



УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ



Томас Немеш

АПСОЛУТНО ОДРЕЂИВАЊЕ АКТИВНОСТИ ГАМА ЕМИТЕРА ПОМОЋУ ЈЕДНОГ ДЕТЕКТОРА

ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА

Нови Сад, 2015.

**АПСОЛУТНО ОДРЕЂИВАЊЕ АКТИВНОСТИ
ГАМА ЕМИТЕРА ПОМОЋУ ЈЕДНОГ ДЕТЕКТОРА**

ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА

УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ

КАНДИДАТ:
Томас Немеш

МЕНТОР:
др Иштван Бикит

Нови Сад, 2015.

Предговор

Апсолутно одређивање активности гама емитера помоћу једног детектора

Немеш Томас
2015.

Мерење апсолутне активности коинцидентном техником спада у најтачније методе која је применљива на велики број радиоактивних изотопа чији распад је праћен емисијом једне наелектрисане честице (α или β) и бар једним X- или γ -фотоном. Уобичајна поставка подразумева употребу коинцидентног кола и два детектора од којих је сваки осетљив на један тип зрачења. При реализацији експеримента са два детектора неопходно је подешавање коинцидентног кола и детектора од чега доста зависи тачност методе. Са друге стране, за мерење активности радиоизотопа који при распаду могу емитовати два фотона у каскади, а немају директан распад у основно стање потомка, може се применити знатно једноставнија коинцидентна техника, јер се базира на употреби само једног гама спектрометра.

У идеалном случају, мерење апсолутне активности на једном детектору подразумева обраду само спектралних података при чему се користи укупна површина спектра, врхови пуне енергије и коинцидентни (сумарни врх). Метод преферира блиску геометрију извор-детектор како би се минимизирао ефекат угаоних корелација и повећала статистика у коинцидентном врху. Због блиске геометрије извор-детектор брзина бројања може бити велика, па је потребно вршити корекције на случајне коинциденције које су се у досадашњим радовима базирале на припреми више узорака различитих активности или на варијацији времена резолуције појачавача што је подразумевало сакупљање више спектра. Уколико се извор постави даље од детектора ради смањења брзине бројања, ефекат угаоних корелација се више испољава. Како би се елиминисала систематска грешка због угаоних корелација потребно је у најбољем случају помоћу МС симулација израчунати ефикасности за дате енергије емитованих фотона. Такође потребно је располагати подацима из шеме распада за одговарајући радиоизотоп као што су спинови стања, мултиполност зрачења и односи мешања.

У овом раду развијен је једноставан поступак за мерење апсолутне активности калибрационих извора ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu помоћу германијумског детектора који је опремљен са дигиталном спектроскопском јединицом за обраду сигнала. Извори су мерени на капи детектора чиме се ефекат угаоних корелација свео на минимум, а корекције на случајне коинциденције су имплементирани помоћу врхова који су настали случајним коинциденцијама, чиме се информација о активности извора добила из једног спектра. Детаљном анализом експерименталне грешке у одређивању активности извора и поређењем са вредностима која је декларисана од стране произвођача показано је да тачкасти извори ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu и извор ^{152}Eu у маринели геометрији постављени на капу детектора могу бити мерени са грешком мањом од 2% на основу једног спектра.

Садржај

Предговор	i
Преглед слика	iv
Преглед табела	vi
Захвалница	vii
1 УВОД	1
2 ДЕТЕКТОРИ И ПРАТЕЋА ЕЛЕКТРОНИКА ЗА МЕРЕЊЕ АКТИВНОСТИ	2
2.1 РАЗВОЈ ДЕТЕКТОРА	2
2.2 ДИГИТАЛНИ СИСТЕМИ ЗА ОБРАДУ СИГНАЛА	8
2.2.1 Појачавачи са повратном спрегом и отпорником	10
3 ТЕХНИКЕ МЕРЕЊА АКТИВНОСТИ	13
3.1 ЈЕДИНИЦА РАДИОАКТИВНОСТИ И ДЕФИНИЦИЈА АКТИВНОСТИ	13
3.2 МЕТОД МЕРЕЊЕМ МАСЕ	14
3.3 МЕТОДЕ 100% ЕФИКАСНОСТИ	15
3.4 КОИНЦИДЕНТНА ТЕХНИКА МЕРЕЊА АКТИВНОСТИ	16
4 МЕТОДА СУМАРНОГ ВРХА ИЛИ ФОТОН-ФОТОН КОИНЦИДЕНТНА ТЕХНИКА НА ЈЕДНОМ СПЕКТРОМЕТРУ	23
5 СЛУЧАЈНЕ КОИНЦИДЕНЦИЈЕ У СПЕКТРАЛНИМ ПОДАЦИМА γ-ЕМИТЕРА	28
5.1 ДОПРИНОСИ СЛУЧАЈНИХ КОИНЦИДЕНЦИЈА У СУМАРНОМ ВРХУ	29
5.2 ГУБИЦИ У ВРХОВИМА УСЛЕД СЛУЧАЈНИХ КОИНЦИДЕНЦИЈА	35
6 ЕФЕКТИВНЕ УГАОНЕ КОРЕЛАЦИЈЕ ФОТОНА	37
6.1 ЕФЕКТИВНЕ УГАОНЕ КОРЕЛАЦИЈЕ ЗА КОАКСИЈАЛНИ HPGe ДЕТЕКТОР	39
7 ПРИМЕНА МЕТОДЕ СУМАРНОГ ВРХА НА ИЗВОРЕ ^{60}Co, ^{133}Ba И ^{152}Eu	46
7.1 ИЗВОР ^{60}Co	46
7.2 ИЗВОР ^{133}Ba	49
7.3 МЕТОД СВИХ ИСХОДА СА СЛУЧАЈНИМ КОИНЦИДЕНЦИЈАМА	50
7.3.1 Једначине бројања за ^{133}Ba	53
7.3.2 Поједностављени третман за изотоп ^{133}Ba	56
7.4 МЕТОД СУМАРНОГ ВРХА ЗА СЛОЖЕНЕ РАДИОИЗОТОПЕ	59
7.4.1 Могућност примене коинцидентне методе на једном детектору за изотоп ^{152}Eu	63
7.4.2 Проблем са распрострањеним узорцима	65
7.4.3 Ефективне угаоне корелације изотопа ^{152}Eu	67
7.4.4 Случајне коинциденције у спектралним подацима извора ^{152}Eu	70
7.4.5 Једначине за мерење апсолутне активности ^{152}Eu	71
7.4.6 Једначине за директно мерење апсолутне активности ^{152}Eu	72
8 ЕКСПЕРИМЕНТ	74
8.1 ДИГИТАЛНА СПЕКТРОСКОПСКА ЈЕДИНИЦА <i>INSPECTOR 2000</i>	74
8.2 АПСЛУТНО МЕРЕЊЕ АКТИВНОСТИ ИЗВОРА ^{60}Co	75
8.3 АПСЛУТНО МЕРЕЊЕ АКТИВНОСТИ ИЗВОРА ^{133}Ba	85
8.4 АПСЛУТНО МЕРЕЊЕ АКТИВНОСТИ ИЗВОРА ^{152}Eu	94
9 ЗАКЉУЧАК	102

ПРИЛОЗИ	104
Прилог А: Угаоне корелације каскадних фотона	104
А.1 Коefицијенти угаоних корелација	104
А.2 Ефективне угаоне корелације	106
Прилог Б: Дефинисање функције за израчунавање активности извора Ва-133 помоћу спектралних података	108
Прилог В: Шеме носача извора	125
Прилог Г: Објављени радови на тему дисертације	128
SIMPLE METHOD FOR ABSOLUTE ACTIVITY MEASUREMENT OF ⁶⁰ Co SOURCE	129
ON THE ABSOLUTE SOURCE ACTIVITY MEASUREMENT: THE ¹³³ Ba CASE	133
ABSOLUTE ACTIVITY MEASUREMENTS OF ¹⁵² Eu SOURCES WITH A SINGLE DETECTOR	142
ЛИТЕРАТУРА	152

Преглед слика

2.1	Принцип конверзије и појачања светлосног сигнала фотомултипликатором	3
2.2	Принципијална шема гасног бројача	4
2.3	Број сакупљених јона у зависности од примењеног напона на електродама гасног бројача	5
2.4	Инверзно поларизовани PN-спој и потенцијал дуж PN-споја	6
2.5	Типови детектора од беспримесног германијума	7
2.6	Трапезоидни сигнал у дигиталним анализаторима	8
2.7	Шема претпојачавача са повратном спрегом и отпорником	10
2.8	Облик сигнала појачавача са повратном спрегом и облик водеће ивице сигнала	11
2.9	Насадање сигнала на претпојачавачу са повратном спрегом	11
3.1	Принципијална шема експерименталне поставке за мерење активности на одређеном просторном углу	15
3.2	Принципијална шема експерименталне поставке за мерење активности γ -емитера у 4π геометрији	16
3.3	Експериментална поставка коинцидентне технике (α, β -X, γ) са два детектора и проста шема распада	17
3.4	Принципијални проблеми коинцидентног бројања помоћу два детектора	18
3.5	Резултати за мерење активности коинцидентном техником (β - γ) ^{152}Eu према литератури	20
3.6	Резултати за мерење активности коинцидентном техником (e, X - γ) ^{133}Ba према литератури	21
4.1	Пример шеме распада праћеног емисијом β -честице и два γ -фотона у каскади	23
5.1	Преклапање сигнала унутар времена резолуције	29
5.2	Спектар тачкастог извора ^{137}Cs снимљен на коаксијалном HPGe детектору при већој брзини бројања	30
5.3	Принцип рада кола за корекцију наседајућих сигнала	31
5.4	Спектар тачкастог извора ^{60}Co снимљен на коаксијалном HPGe детектору на већим брзинама бројања	33
5.5	Уз објашњење могућих исхода случајних коинциденција при емисији две двофотонске каскаде унутар времена резолуције спектрометра	34
6.1	Правци емисије два каскадна фотона	37
6.2	Принципијална шема експерименталне поставке за мерење угаоних корелација и илустрација свођења проблема на један детектор	38
6.3	Функције угаоних корелација каскадних фотона емитованих из ^{152}Eu	41
6.4	Геометријска поставка извор-детектор са ознакама димензија потребних за израчунавање ефективних угаоних корелација	43
7.1	Шема распада изотопа ^{60}Co	46
7.2	Шема распада изотопа ^{133}Ba	49
7.3	Пример једноставне шеме распада	51
7.4	Пример спектра са врховима пуне енергије, сумарним врхом и <i>pile-up</i> врховима	52
7.5	γ -спектар тачкастог извора ^{133}Ba снимљен на капи коаксијалног HPGe детектора	55
7.6	Знатно упрошћена шема распада изотопа ^{133}Ba	58
7.7	Сложена шема распада	60
7.8	Специфична шема распада	62
7.9	Упрошћена шема распада изотопа ^{152}Eu	63
7.10	Спектрални подаци ^{152}Eu у области сумарног врха на 1649.9 keV	65
7.11	Области коаксијалног детектора где функција ефикасности у зависности од упадног угла зрачења има различите облике	68
7.12	Функције ефективних угаоних корелација за каскадне фотоне од интереса из извора ^{152}Eu	69
8.1	Типичан изглед степенастог континуума и фитовање врха према алгоритму програма <i>Genie 2000</i>	76
8.2	Илустрација процедуре одређивања површине врхова у спектрима извора ^{60}Co	78
8.3	Илустрација процедуре одређивања површине <i>pile-up</i> врхова у спектрима извора ^{60}Co	79
8.4	Фит ефективних угаоних корелација за γ -каскаду тачкастог извора ^{60}Co	81
8.5	Релативна грешка ефективних угаоних корелација	82

8.6	Изглед фита мултиплитета 79.6 keV и 81.0 keV у спектру извора ¹³³ Ba	85
8.7	Фит врха на енергији 356 keV у спектру извора ¹³³ Ba	86
8.8	Фит сумарног врха на енергији 437 keV у спектру извора ¹³³ Ba	86
8.9	Зависност ефективних угаоних корелација од растојања извор-детектор за доминантну γ -каскаду изотопа ¹³³ Ba	89
8.10	Корекциони фактор у зависности од растојања извор-детектор када мултиплитет 79.6 keV и 81.0 keV није раздвојен	90
8.11	Корекциони фактор у зависности од растојања извор-детектор када је мултиплитет 79.6 keV и 81.0 keV доста добро раздвојен	90
8.12	Експерименталне поставке за мерење активности различитих извора ¹⁵² Eu на коаксијалном HPGe детектору	94
8.13	γ -спектар тачкастог извора ¹⁵² Eu снимљен на HPGe детектору помоћу дигиталне спектроскопске јединице	95
8.14	Врх на енергији 121.8 keV на различитим брзинама бројања	96
8.15	Утицај варијације области интеграције на нето површину врха	101
В.1	Носач тачкастог извора за нулто растојање и лежиште за извор	125
В.2	Носач тачкастог извора за растојање 30mm	126
В.3	Лежиште за извор за растојање 30mm, модел извора и шрафови	127

Преглед табела

6.1	Подаци потребни за израчунавање функције угаоних корелација и функције ефективних угаоних корелација изотопа ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu	40
6.2	Подаци о детектору потребни за израчунавање ефективних угаоних корелација	44
7.1	Вероватноће за реализацију могућих путања при распаду изотопа ^{133}Ba	59
7.2	Коефицијенти угаоних корелација за изотоп ^{152}Eu	69
8.1	Експериментални подаци и мерене апсолутне активности тачкастих извора ^{60}Co	84
8.2	Спектрални подаци за тачкасте изворе ^{133}Ba	88
8.3	Експериментално измерене активности извора ^{133}Ba	92
8.4	Спектрални подаци за изворе ^{152}Eu	97
8.5	Резултати мерења активности извора ^{152}Eu помоћу више каскада	98
8.6	Резултати мерења активности извора ^{152}Eu помоћу једне каскаде	99
9.1	Сумарни резултати мерења активности извора ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu	102

Захвалница

Захваљујем се др Душану Мрђи на квалитетној научној сарадњи. Такође др Иштван Бикиту на корисним сугестијама, помало строгим примедбама и тенденцији ка поједностављењу сложених проблема. Дугујем захвалност свим запосленима на катедри за нуклеарну физику што су ми омогућили мерења и сарадњу.

Захваљујем се др Миљку Сатарићу и Ани Козмидис Петровић на корисним сугестијама и стрпљењу. Свим запосленима на катедри за физику при департману за опште дисциплине у техници на инспирацији за квалитетнији приступ научном раду.

За израду веома прецизних носача извора према неидеалним техничким цртежима захваљујем се Комароми Роберту. Желим да се захвалим тетки Magdaleni Stegili Wermelinger на додатној финансијској помоћи. Својим родитељима.

Истичем да је рад на овој дисертацији био и финансијски подржан од стране Министарства за Науку и Технологију Републике Србије кроз два пројекта “Нуклеарна спектроскопија и ретки процеси” (141002) и “Нуклеарне методе истраживања ретких догађаја и космичког зрачења” (171002).

1 Увод

Доступност радиоактивних стандарда у смислу производње и даље дистрибуције је неопходно за извођење тачних мерења у многим областима и дисциплинама које подразумевају радиоактивност. Ово подразумева између осталог, мерења за основна истраживања нуклеарних распада и реакција, за радиоеколошка и геохемијска истраживања, за мониторинг животне средине, за контролу квалитета радиофармацеутика у производњи и администрацију за испитивање специјалних нуклеарних материјала у нуклеарној енергетици и индустрији оружја. Ови стандарди се даље принципијално користе за калибрацију инструмената који се користе за мерење радиоактивности и за мониторинг радиохемијских процедура. Већина стандарда су (или би бар требали да буду) направљени и компатибилни са националним стандардима. Као резултат, примарне методе стандардизације су на врху хијерархије производње стандарда које су потребне да широм света обезбеде компатибилност и тачност [1].

Примарне или апсолутне технике мерења активности подразумевају директно мерење нуклеарних прелаза у јединици времена извора једног радиоактивног изотопа при чему мерење не зависи од неког другог мерења активности [2]. Како се примарна стандардизација активности своди на детекцију и квантификацију емитованог зрачења, реализација SI јединице бекерел [Bq] подразумева различите технике и приступе за сваки радиоизотоп појединачно. Одговарајући метод се реализује према шеми распада радиоизотопа. Тренутно доступне шеме распада [3] са различитим нивоом тачности и прецизности су резултат рада више деценија у области “Радиоактивна метрологија”, која обухвата све аспекте радиоактивних мерења, као што је одређивање активности, периода полураспада, енергетских нивоа и вероватноћа прелаза [4]. Процес стандардизације извора у смислу одређивања његове активности подразумева и детаљан опис поступка припреме узорка и мерења и утврђивање мерне несигурности.

Постоји неколико принципијално различитих метода за мерење апсолутне активности: метод мерењем масе радиоизотопа, високо ефикасне методе бројања на дефинисаном просторном углу и коинцидентне методе [5]. Свака од метода захтева одговарајућу припрему узорка [6], употребу одговарајуће инструментације, специфичну експерименталну поставку и адекватну обраду и интерпретацију података.

Од открића радиоактивности до данас, методе мерења апсолутне активности испитиване су и готово усавршене за практично све радиоизотопе од интереса, а постигнуте тачности су реда величине десетине процента до неколико процената у зависности од сложености шеме распада. На пример мерне несигурности метода за мерење активности узорака изотопа ^{152}Eu који има веома сложену шему распада могу бити око 0.1% [7,8,9], међутим релативна одступања различитих метода иду и до 1% [7,8]. Достизању добрих резултата претходило је много рада у усаврашавању поступка издвајања и производње извора одређеног радиоизотопа, развоју детектора и пратеће електронике, усавршавању експерименталних техника и теорије интеракције радиоактивног зрачења са материјом као и усавршавању математичких модела за правилну интерпретацију података.

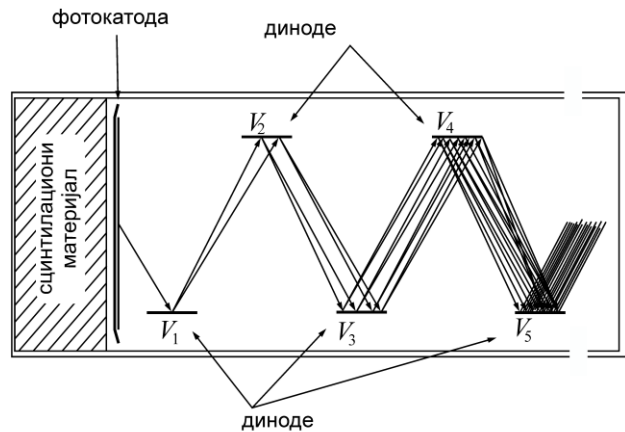
2 Детектори и пратећа електроника за мерење активности

2.1 Развој детектора

Врло брзо након открића радиоактивности од стране Хенри Бекерела 1896, пронађен је принцип за детекцију појединачних радиоактивних зрака. Први уређај који је могао детектовати појединачне зраке био је спинтарископ, а изумео га је Крукс 1903. Примио је да екран израђен од цинк сулфида изложен α честицама светлуца при удару α честица. Слаби светлосни сигнали могли су бити уочени помоћу увеличавајућег стакла. Радерфорд и Гајгер су нашли да на униформном екрану сачињеним од великог броја сцинтилационих тачака свака сцинтилација одговара удару једне α -честице. У том смислу је пронађен врло једноставан и практичан метод за бројање индивидуалних α -честица. Метод је усавршен и највише коришћен од стране Радерфорда и његових студената све до неких тридесетих година 20-ог века. Овај начин мерења изискивао је велике напоре оних који су посматрали сцинтилације. Уобичајна процедура подразумевала је да једна особа броји у току једног минута, а затим је долазила друга особа. Сваки посматрач је могао учествовати у највише 20 мерења.

Детектовање јонизујућег зрачења помоћу сцинтилационе светлости индуковане у цинк сулфиду је једна од првих техника детектовања и бројања зрачења. Развој електричних кола и разумевање интеракције зрачења са материјом допринео је да се ова метода готово потпуно замени методама електричног бројања 1930-их. Међутим, проналажењем начина да се светлосни сигнали конвертују у електричне, 1940-их је сцинтилациона техника поново саживела. Принцип конверзије светлосних сигнала у електричне се заснивао на мултипликацији електрона који су настали фотоелектричним ефектом. За ово су коришћене фотомултипликаторске цеви чији је задатак да умножи број фотоелектрона. Принцип је приказан на Слици 2.1. Бројање оком је заувек превазиђено.

Уследило је истраживање материјала који најбоље конвертују јонизујуће зрачење у светлосне сигнале. До 1947. и 1948. пронађено је неколико различитих материјала од којих се издвајају органски сцинтилатори: Антрацен ($C_{14}H_{10}$), транс-стилбен ($C_{14}H_{12}$), нафталин ($C_{10}H_8$). Осим антрацена који има верременску константу од око 30 ns, остали имају око неколико ns. У току 1950-их је откривено да се кристал NaI активира талијумом, а постао је врло брзо и комерцијално доступан. Ово је био и први практични чврсти детекторски медијум за гама спектрометрију, а остао је и данас најпопуларнији сцинтилациони детектор због велике ефикасности и релативно ниске цене, доступности итд. Течни сцинтилатори такође су пронађени већ 1948., међутим интерес за ове медијуме није постојао до 1960-их.



Слика 2.1 Принцип конверзије и појачања светлосног сигнала изазваног радиоактивним зрачењем у електрични сигнал помоћу фотомултипликаторске цеви. Радиоактивно зрачење генерише светлост у сцинтилационом материјалу која фотоэффектом ствара примарне фотоелектроне на фотокаоди. Електрони са фотокаоди стижу на прву диноду која је на вишем напону V_1 са које избијају нове електроне. Ови електрони даље избијају са друге диноде нове електроне, итд. Систем се састоји обично од 10 до 14 динода. У зависности од изведбе фотомултипликатора, фактор умношка броја електрона може ићи и до 10^7 . Постоје различите конфигурације фотомултипликатора прилагођене датом намени (види нпр. [Leo]).

Истраживање у области производње сцинтилационих материјала поставља неколико критеријума који дефинишу шта је добар сцинтилациони материјал.

- Дати материјал мора имати велику сцинтилациону ефикасност, тј. висок светлосни одзив за дату депоновану енергију честице или фотона. На апсолутној скали ефикасности су мале, али ипак много веће од ефикасности гасног бројача исте запремине. Само неколико процената од депоноване енергије настају у форми фотона.

- Ако сцинтилатор треба да одреди и енергију упадног зрачења, мора постојати веза између енергије упадног зрачења и количине створене светлости. У идеалном случају веза је линеарна, што је у пракси задовољено само у уској области енергије. Понекад су битније временске карактеристике детектора и тада треба изабрати материјал који има брзи одзив на упадно зрачење и производи временске сигнале са кратким временом пораста и опадања. У том смислу при избору сцинтилационих материјала треба наћи компромис између захтева високе сцинтилационе ефикасности, линеарности и брзог одзива.

- Материјал мора бити транспарентан за сопствену сцинтилациону светлост. Ако ово није задовољено онда се он прави у виду танког филма. Транспарентност се може постићи комбинацијом сцинтилационог материјала са такозваним померачем таласне дужине (*wavelength shifter*). Апсорпцијом и реемисијом таласна дужина примарне светлости се помера у област веће таласне дужине која се више не самоапсорбује. Ово се такође употребљава ради прилагођавања таласне дужине на осетљивост електронског уређаја за детекцију светлости као што је фото цев или светлосна диода.

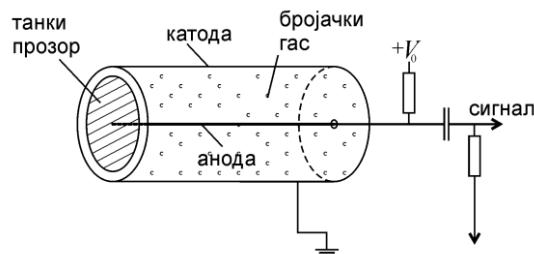
- За практичну примену треба размотрити колико добро може радити изабрани материјал, у којој величини и којој форми је доступан (важно за неорганске сцинтилаторе) и колико лако или колико тешко је са њим руковање (ломљивост, осетљивост на влагу или испарења, вакумска отпорност итд.).

70-тих година дошло је до развоја и детаљног истраживања различитих типова неорганских сцинтилатора као што су BGO, CWO, CSI, BaF₂ итд. који су у међувремену у великој мери заменили NaI. Развој у области неорганских сцинтилатора је стимулисан углавном применом у медицини као што је томографија X-зрачењем и позитрон-емисиона томографија (PET). За медицинску примену потребни су робусни, јефтини и високо ефикасни сцинтилатори са веома брзим временом одзива. Детаљан

преглед о принципима сцинтилационог бројања и карактеристикама сцинтилационих бројача дат је у [10].

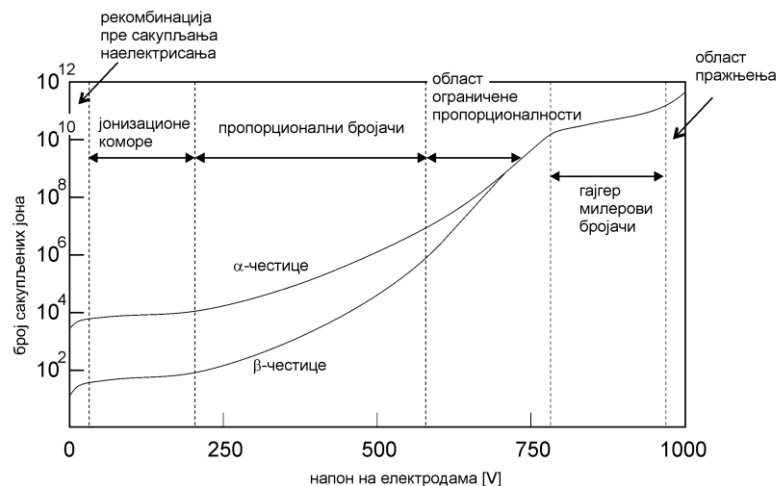
Услов да неки материјал може бити коришћен за детектовање радиоактивног зрачења није само способност конверзије зрачења у велики број носиоца наелектрисања него и могућност да се ово наелектрисање креће под дејством електричног поља. Гасови ово у потпуности задовољавају и први детектори засновани на јонизацији били су гасни детектори. Најједноставнији тип је јонизациона комора која је већ постојала као основна алатка у раним истраживањима X-зрачења. Користећи јонизациону комору током лета балона, Hess је 1910. дао први доказ о постојању космичког зрачења.

Принцип рада гасних бројача заснива се на чињеници да радиоактивно зрачење врши јонизацију гаса, тј. ствара велики број парова електрон-јон. У комори у којој се налази гас смештене су електроде под напоном које сакупљају генерисано наелектрисање. Карактеристике гасног бројача зависе од врсте радног гаса или смеше гасова облика и величине бројача као и употребљеног напона на електродама. Принципијална шема гасног бројача је приказана на Слици 2.2.



Слика 2.2 Принципијална шема гасног бројача. Радиоактивно зрачење доспева у област где се налази гас кроз танки прозор. Сакупљање наелектрисања створеног јонизацијом врши се помоћу катоде и аноде које су на различитим потенцијалима.

Карактеристика гасног бројача јако зависи од примењеног напона на електродама што је илустровано на Слици 2.3. Уколико је напон на електродама неколико десетина волти долази до рекомбинације јона пре сакупљања јона што резултује у недовољно јаким сигналу. Са повећањем напона број сакупљених јона се повећава и практично при одређеном напону сви јони су сакупљени на електродама. Даљим повећањем напона до око 250 волти електрони још немају довољно енергије да изврше даљу јонизацију. У овој области раде јонизационе коморе које служе за детекцију гама зрачења. Даљим повећањем напона електрони све више имају енергију да врше даљу јонизацију и практично у области пропорционалних бројача, гасни бројач може служити као спектрометар. Излазни сигнал је вишеструко појачан. Даљим повећањем напона улази се у област ограничене пропорционалности где је рад врло нестабилан и нема практичну сврху. Даљим повећањем напона практично се врши лавинска јонизација и ствара се струјни импулс који не зависи од енергије упадног зрачења. Ова област позната је као Гајгер Милерова област и има широку примену у изради јефтених бројача који служе за детектовање радиоактивног зрачења. Даљим повећањем напона практично се гас јонизује и без упадног зрачења, те ова област нема практични интерес.



Слика 2.3 Број сакупљених јона на електродама у зависности од примењеног напона на електродама према [Melissinos].

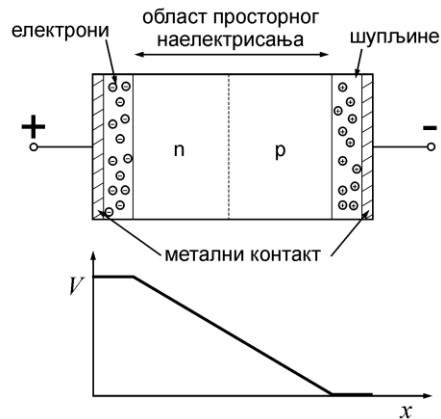
Развој гасних детектора започео је 1908. радом Радерфорда и Гајгера који су описали први цилиндрични електрични бројач за α -честице. Следило је његово побољшање 1912. увођењем сферног бројача. Даљи прогрес је постигнут 1913. кад је направљен детектор за β -честице. 1928. Гајгер и Милер увели су нови тип гасног бројача, који је имао одзив на индивидуалне догађаје индуковане зрачењем дајући јак сигнал. Овај бројач данас се назива Гајгер-Милеров бројач или популарно ГМ бројач. Бројач је даље усавршаван у 1930-им и због своје једноставности, лаког руковања и јефтиноће, нашао се веома брзо у употреби. ГМ бројач нема особину да мери енергију упадног зрачења и има веома лоше временске карактеристике (велико мртво време) па је ограничен на веома ниске брзине бројања. Међутим, за детектовање присуства радиоактивног зрачења и процену контаминације Гајгер Милерови бројачи су незаменљиви с обзиром на њихову цену и економичност.

Увођењем мрежасте јонизационе коморе (1940. Frisch), која још увек налази примену у алфа спектрометрији, настављен је развој гасних детектора. У касним 1940-им Фриш је увео трећи тип гасног детектора. Био је то пропорционални бројач који је појачавао струју изазвану пражњењем у гасу. Важна примена пропорционалних бројача је била спектрометрија нискоенергетских X-зрака. Данас се пропорционални бројачи често користе за рутинска мерења у многим нуклеарним лабораторијама за мерења алфа и бета зрачења. Гасни детектори могу давати врло прецизне резултате активности извора за одређени радиоизотоп уколико су правилно калибрисани. Детаљан опис карактеристика гасних детектора дат је у [11].

Врло брзо је схваћено да употреба чврстог детекторског медијума уместо гаса може имати велику предност у примени детекције зрачења, јер су чврста тела око 1000 пута гушћа него гасови, што имплицира да димензије чврстог детектора могу бити знатно мање од еквивалентног гасног детектора. Радови о могућности примене кристала за детекцију зрачења већ су објављени 1932. [Jafe, Van Harden]. Међутим, детектори зрачења који мере јонизацију произведену у чврстим диелектрицима и који су аналогни гасним детекторима, појавили су се тек 1950-их и у раним 1960-им. Следио је брзи развој полупроводничких детектора.

Принцип рада полупроводничког детектора приказан је на Слици 2.4. Инверзно поларизовани PN-спој има особину да сакупи парове електрон-шупљина који су генерисани упадним зрачењем унутар просторног наелектрисања. Количина генерисаних парова електрон-шупљина пропорционална је енергији упадног зрачења,

па је полупроводнички детектор погодан за спектрометрију. Полупроводнички детектори праве се у разним варијантама при чему су најчешће коришћени Si и Ge.



2.4 Инверзно поларизовани PN-спој и потенцијал дуж PN-споја. Област просторног наелектрисања осетљива је на упадно зрачење. Неактивни слој полупроводника је у области где су нагомилани главни носиоци наелектрисања (електрони у n-делу и шупљине у p-делу) јер у овој области нема пада потенцијала. Код беспримесног германијума готово целу запремину заузима неутрални германијум, док су P и N делови врло танки слојеви.

Детектори са дифузним спојем и површинском баријером нашли су широку примену у детектовању алфа честица. Процес дрифтовања јона, прво демонстриран од стране Pell 1960. омогућио је практичан метод помоћу кога се могу добијати веће активне запремине. Ови тзв. дрифтовани детектори, брзо су се раширили у нуклеарним наукама.

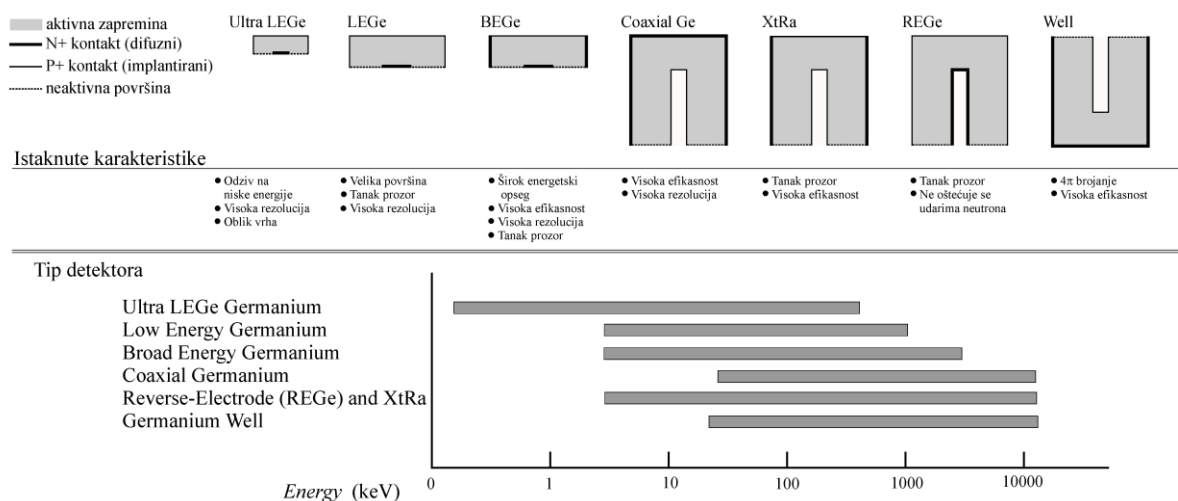
Данас силицијум као полупроводнички материјал доминира у детекторима у форми диоде које се користе за спектрометрију наелектрисаних честица, док се германијум више користи за детектовање гама зрачења. Силицијумски детектори су постали најчешћи избор за спектроскопију X-зрачења у нижем енергетском домену, као и за спектроскопију бета зрачења. Добра особине силицијума као полупроводничког материјала за израду детектора зрачења је велика доступност и рад на собним температурама. Са друге стране, недостаци силицијумских детектора су немогућност израде већих монокристалних структура и слабија резолуција.

Германијум са друге стране обезбеђује бољу резолуцију и развијени су поступци за израду релативно великих монокристалних структура, али се кристал мора хладити на ниске температуре ради минимизирања термалног шума. Производња Ge(Li) детектора захтева велике вештине, међутим када су ови детектори постали комерцијално доступни, нашли су примену широм света.

Први детектори базирани на полупроводнику германијуму били су германијум литијумски Ge(Li) детектори који су имали једно велико ограничење: он је морао да ради али и да се складишти на ниским температурама. Међутим, у току 1970. и 1972. развијен је поступак за добијање ултрачистог германијума (HPGe-*High purity Germanium*) што је омогућило производњу германијумских детектора, без компензовања литијумом. Германијумски детектори чије су нечистоће мање од једног атома примесе на 10^{10} атома германијума називају се беспримесни германијум. Ови детектори могу се излагати собним температурама без последица, али пре него што се прикључе на висок напон морају се охладити на ниске температуре.

Принцип рада германијумских детектора аналоган је јонизационим коморама. Уместо гаса, медијум је сада полупроводнички материјал. Пролаз јонизујућег зрачења креира парове електрон-шупљина (уместо електрон-јон) који се онда сакупљају

електричним пољем. Предност полупроводника је та што је средња енергија потребна за креирање пара електрон шупљина неких 10 пута мања од енергије потребне за креирање јонског пара у гасу. Због тога је количина произведене јонизације за дату енергију за ред величине већа што резултира у повећању енергетске резолуције за ред величине. Штавише, због њихове веће густине, имају већу зауставну моћ од гасних детектора. Имају компактну величину и имају веома брзо време одзива. Осим силицијума, сви полупроводници уопште захтевају хлађење на ниске температуре (77 K) пре него што почну са радом. Ово наравно подразумева додатни криогени систем који се прислања уз детектор. Један од данашњих проблема везаних за истраживања у области полупроводничких детектора, у ствари је проналажење материјала који могу радити на собним температурама. Кристални материјали су такође осетљивији на радијациона оштећења што им скраћује век трајања. Германијумски детектори највише се користе за детекцију γ -зрачења, а праве се у разним варијантама у зависности од намене: планарни, коаксијални и детектор у облику јаме (well). На Сlici 2.5 приказани су разни типови детектора који су сачињени од беспримесног германијума.



Слика 2.5 Типови детектора од беспримесног германијума према произвођачу *Canberra* [12]. За сваки тип детектора истакнута је важна карактеристике и област енергије γ -зрачења у којој се примењује.

Детаљан преглед о принципима рада, развоју и примени полупроводничких детектора дат је у [13].

Развој детектора зрачења није био могућ без паралелног развоја опреме која прима сигнале са детектора и производи погодан излазни сигнал. У овом сегменту истраживања могу се издвојити неки значајни догађаји. Williams је 1931. наставио рад Greipacher-a из 1926, правећи први линеарни појачавач који може да појача сигнал у слабо јонизованој комори проласком алфа честица. 1940. направљен је фотомултипликатор. У раним 1950-им широк спектар појачавача базиран на колима са вакуум-диодима је постао доступан. Њихове перформансе су се постепено побољшавале, као на пример увођењем 1956. кола са повратном спрегом. Током касних 1950-их и у раним 1960-им кола са вакумским цевима су замењена транзисторским колима. Ово је убрзо довело до развоја преносивих детектора зрачења. Направљени су инструменти који су могли да раде на великим брзинама бројања. У току 1960-их компјутерска технологија се примењује на детекторе зрачења. Многе предности микропроцесора (централне јединице за процесирање или интегрисана кола) доводе до развоја мерне инструментације са карактеристикама које задовољавају и превазилазе потребе експеримената.

Уоште говорећи, нуклеарна инструментација може бити базирана на аналогној и дигиталној електроници или комбинацији ове две. Тенденција развоја опреме је наклоњена дигиталној обради сигнала уз што ранију дигитализацију јер се овим могу постићи квалитетнији спектрални подаци и боље перформансе на већим брзинама бројања. Детаљи о савременим електричним колима који се примењују за детекцију зрачења и аспектама будућег развоја нуклеарне електронике дати су у [14].

Детаљији историјски преглед развоја детектора за детекцију и мерење јонизационог зрачења на основу кога је написан овај преглед дат је у [15].

2.2 Дигитални системи за обраду сигнала

Зрачење које доспе у активну запремину полупроводничког детектора производи велики број парова електрон шупљина. Инверзном поларизацијом PN споја, електрично поље изазива кретање носиоца наелектрисања ка изводима који су повезани на претпојачавач. Квалитет информације о количини створеног наелектрисања зависи од претпојачавача чији је задатак да сакупи генерисано наелектрисање и претвара у користан електрични сигнал.

Конвенционални гама спектрометријски систем за обраду сигнала обухвата следеће:

- Претпојачавач који сакупља носиоце наелектрисања
- Појачавач, чија је примарна функција да обезбеди информацију о висини сигнала
- АД-конвертор који мери висину обликованог сигнала
- Меморија која смешта број догађаја.

Слика 2.6 Троугаони (трапезоидни) сигнал који се користи у дигиталним анализаторима.



из претпојачавача обликовањем сигнала

Систем са дигиталном обрадом сигнала изводи исте функције али на дигитализованом моделу претпојачавачког сигнала. Таква дигитализација захтева екстремно брзе АД конверторе. Од свих типова АД конвертора, блиц АД конвертор је најбржи. У принципу, у форми великог броја једноканалних анализатора, комплетно мерење висине сигнала чини се скоро тренутно. Без обзира на њихову комплексност у смислу броја компоненти n -битни ADC захтева $2n-1$ индивидуалних једноканалних анализатора и потребна је већа снага у поређењу са другим типовима ADC. Главни недостатак је била ограниченост резолуције на 8 до 10 битова, што је еквивалентно 1-2k канала. Модерне варијанте блиц ADC су револуционализовали мерење висине сигнала. Они сада могу да обезбеде 14-битну резолуцију што је еквивалентно 16k спектру, на брзини бројања од 10 MHz што одговара мерењу висине сигнала сваких 0.1 μs . Код конвенционалних АД конвертора време пораста претпојачавачког излазног сигнала је реда величине 0.5-1 μs , што зависи од величине детектора, а време опадања је око 150-200 μs . Модерни блиц АД конвертор због тога може мерити висину веома брзо променљивог сигнала као што је претпојачавачки сигнал. Он практично дигитализује сав део сигнала, и пораст и опадање. Уколико се располаже сигналом у дигиталној форми, онда је могуће извршити математичке операције на цифрама за даљи

спектрометријски процес који подразумева обликовање сигнала, *pole-zero* поништавање, враћање базне линије на нулу, одбацивање наседајућих сигнала и корекција на балистички дефицит. Све ово функције врше се дигиталном електроником.

Најзначајнији аспект дигиталне обраде сигнала у нуклеарној спектроскопији (*Digital Spectrum Analysis* (Canberra–DSA) или *Digital Signal Processing* (ORTEC–DSP)) је тај да нема ограничења у математичким операцијама које се могу извршити дигиталним путем у поређењу са математичким операцијама које се могу извршити аналогном електроником. На пример, најбољи аналогни филтер сигнала који се може постићи је семи-гаусијанског облика али би са теоријског аспекта шпицасти, троугаони и Гаусијански филтери били бољи. Дигитални филтер може емулирати све ове. У пракси комерцијално доступни дигитални системи користе троугаоно обликовање са равним врхом, као што је приказано на Слици 2.6. Сви ови системи имају неколико опција за подешавање времена пораста и опадања сигнала, као и ширину платоа (*flat top*) што дозвољава да се савршено ускладе детектор и претпојачавачки систем. Мењајући ширину платоа и нагиб, постиже се боља корекција на балистички дефицит. Произвођач ORTEC такође садржи у његовом DSP систему коло за одбацивање ниских фреквенција, што ради заједно са трапезоидним филтером, како би се отклонио електронски шум проузрокован струјама од уземљења и микрофонија.

Контроле на DSA/DSP системима су софтверске, а не ручне и веома су сличне традиционалним аналогним системима. Једина разлика која постоји јесу LLD (*Low Level Discrimination*) и ULD (*Upper Level Discrimination*) контроле. У дигиталном систему, ово се врши након дигитализације, што значи да ће електронски шум испод LLD и даље доприносити мртвом времену спектрометра иако се не појављује у спектру.

Могу се издвојити неколико предности дигиталних процесора сигнала у односу на аналогне системе:

- Боља температурска стабилност јер када је сигнал једном дигитализован следеће операције су независне од температуре
- Већа брзина бројања, због тога што дигитализација и процеси филтеровања могу бити рађени брже него код конвенционалних ADC система
- Боља стабилност резолуције на већим брзинама бројања. Аналогни системи генерално имају лошије карактеристике на већим брзинама бројања. Код дигиталних система много су мањи губици у резолуцији.
- Побољшана стабилност врха. Много је мањи помак кад се брзина бројања повећа у дигиталним системима него у аналогним.

