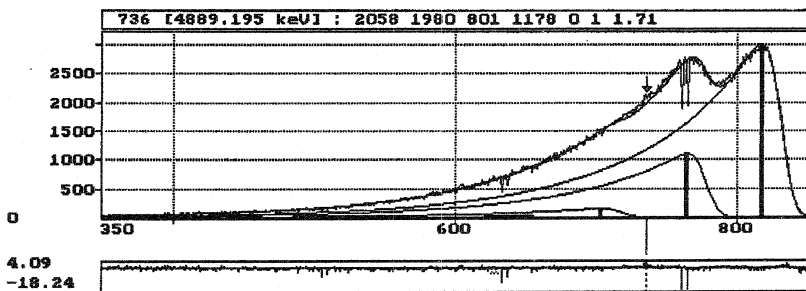
Рис.1. (а) Форма аппаратной ( $WF$ ) линии и ее 3 компоненты. (б) Декомпозиция модельного спектра (мультиплета) на отдельные синглеты (пики). (с) Разложение модельного спектра на сумму смоделированных по результатам аппроксимации спектров излучения элементов. (д) Результаты обработки модельного спектра: аппроксимирующий спектр и 3 его компоненты (суммы соответственно гауссовых и длинных и коротких асимметричных компонент моделей спектров излучения элементов).



(a)



(b)



(c)

Рис.2. Обработка экспериментальных спектров. (а) Декомпозиция мультиплета на отдельные пики; изображены экспериментальная кривая, аппроксимирующий спектр и его 3 компоненты (гауссова и длинная и короткая асимметричные). (б) Итоговая декомпозиция: экспериментальный и результирующий спектры, модели непрерывных и дискретных (линейчатых) спектров излучения нуклидов  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ . (с) Экспериментальный спектр и результаты его аппроксимации суммой спектров излучения искоемых нуклидов  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{234}\text{U}$ .

#### Литература.

1. Заикин П.Н., Подосенова Т.Б. Математическое и информационные проблемы элементного анализа вещества радиологическими методами.// Обратные задачи естествознания. - М.: Изд-во факультета ВМиК МГУ, 1997. с.79-86.

2. Заикин П.Н., Подосенова Т.Б. Информационно-методическое обеспечение программных средств пакетов прикладных программ обработки спектров. Модели предметной области. Этапы обработки, алгоритмы и технологические приемы. Приложение к описанию пакетов SPECTRUM, SPECTR-2, ASA, ALPHA, RESOLVER и др. Аналитический обзор. - М., 1994. Деп. в ВИНТИ 15.11.95 № 3028-В95. 78с.
3. Тихонов А.Н., Арсенин В.Я. Методы решения некорректных задач. - М.: Наука, 1986. 287 с.
4. Helmer R.G., Lee M.A. Analytical functions for fitting peaks from Ge semiconductor detectors.// Nucl.Instr. and Meth., 178(1980), p.p.499-512.
5. Garcia-Torano E., Acena M.L. "NOLIN: Nonlinear analysis of complex alpha spectra."// Nucl. Instr. and Meth., 185(1981), p.p.261-269.
6. Amoudry F., Burger P. Determination of the  $^{239}\text{Pu} / ^{240}\text{Pu}$  isotopic ratio by high resolution alpha spectrometry.// Nucl.Instr. and Meth., 223(1984), p.p.360-367.
7. Балдин С.Ф., Варганов Н.А., Ерыхайлов Ю.В. и др. Прикладная спектрометрия с полупроводниковыми детекторами. - М.: Атомиздат, 1974.
8. Акимов Ю.К., Калинин А.И., Кушнирук В.Ф. и др. Полупроводниковые детекторы ядерных частиц и их применение. - М.: Атомиздат, 1967.
9. Заикин П.Н., Подосенова Т.Б. Оценивание линейных и нелинейных параметров трехкомпонентной модели весовой функции детекторов и одиночных линий спектра в ядерной спектроскопии. - М., 1992. Деп. в ВИНТИ 27.01.93 № 173-В93. 26с.
10. Тихонов А.Н., Уфимцев М.В. Статистическая обработка результатов экспериментов. - М.: Изд-во Моск.ун-та, 1988. 175с.
11. Заикин П.Н., Подосенова Т.Б. Задачи коррекции весовой функции и калибровочных зависимостей для прецизионного элементного анализа при многокомпонентной с неотрицательными компонентами математической модели весовой функции измерительной аппаратуры. - М., 1994. Деп. в ВИНТИ 22.03.94 № 695-В94. 45с.