Предности дигиталних система у смислу резолуције, броју прихваћених корисних сигнала у јединици времена, мањем шуму и могућности прилагођавања облика сигнала ради елиминисања балистичког дефицита γ -спектрометрији са германијумским детекторима коментарисани су на пример у [16]. Такође у [17,18, 19 и 20] дато је поређење карактеристика неколико дигиталних спектроскопских јединица различитих произвођача. Општи закључак који следи из ових радова је да се DSP системи препоручују за рад на већим брзинама бројања. Међутим аналогни системи према [17] показују мању осетљивост на деградацију резолуције и грешке у одброју под врхом пуне енергије референтног врха при промени времена обликовања сигнала. У том смислу, квалитет спектралних података при употреби DSP система доста зависи од подешавања облика сигнала појачавача с обзиром на брзину бројања.

Постоје ипак специјални аналогни системи који имају и боље карактеристике од дигиталних, међутим код комерцијално доступних јединица за обраду сигнала, дигитални системи имају боље карактеристике од аналогних [21].

Тенденција развоја модерних детекторских система усмерена је ка дигиталном процесирању информација при чему се врше бројне операције са сакупљеним сигнаlima. Ово подразумева, селектовање сигнала по висини и бројање у вишеканалном анализатору како би се резултати представили у форми хистограма, препознавање сигнала, испитивање наседања сигнала (*pile-up inspection*), дискриминација по времену издизања сигнала и друго.

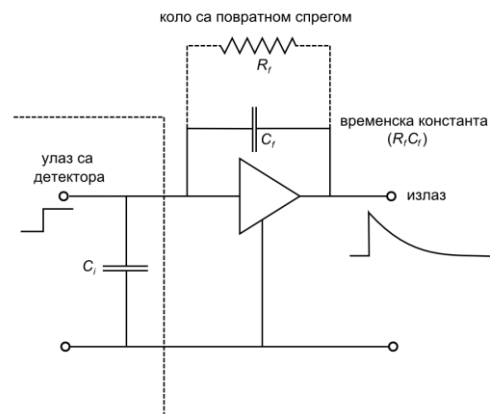
Модерне изведбе система за процесирање дигитализују сигнал са детектора у што ранијем нивоу, а то је излаз са претпојачавача. Овакви системи се називају дигитални спектрометри, насупрот аналогним који имају особину да конвертују сигнал у дигиталну форму након филтера за обликовање сигнала. Рана дигитализација нуди озбиљне предности и нове могућности у нуклеарној инструментацији. У ово спадају ниже цене, употреба трансферних функција са бољим индексом шума, одсуство флукуација и дрифтова која се јављају код аналогних кола и побољшане карактеристике на већим брзинама бројања.

На пример, у дигиталном спектрометру након што је сигнал претворен у обликовани врх дигиталним филтером, ухваћени максимум врха је одмах доступан као дигитална вредност. Може се употребити као адреса у хистограмском процесу без потребе додавања додатног закашњења. Другим речима, вишеканални анализатор, у својој комплексној форми практично нестаје.

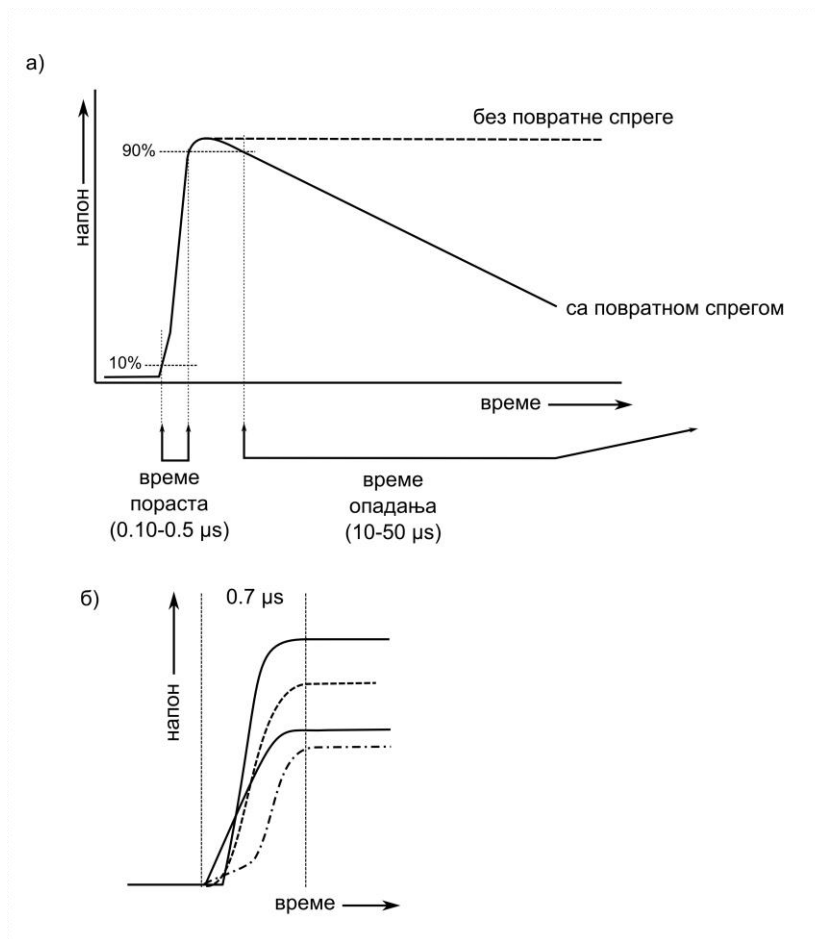
Данас, универзалне дигиталне јединице за обраду сигнала, које могу да препознају и процесуирају сигнале било са сигнал-ресет или континуалним-ресет претпојачавачима су комерцијално доступне. Оне обично укључују прилагодљиву структуру која омогућава аутоматску оптимизацију параметра система као функције улазне брзине бројања, нестабилност базне линије, фонски шум итд. У пракси ова погодност долази обично на цену додавања неколико eV на енергетску резолуцију. Кориснику је остављено да обезбеди перфектан спој претпојачавача са дигиталним процесором сигнала елиминишући паразитне токове и да изврши фина подешавања биаса, времена интеграције, појачања, границе дискриминатора и тако даље, ако мерења захтевају добру тачност.

2.2.1 Појачавачи са повратном спрегом и отпорником

Шематска поставка конвенционалног претпојачавача који сакупља наелектрисање и генерише сигнал приказан је на Слици 2.7. Наелектрисање из детектора се сакупља на кондензатору C_f ефективно интегрално детекторски сигнал наелектрисања. Како се наелектрисање прикупља, напон на кондензатору расте, производећи степенасту промену напона. Без даљег дејства, улазни сигнал на улазу би остао исти. Да би се омогућило пражњење кондензатора и припрема улаза за следећи сигнал, велики отпорник R_f , који се назива повратни отпорник, повезан је паралелно са кондензатором. Овај тип претпојачавача осим кондензатора има отпорник у повратној спрези (*resistive feedback amplifier*).

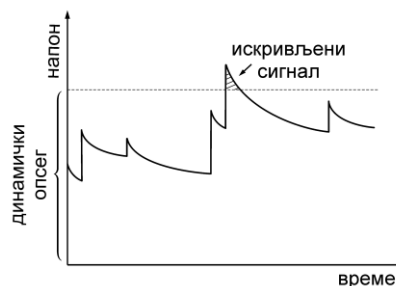


Слика 2.7 Шема претпојачавача са повратном спрегом и отпорником.



Слика 2.8 а) Облик сигнала који генерише претпојачавач са повратном спрегом. Сигнал је окарактерисан кратким временом пораста од 100-500ns и дугим временом опадања, типично 50-150 μs . б) типичан облик водеће ивице сигнала.

Излазни сигнал је карактерисан брзим временом пораста, 100 до 700 ns, што је одређено детекторском карактеристиком сакупљања наелектрисања, и дугим временом распада (неколико десетина микросекунди) што је одређено временском константом повратног кола, $T_f = R_f C_f$. Облик излазног сигнала је приказан на Слици 2.8.



Слика 2.9 Наседање сигнала на претпојачавачу са повратном спрегом.

Детаљан облик водеће ивице сигнала ће зависити од позиције интеракције унутар детектора. Средње време сакупљања зависи од величине детектора, око 300-400 ns је типично за германијумски детектор релативне ефикасности 50%. Ова информација је садржана у претпојачавачком сигналу у делу пораста сигнала. У идеалном случају, висина сигнала је пропорционална енергији гама зрака која се апсорбује у детектору.

Претпојачавач који има отпорник у повратној спрези има два главна ограничења:

-услед дугог времена опадања сигнала, осим у случају веома ниских брзина бројања, сукцесивни сигнали ће наредити један на други (Слика 2.9). Ово је неизбежно али нема значајне последице јер појачавач може обезбедити информацију о висини сигнала од сваке ивице пораста сигнала. Још је важније да на великим брзинама бројања средњи ниво DC напона на улазу ће расти до вредности до које је обезбеђена линеарност између наелектрисања и висине сигнала што се назива динамички опсег. Коначно, на великим брзинама бројања, DC напон ће расти до вредности која је близу напона напајања претпојачавача (24V), на којој ће транзистори унутар претпојачавача престати да раде. То ће закључати коло и неће бити сигнала на излазу. Ови услови су постигнути кад је производ детекторске струје и отпорника повратне спреге већи од динамичког опсега. Најмодернији спектрометарски претпојачавачи обезбеђују видљиву индикацију превелике брзине бројања у форми LED индикатора који је формиран у кућишту претпојачавача. Индикатор почиње да светли када је улазна брзина бројања 75% вредности од максималне.

- Друго ограничење претпојачавача са повратном спрегом са отпорником је да отпорник R_f има сопствени шум (Џонсонов шум) што може бити велики проблем са малим сигнаlima. Да би се минимизирао проблем слабих сигнала одабира се велика вредност отпорности R_f . Ово са друге стране имплицира велику константу распада односно дуго време опадања сигнала, што уводи проблем наседања сигнала. У принципу било би могуће редуковати константу распада смањујући C_f , али тиме би се утицало на линеарност претпојачавача. Међутим постоји област за редуковање вредности R_f , како би се на цену резолуције добиле боље перформансе на већим брзинама бројања.

Детаљна теорија дигиталне обраде сигнала која се уопште користи у нуклеарној електроници је дата у [14] док је специјална примена дигиталне електронике у гама спектроскопији дата у [21].

3 Технике мерења активности

Од открића радиоактивности до данас развијају се и усавршавају технике за квантификацију броја емитованог зрачења у јединици времена из неког радиоактивног извора. Принципијално постоје три различите технике мерења апсолутне активности: мерење масе узорка које подразумева претходна релативна мерења емитованог зрачења ради одређивања периода полураспада, бројање појединачних распада путем детекције емитованог зрачења са познатом ефикасношћу и коинцидентно бројање које се заснива на симултаног детекцији две честице емитоване при једном распаду. Примарне или апсолутне технике активности подразумевају мерења која се базирају на употреби само временског стандарда али не и других мерења активности. Реализацијом апсолутне технике мерења активности врши се еталонирање јединице Бекерел [5].

3.1 Јединица радиоактивности и дефиниција активности

За квантификацију радиоактивности у почетку нису коришћене јединице које се данас користе. У првим мерењима Марија Кири је одређивала “Радијантну активност” преко струје кроз јонизациону комору у којој је радиоактивна супстанца била нанешена на једну електроду. Струја која је била произведена α -честицама које се емитују из слоја површине 1cm^2 на који је нанешен уранијум оксид (U_3O_8 ; око 20 mg/cm^2) коришћена је као јединица. Ова јединица касније се називала “уранијумска јединица” која одговара струји од $5,78 \times 10^{-13}\text{ A}$.

Открића других радиоактивних језгара као и тенденција наглог развоја истраживања у области примењене радиоактивности у целом свету намеће потребу за дефинисање генерално прихваћеног радиоактивног стандарда. Када је произведена већа количина радијума која је постала доступна, Интернационална Комисија за Стандардизацију Радијума, основана 1910, дала је задатак Марији Кири да припреми примарни стандард радијума. Годину дана касније презентовала је свој стандард у форми $22,99\text{ mg}$ чистог радијум-хлорида запечаћеног у танку стаклену цев. У исто време комисија је увела “Кири” као јединицу за радон и дала дефиницију: Један Кири радона је количина радона у равнотежи са једним грамом радијума. Касније је ова јединица уопштена за све радиоактивне потомке радијума и било који радиоактивни елемент.

Међутим, за било који радиоактивни елемент неопходна је била нова дефиниција. Еквивалент 1 mg радијума је био дефинисан као она количина радиоактивног елемента за које је број дезинтеграције атома у једној секунди исти као за 1 mg радијума. Цифра од $3,7 \times 10^{10}$ α -честица s^{-1} је била предложена као еквивалент за 1 g радијума. Дефиниција јединице за радиоактивност је била везана за јединицу масе. Ово се одржало до 1950. године када је јединица Кири редефинисана: Кири је јединица радиоактивности било ког изотопа (више не елемента) у којем је број дезинтеграција у секунди $3,700 \times 10^{10}$. Од тада 1 Ci (Један Кири) није више идентичан са 1 g радијума

(разлика је око 1%), већ је то број дезинтеграција неког језга у јединици времена. За брзину трансформације или брзину дезинтеграције препоручен је термин “Активност”.

При успостављању Интернационалног Система Јединица (SI) 1960. године јединица активности више није могла бити Кири, јер у овом систему изведене јединице морају бити узајамно повезане правилима множења или дељења без примене било каквог мултипликационог фактора (као $3,700 \times 10^{10}$ у случају дефиниције јединице Кири) различитог од 1. Због практичних разлога јединица Кири се одржала ван SI система, а реципрочна секунда (s^{-1}) је постала јединица SI система активности којој је 1975. године дато име Бекерел.

Сходно редефинисању јединице активности уводи се и појам активности: *Активност одређене количине радиоактивних језгара у одређеном енергетском стању у датом временском тренутку је количник dN кроз dt , где је dN очекивана вредност броја спонтаних нуклеарних прелаза из тог енергетског стања у временском интервалу dt . $A = dN/dt$. [5].*

3.2 Метод мерењем масе

Веза између активности и масе одржала се за неке методе мерења активности дугоживећих радиоизотопа. Маса m је директно повезана са бројем атома N у узорку преко релације:

$$m = A_r \frac{N}{N_A}, \quad (3.2.1)$$

где је A_r релативна атомска маса и N_A је Авогадров број. У дефиницији активности диференцијални члан dN представља број радиоактивних језгара која се трансформишу у времену између t и $t+dt$, тј. $dN = N(t) - N(t+dt)$. Активност је пропорционална броју радиоактивних атома у узорку:

$$A = \lambda N, \quad (3.2.2)$$

где се константа пропорционалности λ назива константа распада, а једнака је $\ln 2 / T_{1/2}$, где је $T_{1/2}$ период полураспада. Комбинацијом једначина (3.2.1) и (3.2.2) добијамо:

$$A = \lambda m \frac{N_A}{A_r} \quad (3.2.3)$$

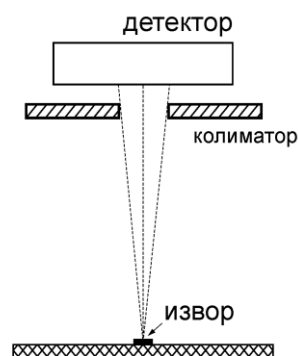
У овом примеру маса m је маса нераспаднутих језгара, која за дугоживеће радиоизотопе може бити врло блиска маси узорка. Због тога је метод одређивања активности из масе ограничен на дугоживеће природне радиоизотопе као што су ^{235}U , ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , или ^{40}K . Несигурности за N_A и A_r су занемарљиве, па је релативна несигурност активности детерминисана несигурношћу периода полураспада која износи око 0,1% за ^{235}U и ^{238}U , и око 0,5% за ^{232}Th и ^{40}K као и несигурношћу одређивања масе нераспаднутих језгара. Ако је материјал у хемијском једињењу, мора се размотрити и масени удео.

Алтернатива за одређивање активности мерењем масе је пребројавањем радиоактивних атома N и одређивање активности из (3.2.2). Две такве технике су акцелераторска масена спектрометрија и резонантна јонизациона спектрометрија која се све више користи за одређивање малих количина дугоживећих радиоизотопа у околини. За одређивање старости узорака (датирање) методом одређивања активности ^{14}C најпрецизнија техника је управо пребројавање активних језгара техником акцелераторске масене спектрометрије [22].

Метод мерењем масе, тј. пребројавањем активних језгара не може се сматрати потпуно апсолутном методом. Било да се активност добија из масе m или броја радиоактивних атома N , потребно је познавати период полураспада, што подразумева претходна релативна мерења са употребом временског стандарда. Дакле мора се одредити присутност нечистоћа, што подразумева спектроскопска мерења. Међутим, сва мерења која претходе не морају нужно подразумевати калибрацију ефикасности, јер за одређивање периода полураспада треба располагати информацијом о брзини опадања активности али не и о апсолутној активности. Међутим, за дугоживеће радиоизотопе који су поменути, период полураспада се баш добија из (3.2.2) мерењем активности A и N , па се ове методе строго говорећи ипак сврставају у релативне (индиректне) методе за мерење активности.

3.3 Методе 100% ефикасности

Методе високе ефикасности подразумевају детекцију свих распада у датом извору или квантификацију емитованих честица у одређени просторни угао за коначни интервал времена. Типични детектори који се користе за оваква мерења су пропорционални бројачи, течни сцинтилатори, гасни бројачи, детектори у облику јаме и сендвич конфигурације без детекторског прозора [4]. Принципијална шема експерименталне поставке за бројање на одређеном просторном углу је приказана на Слици 3.1.

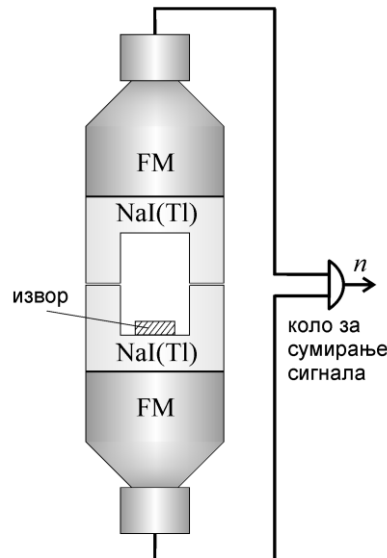


Слика 3.1. Принципијална шема експерименталне поставке за мерење активности на дефинисаном просторном углу. Положај активног дела извора и колиматора мора бити прецизно измерен.

Бројање у 4π или 2π геометрији изводи се за β^- и γ -емитере али и за α -емитере за које се компензује ефекат апсорпције детектовањем γ -фотона који прате распад. На Слици 3.2 је приказана варијанта 4π геометрије која је реализована помоћу два сцинтилациона детектора у облику јаме који су повезани на коло за сумирање сигнала. Ова техника је погодна за изотопе који приликом распада емитују више фотона јер и поред велике запремине кристала ефикасност не може бити стопроцентна. Због тога потребно је израчунати ефикасност детекције фотона одговарајућих енергија, што у случају једноставне геометрије доноси врло малу мерну несигурност. Ефикасност која се постиже је већа од 95%.

Радиоактивни изотопи који се налазе у гасовитој фази мере се у пропорционалним бројачима при чему се они мешају са бројачким гасом. Уопште је наелектрисане честице могуће детектовати са скоро 100% ефикасношћу, али у већини случајева потребно је размотрити и квантификовати ефекат самоапсорпције и ефекат зидова. У том смислу β^- -емитери фаворизују 4π геометрију јер у 2π геометрији и при одређеном просторном углу долази до повратног расејања или расејања на дијафрагми

која дефинише просторни угао. Поправке на ефекте апсорпције и расејања врше се помоћу посебних експеримената, теоретским израчунавањима и Monte Carlo симулацијама.



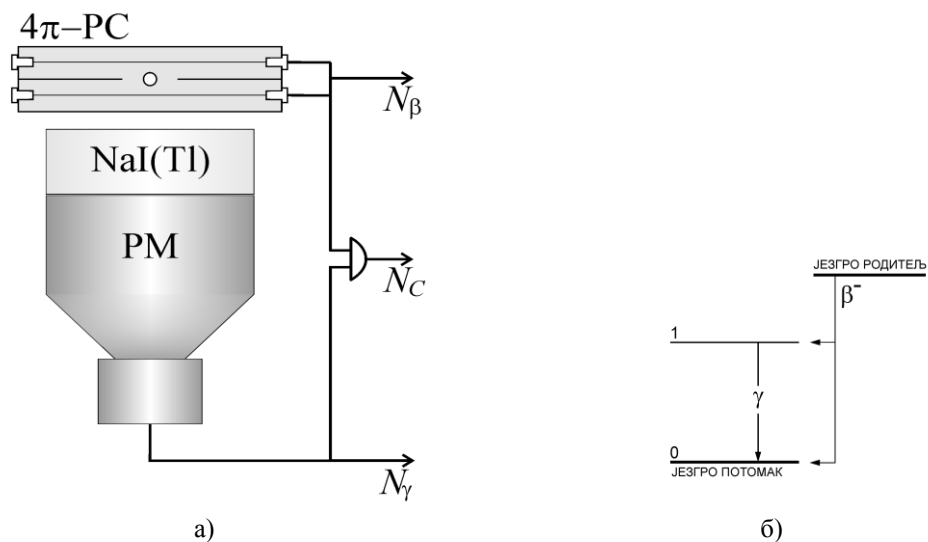
Слика 3.2 Принципјална шема експерименталне поставке за мерење активности γ -емитера у 4π геометрији. Извор се налази унутар детектора.

Бројање на одређеном просторном углу где се подразумева изотропна расподела емитованих честица може бити врло прецизна техника мерења апсолутне активности. Бројање α -честица једна је од најтачнијих метода за примарно одређивање активности α -емитера са релативном грешком која за велики број изотопа износи око 0.1%. Оваква мерења захтевају изузетну контролу геометријских услова где је за распрострањене узорке ипак потребно извршити одређене корекције на расподелу радиоактивности у самом узорку и ефекте самоапсорпције.

3.4 Коинцидентна техника мерења активности

Проблем одређивања апсолутне активности израчунавањем ефикасности детекције емитованих честица превазиђен је увођењем коинцидентне технике. Прве експерименте где се коинцидентни догађаји користе за одређивање ефикасности детекције извели су Geiger и Werner [23]. У наредном периоду након развоја електронике за регистровање коинцидентних догађаја следи све већа примена коинцидентне технике у разним областима нуклеарне физике [24]. Von Baeyer 1935. [25] је први применио коинцидентни метод за одређивање активности извора на основу симултане емисије два радиоактивна зрака која се емитују приликом трансформације језгара. Детаљан преглед раног развоја коинцидентне технике дат је у [26]. Данас су принципи мерења коинцидентном техником у нуклеарној физици добро дефинисани (видети на пример [27]). С обзиром на могућност примене на велики број радиоизотопа и тачност методе, коинцидентна техника је прихваћена као стандард за мерење апсолутне активности. Коинцидентна техника се користи и усавршава у практично свим лабораторијама где се производе стандардни извор или постоји потреба за стандардизацијом и употребом калибрационих радиоактивних извора високе тачности.

Стандардна или конвенционална конфигурација коинцидентне технике за мерење апсолутне активности подразумева употребу два детектора од којих је у идеалном случају сваки осетљив само на један тип зрачења [2]. Детектори су повезани на коинцидентно коло чији је задатак да региструје догађај симултане детекције две честице различитог типа. У идеалном случају, детектор наелектрисаних честица опкољава цео извор, при чему се ефекат угаоних корелација честица различитог типа поништава. За детекцију наелектрисаних честица може служити гасни бројач или течни сцинтилатор. Детектор за гама зрачење може бити полупроводнички или сцинтилациони са заштитом како не би детектовао наелектрисане честице. Принципијална шема експерименталне поставке где се за детекцију наелектрисаних честица користи пропорционални бројач, а за детекцију гама зрачења сцинтилациони, приказана је на Слици 3.3.а.



Слика 3.3 а) Експериментална поставка коинцидентне технике са два детектора. За детекцију наелектрисаних честица користи се пропорционални бројач у 4π геометрији, а за детектовање γ-зрачења сцинтилациони NaI детектор. **б)** Проста шема распада неког радиоизотопа која због постојања вероватноће емисије γ-зрачења при распаду омогућава примену коинцидентне технике.

За просту шему распада приказаној на Слици 3.3.б, у којој је β-распад праћен могућом емисијом једног фотона, број регистрованих догађаја у јединици времена у каналу који одговара β-детектору је:

$$N_{\beta} = A\varepsilon_{\beta}, \quad (3.4.1)$$

где је A активност узорка и ε_{β} ефикасност детекције бета-честица.

У гама детектору, број регистрованих догађаја у јединици времена је:

$$N_{\gamma} = Ap_{\gamma}\varepsilon_{\gamma}, \quad (3.4.2)$$

где је p_{γ} вероватноћа за емисију гама-фотона, а ε_{γ} вероватноћа за детекцију гама фотона (потпуна или делимична апсорпција).

У идеалном случају, број коинцидентних догађаја које региструје одговарајуће коло је:

$$N_c = A p_\gamma \varepsilon_\gamma \varepsilon_\beta, \quad (3.4.3)$$

при чему уколико је регистрован коинцидентни догађај, не долази до губитка одброја у регуларним каналима.

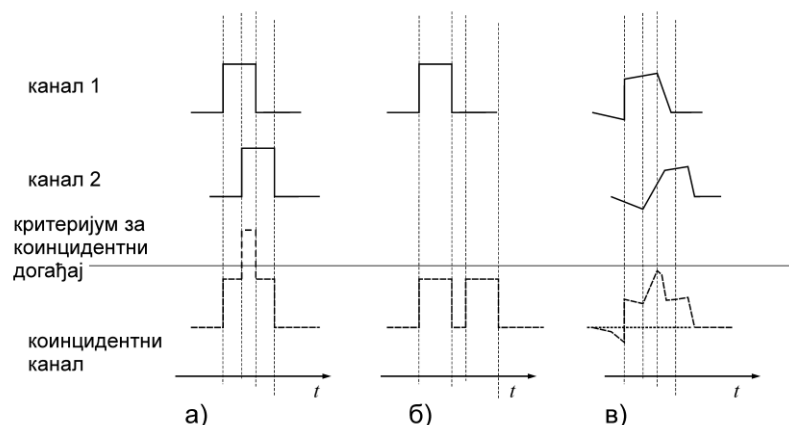
Из једначина (3.4.1), (3.4.2) и (3.4.3) могу се елиминисати непознате ефикасности чиме се добија формула за одређивање активности

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}. \quad (3.4.4)$$

Фундаментална важност релације (3.4.4) је принципијална могућност њене примене за апсолутно мерење активности β -емитера чији распад може бити праћен емисијом γ -или X-фотонима, без познавања ефикасности детектора. Метод је применљив и на α -емитере чији распад може бити праћен емисијом γ - или X-фотонима [28].

Формула (3.4.4) и принцип коинцидентног мерења ипак има извесна ограничења у смислу експерименталних услова и шеме распада. При реализацији експеримента, детектори не могу бити 100% осетљиви само на један тип зрачења. Могућност комптоновог расејања може допринети лажном коинцидентном догађају. Коинцидентно коло не може се понашати идеално тако да изврстан број коинцидентних догађаја не одговара стварним коинциденцијама [29].

На Слици 3.4 је приказан случај идеалног и неидеалног понашања коинцидентног кола. У идеалном случају сигнали који пристижу на коинцидентно коло имају правоугаони облик и исту дужину трајања τ . Уколико су детектори временски усаглашени, сигнали у првом и другом каналу који се преклапају унутар времена резолуције коинцидентног кола 2τ биће забележени као коинцидентни догађаји. Ако детектори нису временски усаглашени, тј. постоји временска разлика која је већа од τ (време трајања сигнала) између сигнала који су се догодили у истом тренутку, коинцидентни догађај неће бити регистрован. Неправилан облик сигнала уводи додатни проблем где у зависности од начина преклапања може доћи до губитка у одброју коинцидентних догађаја.



Слика 3.4 Принципијални проблеми коинцидентног бројања. а) Идеални случај где сигнали који се доводе на коинцидентно коло имају правоугаони облик, и преклапање унутар времена резолуције 2τ увек даје одброј у коинцидентном каналу. б) сигнали имају идеални облик, али временски колажи нису усаглашени, тј. постоји извесно кашњење сигнала у другом каналу те се коинцидентни догађај не региструје. в) сигнали нису идеалног облика што узрокује да сумарни сигнал не превазилази критеријум за регистровање коинцидентног догађаја.

Уколико се активност мери на већим брзинама бројања неопходне су корекције на случајне коинциденције [30]. На пример, ако се десе два распада унутар времена τ , постоји могућност да се од једног језгра детектује наелектрисана честица, а од другог γ -фотон. У том случају регистрована је случајна коинциденција, па се број регистрованих коинциденција мора кориговати на случајне догађаје.

С обзиром да је правац емисије γ -фотона спрегнут са правцем емисије наелектрисане честице (ефекат угаоних корелација) уколико β - или α -бројач не опкољава цео извор, потребне су рачунске корекције. У пракси, ефекат угаоних корелација се поништава постављањем извора унутар бројача наелектрисаних честица (4 π -геометрија). Међутим, уколико апсорпција унутар извора није изотропна, ефекат угаоних корелација може утицати на резултате мерења.

Формула (3.4.4) није применљива за распрострањене узорке јер ефикасност зависи од положаја самог емитера унутар извора. Само у специјалном случају када је испуњен услов да је производ средњих ефикасности β и γ канала једнак средњој вредности производа ефикасности β и γ канала [29]:

$$\bar{\varepsilon}_{\beta} \cdot \bar{\varepsilon}_{\gamma} = \overline{\varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_{\gamma}}, \quad (3.4.5)$$

Формула (3.4.4) је егзактна. Следи доказ.

Ако су ефикасности различите, одброј у β -каналу је

$$N_{\beta} = a \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\beta i}, \quad (3.4.6)$$

где је a активност елементарног извора унутар распрострањеног узорка који је издељен на n -извора; $\varepsilon_{\beta i}$ је ефикасност за i -ти извор. Слично, за гама канал важи:

$$N_{\gamma} = a p_{\gamma} \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\gamma i} \quad (3.4.7)$$

где је $\varepsilon_{\gamma i}$ ефикасност за i -ти извор. Одброј у коинцидентном каналу је:

$$N_c = a p_{\gamma} \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\beta i} \varepsilon_{\gamma i}. \quad (3.4.8)$$

Формуле (3.4.6), (3.4.7) и (3.4.8) могу се написати и на другачији начин ако се узму у обзир дефиниције средњих вредности:

$$\bar{\varepsilon}_{\beta} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\beta i}, \quad \bar{\varepsilon}_{\gamma} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\gamma i} \quad \text{и} \quad \overline{\varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_{\gamma}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\beta i} \cdot \varepsilon_{\gamma i}, \quad (3.4.9)$$

при чему је укупна активност извора

$$A = a \cdot n. \quad (3.4.10)$$

Уколико је задовољен услов (3.4.5), јасно је да се из (3.4.6), (3.4.7) и (3.4.8) добија (3.4.4). Међутим, у пракси је услов (3.4.5) врло ретко задовољен, па је за мерење

активности коинцидентном техником потребно располагати изворима веома малих димензија, тј. у тачкастој геометрији.

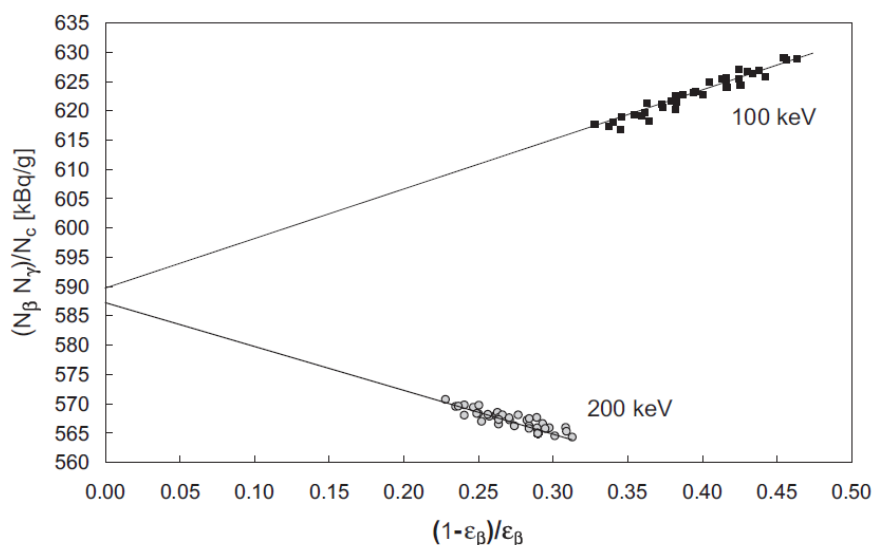
За радиоизотопе са сложеном шемом распада (могућност емисије више гама кваната и емисија конверзионих електрона), коинцидентни метод се практично своди на метод 100% ефикасности. У овом случају не примењује се директно Формула (3.4.4). Претпоставља се да је постигнута ефикасност наелектрисаних честица 100%, али због доњег нивоа дискриминатора (LLD) није могуће детектовати све наелектрисане честице. Израз који се узима као независна променљива и која зависи од ефикасности наелектрисаних честица је дата преко

$$N_{\gamma} / N_c - 1. \quad (3.4.11)$$

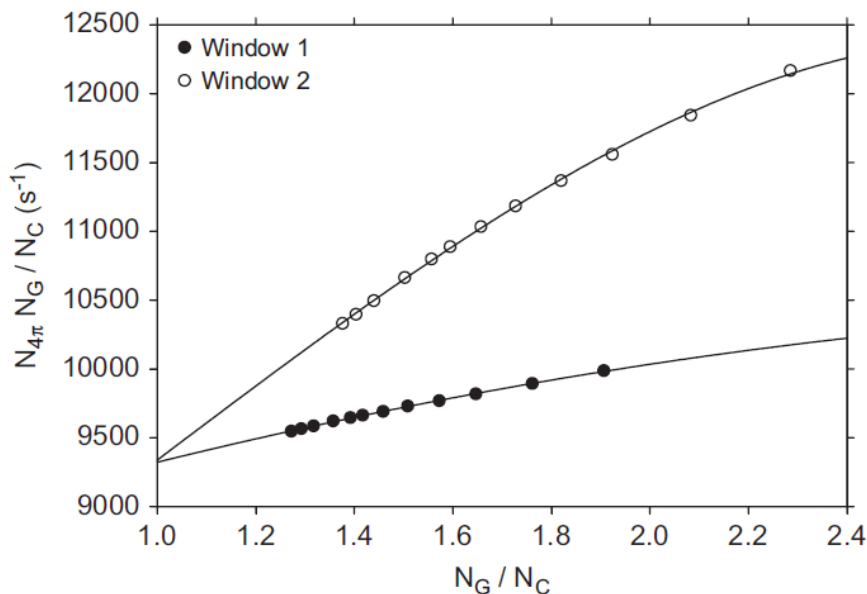
За просту шему распада као на Слици 3.3.б Формула (3.4.11) изражена преко ефикасности има облик

$$1 / \varepsilon_{\beta} - 1. \quad (3.4.12)$$

Мењање ефикасности наелектрисаних честица ε_{β} се практично врши уметањем апсорбера различитих дебљина или мењањем нивоа дискриминатора у β -каналу. За различите вредности доњег нивоа дискриминатора или дебљине апсорбера мери се одброј у каналу гама фотона, у каналу наелектрисаних честица и коинцидентном каналу. За ове податке, црта се график активности која се рачуна помоћу (3.4.4) у зависности од (3.4.11). Екстраполацијом фита који је у идеалном случају линеаран, на вредност где је $\varepsilon_{\beta} = 1$, добија се активност узорка. Пример експерименталних резултата са добром линеарношћу је приказан на Слици 3.5, док је на Слици 3.6. приказан пример где експериментални резултати не могу бити фитовани линеарном функцијом.



Слика 3.5 Резултати мерења активности извора ^{152}Eu према [7]. Експериментални подаци су добијени мењањем ефикасности помоћу апсорбера за два различита нивоа дискриминатора β -канала.



Слика 3.6 Резултати мерења активности извора ^{133}Ba према [31]. Експериментални подаци су добијени мењањем ефикасности помоћу апсорбера за два различита нивоа дискриминатора γ -канала.

Сложеност концидентне технике која подразумева употребу два детектора огледа се у експерименталним условима које је потребно обезбедити ради постизања што боље тачности. У случају сложених радиоизотопа, потребно је обезбедити што бољу линеарност функције $A(N_\gamma / N_c - 1)$, а затим вршити екстраполацију. Боља линеарност функције може се постићи подешавањем области енергије која се може детектовати у γ -каналу. Поред свих проблема око подешавања електричних кола и детекторских система, ипак једноставност технике лежи у чињеници да се метод не заснива на обради спектралних података, већ само на бројању одговарајућих догађаја у β , γ и коинцидентном каналу.

Међутим, прилагођавање технике с обзиром на сложеност шеме распада не огледа се само у броју путања којим се врши деексцитација потомка а треба их детаљно разматрати, енергији емитованих фотона и интерној конверзији, већ и евентуалном постојању метастабилних стања. Уколико су у шеми распада присутна метастабилна стања тачни резултати добијају се само уколико је енергетски опсег за детекцију γ -зрачења правилно подешен и уколико се познају вероватноће за деексцитацију у одређене нивое [32].

Појавом брзих дигиталних система за обраду података и рачунарских система са великим меморијским капацитетом, коинцидентна техника се може модификовати. Уколико се сними временска дистрибуција сигнала β и γ -канала, нема потребе за увођењем коинцидентног кола. Подаци се складиште у меморију рачунара, а затим се према произвољно одређеном времену резолуције класификују коинцидентни догађаји. Park и сарадници [33] су развили ову технику и упоређивали резултате конвенцијалне и дигиталне технике која подразумева снимање временске дистрибуције сигнала (дводимензионална коинцидентна техника). Њихова мерења су показала да се резултати добијени конвенцијалном и коинцидентном техником разликују за мање од 0.5%. Једино ограничење које се јавља у дигиталној техници која подразумева снимање временске расподеле сигнала јесте брзина бројања. Развој ове технике у адекватну замену за конвенционалну коинцидентну технику још је у току [34].

Коинцидентна техника са два детектора у било којој варијанти иако спада у најтачније методе захтева доста лабораторијске праксе. За сложене радиоизотопе заснива се на екстраполацији података која подразумева 100% ефикасност детектора за β -честице.

Без обзира на све тешкоће које се јављају при реализацији коинцидентне технике на два детектора постигнуте тачности су врло често испод 1% чиме се ова метода сврстава у најтачније методе за мерење апсолутне активности. Извор ^{60}Co у тачкастој геометрији се мери са грешком од 0.1%, а усаглашеност методе између различитих лабораторија је око 0.2% [35]. Активност извора ^{133}Ba мерена коинцидентном техником где је бројач наелектрисаних честица течни сцинтилатор добија се са мерном несигурношћу од 0.244% при чему је усаглашеност резултата са другим лабораторијама у оквиру 0.5% [31]. Активност тачкастих извора ^{152}Eu одређеном коинцидентном техником добија се са мерном несигурношћу са мањом од 0.3% [7, 36]. Усаглашеност резултата различитих варијанти коинцидентне технике и различитих лабораторија је око 0.5% [8].

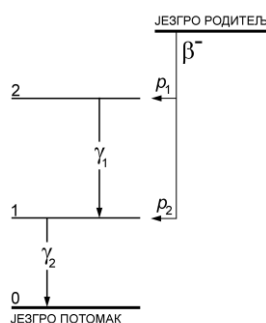
Принцип коинцидентног мерења за радиоизотопе са једноставном шемом распада врло је моћан јер не захтева познавање ефикасности детекције, а постигнуте тачности обезбеђују квалитетно еталонирање примарних стандарда. Извори калибрисани овом техником често се користе као примарни стандарди за производњу секундарних стандарда као и за калибрацију γ -спектрометра, Черенковљевих детектора итд. Међутим мерне несигурности коинцидентне методе са два детектора нису потпуно схваћене због нелинеарности које се јављају у екстраполацијама и неиделаних понашања детектора [37]. Употреба течних сцинтилатора за детектовање наелектрисаних честица у коинцидентној техници наилази на проблем јер течни сцинтилатор могу активирати комптонски расејани фотони са нижом енергијом. Као резултат добијају се већа неслагања међу резултатима добијеним коинцидентном техником када се користе течни сцинтилатори и гасни детектори наелектрисаних честица [7]. Детаљнија анализа о карактеристикама течних сцинтилатора за мерење апсолутне активности коинцидентном техником и калибрацији течних сцинтилатора дата је у [38].

Веома корисна чињеница је да коинцидентни принцип мерења може бити реализован и на једном детектору уколико се радиоактивни изотоп распада путем емисије фотона у каскади [2, 39, 40, 41, 42, 43]. У смислу експерименталне поставке техника на једном детектору је много једноставнија јер не захтева употребу два детектора и коинцидентног кола.

4 Метода сумарног врха или фотон-фотон коинцидентна техника на једном спектрометру

Ако се радиоизотоп распада уз могућност емисије два фотона у каскади, у γ -спектру може бити присутан такозвани сумарни врх који одговара потпуној апсорпцији ова два фотона, а налази се на енергији једнакој збиру енергија појединачних фотона. Како је информација о коинцидентним догађајима управо садржана у сумарном врху, нема потребе за коришћењем коинцидентног кола, чиме је експериментална поставка знатно поједностављена. У практичном смислу, коинцидентни метод са једним детектором се може врло лако реализовати у лабораторији за мерење ниских радиоактивности која је опремљена гама спектрометром.

Принцип методе апсолутног мерења активности помоћу једног спектрометра заснива се уствари на ефекту правога коинцидентног сумирања [44, 45]. Метод су први реализовали Brinkman и сарадници [39] при чему су мерили активност радиоизотопа са једноставном шемом распада ^{60}Co , ^{46}Sr , ^{22}Na и ^{18}F на сцинтилационом NaI спектрометру.



Слика 4.1 Произвольна шема распада при чему емисија β -честице може бити праћена емисијом два фотона у каскади.

У циљу дефинисања методе према оригиналном раду Brinkman и сарадника размотрићемо γ -спектар радиоизотопа чија је шема распада приказана на Слици 4.1. Према приказаној шеми нема директног распада у основно стање потомка, тако да је распад праћен емисијом једног фотона или два фотона у каскади. Претпостављамо да су средња времена живота побуђених стања потомка много мања од времена резолуције спектрометра и периода полураспада. Ради једноставности, уводимо и претпоставку да нема интерне конверзије. Са аспекта експерименталне поставке, разматрамо случај 2π или 4π геометрије при чему се ефекат угаоних корелација поништава. При описаним условима, брзина бројања у врху пуне енергије γ_1 фотона је

$$N_1 = A\varepsilon_1 p_1 (1 - \eta_2), \quad (4.1)$$

где је A активност узорка, ε_1 ефикасност врха пуне енергије за γ_1 фотон, η_2 је тотална ефикасност за други фотон (γ_2) емитован у каскади и p_1 је вероватноћа за распад путем каскадне емисије фотона.

Брзина бројања у врху пуне енергије који одговара γ_2 фотону је:

$$N_2 = A\varepsilon_2(p_1(1-\eta_1) + p_2) \quad (4.2)$$

где је ε_2 ефикасност врха пуне енергије за γ_2 фотон, η_1 тотална ефикасност за γ_1 фотон; p_2 је вероватноћа за распад путем емисије једног фотона.

Брзина бројања у сумарном врху који се јавља на енергији једнакој збиру енергија γ_1 и γ_2 фотона је

$$N_\Sigma = Ap_1\varepsilon_1\varepsilon_2. \quad (4.3)$$

Тотална брзина бројања је

$$N_T = A(p_1(\eta_1 + \eta_2 - \eta_1\eta_2) + p_2\eta_2). \quad (4.4)$$

Ако према шеми приказаној на Слици 4.1 претпоставимо да нема директног распада у основно стање потомка, распад у прво или друго ексцитовано стање потомка је сигуран догађај:

$$p_1 + p_2 = 1 \quad (4.5)$$

Сада из једначина (4.1), (4.2), (4.3) и (4.4) помоћу услова (4.5), можемо елиминисати ефикасности врхова пуне енергије и тоталне ефикасности, при чему се добија формула за мерење активности из спектралних података

$$A = N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma}. \quad (4.6)$$

За разлику од коинцидентне технике са два детектора, у формули (4.6) фигурише тотална брзина бројања N_T , јер регистровање коинцидентног догађаја подразумева губитак у регуларним врховима, што није случај код коинцидентне технике са два детектора. Тотална брзина бројања је број детектованих распада у јединици времена. С обзиром на то, однос производа брзина бројања у врховима пуне енергије према брзини бројања у коинцидентном врху претставља број не-детектованих распада у јединици времена. Збир броја детектованих и недетектованих распада даје укупну активност.

При извођењу формуле (4.6) нису узете у обзир случајне коинциденције (допринос у сумарном врху и губици у врховима пуне енергије и сумарном врху) и ефекти угаоних корелација. Поправке на случајне коинциденције које се манифестују наседањем сигнала, могу се занемарити уколико је средње време између два узастопна догађаја у детектору (детектована каскада или појединачни фотон) много веће од времена резолуције спектрометра. Такође уколико је тачкасти извор стављен на сам кристал детектора (2 π -геометрија) ефекти угаоних корелација се поништавају и формула (4.6) је директно применљива. Експериментална процедура подразумева сакупљање спектра са довољном статистиком и обраду спектралне слике. Тачност методе може бити лимитирана због проблема приликом обраде спектралних података, тј. постојање комптоновог континуума, неиделаног облика врхова (не гаусовски облик) на већим брзинама бројања и могућих интерференција врхова у спектру. Такође

присуство електронског шума захтева постављање доњег нивоа дискриминатора на одређену вредност што имплицира непознавање укупног броја детектованих догађаја. Као једна могућност за решавање овог проблема је екстраполација спектралних података до нулте енергије [46]. Са друге стране, доњи ниво дискриминатора резултира да се комптонски расејани фотони који су у детектору депоновали мању енергију од постављеног нивоа LLD не детектују. У том смислу тотална ефикасност је функција и доњег нивоа дискриминатора.

Спектрални подаци добијени помоћу германијумског детектора у смислу резолуције, обезбеђују најквалитетније услове за реализацију коинцидентне технике на једном детектору. Са друге стране, на коаксијалном детектору не постаји начин да се потпуно елиминишу ефекти угаоних корелација експерименталним путем јер се 2π геометрија не може 100% реализовати (почетак активног дела германијума је неколико милиметра удаљен од спољашњег дела капе детектора). Једино детектор у облику јаме (Слика 2.5) може да обезбеди услове 4π геометрије где рачун корекције на угаоне корелације није потребан. У свим преосталим геометријским поставкама рачун корекције на ефективне угаоне корелације ради избегавања систематске грешке и обезбеђивања веће тачности је неопходан.

Метод мерења апсолутне активности помоћу једног детектора за различите радиоизотопе демонстрирали су неколико аутора. При томе су користили различите поступке за корекцију података на случајне коинциденције, угаоне корелације и губитак одброја услед постојања доњег нивоа дискриминатора.

Kim et al. [46] развили су метод за корекцију доприноса случајних коинциденција у сумарном врху и губитке у врховима услед случајних коинциденција који подразумева снимање више спектра са различитим временом резолуције. Експерименти су рађени на коаксијалном германијумском детектору при чему су за обраду сигнала користили аналогну електронику. Поправку на ефекат угаоних корелација рачунали су помоћу технике Monte Carlo и применом закона апсорпције γ -зрачења [47]. Метод су демонстрирали на извору ^{60}Co . Веома важна чињеница која следи из овог рада је да се поправке на ефективне угаоне корелације где су ефикасности рачунате техником Monte Carlo и законом апсорпције гама зрачења веома мало разликују (испод 1%) у случају каскадних фотона извора ^{60}Co . Грешке у рачуну ефикасности неопходне за рачун поправке на ефективне угаоне корелације се у великој мери потиру, што није случај када се активност рачуна релативном методом на основу обсервације једног врха у спектру и рачуном ефикасности врха пуне енергије техником Monte Carlo [48], а поготово законом апсорпције гама зрачења.

Формула коју су користили Kim и сарадници [46] за мерење активности је

$$A(\tau) = \left(N_T(\tau) + \frac{N_1(\tau)N_2(\tau)}{N_\Sigma(\tau)} \right) w_{eff}, \quad (4.7)$$

где је N_T тотална брзина бројања, N_1 и N_2 су брзине бројања на енергији 1173.2 keV и 1332.5 keV, респективно, а N_Σ је брзина бројања у сумарном врху на енергији 2505.7 keV. Ознака τ у загради сугерише да су спектрални подаци сакупљани при одређеном времену резолуције спектрометра; w_{eff} је поправка на ефективне угаоне корелације. Спектрални подаци (тотална брзина бројања, брзине бројања у врховима пуне енергије и сумарном врху) сакупљани за различито време резолуције τ обезбеђују скуп вредности $\{\tau_i, A_i(\tau_i)\}$. Екстраполацијом линеарног фита активности у функцији времена резолуције на вредност $\tau = 0$ добијена је активност која је коригована на случајне коинциденције јер у теоријском смислу за нулто време резолуције нема могућности за

наседање сигнала. Спектри су снимани на разним растојањима од капе детектора и разним временима резолуције. Корекција на постојање доњег нивоа дискриминатора је рађена обсервацијом спектра са различитим нивоом доњег нивоа дискриминатора и екстраполацијом података на нулту вредност доњег нивоа дискриминатора. Мерна несигурност методе је процењена на 2% при брзинама бројања не већим од 15 kcps. На већим брзинама бројања квалитет спектра је знатно опао па је податке било немогуће анализирати стандардним аналогним мултиканалним анализатором.

Коинцидентна техника мерења активности подразумева рачун корекције на распрострањеност узорка, а у случају једног детектора потребне су и корекције на угаоне корелације. Рачун поправке на распрострањеност узорка и ефективне угаоне корелације за изворе ^{60}Co рачунали су Vidmar et al. [50] Monte Carlo техником. Мерења активности и рачун поправке на цилиндричним узорцима дали су концентрације активности које се слажу у оквиру 1% са другим методама. Ефекти случајних коинциденција су били занемарљиви. Грешка у одређивању активности има тенденцију раста уколико се висина узорка повећава, а не узимају се у обзир корекције на угаоне корелације и распрострањеност.

Мерење активности коинцидентном техником на n-планарном германијумском детектору је спроведена и за изотоп ^{57}Co од стране Iwahara et al. [51] где су коришћене праве коинциденције X- и γ -фотона. Пошто су сумарни врхови помоћу којих се мерила активност настали путем x- γ коинциденција за које не постоје угаоне корелације, интерпретација експерименталних података је једноставнија. Ефекат заступљености случајних догађаја у сумарном врху је елиминисан експерименталним путем тако што су снимани узорци са истим концентрацијама активности различитих маса. Снимањем зависности концентрације активности од брзине бројања за узорке различитих маса, те екстраполацијом на нулту брзину бројања, добијена је концентрација активности коригована на ефекат случајних коинциденција. Резултати су били у сагласности у оквиру 1.4 % са другим методама.

Поправку на случајне коинциденције су такође демонстрирали Carogni et al. [52] мерећи активност извора ^{125}I фотон-фотон коинцидентном техником на NaI детектору. Корекције на случајне коинциденције су извршене техником екстраполације активности на нулу. Како се мерење заснива на детекцији нискоенергијског фотона од 35.5 keV проблем са одређивањем површине врхова је минимизиран јер практично Комптоновог континуума нема. За овај изотоп метод достиже тачност око 0.13% али уз коришћење података из шеме распада.

Сви радиоизотопи чија се активност мери коинцидентном методом помоћу једног детектора имају релативно једноставну шему распада, а кључни податак је један коинцидентни (сумарни) врх. Међутим, теоријски гледано, примена једног спектрометра за одређивање апсолутне активности сложенијих γ -емитера могућа је решавањем једначина бројања за регуларне и сумарне врхове по непознатој активности [53]. Спектрални подаци и једначине бројања за врхове у спектру и тоталну брзину бројања могу се посматрати као систем једначина нелинеарних једначина по ефикасностима и тоталним ефикасностима које уз извесне апроксимације могу бити решене нумеричким поступком по непознатој активности. Novković et al. [54] унапређују формализам [53] разматрајући све могуће путање при распаду и исходе у детектору при чему су развили метод за мерење активности сложених гама емитера само на основу спектралних података. Разматрањем свих путања и могућих исхода и обрадом спектралне слике добијене помоћу германијумског детектора, мерили су активност тачкастог извора ^{57}Co [54]. Уз квалитетну обраду спектралних података мерена активност се слагала са активностима декларисаним од стране произвођача извора у оквиру 1%.

За извор ^{133}Ba , Novković et al. [55, 56] су успешно применили развијени формализам и поступак за добијање једначина бројања за све врхове у спектру. У једначинама за брзине бројања фигуришу непознате ефикасности врха пуне енергије, тоталне ефикасности и активност. Како је број једначина мањи од непознатих величина (Ефикасности и активност) уведене су одређене апроксимације. Претпостављањем облика *peak-to-total* функције у зависности од енергије гама зрачења као

$$\varepsilon(E) / \eta(E) = 1 + kE \quad (4.8)$$

где је $\varepsilon(E)$ ефикасност врха пуне енергије на енергији E , $\eta(E)$ је тотална ефикасност на истој енергији и параметар k је непознати параметар, број једначина је изједначен са бројем непознатих величина. Нумеричким поступком решен је систем нелинеарних једначина чија су решења: ефикасности врха пуне енергије кориговане на ефекат правога коинцидентног сумирања, параметар k који дефинише *peak-to-total* функцију и активност извора. Описаном процедуром Novković et al. су постигли мерну несигурност одређивања активности тачкастог извора ^{133}Ba око 1%, али при брзинама бројања где су корекције на случајне коинциденције занемарљиве [55, 56]. Поправке на угаоне корелације нису биле разматране, јер за извор ^{133}Ba ефекат је практично занемарљив (<0,3 %) када се тачкасти извор налази на капи детектора.

5 Случајне коинциденције у спектралним подацима γ -емитера

При већим брзинама бројања могу се јавити проблеми са губитком резолуције, нестабилности центроида врха пуне енергије, знатним продужењем времена мерења, лошим односом површине врхова према континууму, одступањима од Поасонове статистике и нетачним обрачунавањем мртвог времена, у екстремним случајевима може доћи и до гашења бројачког система услед сатурације и превеликог одброја [57, 58]. Уколико се постигну услови при којима је могуће сакупити спектралне податке, интерпретација података на великим брзинама бројања је отежана јер врхови у спектру немају облик гаусијана и пате од губитка и доприноса од случајних коинциденција.

У циљу превазилажења или бар минимизације поменутих проблема при већим брзинама бројања, произвођачи пратеће електронике уводе различита софтверска и хардверска решења [59]. Хардверска решења подразумевају израду електричних кола која могу процесуирати велики број пристижућих сигнала у јединици времена без знатног губитка енергетске резолуције система. Као добро решење уводи се што ранија дигитализација улазних сигнала и могућност укључивања кола за одбацивање наседајућих сигнала (*pile-up rejection*) [21]. Смањењем ефективног времена резолуције добијају се боље перформансе при већим брзинама бројања. Међутим фундаментално ограничење код германијумских детектора је време потребно да се наелектрисање које произведе упадно зрачење сакупи на електродама, па време резолуције не може бити краће од овог времена [13]. Један од показатеља добротe спектроскопског система и јесте однос брзине бројања према резолуцији. Дигитални системи имају предност када је у питању оптимизација спектроскопског система за услове мерења, јер пружају могућност софтверске контроле за одабирање облика сигнала појачавача (време пораста и ширина платоа) чиме се могу постићи оптималне перформансе у смислу резолуције и брзине бројања [60]. Комерцијално доступни дигитални спектроскопски системи разликују се у перформансама па је упоређивање њихових карактеристика при различитим условима мерења корисна информација при употреби дигиталних спектроскопских јединица [17, 19].

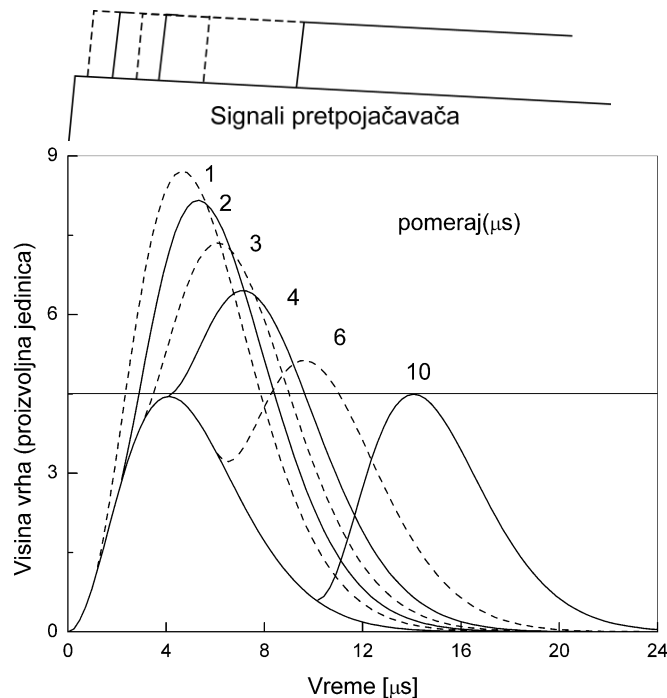
И поред ограничења које произвођач поставља на брзину бројања за спектралне податке са одговарајућом мерном несигурношћу, постоји неколико начина да се подаци коригују и практично прошири опсег употребљивости спектралног уређаја. Приликом мерења активности, где су релевантни подаци брзине бројања у одговарајућим врховима пуне апсорпције, претходни аутори су корекцију на губитке и доприносе у врховима чинили обрадом више спектралних података који одговарају различитим концентрацијама активности, при чему се екстраполацијом података на активност која одговара нултој концентрацији активности добила активност која нема губитке и доприносе на случајне коинциденције, нпр. видети [52]. Метод екстраполације на спектралне податке који немају проблем са већом брзином бројања може се реализовати и варијацијом времена резолуције спектрометра [46]. Још једна могућност корекције спектралних података на случајне коинциденције при већим брзинама бројања је помоћу ефективног времена резолуције спектрометра [61].

Свакако је увођењем дигиталних спектроскопских јединица у гама спектрометрију са опцијом одбацивања наседајућих сигнала (*pile-up rejection*) знатно побољшан квалитет спектра на већим брзинама бројања [62].

5.1 Доприноси случајних коинциденција у сумарном врху

Фундаментално ограничење на брзину бројања поставља чињеница да сигнали настали детекцијом фотона имају коначну дужину трајања. Уколико дође до преклапања сигнала, они могу бити одбачени или пак прихваћени као један догађај. Уколико је спектроскопски систем опремљен колом за одбацивање наседајућих сигнала, спектрални подаци при већим брзинама бројања биће квалитетнији.

Насумично сумирање или сумирање наседајућих сигнала је последица да су два или више гама фотона детектована скоро симултано. Ако оба пристигну унутар временског интервала који је једнак временском интервалу сигнала појачавача, неће бити препознати као одвојени догађаји. Резултујући излазни сигнал биће еквивалентан висини првог сигнала који је пристигао плус део висине другог сигнала, што зависи од тога колико су сигнали близу. Ситуација је демонстрирана на Слици 5.1, која представља рачунати облик сигнала претпојачавача и појачавача када два сигнала једнаких величина пристижу на улаз претпојачавача. Представљени су различити облици за различите степене преклапања. На графику се види да за врло блиску коинциденцију висина комбинованог сигнала, који ће мултиканални анализатор покушати да мери је скоро сума висина оба сигнала.

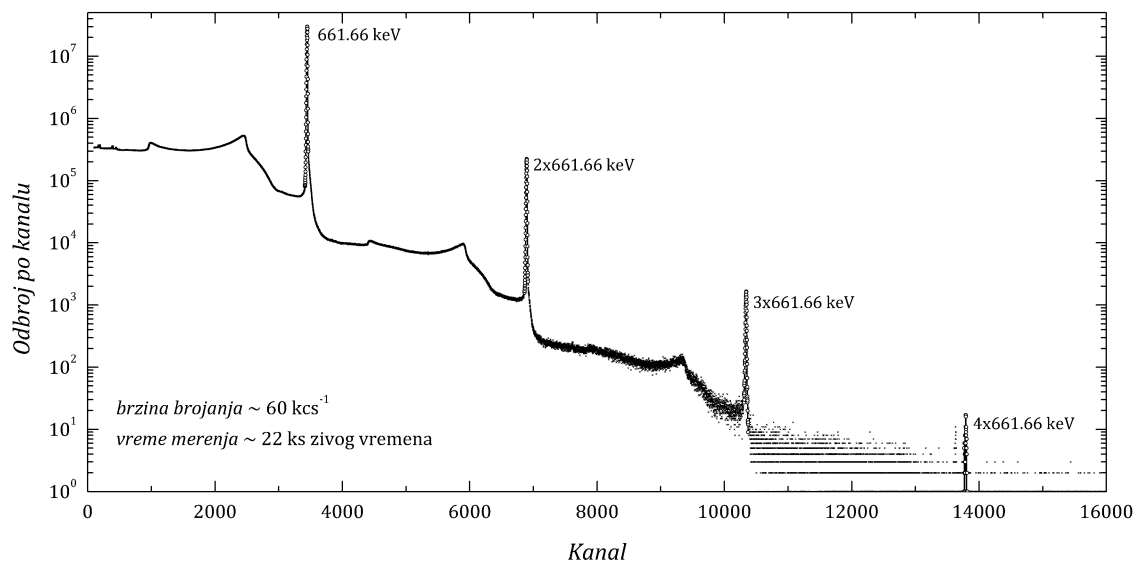


Слика 5.1 Рачунати облици сигнала који се преклапају. Облици сигнала су семигаусијански.

Овакве случајне коинциденције су непожељне јер оне узрокују губитке у одброју из врхова пуне енергије у спектру. Ако замислимо да су оба гама зрака која пристижу на детектор унутар времена резолуције појачавача потпуно апсорбована, и због тога предодређени да допринесу одброју под врхом пуне енергије, коинциденција

ће резултовати у губитку једног одброја из сваког врха и настанак одброја негде у спектру.

Резултат преклапања сигнала услед велике брзине бројања приказан је у спектру извора ^{137}Cs (Слика 5.2), где се виде врхови настали случајним коинциденцијама, тј. насадањем сигнала унутар времена резолуције спектрометра. Врх пуне енергије који одговара једином фотону емитованом при распаду извора ^{137}Cs је на енергији 662.7 keV. Даље је уочљив континуум изнад максималне енергије емитованог фотона при распаду, што је резултат симултане детекције два фотона унутар времена разлагања спектрометра. Даље се јављају врхови случајних коинциденција на енергијама 2×662.7 keV, 3×662.7 keV и 4×662.7 keV, који су резултат насумичног сумирања потпуно апсорбованих два, три и четири фотона. Континуум је резултат вишеструких потпуних и непотпуних апсорпција.

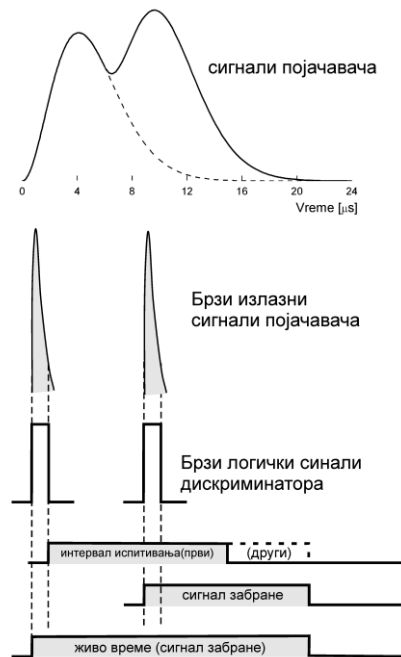


Слика 5.2 Спектар тачкастог извора ^{137}Cs снимљен на коаксијалном HPGe детектору релативне ефикасности 35% у лабораторији за гама спектрометрију Департмана за физику у Новом Саду. Поред регуларног врха на 662.7 keV уочљиви су континуум и три врха који су настали насумичним сумирањем.

Са Сlike 5.1 се јасно види да је *pile-up* врх појачавача неправилно обликован. Врх сигнала се појављује касније и врх је шири него што се очекује за један сигнал. Ова чињеница је кључна за хардверско решење. Електронско коло које манипулише сигнаlima, Слика 5.3 даје увид у процедуру. Паралелно са нормалним сигналом, који производи нормалан излаз на појачавачу, постављен је брз појачавач (брзи диференцијатор приказан на слици испод). Употребљавајући врло кратке временске константе, настају сигнали са великим шумом, али што је довољно да одреди у врло кратком временском интервалу да је сигнал детектован. Ефекат шума је онда елиминисан употребљавајући дискриминатор да обезбеди кратки логички сигнал. Логички сигнал стартује временски период, који се назива инспектујући интервал, што је еквивалентно дужини сигнала. Ако други сигнал пристигне унутар овог инспекционог периода (што ће се детектовати његовим брзим сигналом појачавача), сигнал капије ће се генерисати који се може користити за спречавање складиштења оригиналног сигнала. Губитак ових сигнала из спектра мора бити урачунат за мало повећање мртвог времена у мултиканалном анализатору, а ово се обезбеђује мртвим временом капије из појачавача.

Актуелни начин у којем ће овај сигнал капије бити изведен зависи од тога дали се *pile-up* десио на водећој или опадајућој ивици сигнала. Из статистичких разлога, сигнал капије мртвог времена са водеће ивице *pile-up*-а мора бити искључен до

следећег сигнала који ће бити детектован. На малим брзинама бројања, ово може узети неко време, што резултује у продуженом и нереалистичном мртвом времену. Због овога се препоручује да се искључи коло за одбацивање наседајућих сигнала при ниским брзинама бројања, када иначе оно није ни потребно.



Слика 5.3 Принцип рада кола за корекцију наседајућих сигнала.

Као што је описано, није могуће разложити сигнале који су ближи него што је очекивана ширина једног излазног сигнала појачавача, 2.5 до 3 времена потребног за постизање максимума сигнала у зависности од облика сигнала. Било који пар сигнала који су ближи него овај биће одбачени. Јасно је да ће бити ситуације где сигнал може пристићи пре него што се претходни сигнал вратио на своју базну линију па ће касније порастати. Овај сигнал би имао добру висину али ће бити одбачен без обзира на то. (погледати на Слици 5.1 сигнал са закашњењем од $10\mu\text{s}$). Редуковање времена резолуције може допринети извесном смањењу непотребних одбацивања.

Доступни су појачавачи који исто тако омогућују алтернативно значење *pile-up* одбацивања детектујући закаснело време пораста сигнала од минималне до максималне вредности. Како ће сигнали који пате од балистичког дефицита или заробљавања наелектрисања такође каснити, ови сигнали ће бити одбачени.

Ефикасност одбацивања наседајућих сигнала може бити импресивно. Иако је очигледно да се помоћу кола за одбацивање наседајућих сигнала постиже одбацивање великог броја наседнутих сигнала, преостаје један мали број који се дешава услед тога што брзи појачавач има коначно време резолуције. Ово је приказано већ на Слици 5.2 где се уочавају сумарни врхови настали двоструким, троструким и четвороструким случајним коинциденцијама. Због тога што ови наилазе унутар времена резолуције кола за одбацивање наседајућих сигнала (око 250 ns), они никад не могу бити отклоњени електронском методом базираном на облику сигнала.

Када је коло за одбацивање наседајућих сигнала укључено постоје резидуалне случајне коинциденције које је потребно кориговати. Било да је коло за одбацивање

наседајућих сигнала укључено или искључено, потребно је вршити корекције на случајне коинциденције услед коначног времена резолуције спектрометра.

У неким колима, може се чинити да су сви наседајући сигнали уклоњени. Било какав резидуални губитак на великим брзинама бројања се додељује ограничењима система за корекцију на мртво време. Наиме постоји један стандардизовани тест којим се проверава тачност корекције на мртво време. Сигурно је да коло за одбацивање наседајућих сигнала не може у потпуности уклонити случајне коинциденције што се манифестује кроз појаву врхова случајних коинциденција. Грешке у обрачунавању мртвог времена управо су резултат случајних коинциденција које се манифестују у спектралним подацима.

Сигнал ће учествовати у сумирању уколико се уназад и унапред у временском интервалу τ региструје још један фотон. Ово време τ назива се време резолуције електронског система. Користећи се Поасоновом дистрибуцијом, може се једноставно показати да је вероватноћа случајних коинциденција p_c унутар времена τ дато са

$$p_c = 1 - e^{-2R\tau} \quad (5.1.1)$$

где је R средња брзина бројања. Ова вероватноћа се може изједначити са делимичним губитком у површини за неки врх у спектру. Ако је P мерена површина врха, а P_T стварна површина врха, важи:

$$\frac{P_T - P}{P_T} = p_c = 1 - e^{-2R\tau}. \quad (5.1.2)$$

Ако формулу (5.1.2) реаранжирамо, добијамо једноставну формулу за корекцију површине врха на случајне коинциденције:

$$P_T = P e^{-2R\tau}. \quad (5.1.3)$$

Због тога што је сумирање случајно, ова корекција је применљива на све врхове у спектру, али да би је применили поребно је познавати време резолуције τ . Без кола за одбацивање наседајућих сигнала може се очекивати да ће оно бити истог реда величине као и време обликовања сигнала појачавача, неколико μs . Међутим време резолуције се најбоље процењује експериментом.

Ако логаритмујемо израз (5.1.3) налазимо:

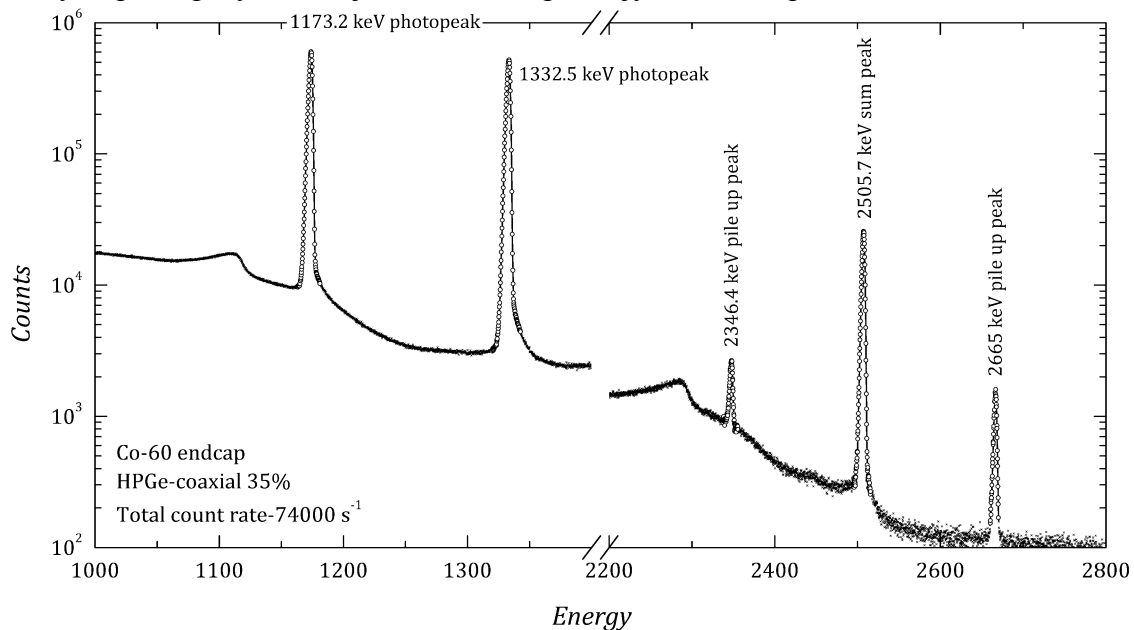
$$\ln P = \ln P_T - 2R\tau. \quad (5.1.4)$$

Фактор који је потребно наћи је 2τ , а то је у ствари коефицијент правца линеарне зависности $\ln P$ у функцији брзине бројања R . Налажење стварне брзине бројања R је проблем. Употребом мерача брзине бројања на излазу појачавача није решење јер ће и он сам имати проблема са наседањем сигнала. Коришћење излаза мерача улазне брзине бројања на појачавачу требао би да обезбеди сигнале који су мање више без губитака. Међутим ако програм за анализу спектра прави корекције не постоји механизам екстерног читавања брзине бројања. У пракси је најједноставније да се брзина бројања прочита из самог спектра. Укупан одброј у спектру се може сабрати и поделити са живим временом што даје процену брзине бројања R . Ово није сасвим тачно јер сигнали испод доњег нивоа дискриминатора и изван линеарне капије неће бити узети у обзир. Без обзира на све, ово даје довољно добру емпиријску процену за време резолуције.

Процедура којом се експериментално одређује време резолуције се назива “метод покретног извора” и изводи се на следећи начин:

- (1) Фиксирати извор ^{137}Cs на таквој позицији у близини детектора да је укупна брзина бројања 2000 cps. Важно је да овај извор остане на фиксној позицији у току наредних мерења.
- (2) Сакупити спектар за довољно дуго времена да би се обезбедила површина врха 661.6 keV ^{137}Cs , са прецизношћу бољом од 1%.
- (3) Измерити површину врха на енергији 661.6 keV и израчунати средњу брзину бројања.
- (4) Поставити извор другог радиоизотопа на такву позицију тако да не дође до интерференције са врхом на енергији 661.6 keV, а да се укупна брзина бројања удвостручи. Конвенционалан радиоизотоп за ово је ^{152}Eu .
- (5) Измерити овај поступак и поновити поступак.
- (6) Померити извор ближе детектору како би се повећала брзина бројања и поновити мерење.
- (7) Поновити корак (6) све док тотална брзина бројања не пређе нормалну област рада и подаци престану да буду линерани.
- (8) Нацртати зависност природног логаритма површине врха ^{137}Cs у функцији брзине бројања R и израчунати нагиб-он управо одговара корекционом фактору.

Други начин да се одреди корекциони фактор, тј. ефективно време резолуције спектрометра јесте обсервација врха случајних коинциденција. У спектру након довољно дугог времена мерења настаје врх који је резултат преклапања сигнала који потичу од фотона емитованих из различитих језгара (истих или различитих изотопа). Ови врхови називају се *pile-up* врхови или врхови случајних коинциденција. Типичан спектар који садржи *pile-up* врхове је приказан на Слици 5.4. Ови врхови разликују се од регуларних врхова по мање или више израженом репу на нижој енергији [61, 62]. Помоћу ових врхова могуће је одредити ефективно време резолуције спектрометра [61]. Фотони који се детектују у временском интервалу већим од ефективног времена резолуције али мањим од тзв. очекиваног времена за *pile-up* бивају одбачени уколико је коло за одбацивање наседајућих сигнала укључено. Информација о коригованом времену мерења регулисано је колом за корекцију на живо време.



Слика 5.4. Спектар тачкастог извора Со-60 снимљен на коаксијалном HPGe детектору у лабораторији за гама спектрометрију Департамента за физику у Новом Саду.

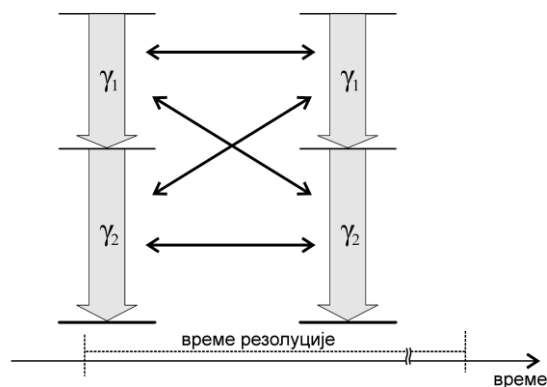
Радиоактивни распад је процес који се поковава Поасоновој статистици. На основу тога може се аналитички проценити број догађаја који су резултат потпуне

апсорпције два некорелисана фотона. Уколико је брзина бројања у врху пуне енергије N , брзина бројања у њему одговарајућем врху случајних коинциденција који се јавља на двоструко већој енергији је:

$$N' = \tau N^2 \quad (5.1.5)$$

где је τ ефективно време резолуције спектрометра. Дакле, уколико је ефективно време резолуције спектрометра познато, може се проценити број догађаја у јединици времена који одговарају потпуној апсорпцији два некорелисана фотона.

У случају извора Co-60 који се распада путем емисије два каскадна фотона енергија 1173.2 keV и 1332.5 keV у спектру настају два врха случајних коинциденција на 2346.4 keV и 2665 keV. Такође настаје сумарни врх на енергији 2505.7 keV који је резултат правих и случајних коинциденција. Како се активност извора Co-60 фотон-фотон коинцидентном техником одређује управо помоћу сумарног врха на енергији 2505.7 keV, који садржи информацију о правим коинцидентним догађајима, треба извршити корекцију на доприносе одброја услед случајних коинциденција.



Слика 5.5 Каскадна емисија фотона из два распада која су се догодила у временском интервалу који је мањи од времена резолуције спектрометра.

У циљу разматрања броја случајних коинциденција у сумарном врху, размотрићемо шему која садржи емисију два каскадна фотона. Према Слици 5.5, γ_1 -фотон из оба језгра може бити детектован унутар времена резолуције само на један начин, γ_1 из првог и γ_1 из другог језгра. Исто важи и за γ_2 -фотон. Међутим γ_1 и γ_2 фотони који потичу од два различита језгра могу бити детектовани на два различита начина. γ_1 из првог, а γ_2 из другог језгра, или γ_2 из првог, а γ_1 из другог језгра. У том смислу брзину бројања случајних коинциденција у коинцидентном врху на енергији једнакој збиру енергија γ_1 и γ_2 фотона за разлику од једначине (5.1.5) има фактор умношка 2

$$N_C = 2\tau N_1 N_2. \quad (5.1.6)$$

Ако време резолуције процењујемо помоћу (5.1.5), где уочавамо два врха настали наседањем сигнала, допринос случајних коинциденција у сумарном врху можемо написати преко брзина бројања у *pile-up* врховима

$$N_C = 2\sqrt{N'_1 N'_2}, \quad (5.1.7)$$

где су N'_1 и N'_2 брзине бројања у одговарајућим *pile-up* врховима на енергијама $2E_{\gamma 1}$ и $2E_{\gamma 2}$.

У сложенијим шемама распада могуће је да се један од *pile-up* врхова преклапа са регуларним врхом. У том случају, допринос у сумарном врху се може написати преко једног *pile-up* врха ако се узму у обзир релације (5.1.5) и (5.1.6)

$$N_c = 2N'_1 \frac{N_2}{N_1}, \quad (5.1.8)$$

или

$$N_c = 2N'_2 \frac{N_1}{N_2}. \quad (5.1.9)$$

5.2 Губици у врховима услед случајних коинциденција

Ако је коло за одбацивање наседајућих сигнала укључено, услед коначног ефективног времена разлагања спектрометра губици у врховима су могући. Ови губици доприносе комптоновом континууму и *pile-up* врховима. Измерене брзине бројања у регуларним врховима морају бити кориговане на случајне коинциденције. У пракси, треба одредити време резолуције спектрометра, а затим извршити корекцију. Стварна брзина бројања у регуларном врху је према [44]:

$$N_p = \frac{N}{L_\tau} \quad (5.2.1)$$

где је N мерена површина врха пуне енергије подељена са живим временом, а L_τ фактор за губитке услед насумичног сумирања. Фактор L_τ је такође према [44]:

$$L_\tau = 1 - \tau N_T \quad (5.2.2)$$

где је τ ефективно време резолуције и N_T је стварна брзина бројања. Како у пракси стварна брзина бројања није позната, она се мора апроксимирати измереном брзином бројања тј. бројем регистрованих догађаја у јединици времена.

Ако сматрамо да у спектру нема случајних коинциденција трећег реда, тј. нема детекције три некорелисана фотона унутар времена разлагања спектрометра, брзина бројања у *pile-up* врху је:

$$N'_k = \tau \frac{N_k^2}{(1 - \tau N_T)^2}, \quad (5.2.3)$$

при чему је $k = 1$ за фотон из каскаде са мањом енергијом и $k = 2$ за фотон са већом енергијом. Решавањем (5.2.3) по времену резолуције τ добијамо

$$\tau_{\pm} = \frac{1}{N_T} \left(1 + \frac{N_k^2}{2N_T N'_k} \left(1 \pm \sqrt{\frac{4N_T N'_k}{N_k^2} + 1} \right) \right) \quad (5.2.4)$$

где решење за знаком “+” има смисао очекиваног времена између два прихваћена *pile-up* догађаја док решење са знаком “-“ има смисао ефективног времена резолуције спектрометра.

Ефективно време резолуције може се израчунати и помоћу два *pile-up* врха, ако комбинујемо релације (5.1.7) и (5.2.3):

$$\sqrt{N'_1 N'_2} = \tau \frac{N_1 N_2}{(1 - \tau N_T)^2}. \quad (5.2.5)$$

Решавањем по ефективном времену резолуције налазимо

$$\tau_{\pm} = \frac{1}{N_T} \left(1 + \frac{N_1 N_2}{2 N_T \sqrt{N'_1 N'_2}} \left(1 \pm \sqrt{\frac{4 N_T \sqrt{N'_1 N'_2}}{N_1 N_2} + 1} \right) \right). \quad (5.2.6)$$

Изведена формула (5.2.6) има исти смисао као и (5.2.4) само што овде фигуришу брзине бројања у два *pile-up* врха.

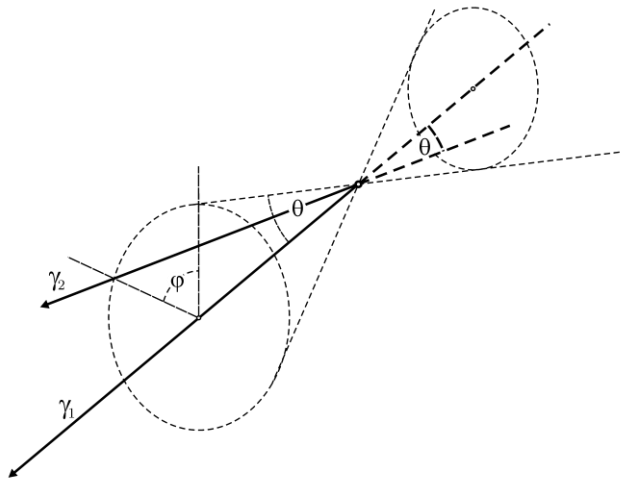
6 Эффективные угловые корреляции фотона

Вероятноћа емисије честице радиоактивног језгра зависи у општем случају од угла између осе која се поклапа са спином језгра и правцем емисије. Под уобичајним условима, укупно зрачење из језгра је изотропно јер су језгра насумично распоређена у простору. Анизотропни карактер емисије појединачног зрачења се може једино уочити ако скуп посматраних језгара није насумично распоређен.

Један од начина да се постигну услови при којима се испољава анизотропија зрачења јесте да се језгра на веома ниским температурама поставе у јак градијент магнетног или електричног поља, што узрокује поларизацију и усмерење језгара. У таквим условима мери се угловна дистрибуција зрачења у односу на правац примењеног поља.

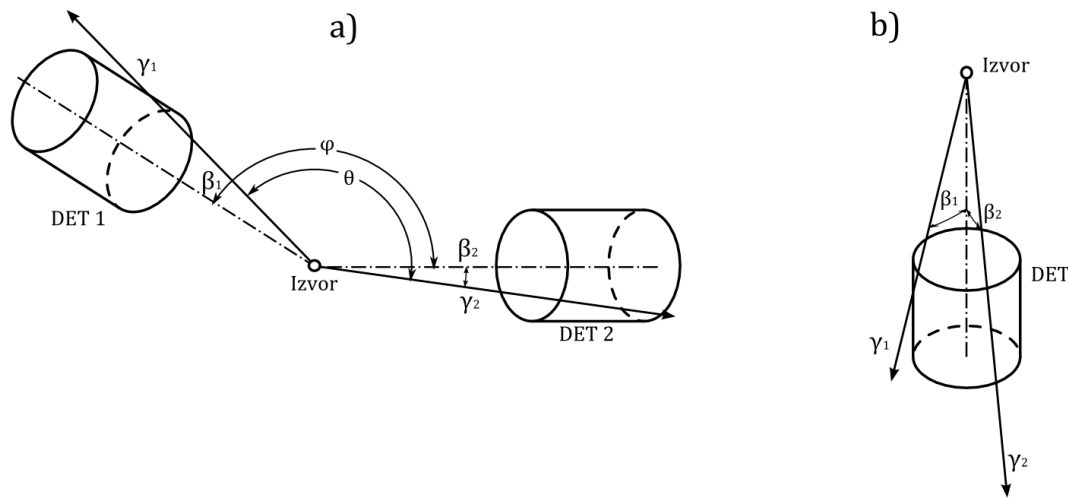
Други начин је да се посматрају само она језгра чији спин лежи у одређеном правцу. Ово се може постићи уколико се језгро распада путем сукцесивне емисије два зрака: \vec{R}_1 и \vec{R}_2 . Обсервација \vec{R}_1 у фиксном правцу \vec{k}_1 одабира скуп језгара која немају изотропну дистрибуцију оријентације спина. Пратеће зрачење \vec{R}_2 онда испољава дефинитивну угловну корелацију у односу на \vec{k}_1 . Обично се користи термин угловна корелација која обухвата корелацију правца и поларизације. У корелацијама правца (угловне корелације) посматрају се само правци зрачења, али не и поларизација.

Вероятноћа да други фотон емитован у каскади има правац кретања у односу на први фотон дефинисан углом θ (Слика 6.1), описује се функцијом дирекционих корелација $W(\theta)$. Релативна вероватноћа да је други гама зрак емитован у просторни угао $d\Omega$ у правцу који заклапа угао θ са правцем емисије првог гама фотона из каскаде је $W(\theta)d\Omega$.



Слика 6.1. Два фотона емитована из каскаде у правцима који заклапају угао θ . Функција угловних корелација гама фотона је парна ($W(\theta) = W(-\theta)$) и симетрична у односу на азимутални угао ϕ .

Функција $W(\theta)$ се може израчунати теоријски уколико су познати спинови ексцитованих стања из којих се емитују фотони, мултиполности фотона и односи мешања. Проблем је примарно везан за експериментално одређивање $W(\theta)$, а онда се теоријском конструкцијом функције угаоних корелација управо додељују вредности непознатих параметара из шеме распада (спинови, мултиполности и односи мешања). Детектори су постављени око извора тако да је један фиксиран, а други се може померати за произвољни угао (Слика 6.2.а). Снимањем броја коинциденција за сваки угао добија се функција $W(\varphi)$ која се извесним корекцијама на коначне димензије и ефикасност детектора конвертује у $W(\theta)$. Детаљан преглед теорије угаоних корелација и експерименталне процедуре за одређивање функције угаоних корелација дато је у [63].



Слика 6.2 а) Принципијална шема екперименталне поставке за мерење угаоних корелација два фотона. Детектор 1 се може обртати у равни око фиксне осе док је други детектор фиксиран. б) Ефекат угаоних корелација на једном детектору се испољава у утицају на вероватноћу правог коинцидентног сумирања. У случају аксијалне симетрије извор-детектор теорија за израчунавање поправке на ефекат угаоних корелација се своди на теорију за два детектора при чему је угао $\varphi = 0$.

У експериментима са једним детектором, где се каскадна емисија фотона манифестује кроз губитке и доприносе у регуларним врховима као и појавом сумарних врхова, угаоне корелације фотона утичу на вероватноћу правог коинцидентног сумирања. Међутим, поправке на ефективне угаоне корелације два каскадна фотона при израчунавању корекционих фактора за право коинцидентно сумирање су безначајне [64], па се не примењују у релативним мерењима активности. У методи апсолутног одређивања активности помоћу једног детектора, брзина бројања у сумарном врху је директно пропорционална вероватноћи правог коинцидентног сумирања, а због тога и корекционом фактору на ефективне угаоне корелације [46]. У зависности од геометрије извор-детектор, као и јачине спрезања праваца фотона емитованих у каскади, уколико се не узме у обзир корекциони фактор на ефективне угаоне корелације мерна несигурност у одређивању активности може бити и већа од 10% [46, 50].

Теоријско израчунавање функције угаоних корелација $W(\theta)$ за било која два каскадна фотона детаљно је проучено и може се применити на било коју шему распада са познатим спиновима стања, мултиполности фотона и односима мешања. Међутим, распрострањеност узорка и димензије детектора захтевају усредњавање функције $W(\theta)$ услед варијације ефикасности унутар извора.

6.1 Ефективне угаоне корелације за коаксијални HPGe детектор

Функција угаоних корелација $w(\theta)$ између каскадних фотона γ_1, γ_2 емитованих из прелаза $I_i \xrightarrow{\gamma_1} I \xrightarrow{\gamma_2} I_f$ (I_i, I, I_f ; спинови нивоа) је дата према [66]

$$W(\theta) = \sum_{\text{парно } k}^{k_{\max}} A_{kk} P_k(\cos \theta), \quad (6.1.1)$$

где је θ угао између праваца емисије γ -фотона, P_k је Лежандров полином и A_{kk} је коефицијент угаоних корелација. Сумирање се врши по парним индексима k , почевши од нуле при чему је k_{\max} дато са

$$k_{\max} = \min(2I, L_1 + L_1', L_2 + L_2') \quad (6.1.2)$$

где су L_1, L_1' и L_2, L_2' угаони моменти однешени емитованим фотонима.

Коефицијенти угаоних корелација су дати са

$$A_{kk} = A_k(L_1 L_1' I_i I) A_k(L_2 L_2' I_f I), \quad (6.1.3)$$

где су коефицијенти $A_k(L_1 L_1' I_i I)$ и $A_k(L_2 L_2' I_f I)$ дати са:

$$A_k(L_1 L_1' I_i I) = \frac{F_k(L_1 L_1' I_i I) + 2\delta_1 F_k(L_1 L_1' I_i I) + \delta_1^2 F_k(L_1' L_1' I_i I)}{1 + \delta_1^2} \quad (6.1.4)$$

$$A_k(L_2 L_2' I_f I) = \frac{F_k(L_2 L_2' I_f I) + 2\delta_2 F_k(L_2 L_2' I_f I) + \delta_2^2 F_k(L_2' L_2' I_f I)}{1 + \delta_2^2} \quad (6.1.5)$$

Овде су F_k коефицијенти који зависе од спина стања између којих се врши емисија фотона као и мултиполности фотона

$$F_k(LL'I_{i,f}I) = (-1)^{I_i+I-1} [(2L+1)(2L'+1)(2I+1)(2k+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} L & L' & k \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix} \left\{ \begin{matrix} L & L' & k \\ I & I & I_{i,f} \end{matrix} \right\}, \quad (6.1.6)$$

где су $()$ и $\{ \}$, Wigner-ови 3- j и 6- j симболи, респективно. Однос мешања мултиполности је изражен преко нумеричког фактора δ за одговарајући гама зрак који је назначен у индексу.

У зависности од спинова нивоа између којих се врши прелаз као и мултиполарности прелаза и односа мешања, правац другог фотона емитованог у каскади може имати тенденцију да прати правац емисије првог фотона или супротно, да прати правац који је нормалан на правац првог фотона емитованог у каскади.

Подаци из шеме распада изотопа ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu који су потребни за израчунавање функције угаоних корелација два каскадна фотона (6.1.1) дати су у

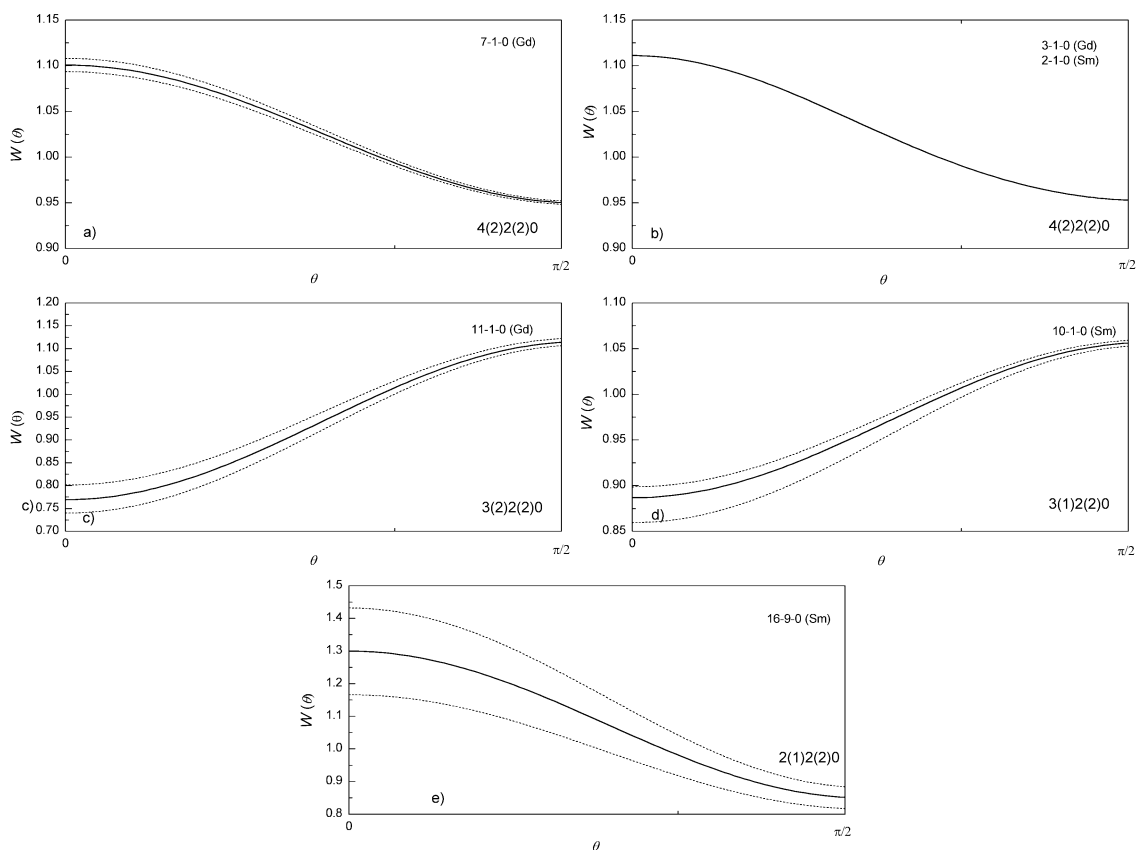
Табели 6.1. За израчунавање Функције (6.1.1), која зависи од параметара из шеме распада датих у Табели 6.1, написана је процедура у програму *Mathematica* која је дата у Прилогу А. У последње три колоне Табеле 6.1 приказана је израчуната функција угаоних корелација $W(\theta)$ као и њене вредности за угао између два фотона 90° и 0° . За прелазе код којих нема мешања мултиполности коефицијенти функције угаоних корелација су тачно одређени као односи целих бројева. Вредности функције угаоних корелација на угловима 90° и 0° такође су дати као односи целих бројева. У осталим случајевима коефицијенти угаоних корелација су реални бројеви чија тачност зависи од мерне несигурности односа мешања мултиполности прелаза.

Табела 6.1 Подаци потребни за израчунавање функције угаоних корелација за неке каскаде емитоване при трансформацији изотопа ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu према [65]. У последње три колоне дата је функција угаоних корелација за одговарајућу каскаду, као и њене вредности за угао $\theta = 0$ и $\theta = \pi/2$.

Род.	Прелаз	Пот.	Спинови и мултиполарности							$\bar{w}(\theta)$	$\bar{w}(0)$	$\bar{w}(90^\circ)$
			I_i	L_i	δ	I	L_2	δ	I_f			
^{60}Co	$3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$	^{60}Ni	4	2	0	2	2	0	0	$\frac{5}{126}(24 + 3\cos^2\theta + \cos^4\theta)$	$\frac{10}{9}$	$\frac{20}{21}$
^{133}Ba	$4 \rightarrow 3 \rightarrow 2$	^{133}Cs	1/2	1	0.15_{-5}^{+6}	3/2	1	-0.114	5/2	$1.0033 - 0.0100\cos^2\theta$	0.9933	1.0033
	$4 \rightarrow 3 \rightarrow 1$		1/2	1	0.15_{-5}^{+6}	3/2	1	0.022	5/2	$0.9859 + 0.0424\cos^2\theta$	1.0282	0.9859
	$4 \rightarrow 3 \rightarrow 0$		1/2	1	0.15_{-5}^{+6}	3/2	2	0	7/2	$1.0160 - 0.0480\cos^2\theta$	0.9680	1.0160
	$4 \rightarrow 2 \rightarrow 1$		1/2	2	0	5/2	1	0.125(15)	5/2	$0.8549 + 0.4353\cos^2\theta$	1.2902	0.8549
	$4 \rightarrow 2 \rightarrow 0$		1/2	2	0	5/2	1	0.96(5)	7/2	$1.2456 - 0.7368\cos^2\theta$	0.5088	1.2456
	$4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$		1/2	2	0	5/2	1	-0.151(2)	7/2	$0.9821 + 0.0538\cos^2\theta$	1.0359	0.9821
	$3 \rightarrow 2 \rightarrow 1$		3/2	1	-0.114	5/2	1	0.125(15)	5/2	$1.1576 - 0.4727\cos^2\theta$	0.6849	1.1576
	$3 \rightarrow 2 \rightarrow 0$		3/2	1	-0.114	5/2	1	0.96(5)	7/2	$0.7333 + 0.8001\cos^2\theta$	1.5334	0.7333
	$2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$		5/2	1	0.125(15)	5/2	1	-0.151(2)	7/2	$0.9818 + 0.0547\cos^2\theta$	1.0364	0.9818
^{152}Eu	$3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$	^{152}Gd	4	2	0	2	2	0	0	$\frac{5}{126}(24 + 3\cos^2\theta + \cos^4\theta)$	$\frac{10}{9}$	$\frac{20}{21}$
	$7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$		3	1(2)	0.002(6)	2	2	0	0	$0.9496_{-18}^{+18} + 0.1512_{-54}^{+55}\cos^2\theta$	1.1008	0.9496
	$11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$		3	1(2)	$+29_{-11}^{+42}$	2	2	0	0	$1.1154_{-75}^{+81} - 0.346_{-24}^{+24}\cos^2\theta$	0.7691	1.1154
	$2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$	^{152}Sm	4	2	0	2	2	0	0	$\frac{5}{126}(24 + 3\cos^2\theta + \cos^4\theta)$	$\frac{10}{9}$	$\frac{20}{21}$
	$10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$		3	1(2)	-8.7(6)	2	2	0	0	$1.0568_{-33}^{+29} - 0.170_{-9}^{+24}\cos^2\theta$	0.8864	1.0568
	$16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$		2	1(2)	$+0.07_{-9}^{+11}$	2	2	0	0	$0.850_{-34}^{+32} + 0.45_{-10}^{+10}\cos^2\theta$	1.2994	0.8503

Израчунате функције угаоних корелација за каскаде изотопа ^{152}Eu из Табеле 6.1 приказане су графички на Слици 6.3. Као што се види, различите каскаде доносе различиту функцију угаоних корелација. Тенденција да правац емисије другог фотона

буде у правцу емисије првог фотона већа је уколико за угао $\theta = 0$ функција W има већу вредност. Супротна ситуација је када други фотон има тенденцију да прати нормалан правац на правац емисије првог фотона што се испољава максималном вредношћу функције W за угао $\pi/2$. Несигурност функције угаоних корелација представљена је испрекиданом линијом која потиче од мерне несигурност односа мешања. Највећа асиметрија правца емисије изражена је за каскаду $2(1)2(2)0$, међутим овде је и велика мерна несигурност односа мешања.



Слика 6.3 Функције угаоних корелација каскадних фотона који се могу емитовати при распаду ^{152}Eu . а) $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ каскада ^{152}Gd други фотон емитован у каскади има тенденцију да прати правац првог фотона; б) каскаде $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ^{152}Gd и $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ^{152}Sm , овде такође правац емисије другог фотона има тенденцију да прати правац другог фотона у каскади али је функција врло тачно одређена јер не долази до мешања; ц) каскада $11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ^{152}Gd , овде правац другог фотона има тенденцију да прати правац нормалан на емисију првог фотона. Црткана линија означава несигурност функције угаоних корелација због мерне несигурности односа мешања; д) Каскада $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ^{152}Sm , исто као под ц) само што је ефекат мање изражен; е) Каскада $16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ^{152}Sm , правац емисије другог фотона има тенденцију да прати правац другог фотона али је несигурност веома изражена.

Одређивање односа мешања се управо базира на експерименталном одређивању функције $W(\theta)$ [66]. Међутим, услед коначних димензија детектора, угао између правца фотона је одређен само у неком интервалу, па се мора вршити корекција и усредњавање по просторном углу. Ефикасност детекције је функција упадног угла фотона па се и ту морају вршити корекције. Добијена функција се фитује сумом Лежандрових полинома. Због тога, мерења се интерпретирају као усредњене вредности по ефективном просторном углу под којима се виде детектори од тачкастог извора за дати угао између оса детектора. Добијена функција представља функцију ефективних угаоних корелација и израчунава се по формули:

$$w_{eff}(\theta) = \sum_{k=parno}^{k_{max}} A_{kk} P_k(\cos \theta) Q_k(\gamma_1) Q_k(\gamma_2) \quad (6.1.7)$$

где је $Q_k(\gamma_1)$ атенуациони коефицијент за детектор намењен детектовању првог фотона и $Q_k(\gamma_2)$ атенуациони коефицијент за детектор намењен детектовању другог фотона из каскаде.

При мерењу активности помоћу једног детектора, коефицијенти угаоних корелација се сматрају познатим, а задатак је одредити функцију ефективних угаоних корелација за дато растојање тачкасти извор-детектор.

У случају једног детектора и тачкастог извора који је постављен аксијално (Слика 6.2.б), угао θ у формули (6.1.7) је једнак нули (угао $\varphi=0$, према Слици 6.2.а), а угаоне корелације гама фотона емитованих при прелазу $I_i \xrightarrow{\gamma_1} I \xrightarrow{\gamma_2} I_f$ (I_i, I, I_f ; спинови нивоа) се описују функцијом ефективних угаоних корелација чији крајњи облик зависи од растојања извора од детектора [47], а дата је са:

$$w_{eff}(d) = \sum_{k=parno}^{k_{max}} A_{kk} Q_k(\gamma_1) Q_k(\gamma_2) \quad (6.1.8)$$

где су A_{kk} коефицијенти угаоних корелација, $Q_k(\gamma_1)$ и $Q_k(\gamma_2)$ су атенуациони корекциони фактори за први и други гама зрак емитован у каскади.

Атенуациони фактори који фигуришу у (6.1.8) се односе на попаравку услед коначних димензија и ефикасности детектора. За случај аксијалне симетрије могу се према [67, 68] изразити преко

$$Q_k(\gamma_i) = \frac{J_k(\gamma_i)}{J_0(\gamma_i)}, \quad (6.1.9)$$

где је

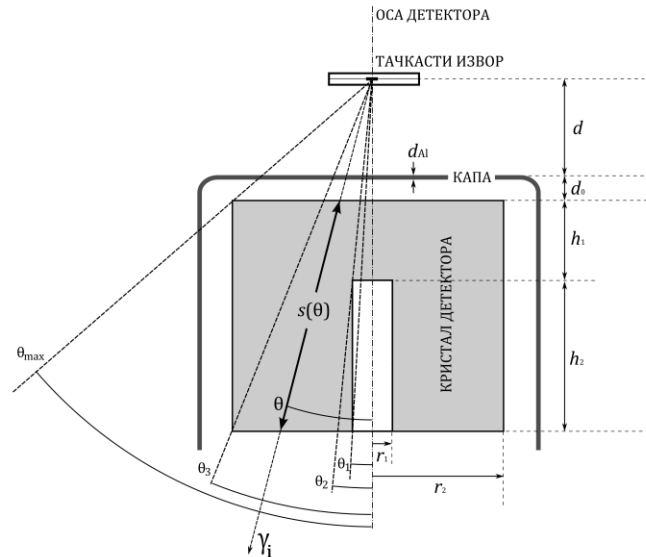
$$J_k(\gamma_i) = \int_0^{\theta_{max}} P_k(\cos \theta) \varepsilon(\theta, \gamma_i) \sin \theta d\theta. \quad (6.1.10)$$

$P_k(\cos \theta)$ су обични Лежандрови полиноми реда k ; $\varepsilon(\theta, \gamma_i)$ је ефикасност детекције γ_i фотона у функцији упадног угла θ .

Проблем налажења функције ефективних угаоних корелација (6.1.8) дакле захтева познавање детаљне шеме распада (спинови стања, мултиполност и однос мешања), а у случају аксијално постављеног тачкастог извора ефикасност детекције у функцији упадног угла фотона у односу на осу детектор извор за одговарајућу енергију фотона. За коаксијални германијумски детектор на Слици 6.4 дате су димензије којима је потребно располагати.

У интегралима дефинисаним са (6.1.10) фигурише ефикасност детекције у функцији упадног угла и енергије фотона. Ефикасност за дату геометрију се најтачније може израчунати помоћу Monte Carlo технике, на пример [69], неким од програма за трансфер ефикасности уколико је позната ефикасност у тачкастој геометрији за неко растојање извора од капе детектора [70, 71, 72, 73] или помоћу закона апсорпције гама зрачења [74]. Kim et al. [47] су за рачун ефикасности користили и MC код и закон апсорпције гама зрачења. Њихови резултати су показали да се за фотоне из извора ^{60}Co ефективне угаоне корелације добијене помоћу израчунатих ефикасности техником Monte Carlo не разликују више од око 0.8% ако су ефикасности рачунате једноставном применом закона апсорпције гама зрачења.

Рачун ефективних угаоних корелација помоћу закона апсорпције гама зрачења је много једноставнији од технике Monte Carlo, јер се лако прилагођава различитим енергијама фотона. Свакако, у било ком случају потребно је познавати све димензије детектора, дистрибуцију неактивних слојева германијума и прецизан положај извора.



Слика 6.4 Геометријска поставка извор-детектор са ознакама димензија потребних за израчунавање ефективних угаоних корелација помоћу закона апсорпције. Назначене области дефинисане угловима у којима се врши интеграција су такође приказани.

У циљу налажења функције ефективних угаоних корелација (6.1.8) потребно је одредити релативну ефикасност за енергије фотона из каскаде у функцији упадног угла рачунат у односу на осу детектора. Према закону апсорпције гама зрачења, вероватноћа за некохерентно расејање гама кванта на атомима германијума може се изразити преко формуле:

$$\mathcal{E}_{inc}(\gamma_i) = 1 - \exp(-\mu_{Ge}(\gamma_i)s) \quad (6.1.11)$$

где је $\mu_{Ge}(\gamma_i)$ линеарни атенуациони коефицијент за Германијум (комптоново расејање, производња парова и фотоелектрични ефекат) за енергију фотона γ_i ; s је максимална дужина расположиве путање. Дужина путање s је функција упадног угла θ , што се јасно види на Слици 6.4, где је приказан тачкасти извор постављен у оси коаксијалног германијумског детектора.

Како је кристал детектора смештен у кућиште од алуминијума, постоји вероватноћа да фотон буде расејан пре него што доспе у осетљиву запремину германијума. Ако се то узме у обзир, релацију (6.1.11) још треба помножити са вероватноћом апсорпције у алуминијуму

$$\exp(-\mu_{Al}(\gamma_i)s_{Al}) \quad (6.1.12)$$

где је $\mu_{Al}(\gamma_i)$ линеарни атенуациони коефицијент за алуминијум за фотон енергије γ_i , при чему је s_{Al} расположива путања у алуминијуму која је такође функција упадног угла θ . С обзиром на геометријску поставку (Слика 6.4) и горње разматрање, ефикасност за детекцију γ_i фотона је дата са:

$$\varepsilon(\theta, \gamma_i) = \exp(-\mu_{Al}(\gamma_i) \frac{d_{Al}}{\cos \theta}) \times \begin{cases} (1 - \exp(-\mu_{Ge}(\gamma_i) \frac{h_1}{\cos \theta})) & , 0 \leq \theta \leq \theta_1 \\ (1 - \exp(-\mu_{Ge}(\gamma_i) (\frac{d_0 + 2h_1 + h_2 + d}{\cos \theta} - \frac{r_1}{\sin \theta}))) & , \theta_1 \leq \theta \leq \theta_2 \\ (1 - \exp(-\mu_{Ge}(\gamma_i) \frac{h_1 + h_2}{\cos \theta})) & , \theta_2 \leq \theta \leq \theta_3 \\ (1 - \exp(-\mu_{Ge}(\gamma_i) (\frac{r_2}{\sin \theta} - \frac{d + d_0}{\cos \theta}))) & , \theta_3 \leq \theta \leq \theta_{\max} \end{cases} \quad (6.1.13)$$

где су области у којима важи одговарајућа функцију (6.1.13) дефинисане са

$$\begin{aligned} \theta_1 &= \arctan \frac{r_1}{d_0 + d + h_1 + h_2} \\ \theta_2 &= \arctan \frac{r_1}{d_0 + d + h_1} \\ \theta_3 &= \arctan \frac{r_2}{d_0 + d + h_1 + h_2} \\ \theta_{\max} &= \arctan \frac{r_2}{d_0 + d} \end{aligned} \quad (6.1.14)$$

Ознаке које фигуришу у (6.1.13) и (6.1.14) дате су на Слици 6.4 уз нумеричке податке у Табели 6.2 за коаксијалног HPGe детектор релативне ефикасности 35% који је коришћен у експериментима у овом раду.

Табела 6.2 Подаци о детектору потребни за израчунавање ефективних угаоних корелација.

h_1	17.1 mm
h_2	34 mm
r_1	4.5 mm
r_2	29.6 mm
ρ_{Ge}	5.323 g/cm ³
ρ_{Al}	2.700 g/cm ³
d_0	6.4(9) mm
d_{Al}	1.5 mm

Подаци који се односе на линеарне атенуационе коефицијенте за алуминијум и германијум у функцији енергије фотона добијени су помоћу X-com (NIST) базе података са интернета. Одговарајући атенуациони коефицијенти добијени су интерполацијом одговарајућих тачака. Димензије детектора су биле дате уз пратећу документацију детектора. Највећа несигурност односи се на удаљеност горње површине кристала германијума од капе детектора која износи ± 0.9 mm.

Интеграл дефинисан са (6.1.10) није могуће израчунати аналитички, па је коришћен нумерички поступак у оквиру софтверског пакета *Mathematica* [75]. Написана је комплетна процедура у програму *Mathematica* која на основу задатих

димензија детектора и карактеристика фотона и прелаза омогућава да се израчуна поправка на ефективне угаоне корелације (Прилог А). Функција је дефинисана у општем смислу и може се употребити за било коју каскаду за произвољан коаксијалан HPGe детектор. Овде је дат само крајњи образац прилагођен *Mathematici*, којим се позива функција за израчунавање поправке на ефективне угаоне корелације за тачкасти извор који се налази на одређеном растојању од капе детектора:

$$\text{weff} = [\{E_1, L_1, \delta_1\}, \{E_2, L_2, \delta_2\}, \{I_i, I, I_f\}, \{h, H, d_1, d_2, r, l, dl, d_a, x\}] \quad (6.1.15)$$

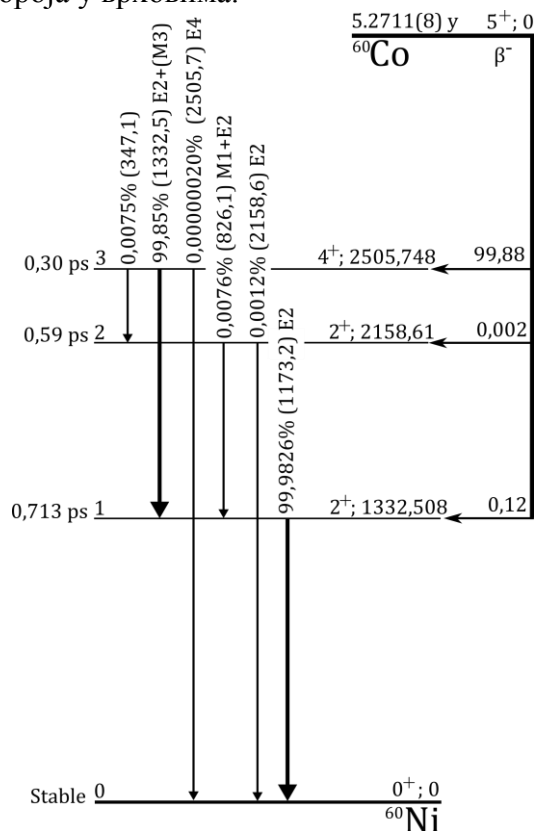
Потребно је унети следеће податке: E_1 и E_2 енергије првог и другог фотона емитованог у каскади у јединицама keV; L_1 и L_2 - одговарајуће ниже мултиполности такође првог и другог фотона; δ_1 и δ_2 су односи мешења (*mixing ratio*); I_i , I и I_f су спинови почетног, интермедијарног и финалног стања респективно; у четвртој витичастој загради треба унети димензије које се односе на детектор и геометријску поставку, а одговарајуће ознаке конзистентне су са ознакама приказаним на Слици 6.4.

7 Примена методе сумарног врха на изворе ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu

У претходним одељцима су дефинисане корекције које се могу применити у методи сумарног врха ради постизања веће тачности. Радиоизотопи ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu имају различите шеме распада и стога је метод потребно прилагодити датој шеми. У том смислу овде ће бити изведене формуле за мерење активности помоћу спектралних података са одговарајућим корекцијама за сваки радиоизотоп.

7.1 Извор ^{60}Co

Извор ^{60}Co се распада емисијом β^- честице уз емисију γ -фотона. Према шеми распада (Слика 7.1) и подацима [76], распад Co^{60} у 99.9988% случајева иде преко неких побућених стања ^{60}Ni , а у 99.85% емитују се два фотона у каскади. Ако се занемаре остали прелази врло слабог интензитета, модел објашњен у поглављу 4 је у потпуности применљив. Међутим уколико није реализована 2π геометрија, у формуле се морају увести корекције на ефективне угаоне корелације. Такође, потребно је унети и одговарајуће корекције на допринос случајних коинциденција у сумарном врху и корекције на губитке одброја у врховима.



Слика 7.1 Шема распада изотопа Co-60 према [76].

Према датој шеми распада, ако занемаримо интерну конверзију, брзина бројања у врху пуне енергије на енергији 1173.2 keV је

$$N_1 = A\varepsilon_1(p_1 + p_2(1 - \eta_2 w_{eff}))L_\tau, \quad (7.1.1)$$

где је A активност извора, ε_1 је ефикасност врха пуне енергије за фотон енергије 1173.2 keV; p_1 је вероватноћа реализације путање $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Слика 7.1); p_2 је вероватноћа да се реализује путања $1 \rightarrow 0$; η_2 је тотална ефикасност за фотон енергије 1332.5 keV; w_{eff} је фактор ефективних угаоних корелација каскадних фотона енергије 1173.2 и 1332.5 keV; L_τ је поправка за губитке услед ефективног времена резолуције дефинисан преко (5.2.2) и (5.2.6).

Брзина бројања у врху на енергији 1332.5 keV је:

$$N_2 = A\varepsilon_2 p_2 (1 - \eta_1 w_{eff}) L_\tau. \quad (7.1.2)$$

Брзина бројања у сумарном врху је:

$$N_\Sigma = A p_2 \varepsilon_1 \varepsilon_2 L_\tau w_{eff} + N_C, \quad (7.1.3)$$

где је N_C допринос одброја у сумарном врху услед случајних коинциденција.

Тотална брзина бројања, при чему се губици на случајне коинциденције занемарују је:

$$N_T = A(p_1 \eta_1 + p_2(\eta_2 + \eta_1 - \eta_1 \eta_2 w_{eff})) \quad (7.1.4)$$

Ако елеминишемо ефикасности из система (7.1.1, 7.1.2, 7.1.3 и 7.1.4) налазимо формулу за израчунавање активности:

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{(N_\Sigma - N_C) L_\tau} \right) w_{eff}. \quad (7.1.5)$$

Уврштавањем одброја случајних коинциденција у сумарном врху преко (5.1.7), у Формулу (7.1.5), налазимо

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{(N_\Sigma - 2\sqrt{N_1' N_2'}) L_\tau} \right) w_{eff}, \quad (7.1.6)$$

у којој фигуришу само спектрални подаци и фактор корекције на случајне коинциденције L_τ и ефективне угаоне корелације w_{eff} .

За мали допринос случајних коинциденција у сумарном врху ($N_C \ll N_\Sigma$), формула (7.1.5) се може другачије написати применом Тајлорове формуле за развој у ред у околини тачке 0:

$$f(x) = f(0) + f'(0)x + \frac{1}{2!} f''(0)x^2 + \dots \quad (7.1.7)$$

У том циљу напишимо (7.1.5) у нешто другачијој форми:

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma (1 - N_C / N_\Sigma) L_\tau} \right) w_{eff} = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} \frac{1}{1-x} \right) w_{eff} = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} f(x) \right) w_{eff} \quad (7.1.8)$$

где је $f(x) = \frac{1}{1-x}$, и $x = \frac{N_C}{N_\Sigma}$.

Узимањем само прва два члана ($f(x) \approx 1+x$), развоја у ред, добијамо:

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} \frac{N_C}{N_\Sigma} \right) w_{eff} = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + \frac{N_1 N_2 N_C}{N_\Sigma^2 L_\tau} \right) w_{eff} \quad (7.1.9)$$

при чему је $N_C = 2\tau N_1 N_2$ према (5.1.6). Ако сада одброј случајних коинциденција N_C изразимо преко (5.1.6) и трећи члан помножимо са τ / τ , формула (7.1.9) постаје:

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + \frac{N_1 N_2 2\tau N_1 N_2}{N_\Sigma^2 L_\tau} \frac{\tau}{\tau} \right) w_{eff} = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + 2 \frac{(\tau N_1^2)(\tau N_2^2)}{(\tau N_\Sigma^2) L_\tau} \right) w_{eff}. \quad (7.1.10)$$

С обзиром на (5.1.5) изрази у заградама у (7.1.10) се могу написати као:

$$A = \left(N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + 2 \frac{N'_1 N'_2}{N'_\Sigma L_\tau} \right) w_{eff}, \quad (7.1.11)$$

где су N'_1 , N'_2 врхови случајних коинциденција за фотоне из каскада и налазе се на 2346 keV, 2664 keV и N'_Σ на 5011 keV је врх случајних коинциденција сумарног врха. Тачност апроксимативне формуле (7.1.11) је боља од 1% уколико је допринос случајних коинциденција у сумарном врху мањи од 10%. У формули (7.1.11) се види да је апсолутна активност извора ^{60}Co мерљива преко спектралних података који су резултат регуларних сигнала и сигнала који се преклапају унутар ефektivног времена резолуције, а потичу од детектовања фотона из распада два различита језгра. У том смислу, спектар је збир регуларних и коинцидентних сигнала. Због тога се може сматрати да се и тотални одброј састоји од регуларног и коинцидентног. У Формули (7.1.11) тотална брзина бројања се може написати као збир једноструких догађаја N_T^0 и двоструких догађаја N'_T :

$$A = \left(N_T^0 + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma L_\tau} + 2 \left(N'_T + \frac{N'_1 N'_2}{N'_\Sigma L_\tau} \right) \right) w_{eff} \quad (7.1.12)$$

Иако Формула (7.1.12) није директно применљива и захтева снимање спектра у ширем енергетском интервалу (0-5020 keV), помоћу ње се на елегантини начин врши корекција на случајне коинциденције у сумарном врху. Такође произилази да се спектрални подаци на већим брзинама бројања састоје од једног регуларног спектра и његове копије где се регуларни и сумарни врх налазе на двоструко већим енергијама.

Са друге стране формула (7.1.6) није апроксимативна али се може другачије написати уколико се фактор за губитке у врховима L_τ експлицитно изрази преко времена резолуције, тј. преко спектралних података. На основу дискусије о случајним коинциденцијама, L_τ у формули (7.1.6) се може изразити преко (5.2.2), и ефektivног

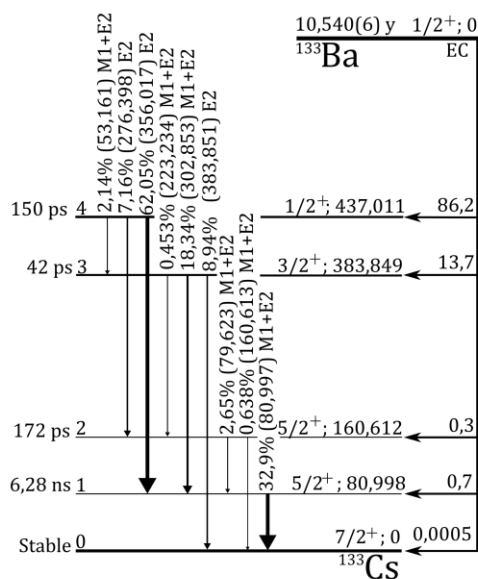
времена резолуције датим са једначином (5.2.6). Тада се добија формула за мерење активности у којој фигуришу само спектрални подаци и поправка на ефективне угаоне корелације:

$$A = N_T \left(\left(\left(\frac{N_\Sigma}{2\sqrt{N'_1 N'_2}} - 1 \right) \left(\sqrt{\frac{4N_T \sqrt{N'_1 N'_2}}{N_1 N_2} + 1} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) w_{eff} . \quad (7.1.13)$$

Формула (7.1.13) је применљива за било који изотоп који се распада путем емисије два каскадна фотона без *crossover* прелаза и директног распада у основно стање потомка. Од калибрационих извора то су још ^{24}Na и ^{46}Sc [76] за која нису потребна додатна разматрања.

7.2 Извор ^{133}Ba

Извор ^{133}Ba је радиоизотоп који се распада путем захвата електрона. Шема распада према [77] је дата на Слици 7.2.



Слика 7.2 Шема распада извора ^{133}Ba .

Каскада $4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ је база за развој коинцидентне технике на једном детектору јер нема директан *crossover* прелаз. Могућа су два приступа. Развој методе разматрањем свих путања распада и исхода у детектору [54] укључујући могућност случајних коинциденција, и развој једноставне методе која подразумева израчунавање додатног корекционог фактора.

7.3 Метод свих исхода са случајним коинциденцијама

Поступак за формирање једначина бројања за све врхове пуне апсорпције и тоталну брзину бројања разматрајући све путање и исходе у детектору за изотоп ^{133}Ba је дат у [55, 78]. Ослањајући се на третман случајних коинциденција дефинисан у одељцима 5.1 и 5.2, овде ће бити дат поступак за добијање једначина бројања које укључују и случајне коинциденције.

Ако разматрамо неку сложену шему распада, одброј у врху пуне енергије у општем случају на енергији E_i резултат је догађаја потпуне апсорпције једног фотона енергије E_i и потпуне апсорпције два или више потпуно апсорбована фотона (право коинцидентно сумирање) чији је збир енергија једнак E_i а емитовани су из појединачних распада језгра. Допринос у врху на енергији E_i услед ових догађаја обележено је са $N'(E_i)$. Такође допринос одброја у врху пуне енергије могу дати случајне коинциденције које су резултат потпуне апсорпције два или више фотона која потичу из распада два језгара која су се десила у интервалу времена мањем од ефективног времена резолуције спектрометра. Допринос случајних коинциденција у врху пуне енергије од случајних коинциденција обележено је са $N''(E_i)$. Укупан одброј у врху пуне енергије се на основу ових разматрања може написати као:

$$N(E_i) = N'(E_i) + N''(E_i) \quad (7.3.1)$$

где се један прим односи на једноструке догађаје, а двоприм на двоструке догађаје (случајне коинциденције).

Разматрајући шему распада може се креирати скуп свих енергија које одговарају потпуним апсорпцијама емитованих фотона

$$\mathbf{E} = \{E_1, E_2, \dots, E_n\} \quad (7.3.2)$$

са вероватноћама

$$\mathbf{P} = \{P_1, P_2, \dots, P_n\}. \quad (7.3.3)$$

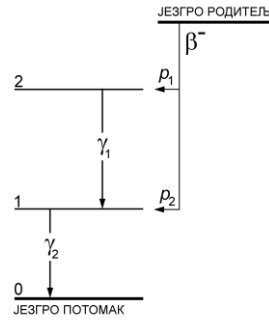
Брзине бројања у врховима пуне енергије услед једноструких догађаја ће бити дате општим изразом:

$$N'(E_i) = AP_i L_\tau. \quad (7.3.4)$$

Са друге стране, допринос одброја у врху на енергији E_i услед случајних коинциденција према (5.1.5) је

$$N''(E_i) = \tau A^2 \sum_{j,k} P_j P_k. \quad (7.3.5)$$

где су P_j , и P_k вероватноће за исход пуних апсорпција на енергијама E_j и E_k при чему мора важити $E_i = E_j + E_k$.



Слика 7.3 Пример једноставне шеме распада на коју се може применити метод свих исхода.

Као пример размотримо једноставну шему распада дату на Слици 7.3 Скуп свих могућих енергија за догађаје без случајних коинциденција је:

$$\mathbf{E} = \{E_1, E_2, E_3\}, \quad (7.3.6)$$

где су E_1 и E_2 енергије за врхове пуне енергије фотона γ_1 и γ_2 ; E_3 је енергија која одговара сумарном врху ($E_3 = E_1 + E_2$). Вероватноће за исход догађаја на енергијама у скупу (7.3.6) су

$$\mathbf{P} = \{P_1, P_2, P_3\}, \quad (7.3.7)$$

где је P_1 вероватноћа за исход који подразумева потпуну апсорпцију само фотона енергије E_1 , P_2 вероватноћа за исход потпуне апсорпције само фотона E_2 и P_3 вероватноћа за потпуну апсорпцију оба фотона што резултира одброју на енергији E_3 .

Могуће депоноване енергије услед случајних коинциденција су:

$$\mathbf{E}_C = \mathbf{E} \oplus \mathbf{E}, \quad (7.3.8)$$

где \oplus означава да се сваки елемент из скупа \mathbf{E} мора сабрати са сваким из истог скупа. Резултат је:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_C &= \{2E_1, E_1 + E_2, E_1 + E_3, E_2 + E_1, 2E_2, E_2 + E_3, E_3 + E_1, E_3 + E_2, 2E_3\} = \\ &= \{E_{C1}, E_{C2}, E_{C3}, E_{C4}, E_{C5}, E_{C6}, E_{C7}, E_{C8}, E_{C9}\} \end{aligned}, \quad (7.3.9)$$

што значи да случајне коинциденције доносе још 5 *pile-up* врхова и допринос у сумарном врху на енергији $E_1 + E_2$. Енергије на којима се јављају врхови у спектру су дефинисани унијом скупова (7.3.6) и (7.3.9)

$$\mathbf{E}_U = \mathbf{E} + \mathbf{E}_C, \quad (7.3.10)$$

што је за конкретни пример

$$\mathbf{E}_U = \{E_1, E_2, E_3, E_{C1}, E_{C3}, E_{C5}, E_{C6}, E_{C9}\}, \quad (7.3.11)$$

јер у скупу (7.3.9) има енергија које се понављају ($E_{C2} = E_{C4} = E_3$, $E_{C3} = E_{C7}$, $E_{C6} = E_{C8}$).

Вероватноће за дате исходе случајних коинциденција дефинисаних скупом (7.3.9) се могу рачунати множењем одговарајућих вероватноћа из скупа (7.3.7) који садржи 3 елемента,

$$\mathbf{P}_C = \mathbf{P} \otimes \mathbf{P} \quad (7.3.12)$$

где \otimes означава да се сваки елемент из скупа \mathbf{P} множи са сваким елементом из истог скупа. За конкретан пример:

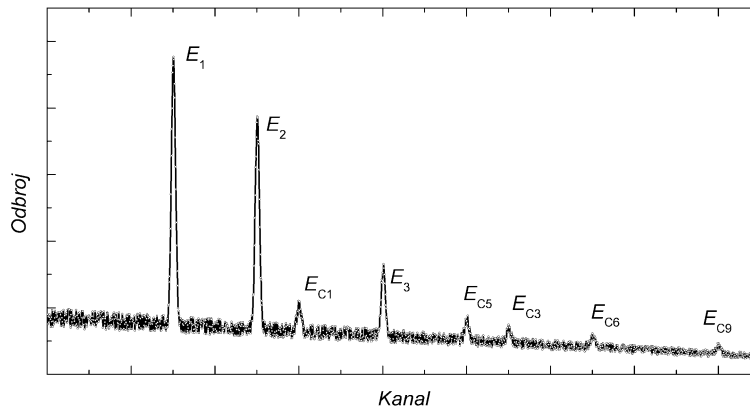
$$\begin{aligned} \mathbf{P}_C = \{P_1^2, P_1P_2, P_1P_3, P_2P_1, P_2^2, P_2P_3, P_3P_1, P_3P_2, P_3^2\} = \\ \{P_{C1}, P_{C2}, P_{C3}, P_{C4}, P_{C5}, P_{C6}, P_{C7}, P_{C8}, P_{C9}\} \end{aligned} \quad (7.3.13)$$

Конечна једначина бројања за за било који врх (регулатни, сумарни или *pile-up*), с обзиром на (7.3.1), (7.3.4), (7.3.5) и (7.3.13) на енергији E_i је дата са:

$$N(E_i) = AP_iL_\tau + \tau A^2 \left(\sum_j P_{Cj} \right)_{E_i} \quad (7.3.14)$$

где су P_{Cj} све вероватноће из скупа (7.3.13) са исходима на енергији E_i из скупа (7.3.9). У случају просте шеме распада датај на Слици 7.3 налазимо једначине бројања за све врхове који се могу појавити у спектру.

$$\begin{aligned} N(E_1) &= AP_1L_\tau \\ N(E_2) &= AP_2L_\tau \\ N(E_3) &= AP_3L_\tau + 2\tau A^2 P_1P_2 \\ N(E_{C1}) &= \tau A^2 P_1^2 \\ N(E_{C3}) &= 2\tau A^2 P_1P_3 \\ N(E_{C5}) &= \tau A^2 P_2^2 \\ N(E_{C6}) &= 2\tau A^2 P_2P_3 \\ N(E_{C9}) &= \tau A^2 P_3^2 \end{aligned} \quad (7.3.15)$$



Слика 7.4 Пример спектра са врховима пуне енергије (E_1, E_2), сумарним врхом (E_3) и *pile-up* врховима ($E_{C1}, E_{C3}, E_{C5}, E_{C6}, E_{C9}$) у којима је брзина бројања дата са (7.3.15).

На Слици 7.4 приказан је симулирани спектар где се појављују сви врхови дефинисани једначинама датим са (7.3.15).

7.3.1 Једначине бројања за ^{133}Ba

Према [55] за изотоп ^{133}Ba ако се узму у обзир и X-фотони који су резултат захвата електрона и интерне конверзије, скуп могућих енергија које одговарају потпуним апсорпцијама фотона садржи 167 елемената:

$$\mathbf{E} = \{E_1, E_2, \dots, E_{167}\}, \quad (7.3.1.1)$$

којима одговара скуп вероватноћа:

$$\mathbf{P} = \{P_1, P_2, \dots, P_n\} \quad (7.3.1.2)$$

Ако укључимо случајне коинциденције помоћу једначина (7.3.8) и (7.3.12) добијамо скуп који садржи 27889 елемената међу којима има 2369 различитих. Случајне коинциденције доносе 27889 различитих исхода са потпуним апсорпцијама фотона али са енергијама од којих су 2369 различите. Ово је утврђено анализом скупа у програму *Mathematica*. Ако се узму у обзир регуларни догађаји дефинисани скупом енергија (7.3.1.1) добијамо скуп од 2375 енергија:

$$\mathbf{E} = \{E_1, E_2, \dots, E_{2375}\} \quad (7.3.1.3)$$

од којих 6 врхова одговара потпуним апсорпцијама једног фотона без могућих доприноса случајних коинциденција, 161 су регуларни и сумарни врхови у којима је присутан допринос од правих и случајних коинциденција, а 2208 су чисти врхови случајних коинциденција, тј. *pile-up* врхови. Ако се размотри спектар извора ^{133}Ba добијен помоћу коаксијалног HPGe детектора (Слика 7.5) који има малу ефикасност у нискоенергетској области, заључујемо да није потребно разматрати цео скуп дефинисан са (7.3.1.3). Дакле иако теорија предвиђа 167 врхова у спектру, многи од њих биће веома слабог интензитета те се и њихове случајне коинциденције могу занемарити. У том смислу креиран је скуп који одговара енергијама емитованих фотона и најинтензивнијег сумарног врха:

$$\mathbf{E} = \{30.08, 35.3, 53.16, 79.61, 81.0, 160.61, 223.24, 276.4, 302.85, 356.01, 357.4, 383.85, 437.01\} \quad (5.24) \quad (7.3.1.4)$$

Сада према (7.3.8) помоћу скупа (7.3.1.4) налазимо скуп енергија које одговарају догађајима случајних коинциденција,

$$\mathbf{E}_C = \{61.6, 66.1, 70.6, 83.96, 88.46, 106.32, 110.41, 111.8, 114.91, 116.3, 132.77, 134.16, 159.22, 160.61, 162.0, 191.41, 195.91, 213.77, 240.22, 241.61, 254.04, 258.54, 276.4, 302.85, 304.24, 307.2, 311.7, 321.22, 329.56, 333.65, 338.15, 356.01, 357.4, 382.46, 383.85, 386.81, 388.2, 391.31, 392.7, 409.17, 410.56, 414.65, 419.15, 435.62, 437.01, 438.4, 446.48, 463.46, 464.85, 467.81, 472.31, 490.17, 499.64, 516.62, 518.01, 526.09, 544.46, 552.8, 579.25, 580.64, 597.62, 605.7, 607.09, 632.41, 633.8, 658.86, 660.25, 686.7, 712.02, 713.41, 714.8, 739.86, 741.25, 767.7, 793.02, 794.41, 820.86, 874.02\} \quad (7.3.1.5)$$

Енергије које су приказане укошеним словима у (7.3.1.5) односе се на врхове које могу настати само случајним коинциденцијама односно као резултат прихватања наседнутих сигнала (*pile-up*), док су преостале енергије иначе и резултат регуларних догађаја (право коинцидентно сумирање).

За случај ^{133}Ba , помоћу скупа (7.3.1.4) и (7.3.1.5) и процедуре описане у одељку 7.3. креиран је систем који укључује поправку на случајне коинциденције:

$$n(31) = N'(30.8)$$

$$n(35) = N'(35.3)$$

$$\begin{aligned}
n(53) &= N'(53.16) \\
n(81) &= N'(81.0) + N'(79.61) \\
n(161) &= N'(160.61) + N''(160.61) + N''(162.0) \\
n(223) &= N'(223.24) \\
n(276) &= N'(276.4) \\
n(303) &= N'(302.85) \\
n(356) &= N'(356.01) + N'(357.4) + N''(356.01) + N''(357.4) \\
n(384) &= N'(383.85) + N''(383.85) \\
n(437) &= N'(437.01) + N''(435.62) + N''(437.01) + N''(438.4) \\
n(712) &= N''(712.02) + N''(713.41) \\
n_r &= N_r \tag{7.3.1.6}
\end{aligned}$$

Као што се види систем (7.3.1.6), садржи додатну једначину на 712 keV што претставља чисти *pile-up* врх. Такође су присутни и додатни чланови у једначинама за допринос у регуларним врховима. У зависности од врсте детектора, систем једначина се може прилагодити експерименталним условима. На пример, уколико се користи детектор који има малу ефикасност за X-фотоне, треба само елементе који одговарају ефикасностима врха пуне енергије X-фотона на 31 и 35 keV у матрици ефикасности изједначити са нулом. Такође, уколико је спектар снимљен на мањим брзинама бројања и врх случајних коинциденција на 712 keV није уочљив, систем не треба модификовати него се као експериментални податак за брзину бројања у овом врху стави вредност нула.

За креирање и решавање система (7.3.1.6) написана је процедура помоћу програмског пакета *Mathematica* која је у целости дата у Прилогу Б. У оквиру одговарајућег програма, функција

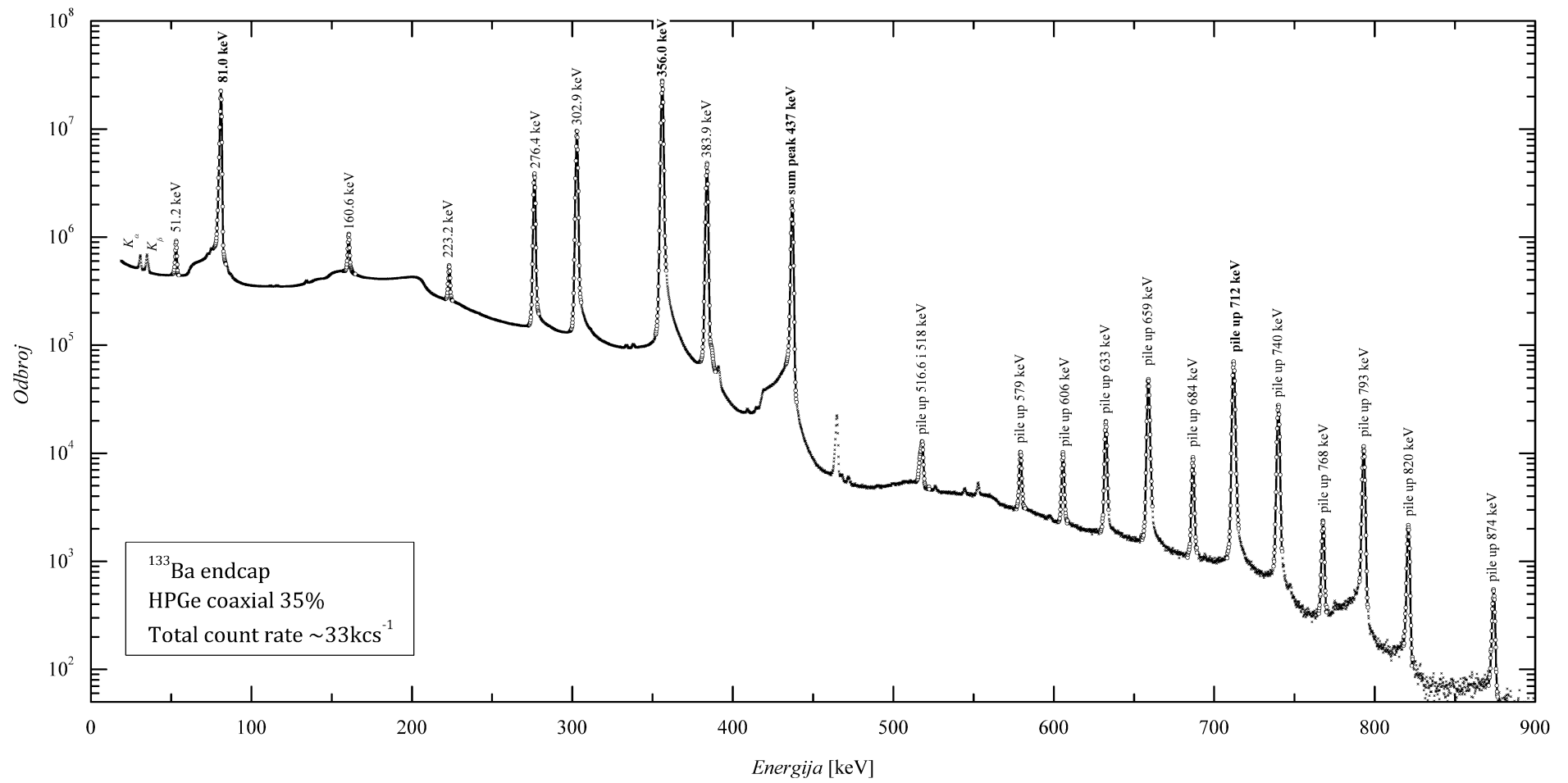
$$\text{resch}\{N53160_N81000_N160610_N223000_N276000_N302850_N356000_N383850_N437000_Npu_Nt_}\tag{7.3.1.7}$$

решава систем (7.3.1.6) у коме су ефикасности детекције X-фотона редуковане на нулу. У дату функцију треба унети одговарајуће брзине бројања на енергијама које су овде назначене у eV уз ознаку N (*net count rate*). N_{pu} се односи на *pile-up* врх на енергији 712 keV помоћу кога се практично врши корекција на случајне коинциденције. Уколико је у спектру врх на енергији 712 keV статистички безначајан, једноставно треба на место N_{pu} уписати нулу или веома мали број. Као решење за ефективно време резолуције спектрометра добиће се вредност блиска нули, што има смисао да је допринос случајних коинциденција у спектру безначајан. Ефективно време резолуције из спектралних података се може израчунати само ако су присутне случајне коинциденције у знатној мери. Иако се за корекцију на случајне коинциденције могао употребити било који други *pile-up* врх, врх на енергији 712 keV има највећи интензитет.

Са друге стране, решење које садржи могућност детекције X-фотона тражи се помоћу функције:

$$\text{reschX}\{N30800_N35300_N53160_N81000_N160610_N223000_N276000_N302850_N356000_N383850_N437000_Npu_Nt_}\tag{7.3.1.8}$$

Процедура која дефинише функцију за налажење активности извора ^{133}Ba на основу спектралних података где је укључена могућност детекције X-фотона такође је дата у Прилогу Б.



Слика 7.5 Гамма спектар тачкастог извора ^{133}Ba снимљен на капи коаксијалног HPGe детектора релативне ефикасности 35% у лабораторији за гамма спектрометрију Департмана за Физику у Новом Саду.

7.3.2 Поједностављени третман за изотоп ¹³³Ba

Систем једначина (7.3.1.6) је егзактан, међутим његово креирање и решавање захтева употребу одговарајућег софтвера. Знатно поједностављење анализе једначина бројања се добија ако се спектар снима на детектору који има малу ефикасност за X-фотоне. У том циљу уводимо редуковане ефикасности врха пуне енергије које дефинишемо са:

$$\tilde{\epsilon}_{i,f} = \frac{\epsilon_{i,f}}{1 + \alpha_{i,f}}, \quad (7.3.2.1)$$

где су $\alpha_{i,f}$ тотални конверзиони коефицијенти за прелаз из стања $i \rightarrow f$; $\epsilon_{i,f}$ су ефикасности врха пуне енергије за гама-фотон који се емитује у прелазу $i \rightarrow f$. Редуковане ефикасности овде уводимо јер се једначине за брзине бројања лакше креирају уколико се користе вероватноће прелаза, а не интензитети линија. У том смислу редуковане ефикасности се могу схватити као ефикасности детектора где је омотач језгра неактиван део детектора. Уколико дође до интерне конверзије, фотон није детектован. Слично уводимо редуковане тоталне ефикасности

$$\tilde{\eta}_{i,f} = \frac{\eta_{i,f}}{1 + \alpha_{i,f}} \quad (7.3.2.2)$$

где је $\eta_{i,f}$ тотална ефикасност за фотон емитован при прелазу $i \rightarrow f$.

Брзина бројања у врху на енергији 81 keV при чему сматрамо да се врх на енергији 79.6 keV не може раздвојити од врха на 81 keV, разматрајући све путање распада према шеми приказаној на Слици 7.2 и уведеним редукованим ефикасностима (7.3.2.1) и (7.3.2.2) је

$$N(81) = A\tilde{\epsilon}_{10} [p_{5410}(1 - \tilde{\eta}_{41}) + p_{54210}(1 - \tilde{\eta}_{42})(1 - \tilde{\eta}_{21}) + p_{54310}(1 - \tilde{\eta}_{43})(1 - \tilde{\eta}_{31}) + p_{543210}(1 - \tilde{\eta}_{43})(1 - \tilde{\eta}_{32})(1 - \tilde{\eta}_{21}) + p_{5310}(1 - \tilde{\eta}_{31}) + p_{53210}(1 - \tilde{\eta}_{32})(1 - \tilde{\eta}_{21})](1 + c_1)L_r \quad (7.3.2.3)$$

где индекси означавају одговарајуће путање; p је вероватноћа за реализацију путање која је назначена у индексу; c_1 је корекциони фактор који се узима у обзир ако врх на енергији од 79.6 keV није раздвојен од врха на енергији 81 keV са задовољавајућом тачношћу и дат је са:

$$c_1 = \frac{\left(1 - \frac{\eta_{41}}{1 + \alpha_{41}}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\eta_{42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{53210} \right) \right)}{p_{5410} \left(1 - \frac{\eta_{41}}{1 + \alpha_{41}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{31}}{1 + \alpha_{31}}\right) \left(p_{54310} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{5310} \right) + \left(1 - \frac{\eta_{21}}{1 + \alpha_{21}}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\eta_{42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{53210} \right) \right)} \quad (7.3.2.4)$$

где су η одговарајуће тоталне ефикасности.

Једначина за брзину бројања у врху на енергији 356 keV је:

$$N(356) = A(1 - \tilde{\eta}_{10})(p_{5410}\tilde{\epsilon}_{41} + p_{54210}\tilde{\epsilon}_{42}\tilde{\epsilon}_{21} + p_{54310}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{31} + p_{543210}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{32}\tilde{\epsilon}_{21})(1 + c_2)L_r \quad (7.3.2.5)$$

где је корекциони члан c_2 дат са:

$$c_2 = \frac{\frac{\varepsilon_1}{1+\alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1+\alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1+\alpha_{32}} \right)}{p_{5410} \frac{\varepsilon_{41}}{1+\alpha_{41}} + p_{54310} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{31}}{1+\alpha_{31}} + \frac{\varepsilon_1}{1+\alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1+\alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1+\alpha_{32}} \right)}, \quad (7.3.2.6)$$

а произилази из чињенице да догађаји потпуне апсорпције на енергији 357.4 keV који се не могу одвојити од догађаја на 356 keV који настају као резултат детекције фотона из прелаза $4 \rightarrow \dots \rightarrow 2$ и $1 \rightarrow 0$ без детекције фотона на енергији 79.6 keV.

Брзина бројања у сумарном врху на енергији 437 keV је:

$$N(437) = A(p_{5410} \tilde{\varepsilon}_{41} \tilde{\varepsilon}_{10} + p_{54210} \tilde{\varepsilon}_{42} \tilde{\varepsilon}_{21} \tilde{\varepsilon}_{10} + p_{54310} \tilde{\varepsilon}_{43} \tilde{\varepsilon}_{31} \tilde{\varepsilon}_{10} + p_{543210} \tilde{\varepsilon}_{43} \tilde{\varepsilon}_{32} \tilde{\varepsilon}_{21} \tilde{\varepsilon}_{10})(1+c_\Sigma)L_\tau + N_C \quad (7.3.2.7)$$

где је N_C допринос одброја у врху услед случајних коинциденција, а корекциони фактор је одређен са:

$$c_\Sigma = \frac{\frac{\varepsilon_{20}}{1+\alpha_{20}} \left(p_{54320} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1+\alpha_{32}} + p_{5420} \frac{\varepsilon_{42}}{1+\alpha_{42}} \right) + p_{5430} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{30}}{1+\alpha_{30}}}{\frac{\varepsilon_1}{1+\alpha_1} \left(p_{5410} \frac{\varepsilon_{41}}{1+\alpha_{41}} + p_{54310} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{31}}{1+\alpha_{31}} + \frac{\varepsilon_1}{1+\alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1+\alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1+\alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1+\alpha_{32}} \right) \right)} \quad (7.3.2.8)$$

и јавља се услед постојања *crossover* прелаза за прво побуђено стање. Тотална брзина бројања је:

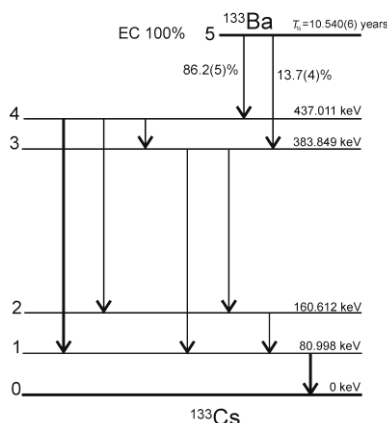
$$N_\tau = A(1 - [(1 - \tilde{\eta}_{10})(p_{5410}(1 - \tilde{\eta}_{41}) + p_{54210}(1 - \tilde{\eta}_{42})(1 - \tilde{\eta}_{21}) + p_{54310}(1 - \tilde{\eta}_{43})(1 - \tilde{\eta}_{31}) + p_{543210}(1 - \tilde{\eta}_{43})(1 - \tilde{\eta}_{32})(1 - \tilde{\eta}_{21}) + p_{5310}(1 - \tilde{\eta}_{31}) + p_{53210}(1 - \tilde{\eta}_{32})(1 - \tilde{\eta}_{21})])](1+c_\tau)) \quad (7.3.2.9)$$

где је корекциони фактор одређен са:

$$c_\tau = \frac{\left(1 - \frac{\eta_{30}}{1+\alpha_{30}}\right) \left(p_{5430} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1+\alpha_{43}}\right) + p_{530} \right) + \left(1 - \frac{\eta_{20}}{1+\alpha_{20}}\right) \left(p_{5420} \left(1 - \frac{\eta_{42}}{1+\alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{32}}{1+\alpha_{32}}\right) \left(p_{54320} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1+\alpha_{43}}\right) + p_{5320} \right) \right)}{\left(1 - \frac{\eta_1}{1+\alpha_1}\right) \left(p_{5410} \left(1 - \frac{\eta_{41}}{1+\alpha_{41}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{31}}{1+\alpha_{31}}\right) \left(p_{54310} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1+\alpha_{43}}\right) + p_{5310} \right) + \left(1 - \frac{\eta_1}{1+\alpha_1}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\eta_{42}}{1+\alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\eta_{32}}{1+\alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\eta_{43}}{1+\alpha_{43}}\right) + p_{53210} \right) \right) \right)} \quad (7.3.2.10)$$

и укључује све путање које садрже *crossover* прелаз за прво побуђено стање.

Уколико би сви корекциони фактори дати са (7.3.2.4), (7.3.2.6), (7.3.2.8) и (7.3.2.10) били једнаки нули шема распада изотопа ^{133}Ba би изгледала као на Слици 7.6. Систем према шеми на Слици 7.6 био би егзактно решив по активности, уз додатну претпоставку да се врхови на енергијама 356 keV и 357.4 keV као и 81 keV и 79.6 keV могу раздвојити.



Слика 7.6 Знатно упрошћена шема распада изотопа ^{133}Ba . Прелази $2 \rightarrow 0$ и $3 \rightarrow 0$ су изостављени.

Систем једначина (7.3.2.4), (7.3.2.6), (7.3.2.8) и (7.3.2.10) је написан тако да се уз помоћ корекције на допринос и губитке услед случајних коинциденција може егзактно решити по непознатој активности. Ако се за корекцију на случајне коинциденције користи врх на енергији 712 keV, који је превасходно резултат детекције два фотона од 356 keV унутар времена резолуције спектрометра, треба написати једначину за допринос случајних коинциденција у сумарном врху (437 keV) и једначину за одброј на 712 keV. Према (5.1.8), допринос случајних коинциденција у сумарном врху је:

$$N_c = 2N(712) \frac{N(81)}{N(356)} \quad (7.3.2.11)$$

Релација (5.1.7) се овде не може користити јер *pile-up* врх на енергији 162 keV који је резултат детекције два фотона енергије 81 keV се преклапа са регуларним врхом на 160.6 keV.

Корекције на губитке услед случајних коинциденција и ефективног времена резолуције спектрометра уводе се у једначине (7.3.2.3), (7.3.2.5), (7.3.2.7) помоћу (5.1.8) и (5.2.4) при чему се ефективно време резолуције спектрометра рачуна помоћу:

$$\tau_{\pm} = \frac{1}{N_T} \left(1 + \frac{N^2(356)}{2N_T N(712)} \left(1 \pm \sqrt{\frac{4N_T N(712)}{N^2(356)} + 1} \right) \right) \quad (7.3.2.12)$$

Уколико се у систем дефинисан једначинама (7.3.2.3), (7.3.2.5), (7.3.2.7) и (7.3.2.9) уведу експлицитни изрази (7.3.2.11), (7.3.2.1) и (7.3.2.12), добија се формула за израчунавање активности у којој фигуришу само спектрални подаци

$$A = N_T \left(c \left(\left(\frac{N(437)R(356)}{2N(712)N(81)} - 1 \right) \left(\sqrt{1 + \frac{4N_T N(712)}{N^2(356)} - 1} \right) \right)^{-1} + 1 \right). \quad (7.3.2.13)$$

Корекциони члан c који фигурише у (7.3.2.13) дат је преко појединачних корекционих чланова дефинисаним са (7.3.2.4), (7.3.2.6), (7.3.2.8) и (7.3.2.10):

$$c = \frac{(1+c_T)(1+c_{\Sigma})}{(1+c_1)(1+c_2)} \quad (7.3.2.14)$$

У корекционом фактору (7.3.2.14) фигуришу имплицитно вероватноће које се могу израчунати уз помоћ података из шеме распада изотопа ^{133}Ba као и ефикасности врха пуне енергије и тоталне ефикасности које је потребно измерити или израчунати помоћу Monte Carlo симулација за специфичну геометрију мерења и податке о детектору. За изотоп ^{133}Ba , параметри из шеме распада према [65, 77] су дати у Табели 7.1, а релевантни подаци за детектор у Табели 6.2.

Табела 7.1 Вероватноће за реализације путања у распаду изотопа ^{133}Ba према подацима из [65, 77].

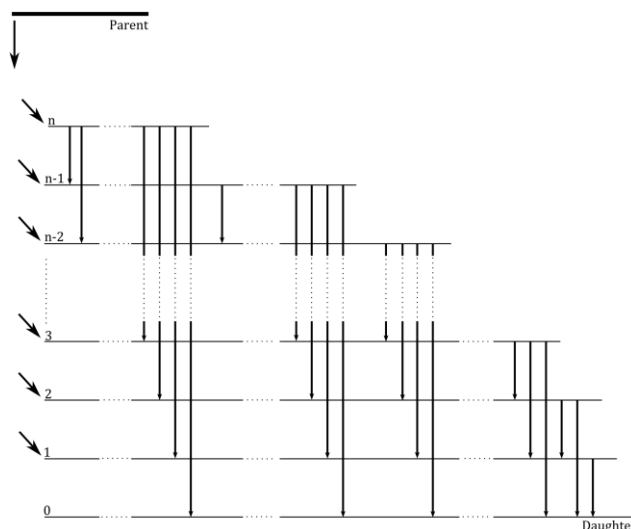
P_{5320}	0.000246(20)	P_{5430}	0.0477(20)
P_{54320}	0.000270(20)	P_{54210}	0.0685(26)
P_{53210}	0.00215(12)	P_{5310}	0.091(4)
P_{543210}	0.00235(14)	P_{54310}	0.100(4)
P_{5420}	0.0078(5)	P_{5410}	0.636(4)
P_{530}	0.0435(20)		

Уз помоћ пакета Geant 4 [69], рађене су Monte Carlo симулације спектра извора ^{133}Ba за неколико детектора. Овако добијени спектри коришћени су за израчунавање нумеричких вредности тоталних ефикасности и ефикасности врха пуне енергије које фигуришу у корекционим факторима. Експерименти су симулирани за извор у тачкастој геометрији који се налазио на капи коаксијалних HPGe детектора. Симулације су рађене за 3 детектора релативних ефикасности 35%, 100%, и 22%. Нумеричке вредности корекционих фактора за наведене детекторе и тачкасти извор стављен на капу детектора су редом: 1.090(18), 1.096(16) и 1.089(15) из чега се закључује да они слабо зависе од ефикасности детектора уколико су снимљени у истој геометрији, односно нумеричка вредност корекционог фактора је највише одређена параметрима из шеме распада. У циљу налажења мерне несигурности корекционих фактора нумеричке вредности за ефикасности врхова пуне енергије и тоталне ефикасности добијене Monte Carlo симулацијама су вариране у интервалу $\pm 10\%$.

7.4 Метод сумарног врха за сложене радиоизотопе

У претходном одељку на случају ^{133}Ba показано је да се једноставна формула за одређивање активности помоћу спектралних података може добити уводећи извесне корекционе чланове који се у најбољем случају рачунају Monte Carlo техником. Строго говорећи, метод у том смислу није апсолутан, али је свакако зависност мерене активности од израчунатих ефикасности и података из шеме распада сведена на минимум. На пример, варијација ефикасности врха пуне енергије и тоталних ефикасности у интервалу $\pm 10\%$ донела је мерну несигурност корекционог фактора око 1.7%. На примеру ^{133}Ba показано је да се за релативно сложени гама емитер може применити техника мерења активности на једном спектрометру обсервацијом два регуларна и једним сумарним врхом.

Као пример радиоизотопа са веома сложеном шемом распада, доступан као комерцијални стандард је изотоп ^{152}Eu . У циљу добијања општијих формула које ће касније бити примењене на изотоп ^{152}Eu разматрамо произвољну сложену шему распада датој на Слици 7.7.



Слика 7.7 Сложена шема распада.

Шема на Слици 7.7 се састоји од n -екситованих нивоа. Да би се извеле једначине бројања у врховима пуне апсорпције треба увести извесна ограничења у смислу шеме распада и експерименталне поставке:

- извор је тачкаст
- ефекти угаоних корелација емитованих фотона су занемарљиви
- случајне коинциденције су занемарљиве у односу на праве коинциденције
- β -честице, конверзиони електрони и X-зраци не могу бити детектовани
- средња времена живота ексцитованих стања су много мања од времена резолуције спектрометра
- сви емитовани фотони имају различите енергије

Претпоставимо да желимо да одредимо активност извора преко каскада $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, $4 \rightarrow 3 \rightarrow 0 \dots$ до $n \rightarrow n-1 \rightarrow 0$. У том циљу формирамо једначине бројања за релевантне врхове у спектру.

Према шеми распада на Слици 7.7 и горњим претпоставкама, брзина бројања у врху пуне енергије који одговара енергији гама-фотона емитованог при прелазу $1 \rightarrow 0$ је

$$N(1 \rightarrow 0) = A\tilde{\epsilon}_{1 \rightarrow 0}(p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1}) + p_{3 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 1}) + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})(1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1})) \quad (7.4.1)$$

где је A активност извора; $\tilde{\epsilon}$ означава редуковану ефикасност врха пуне енергије дефинисану са (7.3.2.1) за гама-фотон емитован при прелазу који је назначен у индексу; p се односи вероватноћу реализације путање која је такође назначена у индексу; $\tilde{\eta}$ се односи на редуковану тоталну ефикасност (деф. (7.3.2.2)) за гама-фотон назначен у индексу.

Слично, за врх на енергији који одговара фотону који се емитује при прелазу $2 \rightarrow 1$ брзина бројања је:

$$N(2 \rightarrow 1) = A\tilde{\epsilon}_{2 \rightarrow 1}(1 - \eta_{1 \rightarrow 0})(p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})). \quad (7.4.2)$$

Брзина бројања у сумарном врху који одговара разлици енергија другог побуђеног и основног стања потомка је

$$N_{\Sigma}(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0) = A\tilde{\mathcal{E}}_{2 \rightarrow 1}\tilde{\mathcal{E}}_{1 \rightarrow 0}(p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})), \quad (7.4.3)$$

при чему смо написали једначину без могућности детекције фотона емитованог при директном прелазу $2 \rightarrow 0$, што није реална ситуација, али једино тако написана једначина може учинити систем решивим.

Тотална брзина бројања која потиче од фотона који се емитују у путањама које садрже прелаз $1 \rightarrow 0$ је

$$N_D(1 \rightarrow 0) = A(P_{1 \rightarrow 0} - ((1 - \eta_{1 \rightarrow 0})(p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \eta_{2 \rightarrow 1}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \eta_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \eta_{2 \rightarrow 1}))) \quad (7.4.4)$$

где је задовољен услов

$$P_{1 \rightarrow 0} = p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} \quad (7.4.5)$$

који имао смисао да је вероватноћа за реализацију свих путања које садрже прелаз $1 \rightarrow 0$ једнака збиру вероватноћа за реализацију појединих путања са прелазом $1 \rightarrow 0$.

Из једначина (7.4.1), (7.4.2), (7.4.3) и (7.4.4) помоћу (7.4.5) могуће је елиминисати ефикасности врха пуне енергије и тоталне ефикасности чиме се добија:

$$AP_{1 \rightarrow 0} = N_D(1 \rightarrow 0) + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(2 \rightarrow 1)}{N_{\Sigma}(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \quad (7.4.6)$$

Изведена формула (7.4.6) може бити уопштена за било коју каскаду из шеме на Слици 7.7, која укључује прелаз у основно стање потомка:

$$AP_{i \rightarrow 0} = N_D(i \rightarrow 0) + \frac{N(i \rightarrow 0)N(i+1 \rightarrow i)}{N_{\Sigma}(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)} \quad (7.4.7)$$

где индекс i узима вредности $i = \{1, 2, 3, \dots, n-1\}$. Међутим, $N(i \rightarrow 0)$, $N(i+1 \rightarrow i)$ и $N_{\Sigma}(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)$ у једначини (7.4.7) се односе на спектралне податке који потичу само из каскаде $i+1 \rightarrow i \rightarrow 0$ чиме нису исцрпљени сви могући исходи, јер се одброј под врхом пуне енергије који одговара фотону нпр. $i+1 \rightarrow i$ може добити из путање која не садржи само прелаз $i \rightarrow 0$, већ и нпр. $1 \rightarrow 0$, па у том смислу формула (7.4.7) има извесна ограничења за примену на једном спектрометру, јер емисије фотона из различитих путања са истом сумом енергија могу резултирати у одброју под истим врхом пуне енергије. Због тога, да би формула (7.4.7) била применљива, треба кориговати брзине бројања у врховима само на догађаје који фигуришу у заградама (7.4.7).

Ако претпоставимо да нема распада у основно стање потомака добијамо услов:

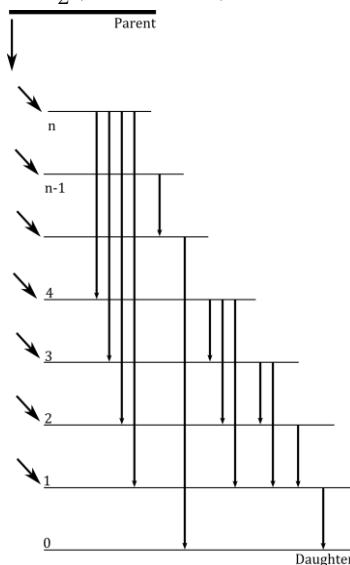
$$\sum_{i=1}^{n-1} P_{i \rightarrow 0} = 1 \quad (7.4.8)$$

Сумирајући леву и десну страну једначине (7.4.7) по индексу i

$$A \sum_{i=1}^{n-1} P_i = \sum_{i=1}^{n-1} \left(N_D(i \rightarrow 0) + \frac{N(i \rightarrow 0)N(i+1 \rightarrow i)}{N_{\Sigma}(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)} \right) \quad (7.4.9)$$

добиамо формула за мерење активности

$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(2 \rightarrow 1)}{N_\Sigma(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0)} + \frac{N(3 \rightarrow 2)N(2 \rightarrow 0)}{N_\Sigma(3 \rightarrow 2 \rightarrow 0)} + \dots + \frac{N(n \rightarrow n-1)N(n-1 \rightarrow 0)}{N_\Sigma(n \rightarrow n-1 \rightarrow 0)}. \quad (7.4.10)$$



Слика 7.8 Специфична шема распада која се може егзактно решити по активности

Због ограничења која се односе на добијање информације из спектралних података о брзини бројања за догађаје који су назначени у заградама Формуле (7.4.10), овако дефинисани метод даје увид у приступ решавању проблема мерења апсолутне активности сложених емитера помоћу једног детектора, а не и егзактан начин за мерење активности. У практичном смислу, *crossover* за каскаду од интереса може бити веома слаб (случај изотопа ^{60}Co), па се формула (7.4.10) може егзактно применити, тј своди се на Формулу (4.6).

Смисао члана N_D је број детектованих распада у јединици времена, а одређује се из тоталне брзине бројања. Остали чланови означавају не-детектоване распаде у јединици времена, а одређују се помоћу сумарних врхова и врхова пуне енергије фотона који се емитију у одговарајућој каскади. Шема распада претстављена на Слици 7.7 је најопштији случај у смислу постојања свих могућих прелаза између ексцитованих стања, тако да уз крајњу претпоставку да не постоји ни један *crossover* прелаз за прво побуђено стање, тј. да се сви ексцитовани нивои празне кроз путање које садрже прелаз $1 \rightarrow 0$ једначина (7.4.10) се своди на:

$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_\Sigma(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \quad (7.4.11)$$

која је егзактна, где индекс узима вредности $i = \{2,3,4,\dots,n\}$ и све брзине бројања могу бити одређене из одговарајућих врхова, а сумарни врх може бити произвољно изабран, односно онај који је најинтензивнији и не интерферира са неким врхом.

Ако се уведу извесна ограничења или поједностављења као у шеми распада датој на Слици 7.8, формула (7.4.10) може донети егзактну формулу за активност ако постоји више деекситација у основно стање потомка. На пример, ако постоје два директна прелаза у основно стање потомка при чему су путање које садрже ова два прелаза потпуно независне, тј. нема истих фотона који се емитију у оба случаја, што је приказано на Слици 7.8, следи формула за мерење активности:

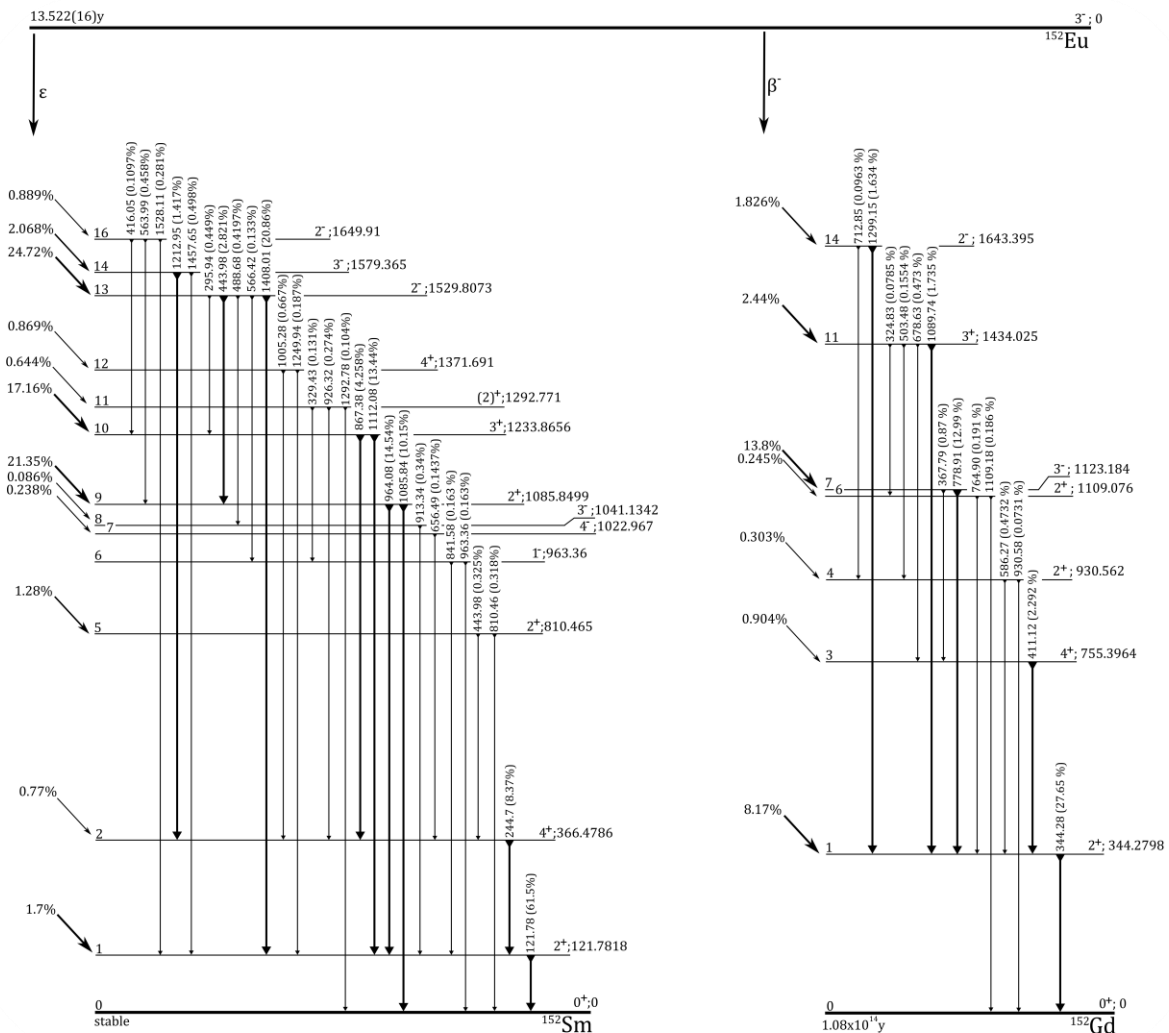
$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_{\Sigma}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} + \frac{N(5 \rightarrow 4)N(4 \rightarrow 0)}{N_{\Sigma}(5 \rightarrow 4 \rightarrow 0)}, \quad (7.4.12)$$

где је индекс $i = \{2,3,6\}$, тј. постоје три различита сумарна врха, па се коинцидентно бројање може одредити из произвољних сумарних врхова.

Разматрајући сложену и специфичну шему распада дату на Сликама 7.7 и 7.8, дата је принципијална процедура којом треба приступити сложеним шемама распада у циљу добијања једноставне формуле за мерење активности помоћу гама-спектра добијеним једним детектором.

7.4.1 Могућност примене коинцидентне методе на једном детектору за изотоп ^{152}Eu

Изотоп ^{152}Eu се распада захватом електрона у ^{152}Sm и емисијом β -честице у ^{152}Gd . Поједностављена шема распада према [79] је приказана на Слици 7.9.



Слика 7.9 Упростиена шема распада ^{152}Eu . Вероватноће у заградама се односе на вероватноће прелаза (емисија фотона+конверзиони електрони)

С обзиром да се изотоп ^{152}Eu распада пуем захвата електрона или емисијом бета честице, постоје две независне шеме распада које припадају различитим потомцима.

При емисији бета честице изотоп ^{152}Eu се распада у неко од ексцитованог стања ^{152}Gd која се у већини случајева празне емисијом фотона или конверзионих електрона преко првог побуђеног стања. Уколико се реализује бета распад, само 0.9% иде преко два *crossover* за прво побуђено стање ^{152}Gd .

У циљу разматрања могућности примене методе сумарног врха за извор ^{152}Eu , уводимо апроксимацију да при реализацији бета распада све деексцитације иду преко првог побуђеног стања ^{152}Gd .

При захвату електрона, изотоп ^{152}Eu се распада у неко од ексцитованих стања ^{152}Sm , међутим и овде уочавамо да се потомак деексцитује у основно стање највише преко прелаза $1 \rightarrow 0$ и $9 \rightarrow 0$ тј. укупно у 99% случајева. Вероватноћа за деексцитацију кроз прелазе $5 \rightarrow 0$, $6 \rightarrow 0$ и $11 \rightarrow 0$ је мања од 1%. С обзиром на ове чињенице, у циљу извођења формула за мерење активности преко сумарних врхова, уводимо апроксимацију да распад ^{152}Eu иде кроз путање које садрже само прелазе $1 \rightarrow 0$ и $9 \rightarrow 0$ при захвату електрона у ^{152}Sm и $1 \rightarrow 0$ при емисији бета честице у ^{152}Gd , чиме се добија услов:

$$p_{1,0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) + p_{9,0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) + p_{1,0}^{\text{Gd}}(\gamma + ce) = 0.993(12) \square 1 \quad (7.4.1.1)$$

где се ознака p односи на вероватноћу реализације прелаза у основно стање потомака (интерна конверзија+емисија фотона).

Ако се описани поступак за налажење формуле за активност описан у претходном одељку примени на шему распада изотопа ^{152}Eu према Слици 7.9, активност се мери преко три каскаде, тј формула за активност је:

$$A = N_D + \left(\frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_{\Sigma}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{N(9 \rightarrow 0)N(j \rightarrow 0)}{N_{\Sigma}(j \rightarrow 9 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{N(1 \rightarrow 0)N(k \rightarrow 1)}{N_{\Sigma}(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Gd}} \quad (7.4.1.2)$$

где се критеријуми за одређивање индекса i , j и k најбоље могу сагледати упоређивањем просте шеме датој на Слици 7.7 и упрошћене шеме ^{152}Eu на Слици 7.9

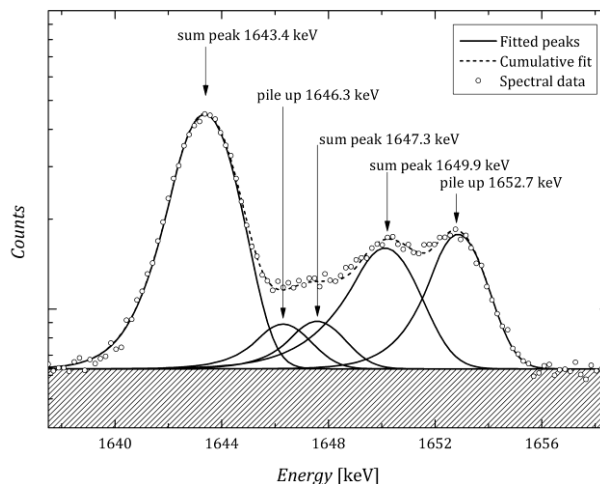
Индекс i може узимати вредности 2, 7, 8, 10, 12, 13 и 14, јер ексцитована стања којима одговарају ови бројеви немају директан *crossover* за прво побуђено стање. Међутим, с обзиром на интензитете прелаза, индекси 2 и 10 су добар избор јер каскаде $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ и $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ имају довољно интензивне емисије фотона и имају само два фотона који се емитују и при реализацији $9 \rightarrow 0$. То су фотони који се емитују при прелазу $13 \rightarrow 9$ и $16 \rightarrow 9$, и веома су слабог интензитета, 2.8% и 0.45% респективно.

Закључујемо да индекс j може имати вредности 13 и 16, али је једини избор 16 јер за каскаду $13 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ одговара сумарни врх на енергији 1529.8 keV који на већим брзинама бројања може интерферирати са регуларним врхом на енергији 1528.1 keV.

Индекс k може имати вредности 3, 7 и 11 због тога што ови немају *crossover* за прво побуђено стање ^{152}Gd . Прелаз $14 \rightarrow 1$ има велики интензитет, али има *crossover* слабог интензитета који није уцртан на шеми приказаној на Слици 7.9.

Брзине бројања које фигуришу у првом, другом и четвртном члану у једначини (7.4.1.2) могу бити одређени из спектралних података, док трећи члан може захтевати извесне корекције. Брзине бројања у врховима на енергијама 1085.8 keV, 564 keV и 1649.8 keV такође настају из путања које садрже прелаз $1 \rightarrow 0$ из Sm-152. Због тога је рачуната корекција за трећи члан у једначини (7.4.1.2) ослањајући се на функцију ефикасности врха пуне енергије за коаксијални HPGe детектор. Израчунавања су показала да је корекциони фактор којим треба помножити трећи члан у формули (7.4.1.2) између 0.95 и 1.05 што зависи од растојања извор-детектор. Међутим, знајући

вероватноће емисије гама-фотона при прелазу $9 \rightarrow 0$ ^{152}Sm , која износи 10.15%, следи да корекциони члан примењен на једначину (7.4.1.2) побољшава резултат активности за око 5%. Са друге стране, одговарајући сумарни врх на енергији 1649.8 keV јако интерферира са осталим врховима што уноси велику несигурност у одређивању површине, минимално око 10% (Слика 7.10). У том смислу корекција на трећи члан може бити непотребна.



Слика 7.10 Спектрални подаци ^{152}Eu добијени помоћу HPGe детектора у области сумарног врха на енергији 1649.9 keV.

С озиром на разматрања, Формула (7.4.1.2) је апроксимативна, али се ипак може проценити њена несигурност услед учињених апроксимација. Апроксимација у смислу занемаривања неколико прелаза, што је изражено преко Формуле (7.4.1.1) уноси несигурност од око 1%, док у идеалном случају где су површине врхова одређене са несигурношћу мањом од 0.1%, уз корекцију на трећи члан, добијамо укупну несигурност око 1.5%, што је врло добра апроксимација.

Узимајући у обзир апроксимацију изражену Формулом (7.4.1.1) и мерне несигурности вероватноћа прелаза $1 \rightarrow 0$, $9 \rightarrow 0$ ^{152}Sm и $1 \rightarrow 0$ ^{152}Gd [79] следи процењена грешка модела на око 1.5%. Такође је јасно да се за мерење апсолутне активности мора користити барем три сумарна врха. Међутим усложњавање модела настаје уколико се разматра распрострањени извор, случајне коинциденције и угаоне корелације.

7.4.2 Проблем са распрострањеним узорцима

У циљу једноставности, овде се разматра гама емитер који емитује при распаду два фотона у каскади са занемарљивим ефектом угаоних корелација. Такође сматрамо да је активност униформно распрострањена по запремини узорка. Ако извор изделимо на n тачкастих извора са једнаким активностима, следи формула за активност елементарног извора методом сумарног врха:

$$a_i = A/n = N_D^i + \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i}, \quad (7.4.2.1)$$

где су N_1^i , N_2^i брзине у врховима пуне енергије елементарног извора и N_Σ^i је њима одговарајући сумарни врх. N_T^i је укупан одброј који потиче од i – тог извора. Сумирањем активности које одговарају сваком елементарном извору, укупна активност распрострањеног извора је:

$$A = N_D + \sum_{i=1}^n \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i}. \quad (7.4.2.2)$$

Међутим, спектрални подаци су интегрални тако да се информација о одброју сваког елементарног извора не може добити из спектралних података. Укупни одброји под врховима пуне енергије и сумарном врху се могу исказати преко формула:

$$N_1 = \sum_{i=1}^n N_1^i \quad (7.4.2.3)$$

$$N_2 = \sum_{i=1}^n N_2^i \quad (7.4.2.4)$$

и

$$N_\Sigma = \sum_{i=1}^n N_\Sigma^i. \quad (7.4.2.5)$$

при чему следи неједнакост због варијације ефикасности:

$$\sum_{i=1}^n \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i} \neq \frac{\sum_{i=1}^n N_1^i \sum_{i=1}^n N_2^i}{\sum_{i=1}^n N_\Sigma^i}. \quad (7.4.2.6)$$

Из овог разматрања може се закључити да егзактна формула за мерење активности распрострањених извора преко спектралних података не постоји. Међутим у специјалном случају ако претпоставимо да је испуњен један од услова

$$\frac{N_1^i}{N_\Sigma^i} = const. \quad (7.4.2.7)$$

или

$$\frac{N_2^i}{N_\Sigma^i} = const. \quad (7.4.2.8)$$

неједнакост у Једначини (7.4.2.6) може бити замењена једнакошћу. То значи да је активност распрострањеног узорка мерљива једначином

$$A = N_T + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma} \quad (7.4.2.9)$$

где су N_1 , N_2 брзине у врховима пуне енергије и N_Σ је њима одговарајући сумарни врх. N_T је укупан одброј који потиче од распрострањеног узорка.

Експлицитна једначина за брзину бројања у врху пуне енергије ако занемаримо ефекат угаоних корелација, разматрајући једноставан емитер са два каскадна фотона, за елементарни извор је:

$$N_1^i = a\varepsilon_1^i (1 - \eta_2^i), \quad (7.4.2.10)$$

док је одброј у сумарном врху

$$N_{\Sigma}^i = a\varepsilon_1^i\varepsilon_2^i, \quad (7.4.2.11)$$

где ε_1^i , ε_2^i , и η_2^i означавају ефикасности врхова пуне енергије и тоталне ефикасности за први и други фотон емитован у каскади. Следи израз за однос одброја у врху пуне енергије према одброју у сумарном врху

$$\frac{N_1^i}{N_{\Sigma}^i} = \frac{1-\eta_2^i}{\varepsilon_2^i}. \quad (7.4.2.12)$$

Из горње дискусије, а такође и разматрајући Једначину (7.4.2.12) може се закључити да веће варијације ефикасности унутар запремине узорка ће узроковати веће неслагање праве и мерене активности уколико се Формула (7.4.2.9) примени на мерење активности распрострањеног узорка.

7.4.3 Ефективне угаоне корелације изотопа ^{152}Eu

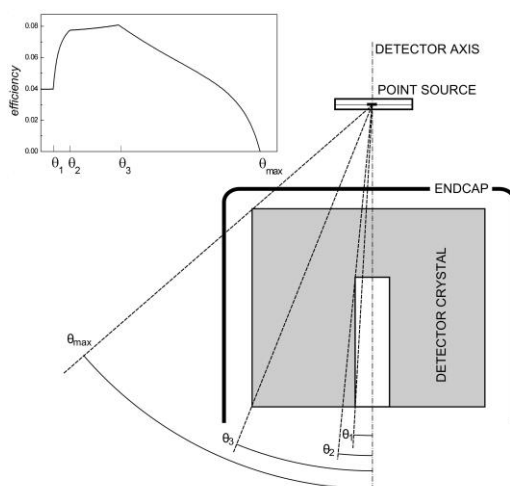
Ефективне угаоне корелације изотопа ^{152}Eu не уносе значајне корекције у рачуну ефикасности врха пуне енергије у присуству правог коинцидентног сумирања[64]. Међутим, мерење активности методом сумарног врха могу захтевати рачун поправке на ефективне угаоне корелације што зависи од експерименталне поставке. Активност за двофотонске гама емитере мерена методом сумарног врха директно је пропорционална корекционом фактору на ефективне угаоне корелације. Ово се може уопштити за сложене емитере уколико су одброји у релевантним врховима пуне енергије преваходно резултат детекције једног фотона, а одброји у сумарном врху резултат детекције два фотона. У овом случају, уз апроксимацију да спектрометар има малу ефикасност за х-фотоне који се емитију при распаду, једначина за активност се може уопштити на сложен емитер:

$$A = \sum_{i=1}^n \sum_k \left(\frac{N_1^{ik} N_2^{ik}}{N_{\Sigma}^{ik}} + N_D^{ik} \right) w_{ik} \quad (7.4.3.1)$$

где i означава сумирање преко свих елементарних двофотонских извора, док k означава сумирање преко запремине распрострањеног извора. N_1^{ik} и N_2^{ik} су брзине бројања услед потпуне апсорпције фотона из елементарног извора, док је N_{Σ}^{ik} брзина бројања правих коинциденција емитованих фотона од елементарних извора. N_D^{ik} је тотална брзина бројања која потиче из одређене каскаде на одговарајућој позицији; w_{ik} је корекциони члан за ефективне угаоне корелације који се односи на одговарајућу каскаду. У случају ^{152}Eu , највећи проблеми се јављају због чињенице да каскаде преко којих се може вршити мерење могу долазити из различитих путања које садрже емисију више фотона. Међутим ако размотримо целокупну шему распада ^{152}Eu и одговарајуће вероватноће за реализације одређених путања, израчунавања су показала да се 9.2% путање $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, 96.7% путање $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ и 100% путање $16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ у шеми изотопа ^{152}Sm реализује кроз емисију два фотона. Штавише, 39% путање $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, 99,5% путање $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ и 98.3% путање $11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ у потомку ^{152}Gd се реализује кроз двофотонску емисију. Повећавањем растојања извора од капе детектора, вероватноћа за не детекцију фотона који су емитовани симултано са двоструком каскадом ће бити ближа јединици, а вероватноћа за детекцију троструке каскаде ће бити занемарљива. Ово имплицира да ће модел

угаоних корелација двоструких каскада бити тачнији на већем растојању извора од детектора.

Рачун функције ефективних угаоних корелације захтева теоријска израчунавања ефикасности за све могуће упадне углове и све енергије гама зрака услед коначне величине детектора. Функција релативне ефикасности у зависности од угла за дату енергију може се добити техником Monte Carlo или употребом експоненцијалног закона апсорпције гама зрачења. Иако је модел експоненцијалног закона апсорпције гама зрачења веома поједностављена слика интеракције гама зрачења са материјалом и кристалом детектора, он ипак доноси релативне ефикасности у случају извора ^{60}Co које су довољне за израчунавање ефективних угаоних корелација са грешком мањом од 1% [47]. У експериментима са ^{152}Eu , тачкасти извори су постављани дуж осе детектора. Због тога је функција (6.1.13) одређена у назначеним доменама и границама интеграције (6.1.14) користећи се подацима о детектору који су дати уз документацију произвођача. За рачун ефикасности врха пуне енергије у функцији упадног угла је коришћена NIST-ова база податка за атенуационе коефицијенте за германијум и густина германијума (5.323 g/cm^3). Типичан облик функције ефикасности у зависности од упадног угла гама зрака је представљена на Слици 7.11.



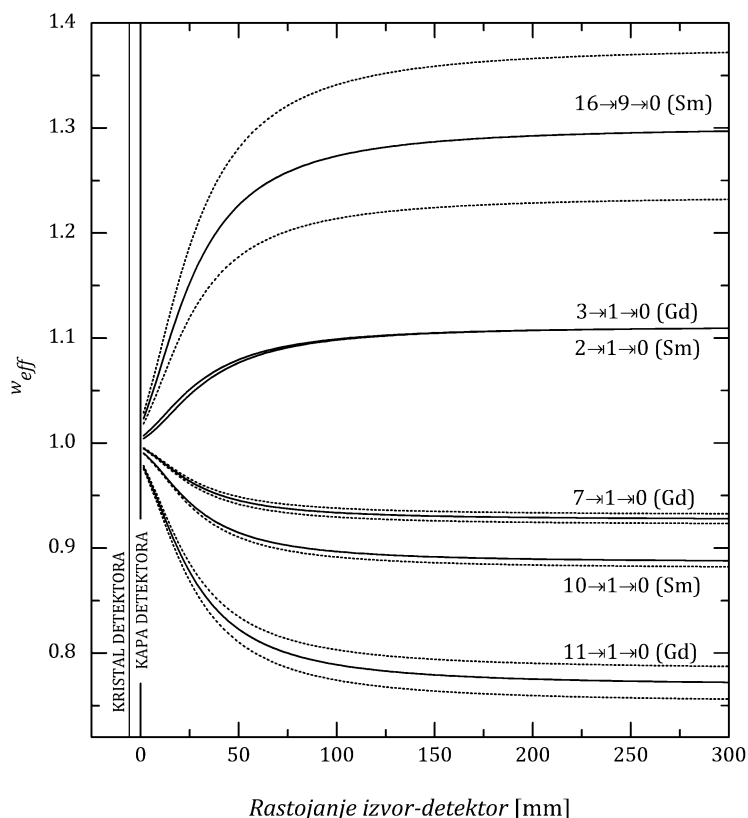
Слика 7.11 Експеримент са тачкастом геометријом. Назначени углови означавају различите домене функције ефикасности и границе интеграције.

За рачун функције угаоних корелација за одређену каскаду потребно је одредити коефицијенте угаоних корелација. Они се могу рачунати користећи се подацима о спиновима нивоа, мултиполарности прелаза, односима мешања и табличним подацима F -коефицијената. Деекситације $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Gd) и $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Sm) састоји се од чистих E2 прелаза, па су због тога коефицијенти угаоних корелација врло тачно одређени. Са друге стране, остале каскаде се састоје од мешаних прелаза па су коефицијенти угаоних корелација јако зависни од односа мешања. У Табели 7.2 су приказани коефицијенти угаоних корелација добијени за релевантне каскаде за мерење активности извора ^{152}Eu . Грешке коефицијената угаоних корелација потичу од мерне несигурности односа мешања.

Табела 7.2. Коefицијенти угаоних корелација неких каскада изотопа ^{152}Eu .

Прелаз	Каскада	Однос мешања δ	A_{22}	A_{44}
$2 \xrightarrow[245\text{keV}]{E2} 1 \xrightarrow[122\text{keV}]{E2} 0(\text{Sm})$	4(2)2(2)0	0	0.1020	0.0091
$3 \xrightarrow[411\text{keV}]{E2} 1 \xrightarrow[344\text{keV}]{E2} 0(\text{Gd})$	4(2)2(2)0	0	0.1020	0.0091
$7 \xrightarrow[779\text{keV}]{E1+M2} 1 \xrightarrow[344\text{keV}]{E2} 0(\text{Gd})$	3(1)2(2)0	0.002(6)	-0.0730(47)	/
$11 \xrightarrow[1090\text{keV}]{M1+E2} 1 \xrightarrow[344\text{keV}]{E2} 0(\text{Gd})$	3(1)2(2)0	$+29^{+42}_{-11}$	-0.231(16)	/
$10 \xrightarrow[1112\text{keV}]{M1+E2} 1 \xrightarrow[122\text{keV}]{E2} 0(\text{Sm})$	3(1)2(2)0	-8.7(6)	-0.1136^{+67}_{-58}	/
$16 \xrightarrow[564\text{keV}]{E1+M2} 9 \xrightarrow[1086\text{keV}]{E2} 0(\text{Sm})$	2(1)2(2)0	$+0.07^{+11}_{-9}$	0.299^{+68}_{-64}	/

За рачун корекционих чланова на ефективне угаоне корелације овде је коришћена процедура која је написана у програму *Mathematica* [Прилог А]. На Слици 7.12 су приказане добијене функције ефективних угаоних корелација у зависности од растојања извора од капе детектора за γ -каскаде изотопа ^{152}Eu које су коришћене у мерењима. Као што се види на Слици 7.12, поправка на ефективне угаоне корелације може имати вредност већу или мању од један. Уколико правац емисије другог фотона емитованог у каскади има тенденцију да прати правац емисије првог фотона поправка је већа од један, што резултира у већој вероватноћи правог коинцидентног сумирања. Супротно, ако правац емисије другог фотона емитованог у каскади има тенденцију да прати правац нормалан на правац емисије првог фотона, вероватноћа правог коинцидентног сумирања је мања, тј. поправка на ефективне угаоне корелације је мања од један.



Слика 7.12 Ефективне угаоне корелације каскадних фотона емитованих из тачкастог извора ^{152}Eu за разна растојања извора од капе детектора. Функције су добијене помоћу закона апсорпције гама зрачења и нумеричких интеграција. Црткане линије означавају горње и доње границе апсолутних грешака функције угаоних корелација које су узрок несигурности односа мешања.

7.4.4 Случајне коинциденције у спектралним подацима извора ^{152}Eu

Мерења на великим брзинама бројања могу утицати на квалитет спектра што се манифестује у неправилним облицима врхова пуне енергије као и губицима у одбројима под врховима пуне енергије. Међутим, DSP спектроскопске јединице са опцијом за одбацивање наседајућих сигнала доста добро коригују податке на мртво време и наседање сигнала. Ипак и при укљученом колу за одбацивање наседајућих сигнала дисторзија врхова може бити и даље присутна што зависи од брзине бројања. Scates i Harwell [19] су демонстрирали тачност кола за корекцију на наседање сигнала и мртво време на истој спектроскопској јединици која је коришћена у овим истраживањима. Њихови тестови су показали да грешке у брзинама бројања у врховима пуне енергије у спектру извора ^{152}Eu не превазилазе 5% уколико брзина бројања не превазилази 255 kHz. Међутим, проблем са наседањем сигнала на овим брзинама је доста изражен, јер брзо коинцидентно коло за корекцију наседнутих сигнала има своје време резолуције. У методи сумарног врха најважнији подаци су брзине бројања у сумарним врховима где могу бити присутни одброји услед случајних коинциденција. У том смиуслу потребно је вршити корекције сумарних врхова на случајне коинциденције. Такође су могући доприноси случајних коинциденција у спектралном коинтинууму. Уколико се активност извора жели добити само из спектралних података морају се користити врхови случајних коинциденција како би се добила информација о ефективном времену резолуције. У случају извора ^{152}Eu пажљивом анализом је нађено да је добро дефинисан врх случајних коинциденција на енергији 1742.3 keV. Он настаје потпуном апсорпцијом фотона енергије 344.3 keV емитованог из ^{152}Gd и апсорпцијом фотона енергије 1408 keV емитованог из ^{152}Sm . Услед тога што ови фотони потичу из различитих потомака јасно је да је врх на енергији 1752.3 keV резултат само случајних коинциденција. На основу разматрања о случајним коинциденцијама у Одељку 5 следи да је ефективно време резолуције на основу спектралних података извора ^{152}Eu

$$\tau = \frac{1}{N_D} \left(1 + \frac{N(344.3)N(1408)}{2N_D N(1752.3)} \left(1 - \sqrt{\frac{4N_D(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right) \right), \quad (7.4.4.1)$$

где N означава брзину бројања у врху на енергији која је назначена у загради.

Брзина бројања у врху случајних коинциденција у сумарном врху на енергији $E_1 + E_2$ је

$$N_c(E_1 + E_2) = 2(2\tau)N'(E_1)N'(E_2), \quad (7.4.4.2)$$

где су $N'(E_1)$ и $N'(E_2)$ кориговане брзине бројање на губитке услед случајних коинциденција. Уколико се искористи ефективно време резолуције дато са (5.2.4) налазимо допринос случајних коинциденција у сумарном врху

$$N_c(E_1 + E_2) = \frac{N(1752.3)N(E_1)N(E_2)}{N(344.3)N(1408)}, \quad (7.4.4.3)$$

где N означава мерене брзине бројања у одговарајућим врховима. Из ових разматрања следи да је корекције на допринос случајних коинциденција у одговарајућим сумарним врховима могуће извршити само на основу спектралних података.

На већим брзинама бројања постоји вероватноћа да два некорелисана догађаја могу бити детектована унутар времена резолуције спектрометра, што може довести до

губитка одброја у регуларним врховима. Губици услед наседања сигнала који доприносе спектралном континууму могу се израчунати користећи се ефективним временом резолуције и тоталном брзином бројања

$$L_{\tau} = 1 - \tau N_D \quad (7.4.4.4)$$

Међутим, иако се очекује да корекције на губитке побољшавају квалитет података, на великим брзинама бројања остаје проблем са интерференцијом врхова.

7.4.5 Једначине за мерење апсолутне активности ^{152}Eu

Изведена једначина (7.4.1.2) за апсолутно мерење активности извора ^{152}Eu је у извесном смислу ограничена јер не садржи корекционе факторе за угаоне корелације и губитке и доприносе у врховима услед случајних коинциденција. Према разматрањима о случајним догађајима, корекције на случајне коинциденције се врло лако могу уградити у формулу за активност. Корекције на ефективне угаоне корелације се такође могу додати у полазне једначине ако претпоставимо да:

- Одброј у сумарним врховима је резултат детекције само двоструких каскада
- Корекције на ефективне угаоне корелације су уграђене само у формуле за сумарне врхове, а не и у врхове пуне енергије и тоталну брзину бројања
- Сумирање са X-зрацима је занемарљиво
- Ефикасности и угаоне корелације су исте унутар малог распрострањеног извора.

Сада, уколико користимо наведене претпоставке и искористимо сва разматрања у претходном одељку, може се показати да формула за мерење апсолутне активности има облик

$$A = N_D + \left(\frac{w_{eff}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{\frac{N_{\Sigma}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(121.8)N(i \rightarrow 1)} - \frac{N_C(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{Sm} L_{\tau}^{-1} + \left(\frac{w_{eff}(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0)}{\frac{N_{\Sigma}(1649.8)}{N(564)N(1085.8)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{Sm} L_{\tau}^{-1} + \left(\frac{w_{eff}(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{\frac{N_{\Sigma}(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(344.3)N(k \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{Cd} L_{\tau}^{-1} \quad (7.4.4.5)$$

где је N мерена брзина бројања у врху под енергијом која је означена у загради; w_{eff} означава поправку на ефективне угаоне корелације за одговарајућу позицију детектор-извор; N_D је тотална брзина бројања и L_{τ} фактор за губитке у врховима на случајне коинциденције који се рачуна помоћу (7.4.4.1) и (7.4.4.4).

Формула (7.4.4.5) која је овде изведена за апсолутно мерење активности захтева одређивање површине 6 регуларних врхова, три сумарна врха и укупне површине спектра. Такође потребно је израчунати фактор за ефективне угаоне корелације за одговарајућу каскаду. Додатно, потребно је извршити и корекције на губитке у врховима на случајне коинциденције помоћу врха случајних коинциденција на енергији 1752.3 keV и регуларног врха на енергији 1408 keV.

7.4.6 Једначине за директно мерење апсолутне активности ^{152}Eu

Док су проблеми извођења тоталне брзине бројања које потичу из елементарних извора и елиминација тоталних вероватноћа прелаза превазиђени сумирањем три члана који одговарају недетектованим распадима, трећи члан у Формули (7.4.4.5) доноси највећу несигурност јер се врх на 1649.8 keV преклапа са другим врховима (Слика 7.10), а такође он није резултат емисије само једне каскаде фотона, већ више различитих каскада доводе до реализације сумарног врха на истој енергији.

Различите каскаде уносе различите несигурности у метод. Због тога је пожељно да се метод модификује тако да се активност мери само помоћу једне каскаде. Ако се вероватноће за одређене прелазе узму као познате вредности, могуће је написати формуле за мерење активности помоћу једне каскаде. Једначина (7.4.7) се може уопштити за било коју каскаду, на пример каскада $j \rightarrow 1 \rightarrow 0$, даје

$$P_{i \rightarrow 0} A = N_D(i \rightarrow 0) + \frac{N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow 1)}{N_\Sigma(j \rightarrow i \rightarrow 0)}. \quad (7.4.6.1)$$

Ако ову једначину поделимо са вероватноћом реализације свих путања који иду преко прелаза $i \rightarrow 0$, налазимо $P_{i \rightarrow 0}$ и уведемо апроксимацију да је укупна брзина бројања која долази само од оних путања које садрже прелаз $i \rightarrow 0$

$$N_D(i \rightarrow 0) = P_{i \rightarrow 0} N_D, \quad (7.4.6.2)$$

где је N_D укупна брзина бројања која долази од свих путања, налазимо формулу за мерење активности преко једне каскаде $j \rightarrow i \rightarrow 0$

$$A = N_D + \frac{N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow i)}{P_{i \rightarrow 0} N_\Sigma(j \rightarrow i \rightarrow 0)}. \quad (7.4.6.3)$$

Као што се види из Формуле (7.4.6.3), активност γ -емитера са сложенем шемом распада може се мерити преко једног сумарног врха уколико је позната вероватноћа реализације прелаза $i \rightarrow 0$. Формула (7.4.6.3) не садржи поправке на случајне коинциденције и корекциони фактор на угаоне корелације. Међутим, ове поправке се лако уводе уколико је одброј у сумарном врху $N_\Sigma(j \rightarrow i \rightarrow 0)$ увек резултат потпуне апсорпције фотона који се сукцесивно емитују при прелазу $j \rightarrow i \rightarrow 0$.

Према сличном поступку описаном у Одељку 7.4.5, модификована Формула (7.4.6.3) која садржи поправке на угаоне корелације и корекцију на случајне коинциденције је:

$$A = N_D + \frac{w_{eff}(j \rightarrow i \rightarrow 0)}{P_{i \rightarrow 0} \left(\frac{N_\Sigma(j \rightarrow i \rightarrow 0)}{N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow i)} - 2\tau \right) L_\tau} \quad (7.4.6.4)$$

Ако се ефективно време резолуције спектрометра одређује помоћу једног врха случајних коинциденција који је настао као резултат детекције два различита фотона који не граде сумарни врх, Формула (7.4.6.4) се може написати у виду:

$$A = N_D + \frac{w_{eff}(j \rightarrow i \rightarrow 0)}{P_{i \rightarrow 0} \left(\frac{(N_{\Sigma}(j \rightarrow i \rightarrow 0) - N'(E_1 + E_2))}{N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow i)} - \frac{N'(E_1)N(E_2)}{N(E_1)N(E_2)} \right) L_{\tau}}, \quad (7.4.6.5)$$

где се ознака N' односи на одброј под врхом случајних коинциденција који настаје апсорпцијом фотона енергије E_1 и E_2 .

За извор ^{152}Eu прелази кроз које се у 99% случајева врши декситација потомака у основно стање су $1 \rightarrow 0$ за потомак ^{152}Sm и $1 \rightarrow 0$ и $9 \rightarrow 0$ за потомак ^{152}Gd . У том смислу, на основу (7.4.6.5) могу се написати три формуле за мерење активности ^{152}Eu :

$$A = N_D + \frac{w_{eff}^{\text{Sm}}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{p_{1 \rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) \left(\frac{(N_{\Sigma}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0) - N(1752.3))}{N(121.8)N(i \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_{\tau}}, \quad (7.4.6.6)$$

$$A = N_D + \frac{w_{eff}^{\text{Gd}}(j \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{p_{1 \rightarrow 0}^{\text{Gd}}(\gamma + ce) \left(\frac{(N_{\Sigma}(j \rightarrow 1 \rightarrow 0) - N(1752.3))}{N(344.3)N(j \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_{\tau}}, \quad (7.4.6.7)$$

$$A = N_D + \frac{w_{eff}^{\text{Sm}}(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0)}{p_{9 \rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) \left(\frac{(N_{\Sigma}(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0) - N(1752.3))}{N(344.3)N(16 \rightarrow 9)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_{\tau}}. \quad (7.4.6.8)$$

где $i = \{2, 10\}$ и $j = \{3, 7, 11\}$ за шему распада према [79], N_D је тотална брзина бројања, w_{eff} је корекциони фактор за ефектне угаоне корелације, а $p(\gamma + ce)$ је тотална вероватноћа прелаза (емисија фотона и интерна конверзија) за прелаз који је назначен у индексу; N се односи на брзине бројања у врху пуне енергије и сумарном врху на енергији која је назначена у загради. L_{τ} се односи на корекциони члан на губитке услед насумичног сумирања. Тачност изведених једначина (7.4.6.6), (7.4.6.7) и (7.4.6.8) зависи од геометријске поставке. Ако је тачкасти извор удаљен од детектора, апроксимација укупне брзине бројања је боља јер је она мањи удео активности. Поправка на угаоне корелације ће такође бити тачнија јер на већој удаљености мање се испољава утицај ефикасности детектора. Такође уколико постоји вероватноћа да одброј под сумарним врхом буде резултат и троструких каскада, он ће бити занемарљив, јер је на већој удаљености ефикасност мања. Негативна последица веће удаљености извора од детектора је дуже време мерења како би се сакупила довољна статистика у сумарним врховима.

8 Експеримент

Стандардна процедура калибрације ефикасности врха пуне енергије гама спектрометра који служи за рутинска мерења радиоактивности подразумева употребу калибрационих извора чија је активност декларисана од стране произвођача са грешком од једног до неколико процената. У лабораторији за гама спектрометрију Департмана за физику у Новом Саду у циљу калибрације HPGe детекторских система набављен је сет тачкастих и волуминозних стандардних извора од којих су неки вишефотонски гама емитери. Као такви они су погодни за тестирање коинцидентне технике на једном детектору.

Извор ^{60}Co управо је идеални радиоизотоп за тестирање коинцидентне технике на једном детектору јер је то β - емитер који се распада уз каскадну емисију два фотона у више од 99% случајева. Метод је прво тестиран на тачкастом извору ^{60}Co , при чему је изведена формула која садржи корекцију на случајне коинциденције помоћу једног спектра и ефекат угаоних корелација.

Метод је даље примењен на тачкасти извор ^{133}Ba који има сложенију шему распада, али знатно мање изражен ефекат угаоних корелација. У циљу мерења активности ^{133}Ba једним детектором унапређен је постојећи метод који захтева формирање једначина бројања које садрже све могуће исходе у детектору [54] имплементацијом корекције на случајне коинциденције. Даље је развијен једноставни поступак који се може применити на детектору који има малу ефикасност за X-фотоне.

У циљу тестирања метода, на веома сложеним шемама испитана је могућност мерења активности извора ^{152}Eu на једном гама спектрометру у тачкастој, цилиндричној и маринели геометрији. Како је распад ^{152}Eu праћен могућом емисијом много фотона у каскади код којих је мање или више изражен ефекат угаоних корелација, написана је процедура којом је могуће израчунати поправку на ефективне угаоне корелације за било коју каскаду, а која се може применити за било који изотоп и било који коаксијални германијумски детектор.

8.1 Дигитална спектроскопска јединица *Inspector 2000*

Инспектор 2000 је преносива спектроскопска јединица са добрим перформансама на већим брзинама бројања базирана на технологији дигиталне обраде сигнала (*DSP-Digital Signal Processing*). Ова јединица се може употребити за све HPGe, NaI и Cd(Zn)Te апликације уобичајне у карактеризацији околине, нуклеарним мерама заштите; декомисији и деконтаминацији; и у мониторингу постројења. Уређај обезбеђује добре перформансе у смислу брзине бројања, резолуције и термалне стабилности.

Најважнији део спектроскопске јединице Inspector-2000 је DSP подсистем. За разлику од конвенционалих система, који дигитализују сигнале на крају ланца обраде сигнала, *Inspector 2000* дигитализује претпојачавачке сигнале на предњем делу ланца

обrade сигнала. Овакав приступ минимизира количину аналогних кола што резултира у повећаној стабилности, тачности и репродукцибилности.

8.2 Апсолутно мерење активности извора ^{60}Co

Апсолутна активност тачкастих калибрационих извора ^{60}Co је мерена на коаксијалном HPGe детектору релативне ефикасности 35% произвођача *Canberra*. Извори су мерени на капи детектора у циљу минимизирања ефекта угаоних корелација и на разним растојањима од капе детектора. Ради постизања добре контроле репродукцибилности експерименталних услова, израђени су специјално припремљени носачи извора за мерење на капи и на растојању 30 mm (Прилог В). За обраду сигнала коришћена је преносива дигитална спектроскопска јединица *Inspector 2000* такође произвођача *Canberra*. Коло за одбацивање наседајућих сигнала је било укључено. Спектри су сакупљани у оквиру програмског пакета *Genie 2000* [80].

Укупно је сакупљено 14 спектра чији су подаци приказани у Табели 8.1. За мерење су коришћена два тачкаста извора ^{60}Co , један знатно мање активности Amersham-No 11188 (извор-1) јер је стандардизован 01.06.1976. године када је имао активност 384.8(±2%) kBq. Други је произвођача Areva-Framatome ANP, чији је серијски број No 40885/186 (извор-2), а активност декларисана од стране произвођача на датум 15.02.2005. је била 397.7(±1.5%) kBq.

При већим брзинама бројања јављају се проблеми са анализом врхова у спектру. Иако програм *Genie 2000* има уграђену процедуру за интерактивно фитовање врхова у спектру, на већим брзинама бројања процедура није адекватна за добијање површине врха. Према литератури [81] која је пратећа документација софтвера континуум се може представити степенастом функцијом

$$B_i = \frac{B_1}{n} + \frac{B_2 - B_1}{nG} \sum_{j=1}^i y_j, \quad (8.2.1)$$

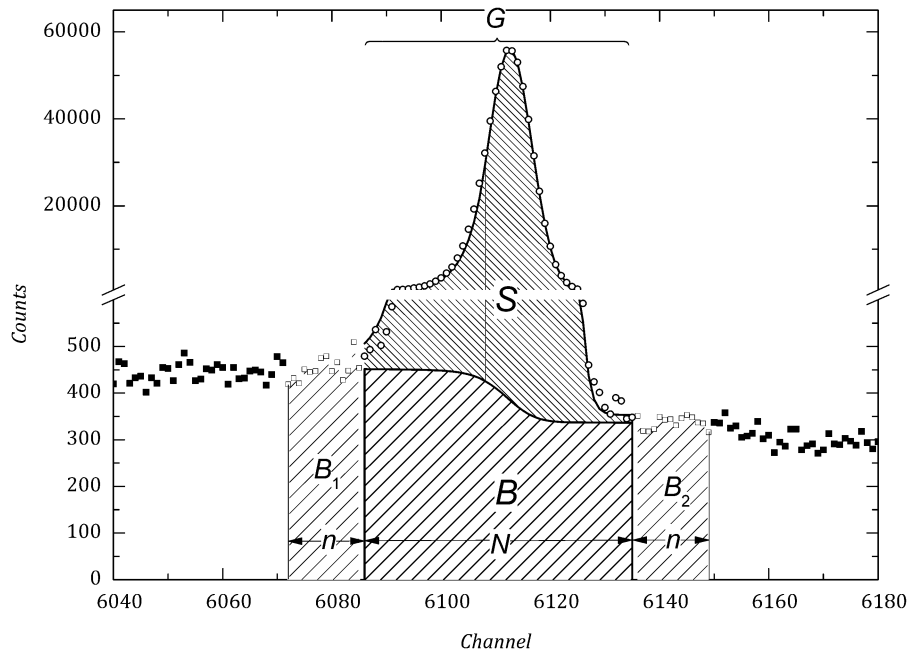
где је B_i (*background*) одброј који одговара континууму у i -том каналу испод врха пуне енергије, B_1 је укупан одброј континуума лево од врха пуне енергије, B_2 је укупан одброј континуума десно од врха пуне енергије, n је укупан број канала који се користи за израчунавање континуума и исти је и лево и десно од врха пуне енергије, G (*gross counts*) је укупан одброј под врхом пуне енергије у области од интереса, y_j одброј у j -том каналу.

Типичан изглед степенастог континуума који се обрачунава према описаном алгоритму (програм *Genie 2000*) врха пуне енергије и гаусијанског фита са експоненцијалним репом је приказан на Слици 8.1. Аналитички облик функције за опис врха пуне енергије који користи програм *Genie 2000* према [81] је дат са

$$F_i = \begin{cases} H \exp\left(-\frac{(x_i - C_p)^2}{2\sigma^2}\right), & x_i > C_p - T \\ H \exp\left(\frac{T(2x_i - 2C_p + T)}{2\sigma^2}\right), & x_i < C_p - T \end{cases} \quad (8.2.2)$$

где је H висина врха, C_p број канала који одговара енергији потпуно апсорбованог фотона (не мора бити цео број јер је извршена енергетска калибрација), σ - је дисперзија и повезана је са ширином на половини висине где је одузет континуум

$\sigma = \frac{FWHM}{2.355}$. Параметар T означава израженост репа на нижој енергији. Уколико има мању вредност, почетак репа је ближи центроиду. Већа вредност параметра T означава да је мање изражен реп на нижој енергији.



Слика 8.1. Типичан изглед степенастог континуума који се обрачунава према формули (8.2.1). Врх пуне енергије на 1173.2 keV је добијен из тачкастог извора ^{60}Co на HPGe детектору релативне ефикасности 35% и помоћу дигиталне спектроскопске јединице *Inspector 2000* при брзини бројања 10.9 ks^{-1} . Подаци под врхом пуне енергије су фитовани гаусијаном са експоненцијалним репом чија је формула дата са 8.2.2. Ознаке на графику имају следећа значења: B_1 -континуум лево од врха пуне енергије; B_2 -континуум десно од врха пуне енергије; B -степенasti континуум; S -површина под врхом пуне енергије; G -укупан одброј под врхом пуне енергије; N -укупан број канала под врхом пуне енергије; n -број канала лево или десно до врха пуне енергије који служи за израчунавање средње вредности континуума на левој и десној страни.

Као што се види на Слици 8.1 гаусијан са експоненцијалним репом није довољно адекватан за опис врха пуне енергије на већим брзинама бројања, јер се лево од центроида фит недовољно поклапа са експерименталним тачкама. Међутим од интереса је да се нађе укупан одброј под врхом пуне енергије, што у случају синглета значи да је довољно дефинисати континуум и релевантну област врха пуне енергије. Информација о укупном одброју под врхом пуне енергије може се онда наћи као разлика укупног одброја у области од интереса и одброја под дефинисаним континуумом. У том случају тачност информације о површини врха пуне енергије зависи од адекватног избора области интеграције и колико је добро апроксимиран континуум. Са друге стране, уколико се информација о површини испод врха пуне енергије жели добити из фита, а гаусијан са експоненцијалним репом није довољно адекватан, може се једноставно додати неколико врхова у области репа како би збир две функције пратио експерименталне податке. Овакав приступ није уобичајан, али у пракси доноси веома тачну информацију о укупној површини врха пуне енергије путем фитовања.

У случају спектра извора ^{60}Co (извор-2) врхови у спектру нису могли бити фитовани гаусијаном са експоненцијалним репом, па је због тога написана посебна процедура у програму *MATHEMATICA*, којом се одређује површина под врхом пуне

енергије. Подаци који су сакупљени у оквиру програма *Genie 2000* уčitани су у програм *MATHEMATICA*, а затим је сваки врх појединачно обрађен. Врхови у спектрима извора ^{60}Co нису фитовани, јер нема мултиплитета, већ је извршена корекција на континуум, а преостали одброј је сумиран у релевантној области врха.

За опис континуума испод врха пуне енергије користила се линеарна функција на коју је био суперпониран степенести континуум који је описан функцијом:

$$S(E) = Hp_s \operatorname{erfc}\left(\frac{E - E_c}{\delta}\right), \quad (8.2.3)$$

где је $\operatorname{erfc}(x)$ комплементарна функција грешке и дефинисана је са

$$\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} \exp(-t^2) dt. \quad (8.2.4)$$

при чему је $x = \frac{E - E_c}{\delta}$, где је E_c број канала који одговара положају центроида, параметар δ је повезан са ширином линије преко релације $FWHM = 1,665\delta$. H је висина врха, а параметар p_s дефинише висину прегиба степенесте функције.

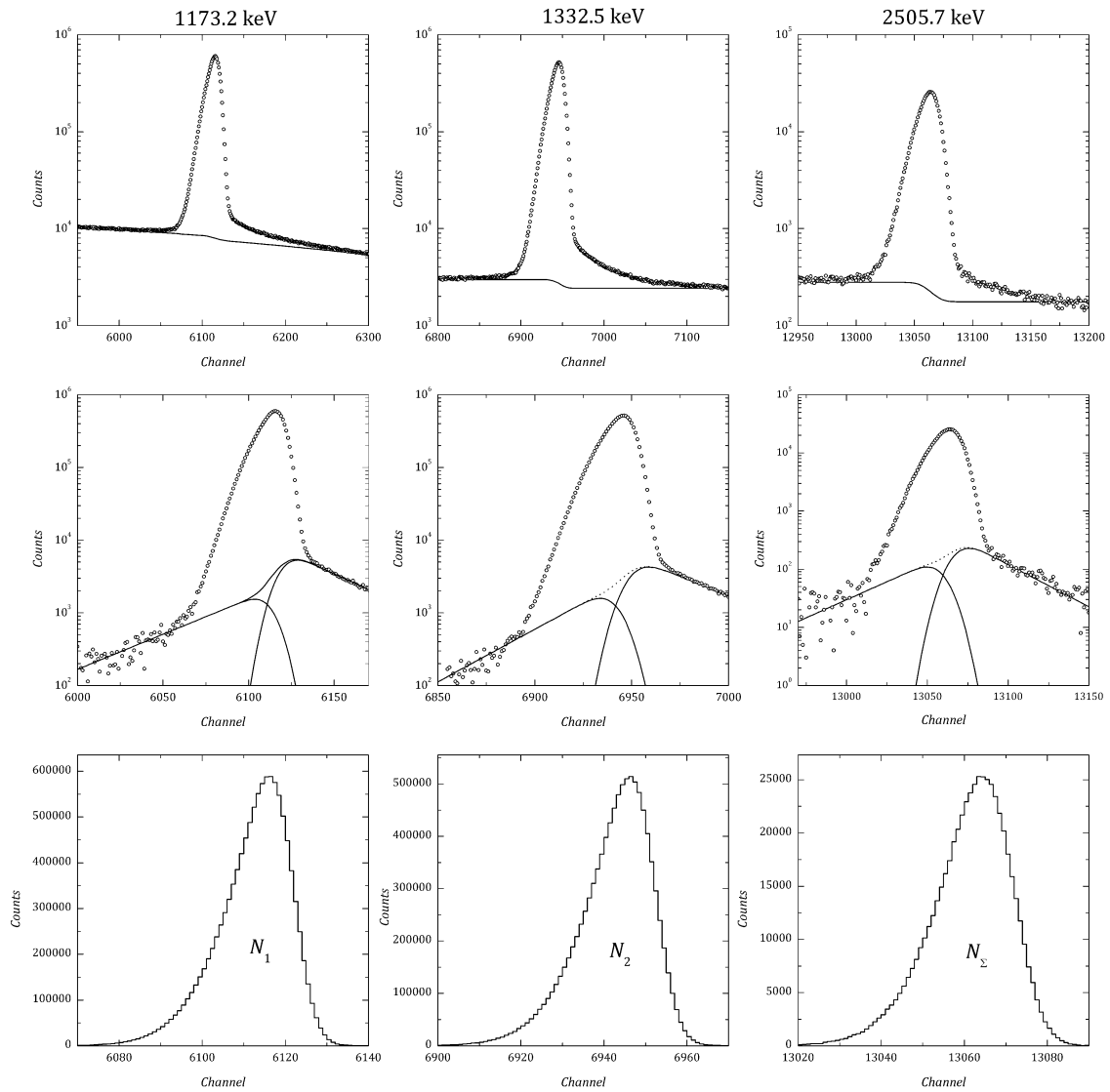
Репови на вишој и нижој енергији нису узети као регуларни догађаји, већ су одузети од одброја који је коригован на степенести и линеаран континуум. Реп на нижој енергији је одређен помоћу функције:

$$T_l = Hp_l \exp\left(\frac{E - E_c}{\beta_l}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{E - E_c}{\delta} + \frac{\delta}{2\beta_l}\right) \quad (8.2.5)$$

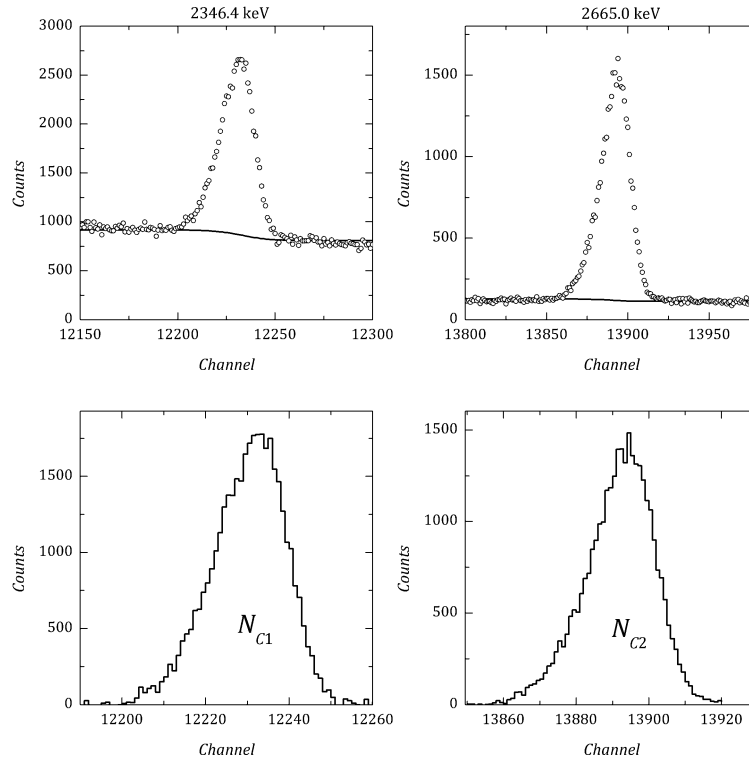
где p_l дефинише висину репа, а β_l нагиб. Реп на вишој енергији је описан помоћу сличне функције:

$$T_h = Hp_h \exp\left(-\frac{E - E_c}{\beta_h}\right) \operatorname{erfc}\left(-\frac{E - E_c}{\delta} + \frac{\delta}{2\beta_h}\right) \quad (8.2.6)$$

где параметар p_h дефинише висину репа на вишој енергији, док β_h означава нагиб. Континуум за врхове случајних коинциденција је описан само помоћу степенесте функције. Процедура одређивања врхова у спектру извора ^{60}Co је илустрована на Сликама 8.2 и 8.3.



Слика 8.2. Процедура одређивања површине врхова у спектру извора ^{60}Co који је добијен помоћу HPGe детектора релативне ефикасности 35% и дигиталне спектроскопске јединице. *Pile-up* рецектор је био укључен. Спектар је сниман када се извор налазио на капи детектора. Брзина бројања је била 74000 s^{-1} при чему је мртво време било 74.65%. На сликама је приказана процедура одређивања нето површине врха пуне енергије. Приказани су регуларни врхови на 1173.2 keV и 1332.5 keV и коинцидентни врх на енергији 2505.7 keV. У релевантној области врха пуне енергије прво је дефинисан степености континуум (за све врхове) и линеарни континуум (само за врх на енергији 1173.2 keV-прва врста). Након извршене корекције, дефинисани су репови на вишој и нижој енергији који су одузети од спектралних података (средња врста). Преостали одброј је сумиран у приказаној области (последња врста).



Слика 8.3. Процедура одређивања површине *pile-up* врхова у спектру извора ^{60}Co који је добијен помоћу HPGe детектора релативне ефикасности 35% и дигиталне спектроскопске јединице. *Pile-up* редектор је био укључен. Спектар је сниман када се извор налазио на капи детектора. Брзина бројања је била 74000 s^{-1} при чему је мртво време било 74.65%. На сликама је приказана процедура одређивања нето површине врха пуне енергије. Приказани су детаљи *pile-up* врхова који се појављују у спектру извора Co-60 на енергијама 2346.4 keV и 2665.0 keV. У релевантној области врха дефинисан је степенести континуум помоћу којег се кориговао одброј. Након извршене корекције преостали одброј је сумиран у приказаној области (последња врста).

Подаци из сваког спектра су уврштени у формулу:

$$A = \frac{N_T}{t} \left(\left(\left(\frac{N_\Sigma}{2\sqrt{N_{C1}N_{C2}}} - 1 \right) \left(\sqrt{\frac{4N_T\sqrt{N_{C1}N_{C2}}}{N_1N_2} + 1} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) w_{eff} \quad (8.2.7)$$

где је N_T укупна површина спектра, t живо време мерења, N_Σ нето површина сумарног врха на енергији 2505.7 keV, N_1 нето површина врха на енергији 1173.2 keV, N_2 нето површина врха на енергији 1332.5 keV, N_{C1} нето површина *pile-up* врха на енергији 2346.4 keV и N_{C2} нето површина *pile-up* врха на енергији 2665 keV. w_{eff} је фактор за корекцију на ефективне угаоне корелације и рачунат је за дато растојање помоћу Формуле (6.1.15). У Табели 8.1 су дати резултати мерења активности са и без корекције на ефективне угаоне корелације. Када се извор налазио на капи детектора фактор за корекцију на ефективне угаоне корелације уноси поправку око +1%. На већим растојањима корекције на ефективне угаоне корелације су више изражене и без узимања у обзир ових корекција систематска грешка може ићи и до 10% са тенденцијом опадања израчунате активности.

У мерну несигурност резултата активности урачунате су статистичка грешка нето одброја у врховима пуне енергије, сумарног врха и врхова случајних коинциденција, фит континуума, модел угаоних корелација који према [47] износи око

0.8%, грешка у позицији извора при рачунању ефективних угаоних корелација и време мерења.

Статистичка грешка нето одброја је рачуната по формули:

$$\sigma = \frac{1}{A} \sqrt{\left(\frac{\partial A}{\partial N_1}\right)^2 N_1 + \left(\frac{\partial A}{\partial N_2}\right)^2 N_2 + \left(\frac{\partial A}{\partial N_{C1}}\right)^2 N_{C1} + \left(\frac{\partial A}{\partial N_{C2}}\right)^2 N_{C2} + \left(\frac{\partial A}{\partial N_\Sigma}\right)^2 N_\Sigma + \left(\frac{\partial A}{\partial N_T}\right)^2 N_T} \quad (8.2.8)$$

Грешка у одређивању континуума је процењена тако што су варирани параметри у функцијама које описују континуум у границама визуелне прихватљивости фита.

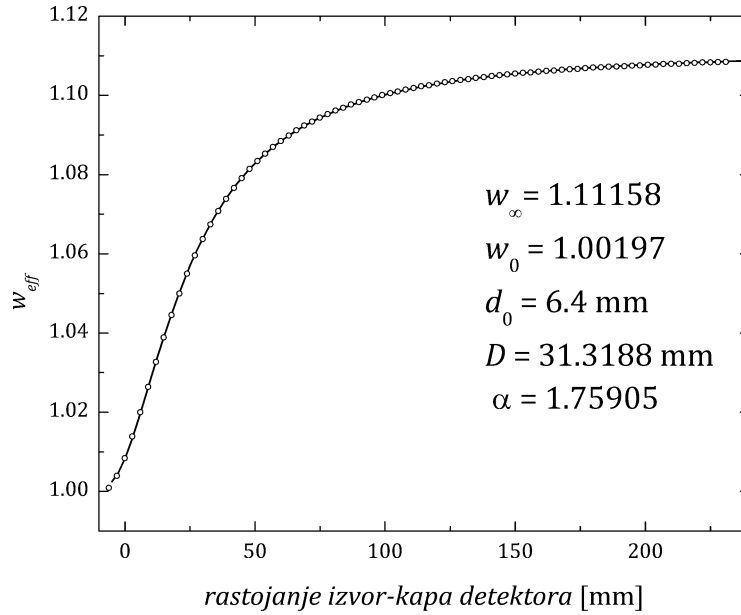
Грешка у позицији извора условљена је непознавањем тачне позиције детекторског прозора која према подацима произвођача износи ± 0.9 mm и мерном несигурношћу са којом је мерено растојање извора до капе детектора (нонијус са тачношћу 0.1 mm). У случају специјално припремљених носача, грешка је још мања око 0.01 mm јер су носачи прављени на стругу са прецизношћу 0.01 mm. Међутим фолија у којој се налази тачкасти извор је савитљива па је грешка процењена на око 0.1 mm. Ради процене мерне несигурности у прорачуну ефективних угаоних корелација због непознавања тачне позиције детекторски кристал-радиоактивни извор, подаци за ефективне угаоне корелације добијени Функцијом (6.1.15) у зависности од растојања извора до капе детектора d су фитовани функцијом:

$$w_{eff}(d) = w_\infty + \frac{w_0 - w_\infty}{1 + ((d + d_0) / D)^\alpha} \quad (8.2.9)$$

где параметри имају следећа значења: w_∞ је вредност ефективних угаоних корелација када би се извор налазио у бесконачности. За каскаду 4(2)2(2)0, што је каскада извора ^{60}Co , позната је тачна вредност и она је једнака суми коефицијента A_{kk} датим са (6.1.3) без атенуационих фактора што износи $10/9 = 1.1111\dots$ w_0 је вредност угаоних корелација када се извор налази на кристалу германијума, што је немогуће експериментално реализовати, и она би у идеалном случају била једнака јединици, јер би тада био задовољен услов 2π геометрије. Параметар D се односи на нормално растојање извора од кристала германијума где ефективне угаоне корелације достижу вредност $\frac{w_\infty + w_0}{2}$.

d_0 је растојање између спољашње површине капе детектора и горње површине осетљиве запремине кристала германијума. Параметар α је сразмеран брзини промене ефективних угаоних корелација.

Добијена зависност ефективних угаоних корелација помоћу функције (8.2.9) за германијумски детектор коришћен у експериментима и каскаду ^{60}Co 4(2)2(2)0 је приказана на Слици 8.4 заједно са параметрима фита.



Слика 8.4 Фит ефективних угаоних корелација за каскаду ^{60}Co 4(2)2(2)0 и германијумски детектор коришћен у експериментима према подацима добијеним помоћу функције (6.1.15) писаној у програму *Mathematica*. На графикону су дате нумеричке вредности параметара.

Као што се види према резултатима фита (Слика 8.4), w_∞ и w_0 врло добро се слажу са теоријским вредностима (Табела 6.1). С обзиром да је у спецификацији произвођача дато растојање између спољашње површине капе детектора и горње површине осетљиве запремине кристала германијума, d_0 је познати податак. Параметри D и α су фитовани и они су карактеристични за сваки детектор.

Интересантно је да се параметри који фигуришу у функцији ефективних угаоних корелација могу проценити само на основу димензија кристала германијума и растојања спољашњег слоја капе детектора и дебљине неосетљивог дела германијума. На основу ове процене добија се да је параметар D приближно једнак полупречнику кристала германијума. Параметар α је приближно једнак 2. Ако се нађе извод Функције (8.2.9) по растојању d ($d=x$)

$$\frac{dw}{dx} = \frac{\alpha \cdot (w_\infty - w_0)}{D \cdot \left(1 + \left(\frac{d_0 + x}{D}\right)^\alpha\right)^2} \cdot \left(\frac{d_0 + x}{D}\right)^{\alpha-1} \quad (8.2.10)$$

и његова вредност у тачки $x = D - d_0$:

$$\left(\frac{dw}{dx}\right)_{x=D-d_0} = \frac{\alpha \cdot (w_\infty - w_0)}{4D} \quad (8.2.11)$$

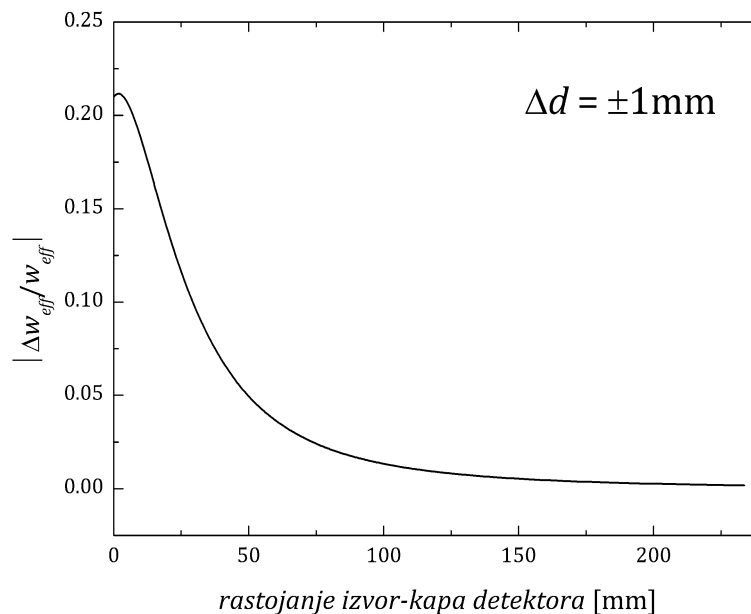
може се проценити вредност параметра α . У тачки $x = D - d_0$ вредност угаоних корелација је достигла половину од максималне вредности, међутим у области $-d_0 < x < D$ функција ефективних угаоних корелација је скоро линеарна (Слика 8.4) па важи:

$$\left(\frac{dw}{dx}\right)_{x=D-d_0} \approx \frac{(w_\infty - w_0)}{2D} \quad (8.2.12)$$

Изједначавањем (8.2.11) и (8.2.12) налазимо да је $\alpha = 2$.

За вредности параметра w_∞ узима се теоријска вредност 1.111, а за w_0 вредност 1. Параметар растојања спољашњег дела капе детектора од осетљиве запремине кристала германијума d_0 је фиксиран као и код фитовања, тј. познат је из документације детектора. Оваквом проценом добија се функција која се не разликује од фитоване функције за $\pm 1\%$ при било ком растојању извор-детектор и за разне димензије кристала германијума.

За анализу грешке при израчунавању поправке на ефективне угаоне корелације услед мерне несигурности позиције извора коришћен је први извод Функције (8.2.10) са нумеричким вредностима параметра. На основу ове функције добијена је релативна грешка ефективних угаоних корелације услед мерне несигурности позиције извор-кристал германијума. Релативна грешка у функцији растојања извора од капе детектора приказана је на Слици 8.5. Најмања несигурност је на већим растојањима, што је и очекивано јер се на већим растојањима све мање испољава утицај ефикасности детектора, односно функција ефективних угаоних корелација постаје више геометријског карактера.



Слика 8.5 Релативна грешка ефективних угаоних корелација услед мерне несигурности позиције извор-кристал германијума.

Грешка у времену мерења је процењена на основу броја цифара које даје мерни инструмент. Овај податак дат је у оквиру програма за сакупљање спектра *Gamma Acquisition and Analysis* из пакета *Genie 2000*.

У зависности од статистике одброја укупна мерна несигурност апсолутних активности варира од 2% до 5% на нивоу поверења 95.45% ($k = 2$). Међутим, измерене активности не одступају од вредности коју је декларисао произвођач за више од 1.5% када је при рачунању активности унета корекција на ефективне угаоне корелације.

Познавајући период полураспада ^{60}Co ($T_{1/2} = 5.271(8)$ год) све мерене активности приказане у Табели 8.1 које се односе на један исти извор могу се прерачунати на датум који је дат у декларацији произвођача извора уз мерену активност. Прерачунавањем

свих 13 мерених активности извора-2 на датум декларисан од стране произвођача и израчунавањем отежане средње вредности добијен је резултат $A_{exp} = 397.7 \pm 2.6$ kBq што је практично иста вредност коју је добио произвођач. У овом случају мерна несигурност је око 0.65 % јер је рачуната као статистичка грешка отежане средње вредности укупних мерних несигурности (Табела 8.1). Права мерна несигурност ипак је нешто већа јер већи сет мерења не уклања мерну несигурност у прорачуну ефективних угаоних корелација (0.8%) и фиту континуума (0.5%). У том случају резултат мерења активности тачкастог извора ^{60}Co на основу 13 спектра са систематском и статистичком грешком је: $A_{exp} = 397.7 \pm 2.3^{stat} \pm 3.3^{sist}$.

Табела 8.1 Експериментални подаци и мерене апсолутне активности тачкастих извора ^{60}Co .

СПЕКТАР		Извор-1*			Извор-2**											
Датум мерења		14.10.2008	11.07.2005	10.10.2008	10.10.2008	10.10.2008	10.10.2008	10.10.2008	10.10.2008	29.09.2009.	29.09.2009.	30.09.2009.	30.09.2009.	14.10.2009	20.10.2009	20.10.2009
растојање извора од капе детектора d [mm]		1.5	15	1.5	17.3	31.6	48.4	64.1	1.5	1.5	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0
Живо време t [s]		65229.25	13.03	600.00	600.00	600.00	600.00	600.00	1709.31	1448.50	3281.24	4154.55	5585.75	2756.04	2918.16	
Мртво време DT [%]		3.69	74.09	79.60	54.47	36.84	25.46	19.04	74.65	74.62	37.00	36.98	37.42	36.21	35.77	
Брзина бројања [kcs ⁻¹]		1.9	76.1	85.6	41.8	24.1	15.2	10.9	74.1	73.9	24.2	24.2	24.6	23.6	23.3	
Енергија [keV]	ознака	Нето површине врхова														
1173.2	N_1	1.162×10^7	8.899×10^4	4.623×10^6	2.383×10^6	1.380×10^6	8.664×10^5	6.062×10^5	1.134×10^7	9.600×10^6	7.381×10^6	9.347×10^6	1.274×10^7	6.046×10^6	6.305×10^6	
1332.5	N_2	1.035×10^7	8.054×10^4	4.111×10^6	2.125×10^6	1.239×10^6	7.800×10^5	5.437×10^5	1.009×10^7	8.540×10^6	6.611×10^6	8.348×10^6	1.142×10^7	5.404×10^6	5.643×10^6	
2505.7	N_Σ	5.411×10^5	2.41×10^3	2.443×10^5	5.31×10^4	1.683×10^4	6.64×10^3	3.12×10^3	5.640×10^5	4.745×10^5	9.915×10^4	1.267×10^5	1.761×10^5	7.979×10^4	8.270×10^4	
2346.4	N_{C1}	0	2.32×10^2	1.877×10^4	4.74×10^3	1.71×10^3	7.39×10^2	3.19×10^2	3.746×10^4	3.276×10^4	8.363×10^3	1.130×10^4	1.535×10^4	6.675×10^3	7.485×10^3	
2665.0	N_{C2}	8.15×10^2	2.66×10^2	1.515×10^4	4.07×10^3	1.38×10^3	5.64×10^2	2.57×10^2	3.156×10^4	2.636×10^6	7.053×10^3	8.877×10^3	1.271×10^4	5.757×10^3	5.853×10^3	
Површина спектра	N_T	1.247×10^8	9.91×10^5	5.136×10^7	2.507×10^7	1.443×10^7	9.146×10^6	6.527×10^6	1.266×10^8	1.071×10^8	7.942×10^7	1.006×10^8	1.375×10^8	6.509×10^7	6.788×10^7	
Измерене A_{exp} и референтне A_{ref} активности без поправке на ефективне угаоне корелације																
A_{ref} [kBq]		5.46±0.11	377±6	246±4	246±4	246±4	246±4	246±4	216.7±3.2	216.7±3.2	216.5±3.2	216.5±3.2	215.5±3.2	215.0±3.2	215.0±3.2	
A_{exp} [kBq]		5.32±0.11	373±19	243±5	236±5	234±6	228±8	228±11	214.0	215.0	214.5	213.0	213.2	212.2	211.9	
A_{exp}/A_{ref}		0.97	0.989	0.988	0.959	0.951	0.927	0.927	0.988	0.992	0.991	0.984	0.989	0.985	0.983	
Измерене A_{exp} и референтне A_{ref} активности са поправком на ефективне угаоне корелације																
Угаоне корелације w_{eff}		1.0115	1.0392	1.0115	1.0436	1.0659	1.0818	1.0904	1.0115	1.0115	1.0639	1.0639	1.0639	1.0639	1.0639	
A_{ref} [kBq]		5.46±0.11	377±6	246±4	246±4	246±4	246±4	246±4	216.7±3.2	216.7±3.2	216.5±3.2	216.5±3.2	215.5±3.2	215.0±3.2	215.0±3.2	
A_{exp} [kBq]		5.40±0.11	388±19	245±5	246±5	249±7	246±9	248±12	216.5±4.6	217.5±4.6	217.0±4.6	215.5±4.6	215.7±4.6	214.6±4.7	214.3±4.7	
A_{exp}/A_{ref}		0.989	1.028	0.996	1.000	1.012	1.000	1.008	0.999	1.004	1.002	0.995	1.001	0.998	0.997	
Узрок мерне несигурности експериментално мерене активности [%]																
Статистика		0.11	2.3	0.17	0.47	0.93	1.6	2.3	0.11	0.12	0.34	0.3	0.26	0.38	0.38	
Фит континуума		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	
Модел угаоних корелација		0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	
Позиција детекторског прозора		0.21	0.18	0.21	0.17	0.09	0.05	0.03	0.21	0.21	0.12	0.12	0.12	0.12	0.12	
Време мерења		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	
Укупна мерна несигурност $k=2$		2.0	5	2.0	2.1	2.7	3.7	5	2.1	2.1	2.2	2.2	2.2	2.2	2.2	

*Извор-1 (Amersham-No 11188, активност на датум: 01.06.1976. 384.8±7.7 kBq)

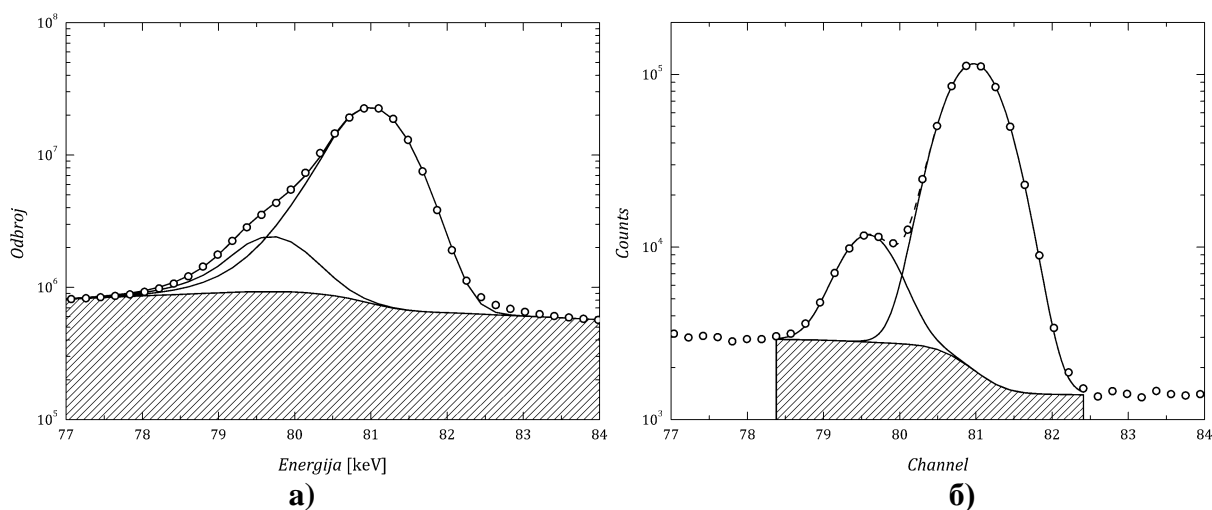
**Извор-2 (Areva-Framatome ANP, No 40885/186, активност на датум: 15.02.2005. 397.7±6.0 kBq).

8.3 Апсолутно мерење активности извора ^{133}Ba

Апсолутна активност тачкастих калибрационих извора ^{133}Ba је такође мерена помоћу коаксијалног HPGe детектора релативне ефикасности 35% произвођача *Canberra*. Мерена су два тачкаста извора који су постављани на капу детектора. Искоришћен је и један спектар који је раније снимљен за калибрацију ефикасности детектора, а мерен је на растојању 10 cm од капе детектора. За обраду сигнала и овде је коришћена је преносива дигитална спектроскопска јединица *Inspector 2000* произвођача *Canberra*. Коло за одбацивање наседајућих сигнала је било укључено у сваком експерименту. Спектри су сакупљани помоћу програма *Gamma Acquisition and Analysis* у оквиру програмског пакета *Genie 2000*.

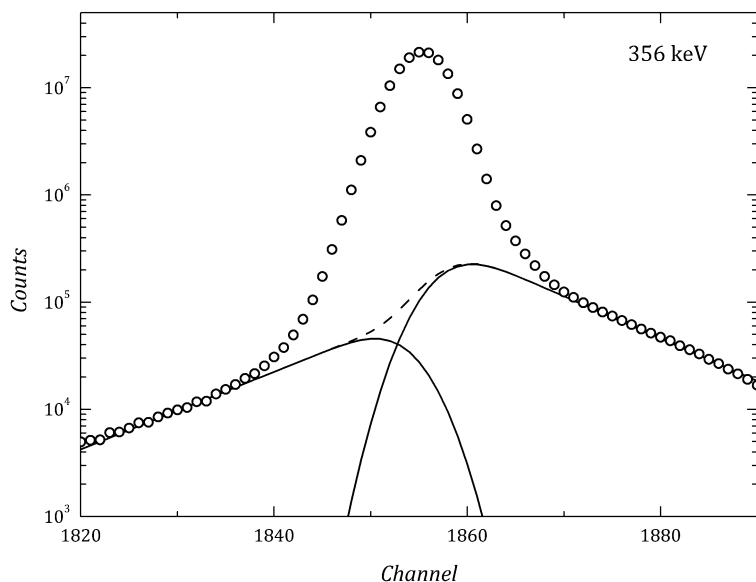
За мерење су коришћена два тачкаста извора ^{133}Ba , један из сета калибрационих извора Amersham-No. 11188 (извор-1), а други такође из сета калибрационих тачкастих извора Amersham-No. 260662-1 (извор-2). Укупно је сакупљено 3 спектра чији су подаци приказани у Табели 8.2.

Спектри су обрађени у програму *Gamma Acquisition and Analysis*, при чему се користила опција за интерактивно фитовање врхова према алгоритму описаном у претходном одељку и коришћењем процедуре написане у програму *Mathematica*. Коришћењем базе података за извор ^{133}Ba која се налази у програму, идентификовани су регуларни врхови у спектру, а затим је извршена енергетска калибрација. Потом је извршена калибрација облика врха, што подразумева калибрацију ширине на половини висине у функцији енергије и калибрацију параметра репа у функцији енергије, при чему су коришћене само синглетне линије. Типичан изглед фита мултиплитета на различитим брзинама бројања помоћу уграђене процедуре *Interactive Peak Fit* из спектра извора ^{133}Ba је приказан на Слици 8.6. На већим брзинама бројања (Слика 8.6. а) врхови су више деформисани, тј. израженији је реп на вишој и нижој енергији. Због тога информација о нето површини која је добијена помоћу *Interactive Peak Fit*, има већу несигурност. Са друге стране на мањим брзинама бројања, слика 8.6.б., врхови имају Гаусов облик без знатно изражених експоненцијалних репова па су врхови боље раздвојени, а информације о површини добијене фитовањем су на већем нивоу значајности.

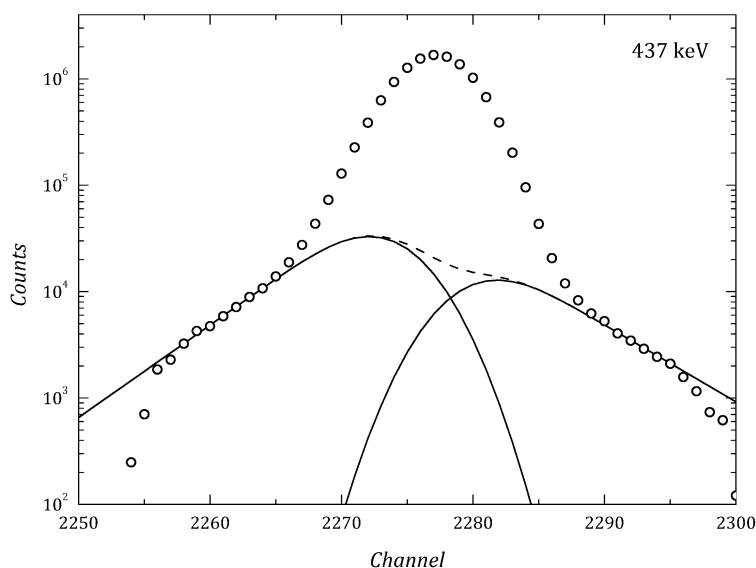


Слика 8.6. Изглед фита мултиплитета 79.6 keV и 81.0 keV из спектра ^{133}Ba који је снимљен при брзини бројања а) 33 kcs⁻¹ и б) 1.8 kcs⁻¹. При мањим брзинама бројања мултиплитет је добро раздвојен и може се фитовати Гаусовом функцијом, међутим на већим брзинама бројања изражен је већи реп на нижој енергији па се фит иако добар, мора узети са дозом опрезности.

Спектрални подаци извора активности 62.3 kBq (Табела 8.2) комплетно су обрађени у оквиру програма *Genie 2000* и потпрограма *Interactive Peak Fit Analysys*. На већим брзинама бројања, знатно су биле израженије деформације врхова. Процедура у програму *MATHEMATICA* (илустрована на сликама 8.7 и 8.8) коришћена је за добијање информације о површини врха на енергији 356 keV и сумарног врха на енергији 437 keV у спектрима извора ^{133}Ba активности 48.2 kBq и 95.0 kBq. Остали врхови фитовани су програмом *Interactive Peak Fit Analysys*.



Слика 8.7 Изглед врха на енергији 356 keV са континуумом који је описан функцијама (8.2.5) и (8.2.6). Информација о површини врха добијена је одузимањем континуума од спектралних података и сумирањем у релевантној области врха.



Слика 8.8 Изглед сумарног врха на енергији 437 keV са континуумом који је описан функцијама (8.2.5) и (8.2.6). Информација о површини врха добијена је одузимањем континуума од спектралних података и сумирањем у релевантној области врха.

Активност извора ^{133}Ba је добијена помоћу две методе. Методом формирања и решавањем једначина бројања за линије у спектру извора ^{133}Ba и помоћу једноставне формуле што је описано у Одељцима 7.3.1 и 7.3.2. Метод свих исхода је коришћен у

неколико варијанти, без случајних коинциденција и са случајним коинциденцијама. Такође је испитан утицај ефективних угаоних корелација на рачун активности.

Формализам за формирање једначина бројања у програму *MATHEMATICA* који су развили Новковић и сарадници [54] је овде идентичан, са тим да су овде у једначине уведени корекциони чланови на губитке услед случајних коинциденција, додате су једначине за допринос случајних коинциденција у регуларним врховима и уведена је додатна једначина за *pile-up* врх на енергији 712 keV. Међутим уколико су брзине бројања мање, и спектрални подаци не садрже статистички значајне врхове случајних коинциденција, при решавању система треба доделити вредност за нето површину врха на енергији 712 keV нула, чиме се једначине у систему своде на оне које немају корекцију на насумично сумирање.

Уколико су резултати случајних коинциденција уочљиви у спектру, што се манифестује појавом *pile-up* врхова (Слика 7.5), једно од решења система који садржи корекцију на случајне коинциденције је и време резолуције спектрометра. Вредности добијене помоћу формуле (7.3.1.7) су дате у Табели 8.3. Уколико је статистички безначајан врх на енергији 712 keV, решење за време резолуције је вредност блиска нули, што није реално решење, али сугерише да су ефекти случајних коинциденција безначајни у спектралним подацима.

Иако су овде формиране полазне једначине за брзине бројања које садрже могућност детекције X-фотона врхови настали детекцијом x-зрачења нису употребљени. Детектор коришћен у експериментима има малу ефикасност за детектовање фотона у области енергија испод 50 keV, стога је у једначинама бројања постављена вредност нула за ефикасност врхова пуне енергије на 30 и 35 keV. Тиме се занемарује сваки одброј који је настао евентуалном детекцијом x-фотона. Да је ово адекватна процедура, потврдио је тест при чему су коришћене једначине бројања за X-фотоне на енергијама 30.8 keV и 35.3 keV и површине врхова пуне енергије за ове X-фотоне. Разлике у мереним активностима са и без разматрања детекције X-фотона биле су на петој цифри, што је знатно мање од мерне несигурности методе. Ради постизања тачније информације о активности извора ¹³³Ba уколико детектор има малу ефикасност за X-фотоне, нема потребе да се користе једначине бројања за врхове на енергијама 30.8 keV и 35.3 keV. Међутим како су решења система и ефикасности врхова пуне енергије кориговане на ефекат правога коинцидентног и насумичног сумирања за ове фотоне, уколико је потребна ова информација, треба користити систем са једначинама бројања на 30.8 keV и 35.3 keV.

Такође је испитан утицај ефективних угаоних корелација, при чему су у једначине додате поправке на ефективне угаоне корелације.

За израчунавање активности једноставном методом коришћена је формула:

$$A = \frac{N_r}{t} \left(c \left(\left(\frac{N_\Sigma N_2}{2N_c N_1} - 1 \right) \left(\sqrt{1 + \frac{4N_r N_c}{N_2^2}} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) w_{eff} \quad (8.3.1)$$

која је изведена у одељку 7.3.2 (Формула 7.3.2.13), с тиме да је овде без детаљног извођења по аналогији са формулом за активност извора ⁶⁰Co (8.2.7), додат мултипликативни фактор поправке на ефективне угаоне корелације. Одброј у сумарном врху на 437 keV превасходно долази из детектовања каскаде 4→1→0, па је ефекат угаоних корелација највише изражен за ту каскаду.

Спектар извора мереног на растојању 10 cm, 11.04.2005. није имао статистички значајан одброј у *pile-up* врху на енергији 712 keV. Због тога формула (8.3.1) није директно применљива. Потребно је наћи граничну вредност активности када одброј у

врху случајних коинциденција тежи нули. За безначајан одброј у врху случајних коинциденција налазимо формулу за израчување активности:

$$A = \lim_{N_C \rightarrow 0} \frac{N_T}{t} \left(c \left(\left(\frac{N_\Sigma N_2}{2N_C N_1} - 1 \right) \left(\sqrt{1 + \frac{4N_T N_C}{N_2^2}} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) w_{eff} = \frac{1}{t} \left(N_T + c \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma} \right) w_{eff} \quad (8.3.2)$$

Формула (8.3.2) је слична као и формула коју су извели Brinkman и сарадници, са тим да овде фигурише корекциони фактор јер постоји кросовер прелаз за прво побуђено стање потомка и појава мултиплитета на 81 keV (Слика 8.6). Корекциони фактор се добија уврштавањем ефикасности врха пуне енергије и тоталних ефикасности у корекционе факторе које фигуришу у (7.3.2.14)

На растојању 10 cm од капе детектора нису посебно рађене Monte Carlo симулације, али су уз помоћ програма ANGLE [82] ефикасности врха пуне енергије и тоталне ефикасности за линије у спектру ^{133}Ba за растојање 1.5 mm од капе детектора добијене помоћу Monte Carlo симулација прерачунате за растојање 100 mm од капе детектора. Овако израчунати корекциони фактор је $c = 1.07695$.

Табела 8.2 Експериментални подаци тачкастих извора ^{133}Ba добијени помоћу HPGe детектора и дигиталне спектроскопске јединице.

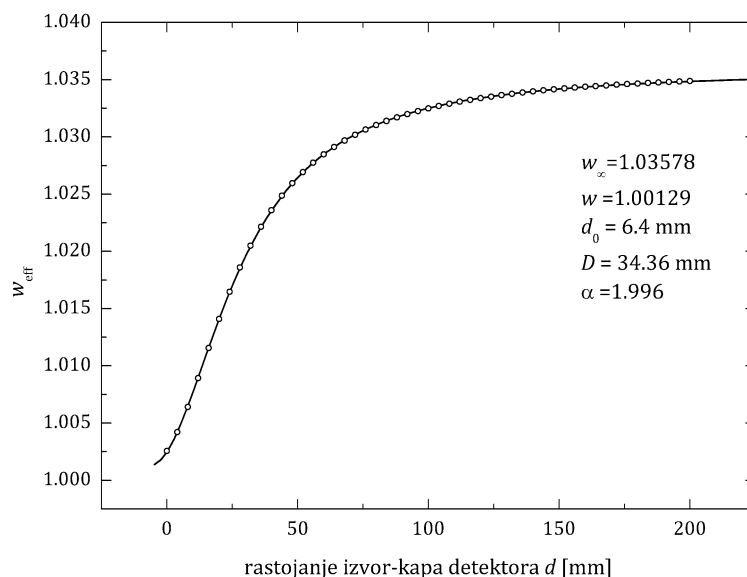
Извор	1	1	2
Датум мерења	11.04.2005.	04.03.2009.	11.03.2009.
Растојање од капе детектора [mm]	100	1.5	1.5
Живо време [s]	2323.68	47927.45	36323.26
Мртво време [%]	3.25	27.08	45.59
Енергија [keV]	ознака	Нето површина	
53.2		$1.73(4) \times 10^4$	$2.075(27) \times 10^6$
79.6		$4.14(8) \times 10^4$	$5.10(3) \times 10^6$
81.0		$5.44(5) \times 10^5$	$1.025(4) \times 10^8$
79.6 и 81.0	N_1	$5.85(6) \times 10^5$	$1.076(5) \times 10^8$
160.6		$1.101(14) \times 10^4$	$3.072(18) \times 10^6$
223.2		$6.1(5) \times 10^3$	$1.431(10) \times 10^6$
276.4		$8.24(6) \times 10^4$	$1.915(7) \times 10^7$
302.9		$1.950(7) \times 10^5$	$5.032(10) \times 10^7$
356.0		$5.736(11) \times 10^5$	$1.510(3) \times 10^8$
357.4*		$1.02(8) \times 10^3$	$1.86(11) \times 10^6$
356.0 и 357.4*	N_2	$5.746(12) \times 10^5$	$1.508(4) \times 10^8$
383.8		$7.82(4) \times 10^4$	$2.621(11) \times 10^7$
437.0*	N_Σ	$2.67(6) \times 10^3$	$1.201(4) \times 10^7$
712.0	N_C	/	$2.343(14) \times 10^5$
Укупна површина спектра	N_T	3.855×10^6	7.753×10^8
A_{ref} [kBq]		62.3±3.1	48.2±2.3
			95.0±3.8

Корекциони фактор на ефективне угаоне корелације се за растојање 100 mm израчунава помоћу процедуре написане у програму *MATHEMATICA* која се позива Функцијом (6.1.15). Према подацима о коришћеном детектору, растојању извора од капе детектора и подацима из шеме распада извора ^{133}Ba за каскаду $4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$:

$$1/2 \xrightarrow{E2(\delta=0)} 5/2 \xrightarrow{M1(\delta=-0.151)} 7/2 \quad (8.3.3)$$

нађено је да корекциони фактор за ефективне угаоне корелације при растојању извора од капе детектора 100 mm износи: $w_{eff} = 1.0325$.

У циљу применљивости Формуле (8.3.1) на произвољном растојању од детектора рачуната је поправка на ефективне угаоне корелације и функција корекционог фактора у зависности од растојања извора од капе детектора. Помоћу процедуре у програму *MATHEMATICA* генерисан је сет података од 100 тачака ефективних угаоних корелација и растојања извора од капе детектора. Подаци су фитовани Функцијом (8.2.9) чији су параметри фита приказани на Слици 8.9.

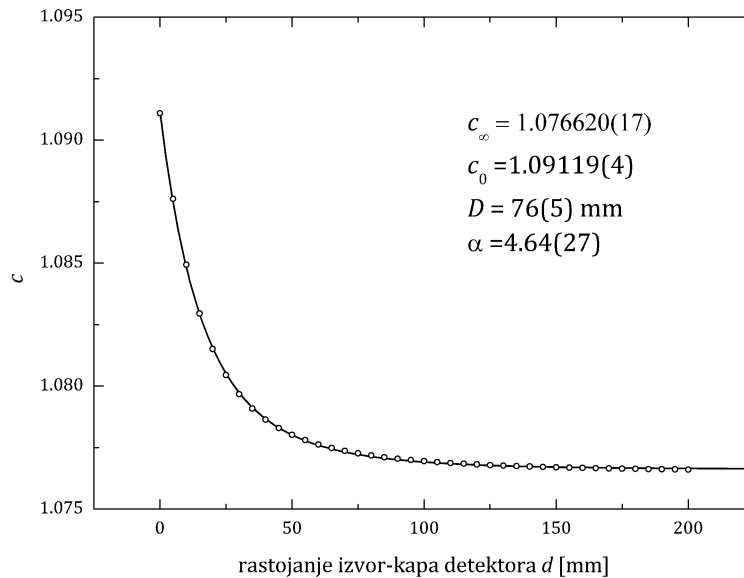


Слика 8.9 Зависност ефективних угаоних корелација за каскаду $1/2 \xrightarrow[E2(\delta=0)]{356\text{keV}} 5/2 \xrightarrow[M1(\delta=-0.151)]{81\text{keV}} 7/2$ из извора ^{133}Ba од растојања од капе коаксијалног германијумског детектора релативне ефикасности 35%. Параметри дати на слици фигуришу у функцији датој Формулом (8.2.9).

За рачун корекционог фактора услед сложености шеме распада на произвољном растојању извора од капе детектора, ефикасности врхова пуне енергије и тоталне ефикасности на растојању 1.5 mm од капе детектора добијене Monte Carlo симулацијама су прерачунате преко просторних углова у 100 тачака на растојању 0 до 200 mm од капе детектора. Ови подаци су затим фитовани функцијом:

$$c = c_{\infty} + \frac{c_0 - c_{\infty}}{(1 + x/D)^{\alpha}}, \quad (8.3.4)$$

чије су вредности параметра, облик и експериментални подаци приказани на Слици 8.10. Смисао параметара је следећи: c_{∞} је вредност корекционог фактора када се извор налази на растојању много већем од димензија детектора, c_0 је корекциони фактор када се извор налази на капи детектора, D је параметар који је повезан са димензијама кристала детектора, а параметар α означава брзину промене корекционог фактора са растојањем.

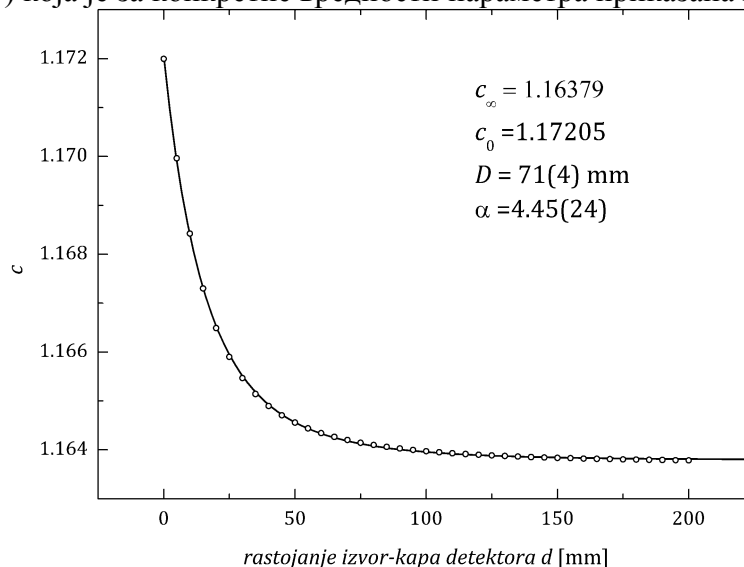


Слика 8.10 Корекциони фактор за рачунање апсолутне активности извора ^{133}Ba који фигурише у једначини (8.3.1) и (8.3.3) у функцији растојања тачкастог извора од капе детектора. Овај корекциони фактор је применљив када се мултиплитет 79.6 keV и 81 keV не може раздвојити. За рачун корекционог фактора, дате вредности параметара треба унети у Једначину 8.3.4.

У случају спектра извора ^{133}Ba снимљен на растојању 10 cm од капе детектора, мултиплитет на енергији 81 keV могао је бити довољно добро раздвојен (Слика 8.6 б). Због тога корекциони фактор дат преко једначине (5.28) није потребан, а корекциони фактор дат са (7.3.2.14) се своди на:

$$c = \frac{(1 + c_T)(1 + c_\Sigma)}{(1 + c_2)} \quad (8.3.6)$$

Истим поступком описаним у претходном параграфу је формиран скуп тачака за корекционе факторе за разна растојања извора од капе детектора. Подаци су фитовани функцијом (8.3.5) која је за конкретне вредности параметра приказана на Слици 8.11.



Слика 8.11 Корекциони фактор за рачунање апсолутне активности извора ^{133}Ba који фигурише у једначини (8.3.1) и (8.3.2) у функцији растојања тачкастог извора од капе детектора. Овај корекциони фактор је применљив када се мултиплитет 79.6 keV и 81 keV може раздвојити. При томе користи се само одброј у врху на енергији 81 keV. За рачун корекционог фактора дате параметре треба унети у једначину (8.3.4).

Као што се види на Сликама 8.10 и 8.11 корекциони фактори се врло мало мењају са растојањем извора од капе детектора. Релативна промена фактора је и мања уколико се у спектру може врх на енергији 79.6 keV одвојити од врха на енергији 81 keV. У том смислу, пожељно је сакупити спектар на мањим брзинама бројања и на већем растојању од капе детектора. У случају спектра сниманог на растојању 10 cm од капе детектора, поменути врхови су добро раздвојени, а нумеричка вредност корекционог фактора је према (8.3.4) 1.164.

Експериментално измерене активности описаним методама и обрадом спектралних података приказане су у Табели 8.3.

У спектралним подацима извора мереног на растојању 100 mm од капе детектора нису били видљиви доприноси случајних коинциденција кроз појаву *pile-up* врхова, па није ни коришћена процедура са случајним коинциденцијама. Међутим, време резолуције спектрометра је познато на основу претходних мерења, па је процењен одброј случајних коинциденција у сумарном врху. На основу тих разматрања, може се закључити и да при брзини бројања од 1.6 kcs^{-1} није занемарљив утицај случајних коинциденција. У том смислу, потребно је дуже време мерења како би се постигла боља статистика у сумарном врху и врху случајних коинциденција на 712 keV.

Испитан је и утицај ефективних угаоних корелација и конзистентност методе када се мултиплитет на 80 keV може и не може раздвојити. Када је за мерење активности коришћен метод свих исхода у детектору (систем једначина 7.3.1.6), корекције на ефективне угаоне корелације су донеле поправку на мерену активност око +1.5%. Међутим, у случају једноставне формуле (8.3.1), ефективне угаоне корелације доминантне каскаде доносе поправку око +3%. Метод свих исхода са раздвојеним и нераздвојеним мултиплитетом на 80 keV је еквивалентан на мањим брзинама бројања јер практично даје исте резултате. Једноставна формула такође даје исте резултате без обзира дали користимо раздвојене или нераздвојене мултиплитете и одговарајуће корекционе факторе.

Резултати мерења активности извора ^{133}Ba на већим брзинама бројања су нешто другачији. Према резултатима мерених активности, било да се ради о методу свих исхода или једноставној формули, корекције на случајне коинциденције су неопходне. Поправка на случајне коинциденције доноси око 2.3 % бољу вредност за мерену активност извора-1, када је спектар добијен поставком извора на капу детектора. За извор-2, чији је спектар добијен на већој брзини бројања, поправка је израженија и износи око 5%, што није занемарљиво. Метод свих исхода и једноставна формула доносе врло сличне резултате, али се ипак испољава тенденција да једноставна формула доноси нешто већу вредност активности. Ефективне угаоне корелације практично нису имале никакав утицај на мерену активност извора који су били стављани на капу детектора. Поправка на ефективне угаоне корелације када се извор налази на капи детектора износи око 0.3%, што је и очекивано јер је у овом случају скоро задовољена 2π геометрија, где се ефекат угаоних корелација поништава. У доминантној каскади извора ^{133}Ba , каскада $4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, ефекат угаоних корелације при великом растојању извора од капе детектора ($W(0)$) је према Табели 6.1, 1.036 на основу чега је јасно да фотони нису јако спрегнути, али ефекат није занемарљив.

Када је у питању утицај раздвајања мултиплитета у области 80 keV, на већим брзинама бројања резултати се знатно разликују. Резултати активности са раздвојеним мултиплитетом дају веће вредности активности од оних које су добијене са не раздвојеним мултиплитетом. Као што се види на Слици 8.5.a где је приказан врх на енергији 81 keV, не постоји минимум између два врха пуне енергије, већ само тачка превоја, што није довољно за тачну информацију о површини врхова. На већим брзинама бројања треба користити модел са заједничким мултиплитетом, док је на мањим брзинама бројања пожељно користити једначине са раздвојеним

мултиплитетима, јер се не мора вршити апроксимација да су ефикасности на 79.6 keV и 81.0 keV једнаке. Такође су корекциони фактори у једноставној формули мање зависни од растојања извора од детектора.

Табела 8.3 Експериментално мерене активности помоћу података из Табеле 8.2.

	ИЗВОР 1				ИЗВОР 2	
A_{ref} [kBq]	62.3±3.1		48.2±2.3		95.0±3.8	
Мултиплитет 79.6 keV и 81 keV није раздвојен						
<i>Метод свих исхода</i>						
Без угаоних корелација	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>
A_{exp} [kBq]	60.1±3.5	/	46.8±3.5	47.9±3.4	90.5±3.8	94.8±4.0
A_{exp}/A_{ref}	0.965	/	0.971	0.994	0.954	0.999
Са угаоним корелацијама						
A_{exp} [kBq]	61.0±3.7	/	46.9±3.5	47.9±3.4	90.6±3.8	94.9±4.0
A_{exp}/A_{ref}	0.979	/	0.973	0.994	0.954	0.999
<i>Једноставна формула</i>						
	(8.3.3)		(8.3.1)			
<i>Корекциони фактор c</i>	1.077(18)		1.090(18)		1.090(18)	
<i>Ефективне угаоне корелације</i>	1.0325		1.0031			
A_{exp} [kBq]	62.7±2.9	/	47.0±3.4	48.2±3.4	90.8±4.0	95.4±4.0
A_{exp}/A_{ref}		/	0.975	1.000	0.956	1.004
Мултиплитет 79.6 keV и 81 keV је раздвојен						
<i>Метод свих исхода</i>						
Без угаоних корелација	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>	<i>Без случ.</i>	<i>Са случ.</i>
A_{exp} [kBq]	60.1±3.5	/	47.5±3.4	48.5±3.4	92.8±4.0	97.3±4.0
A_{exp}/A_{ref}	0.965	/	0.985	1.006	0.977	1.024
Са угаоним корелацијама						
A_{exp} [kBq]	61.0±3.7	/	47.6±3.5	48.6±3.5	92.8±4.0	97.4±4.0
A_{exp}/A_{ref}	0.982	/	0.986	1.008	0.977	1.024
<i>Једноставна формула</i>						
	(8.3.3)		(8.3.1)			
<i>Корекциони фактор c</i>	1.164(14)		1.173(15)		1.173(15)	
<i>Ефективне угаоне корелације</i>	1.0325		1.0031			
A_{exp} [kBq]	62.7±2.9	/	47.8±3.4	48.9±3.4	93.4±4.0	98.1±4.0
A_{exp}/A_{ref}	1.006	/	0.990	1.012	0.983	1.033
τ [ns]	/		473		506	
k [MeV ⁻¹]	7.1		4.5		4.4	

Мерне несигурности измерених активности дате су на нивоу значајности 95.45%. За рачунање мерне несигурности активности добијене методом свих исхода, направљена је процедура у програму *Mathematica* која омогућава да се вредности површине врхова које се уносе у Функцију (7.3.1.7) која примењује процедуру написану у програму *Mathematica* запишу преко релације:

$$N_i = N_{i_0} + p_i \Delta N_{i_0} \quad (8.3.7)$$

где је N_{i_0} експериментално измерена вредност површине врха пуне енергије (Табела 8.2), p_i је параметар којом се функцијом *Random* у програму *Mathematica* додељује случајна вредност -1, 0 или 1 и ΔN_{i_0} је експериментално одређена несигурност површине врха пуне енергије. Овако дефинисане нето површине врхова се уносе у

функцију (7.3.1.7) која решава систем једначина чији је излазни податак активност извора ^{133}Ba . Понављањем поступка израчунавања активности увек са различитим вредностима параметара p_i нађена је горња и доња граница апсолутне грешке мерене активности. Грешка у прорачуну угаоних корелација није узета у обзир, али она је и занемарљива када се извор налазио на капи детектора. За растојање 100 mm грешка је рачуната истом процедуром као и за површине врхова. Генерисан је код при чему се вршила насумична варијација поправке на ефективне угаоне корелације у границама $\pm 1\%$ за каскаде са два фотона. Ово се одразило на мерену активност највише $\pm 0.1\%$.

За израчунавање мерне несигурности површине врхова узета је у обзир статистика одброја и грешка при одређивању континуума. Међутим, параметри који дефинишу континуум нису одређени потпуно аналитички. Ширина на половини висине је одређена мерењем висине врха и ширине на половини висине бројањем канала који захватају врх на половини висине. Остали параметри који одређују континуум су фиксирани онда када је линија континуума најбоље пратила експерименталне податке. Затим су параметри варијани у границама визуелне прихватљивости праћења експерименталних података и рачуната је површина врха. На тај начин утврђене су мерне несигурности у одређивању континуума, која се директно рефлектује на одређивање површине врха. За мерне несигурности врхова чије су површине одређене само из програма *Interactive Peak Fit Analysis* узете су вредности које даје програм и вршена је варијација континуума мењањем граница интеграције и мењањем броја тачака са леве и десне стране врха којима се рачуна континуум.

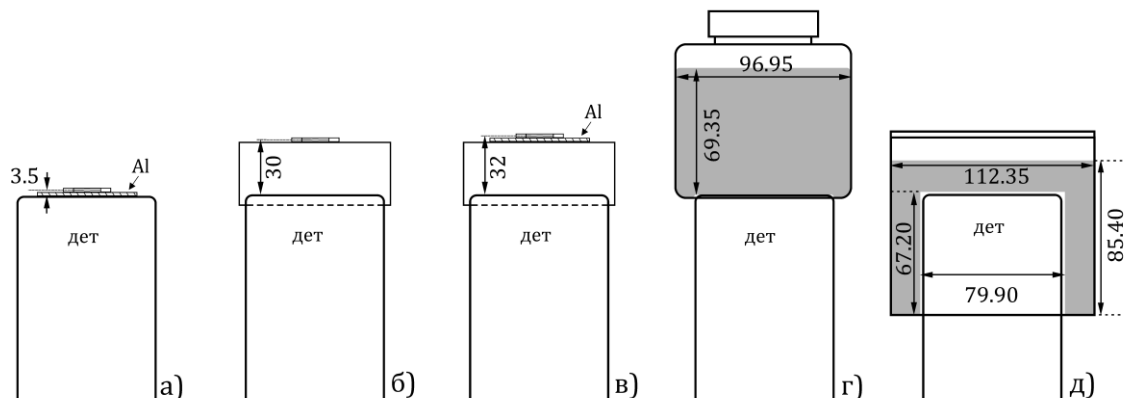
Мерна несигурност методе помоћу једноставне формуле (8.3.1) рачуната је стандардним поступком проналажења парцијалних извода по измереним брзинама бројања:

$$\sigma = \frac{1}{A} \sqrt{\left(\frac{\partial A}{\partial N_1}\right)^2 N_1 + \left(\frac{\partial A}{\partial N_2}\right)^2 N_2 + \left(\frac{\partial A}{\partial N_c}\right)^2 N_c + \left(\frac{\partial A}{\partial N_s}\right)^2 N_s + \left(\frac{\partial A}{\partial N_T}\right)^2 N_T} \quad (8.3.8)$$

Овако израчуната грешка такође је дата на нивоу значајности 95.45% у Табели 8.3.

8.4 Апсолутно мерење активности извора ^{152}Eu

Апсолутна активност калибрационих извора ^{152}Eu мерена је на коаксијалном HPGe детектору релативне ефикасности 35% у тачкастој, цилиндричној и маринели геометрији. Експерименталне поставке приказане су на Слици 8.12.

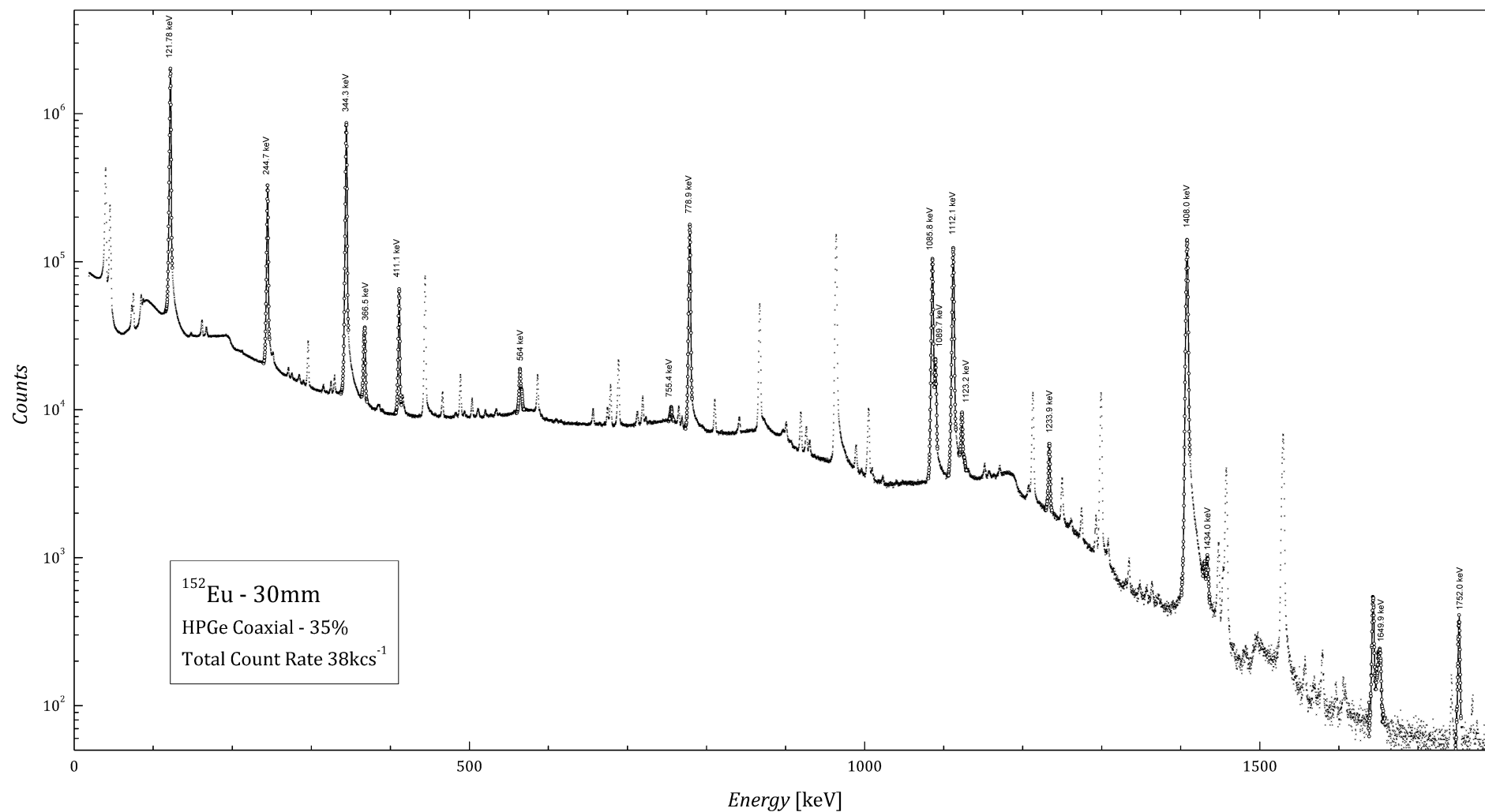


Слика 8.12 Експерименталне поставке за мерење активности извора ^{152}Eu на коаксијалном HPGe детектору. Тачкасти извор Amersham-No. 11188: а) на растојању 3.5 mm од капе детектора са алуминијумским апсорбером дебљине 2 mm, б) на растојању 30 mm од капе детектора без апсорбера и в) на растојању 32 mm од капе детектора са алуминијумским апсорбером дебљине 2mm. Распрострањени извори г) цилиндрични на капи детектора и д) маринели на капи детектора.

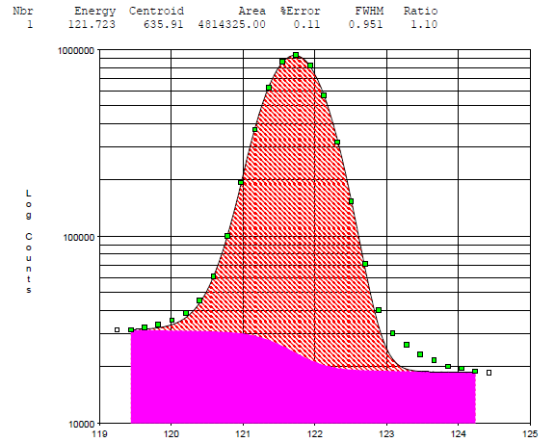
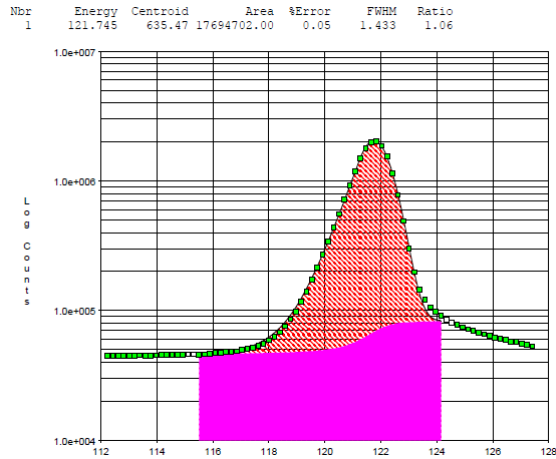
За обраду сигнала и овде је коришћена преносива дигитална спектроскопска јединица *Inspector 2000* произвођача *Canberra*. Коло за одбацивање наседајућих сигнала је било укључено у сваком експерименту, а спектри су сакупљани помоћу програма *Gamma Acquisition and Analysis* у оквиру програмског пакета *Genie 2000*.

Спектри су обрађени у програму *Gamma Acquisition and Analysis* при чему су сви синглети и мултиплитети фитовани у оквиру програма за интерактивно фитовање. Претходно је извршена енергетска калибрација облика врха креирањем базе података за релевантне синглетне линије у спектру извора ^{152}Eu . Ово је учињено за сваки спектар појединачно јер су снимани на различитим брзинама бројања. Пример спектра извора ^{152}Eu приказан је на Слици 8.13.

Спектрални подаци најлошијег квалитета добијени су за тачкасти извор ^{152}Eu при растојању 3.5 mm од капе детектора (брзина бројања 87kcs^{-1}). Ради поређења квалитета спектралних података на Слици 8.14. приказан је врх на енергији 121.8 keV који је добијен на брзини бројања 38kcs^{-1} и 6kcs^{-1} . Највећу несигурност у обради врхова на већим брзинама бројања управо доноси проблем дефиниције континуума и репа на нижој и вишој енергији. Уграђена функција са експоненцијалним репом за нижу енергију није адекватна на великим брзинама бројања, већим око 40kcs^{-1} . У програму *Interactive Peak Fit* не постоји опција за дефинисање репа на вишој енергији, тако да се за горњу границу релевантне области врха пуне енергије узимао практично део где долази до знатног одступања од гаусовог облика. Ово се јасно види на Слици 8.14.а, у логаритамској скали. Слична процедура за одређивање површине врхова на већим брзинама бројања коришћена је у [62]. Метод сумарног врха слабо зависи од ефикасности детекције, а управо ефикасност врха пуне енергије зависи и од начина на који је дефинисан врх пуне енергије. У том смислу, при мерењу активности само помоћу спектралних података није битна информација о ефикасности врха пуне енергије, већ је важно да се за одређивање врхова усвоји одговарајућа процедура која се примењује једнако на све врхове у спектру.



Слика 8.13 Спектар тачкастог извора ^{152}Eu снимљен на растојању 30 mm од капе коаксијалног HPGe релативне ефикасности 35% помоћу дигиталне спектроскопске јединице. У спектру су маркирани врхови који су коришћени за мерење апсолутне активности.



а)

б)

Слика 8.14 Врх на енергији 121.8 keV на различитим брзинама бројања. а) Брзина бројања 38 kcs⁻¹; јасно је изражен проблем репа на вишој и нижој енергији и велико одступање од гаусовог облика. б) Брзина бројања 6 kcs⁻¹; фит није идеалан, али неадекватан опис репа на вишој и нижој енергији обухвата само десет до двадесет процената реда величине, док је у претходном случају неслагање репова на више десетина процената реда величине. Област врха пуне енергије и континуум је јасно дефинисан.

Иако је статистичка грешка мања на већим брзинама бројања, главну несигурност у мереној површини врха ипак доноси облик врха и облик континуума. Спектрални подаци различитих извора ¹⁵²Eu снимани при различитим геометријама сумирани су у Табели 8.4.

Резултати мерења активности извора ¹⁵²Eu на основу података из Табеле 8.4 и формуле (7.4.4.5) дати су у Табели 8.5. Као што се види у резултатима мерења, активности се разликују у зависности од избора фотонских каскада. За тачкасти извор мерен на растојању 3.5 mm од капе детектора велика брзина бројања је узрок великог одступања од референтне вредности активности. Врхови у спектру тачастиг извора ¹⁵²Eu мереног на растојању 3.5 mm од капе детектора су били јако деформисани. Такође преклапање са другим врховима онемогућило је прецизно мерење површине врхова па је то главни узрок великог одступања. Активности истог извора мерене на растојању 30 mm од капе детектора су у много бољој сагласности са референтним активностима. Нема већег одступања од 3%. Такође на растојању 32 mm од капе детектора нема већег одступања од 3%. Најбољи резултати добијају се за комбинације каскада 10→1→0 ¹⁵²Sm и 7→1→0 ¹⁵²Gd. Спектар добијен за извор постављен на растојању 100 mm од капе детектора даје активности које одступају и до 20% од референтне активности. Овде је узрок слаба статистика у релевантним сумарним врховима и врху случајних коинциденција.

Табела 8.4 Спектрални подаци калибрационих извора ^{152}Eu у разним геометријама добијеним помоћу коаксијалног HPGe детектора релативне ефикасности 35% и DSP спектроскопске јединице.

	Тачкасти извор				Распрострањени извори		
	Растојање извора од капе детектора				Облик		
	3.5 mm	30 mm	32 mm	100 mm	Цилиндричан	Маринели	
<i>Датум мерења</i>	06.01.2010.	13.11.2009.	07.01.2010.	06.04.2005.	07.04.2005.	08.04.2005.	
<i>Време мерења [s]</i>	13633.34	3600.56	44391.97	7776.21	75748.82	9537.28	
<i>Мртво време [%]</i>	81.39	51.82	43.35	19.82	5.75	10.86	
Прелаз	E [keV]	Површине врхова					
1→0 ^{152}Sm	121.8	$1.36(5) 10^8$	$1.75(3) 10^7$	$1.65(2) 10^8$	$1.096(3) 10^7$	$1.688(10) 10^7$	$4.830(5) 10^6$
2→1 ^{152}Sm	244.7	/	$2.93(3) 10^6$	$2.90(3) 10^7$	$2.0130(12) 10^6$	$3.309(5) 10^6$	$9.384(23) 10^5$
1→0 ^{152}Gd	344.3	$7.50(20) 10^7$	$8.28(8) 10^6$	$8.09(7) 10^7$	$5.385(20) 10^6$	$1.010(3) 10^7$	$2.915(3) 10^6$
2→1→0 ^{152}Sm	366.5	*	*	*	$1.78(5) 10^4$	$8.48(6) 10^4$	$3.38(13) 10^4$
3→1 ^{152}Gd	411.1	$4.20(9) 10^6$	$5.47(5) 10^5$	$5.50(5) 10^6$	$3.845(15) 10^5$	$8.50(9) 10^4$	$1.898(13) 10^5$
16→9 ^{152}Sm	564	$9.20(28) 10^5$	$9.94(20) 10^4$	$9.87(5) 10^5$	$6.59(4) 10^4$	$1.255(6) 10^5$	$3.56(11) 10^4$
3→1→0 ^{152}Sm	755.4	$5.1(5) 10^5$	$1.9(4) 10^4$	$1.6(3) 10^5$	$4.96(29) 10^3$	$2.37(5) 10^4$	$9.29(26) 10^3$
7→1 ^{152}Gd	778.9	$1.68(3) 10^7$	$1.91(3) 10^6$	$1.925(10) 10^7$	$1.297(3) 10^6$	$2.654(3) 10^6$	$7.273(18) 10^5$
9→0 ^{152}Sm	1085.8	$1.396(20) 10^7$	$1.266(10) 10^6$	$1.272(5) 10^7$	$7.939(9) 10^5$	$1.808(3) 10^6$	$5.062(15) 10^5$
11→1 ^{152}Gd	1089.7	$2.00(5) 10^6$	$2.25(8) 10^5$	$2.17(7) 10^6$	$1.388(4) 10^5$	$2.948(7) 10^5$	$8.04(4) 10^4$
10→1 ^{152}Sm	1112.1	$1.45(3) 10^7$	$1.518(20) 10^6$	$1.557(14) 10^7$	$1.0204(10) 10^6$	$2.225(5) 10^6$	$5.976(25) 10^5$
7→1→0 ^{152}Gd	1123.2	$1.72(10) 10^6$	$6.05(18) 10^4$	$4.73(9) 10^5$	$8.4(11) 10^3$	$7.46(3) 10^4$	$3.10(8) 10^4$
10→1→0 ^{152}Sm	1233.9	$1.44(4) 10^6$	$4.95(10) 10^4$	$3.74(4) 10^5$	$5.79(16) 10^3$	$4.71(11) 10^4$	$1.89(6) 10^4$
13→1 ^{152}Sm	1408	$1.80(4) 10^7$	$1.87(3) 10^6$	$1.96(3) 10^7$	$1.2939(12) 10^6$	$2.870(3) 10^6$	$7.710(14) 10^5$
11→1→0 ^{152}Gd	1434	$1.79(5) 10^5$	$6.3(3) 10^3$	$4.48(8) 10^4$	$7.0(5) 10^2$	$7.4(3) 10^3$	$3.34(18) 10^3$
16→9→0 ^{152}Sm	1649.9	$5.8(5) 10^4$	$1.78(35) 10^3$	$1.341(20) 10^4$	$1.70(25) 10^2$	$1.45(5) 10^3$	$5.73(40) 10^2$
1→0 ^{152}Gd + 13→1 ^{152}Sm	1752.3	$1.14(3) 10^5$	$4.69(23) 10^3$	$3.90(6) 10^4$	$8.85(34) 10^2$	$3.2(4) 10^2$	$1.84(20) 10^2$
површина спектра		$1.191(19) 10^9$	$1.380(14) 10^8$	$1.320(13) 10^9$	$8.898(3) 10^7$	$2.286(23) 10^8$	$5.654(6) 10^7$

Грешке у површинама врхова пуне енергије су дате са мерном несигурношћу на нивоу поверења 68.3%.

Табела 8.5 Активности извора ^{152}Eu добијене помоћу формуле (7.4.4.5), спектралних података из Табеле 8.4. при чему су поправке на ефективне угаоне корелације рачунате помоћу процедуре дате у Прилогу А. Испод нумеричких резултата активности дат је однос мерене и референтне активности. Мерна несигурност је дата само за резултате чија средња вредност не одступа више од 10% од референтне активности. Мерне несигурности су дате на нивоу значајности 95.45% ($k = 2$). Резултати мерења који не одступају више од 3% од референтне активности приказане су укошеним словима.

	Тачкасти извор				Распрострањени извори	
	Растојање извора од капе детектора				Геометрија	
	3.5 mm	30 mm	32 mm	100 mm	Цилиндричан	Маринели
Брзина бројања [kcs ⁻¹]	87.4	38.3	29.7	11.4	3.0	5.9
Каскаде	Активност [kBq] и однос мерене и референтне активности					
(2→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	/	/	/	336(24) 0.836	15.5 0.43	29.8(14) 0.925
(3→1→0) ¹⁵² Gd						
(10→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	274 0.873	310(39) 0.978	305(31) 0.971	424(31) 1.05	16.2 0.484	31.8(14) 0.988
(3→1→0) ¹⁵² Gd						
(2→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	/	/	/	385(41) 0.958	18.7 0.558	30.8(14) 0.957
(7→1→0) ¹⁵² Gd						
(10→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	282 0.898	309(19) 0.975	310(10) 0.978	473(45) 1.18	20.5 0.612	32.7(14) 1.02
(7→1→0) ¹⁵² Gd						
(2→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	/	/	/	399(31) 0.993	19.2 0.573	31.0(16) 0.963
(11→1→0) ¹⁵² Gd						
(10→1→0) ¹⁵² Sm						
(16→9→0) ¹⁵² Sm	290 0.924	312(21) 0.984	317(12) 1.01	487(37) 1.21	19.7 0.627	32.9(16) 1.02
(11→1→0) ¹⁵² Gd						
Средња вредност [kBq]	282	310(16)	311(12)	417(15)	18.3	31.5(6)
A_{exp}/A_{ref}	0.898	0.978	0.989	1.04	0.546	0.978
Референтна Активност [kBq]	314(5)	317(5)	314(5)	402(6)	33.5(17)	32.2(16)

Спектри распрострањених извора добијени су на много мањим брзинама бројања, па су сви врхови били добро дефинисани. Међутим, Формула (7.4.4.5) није адекватна за распрострањене изворе јер нема корекционе чланове услед варијације ефикасности и угаоних корелација унутар запремине извора. Ово је нарочито уочљиво код цилиндричног узорка где су одступања и већа од 50%. Маринели геометрија, иако такође без корекционих фактора, много је прихватљивија за примену методе сумарног врха, што се види из резултата мерења. Без увођења било каквих корекционих фактора на угаоне корелације и варијацију ефикасности добијене су активности које нису одступале више од 10% од референтне активности. Код маринели геометрије све комбинације са каскадом 10→1→0 ¹⁵²Sm дају резултате активности помоћу формуле (7.4.4.5) који не одступају више од 2% од референтне активности.

Користећи спектралне податке извора ^{152}Eu дате у Табели 8.4. тестиране су формуле (7.4.6.6), (7.4.6.7) и (7.4.6.8) изведене у одељку 7.4.6 које се односе на мерење активности помоћу једне каскаде. Измерене активности дате су у Табели 8.6.

Табела 8.6 Активности извора ^{152}Eu мерене на основу спектралних података из Табеле 8.4 и формула (7.4.6.6), (7.4.6.7) и (7.4.6.8). Вероватноће прелаза према [41] које фигуришу у формулама за мерење активности су: $p_{1\rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) = 0.615$, $p_{9\rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) = 0.1015$ и $p_{1\rightarrow 0}^{\text{Gd}}(\gamma + ce) = 0.2765$. Резултати мерења који не одступају више од 2% од референтне активности приказани су укошеним словима.

	Тачкасти извор				Распрострањени извори	
	Растојање извора од капе детектора				Геометрија	
	3.5 mm	30 mm	32 mm	100 mm	Цилиндричан	Маринели
Брзина бројања [kcs ⁻¹]	87.4	38.3	29.7	11.4	3.0	5.9
Каскаде	Активност [kBq] и однос мерене и референтне активности					
(2→1→0) ¹⁵² Sm	/	/	/	351(25) 0.87	18.4* 0.55	29.1(19) 0.90
(10→1→0) ¹⁵² Sm	278(23) 0.89	315(21) 0.99	317(15) 1.01	494(39) 1.23	18.9* 0.56	32.3(18) 1.00
(16→9→0) ¹⁵² Sm	265(34) 0.84	276(21) 0.87	286(10) 0.91	531(160) 1.32	28.1* 0.84	39(5) 1.20
(3→1→0) ¹⁵² Gd	271(40) 0.86	318(128) 1.00	293(106) 0.93	238(28) 0.59	4.9* 0.15	28.7(14) 0.89
(7→1→0) ¹⁵² Gd	302(33) 0.96	317(23) 1.00	313(15) 1.00	417(59) 1.04	19.3* 0.58	32.0(15) 0.99
(11→1→0) ¹⁵² Gd	330(27) 1.05	325(39) 1.03	337(27) 1.07	467(77) 1.16	19.0* 0.57	32.7(29) 1.02
Средња вредност [kBq]	289(14) 0.92	310(28) 0.98	310(22) 0.99	486(39) 1.21	21.2* 0.63	32.3(5) 1.16
Референтна Активност [kBq]	314(5)	317(5)	314(5)	402(6)	33.5(17)	32.2(16)

На основу резултата приказаних у Табели 8.6. може се закључити да нису све каскаде адекватне за мерење активности помоћу формула (7.4.6.6), (7.4.6.7) и (7.4.6.8). Највећа одступања се добијају за каскаду 16→9→0 потомка ^{152}Sm . Ово је и очекиван резултат с обзиром да сумарни врх није добро дефинисан јер се преклапа са суседним врховима ван моћи разлагања спектрометра. Такође, теоријски модел за овај сумарни врх је веома груб јер одброј под сумарним врхом настаје услед више различитих каскада где се ни једна не може издвојити као довољно доминантна. Каскада 3→1→0 потомка ^{152}Gd исто доноси веома лоше резултате, са великом мерном несигурношћу, одступања и до 90%. Узрок је веома лоше дефинисан сумарни врх на 755 keV за који се не може дефинисати јасан континуум нити положај центроида. Каскада 2→1→0 ^{152}Sm доноси нешто боље резултате, али на мањим брзинама бројања.

На већим брзинама бројања међусобна интерференција сумарног врха каскаде 2→1→0 потомка ^{152}Sm на 366.5 keV и регуларног врха на енергији 367.8 keV онемогућује да се раздвоји овај мултиплитет. На мањим брзинама бројања, цилиндар и маринели и тачкасти на 10 cm могуће је рачунати активност и помоћу ове каскаде. Најбољи резултати добијају се за каскаде 10→1→0 потомка ^{152}Sm и 7→1→0 потомка ^{152}Gd за спектралне податке тачкастих извора постављених на растојање 30 mm и 32 mm од капе детектора као и за Маринели геометрију. Каскада 7→1→0 потомка ^{152}Gd доноси најбоље резултате на свим брзинама бројања осим за цилиндричну геометрију.

Из резултата мерења произилази да недостатак корекционих фактора за цилиндричну геометрију резултира у великој систематској грешци мерне активности. Услед тога статистичка грешка није ни приказана јер је она много мања од систематске. Израчунавање корекционих фактора за цилиндричну геометрију представља

компликовану процедуру јер се положаји елементарних извора не поклапају са осом детектора. Асиметричан положај извора доводи у питање тачности упортебе законе апсорпције гама зрачења за добијање релативне ефикасности у функцији упадног угла фотона. За детаљно испитивање тачности методе потребно је располагати резултатима рачунатим Monte Carlo симулацијама.

Са друге стране изненађујуће добри резултати активности који су добијени за Маринели геометрију без корекционих фактора на основу овог рада могу се објаснити само квалитативно. Према формули (7.4.3.1) и графику за поправке на ефективне угаоне корелације за извор ^{152}Eu (Слика 7.12) где се види да су за каскаде $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ и $11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ корекциони фактори на ефективне угаоне корелације мањи од 1, закључујемо да ће сабирци који имају смисао не детектованих распада од елементарних извора приближно бити једнаки јер се на већем растојању очекује и мањи одброј у сумарним врховима. За стандардну Маринели геометрију, на основу експеримента произилази да је приближно задовољен услов једнакости у формули за активност распрострањеног узорка

$$N_D + \sum_{i=1}^n \left(\frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i} \right) \square \sum_{i=1}^n \sum_k \left(\frac{N_1^{ik} N_2^{ik}}{N_\Sigma^{ik}} + N_D^{ik} \right) w_{ik} . \quad (8.4.1)$$

која се мери преко n каскада. Такође, претходни услов примењен на формулу за активност помоћу једне каскаде се своди на:

$$N_D + \frac{N_1 N_2}{p N_\Sigma} \square \sum_k \left(\frac{N_1^k N_2^k}{p N_\Sigma^k} + N_D^k \right) w_k . \quad (8.4.2)$$

Детаљна анализа важности Једнакости (8.4.2) захтева Monte Carlo израчунавања што превазилази оквире овог рада.

На брзинама бројања мањим од 40 kcs^{-1} (у овим експериментима са DSP јединицом) при чему се из спектралних података добијају врло тачне информације о површинама врхова активности тачкастих извора могу се мерити са грешком не већом од 2% процената уколико се узму у обзир поправке на ефективне угаоне корелације. За стандардну Маринели геометрију запремине 450 ml која обухвата капу коаксијалног HPGe детектора, резултати активности могу имати мање одступање од 2% без икаквих корекција.

За израчунавање мерне несигурности експериментално одређених активности тачкастог узорка узета је у обзир грешка у одређивању површине врхова пуне енергије, сумарних врхова и врхова случајних коинциденција, као и мерна несигурност ефективних угаоних корелација.

У процени грешке у одређивању површине врха није узета у обзир само статистичка грешка, већ је вршена и варијација континуума и област интеграције. Варијација облика интеграције нема много утицаја на грешку уколико врх не лежи на континууму неког врха у окружењу. Међутим сумарни врх на 1434 keV лежи на репу ка вишој енергији врха пуне енергије на 1408 keV и интерферира са још једним сумарним врхом на енергији 1430 keV па се варијација области интеграције одражава и на облик континуума и на укупну површину врха. Ово је илустровано на Слици 8.15.

Мерна несигурност корекционог фактора на ефективне угаоне корелације процењена је из несигурности положаја извора и геометрије детектора. Такође узета је у обзир грешка модела апсорпције гама зрачења према литератури [47]. У овом смислу угаоне корелације доносе несигурност од око 2%.

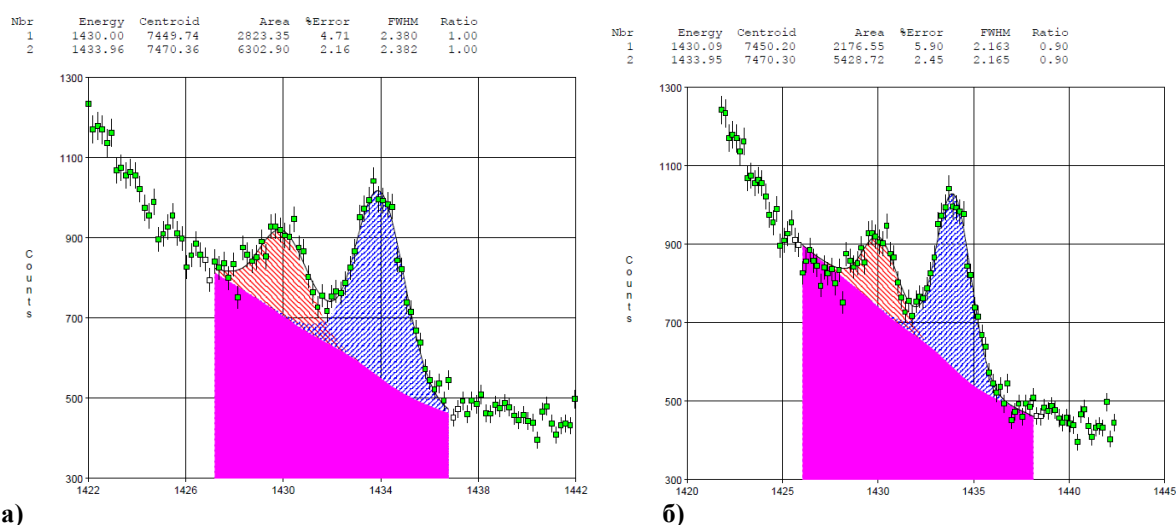
Грешка на корекцију на живо време имплицитно је садржана у грешки врха случајних коинциденција, јер се на основу њега кориговао одброј у одговарајућим

врховима. Инструментална грешка самог алгоритма DSP јединице и уграђеног сата није позната. Време мерења које је дато уз спектралне податке приказано је са безначајном грешком у самом спектру, 0.0005 s.

Укупна релативна мерна несигурност на нивоу поверења 95.45% рачуната је обрасцем:

$$\sigma = \frac{2}{A} \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial A}{\partial N_i} \right)^2 (\Delta N_i)^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial N_T} \right)^2 (\Delta N_T)^2 + \sigma_w^2}, \quad (8.4.3)$$

где је A одговарајући аналитички израз за активност, формуле (7.4.4.5), (7.4.6.6), (7.4.6.7) и (7.4.6.8) и N_i су нето површине врхова коришћене у спектру; N_D је укупна брзина бројања. Ознака Δ се односи на апсолутну грешку површине врха; σ_w је релативна грешка за корекциони фактор на ефективне угаоне корелације.



Слика 8.15 Варијација области интеграције утиче на облик континуума што уноси мерну несигурност у одређивању површине врха. Ово је јасно истакнуто код сумарног врха на енергији 1434 keV. Површина врха у случају а) 6300; у случају б) 5428.

На брзинама бројања не већим од 40 kcs^{-1} мерна несигурност средње вредности активности тачкастих извора која је добијена помоћу 3 каскаде не превазилази 5%. Мерења распрострањених узорка на мањим брзинама бројања доносе много мању мерну несигурност у одређивању површине врхова па су јасан показатељ ограничења тачности методе. Статистичка грешка средње вредности активности за Маринели геометрију преко три каскаде је око 2%.

Мерна несигурност методе која користи само једну каскаду нешто је већа. Са довољном статистиком мерна несигурност средње вредности је мања од 10% за брзине бројања мање од 40 kcs^{-1} . Резултати на распрострањеним узорцима указују да грешка при мерењу активности само на основу једне каскаде може бити мања од 5%.

9 Закључак

Коинцидентна техника мерења активности тачкастих извора ^{60}Co , ^{133}Ba и извора ^{152}Eu у тачкастој, цилиндричној и маринели геометрији на једном детектору је успешно реализована помоћу коаксијалног HPGe детектора и дигиталне спектроскопске јединице. Резултати мерења су сумирани у Табели 9.1.

Табела 9.1 Сумарни резултати мерења активности извора ^{60}Co , ^{133}Ba и ^{152}Eu

	A_{ref} [kBq]	A_{exp} [kBq]	Метод
^{60}Co	397.7±6.0	397.7±2.3 ^{stat} ±3.3 ^{sist.}	Формула (8.2.7) 13 спектара
^{133}Ba 1	48.2±2.3	48.2±3.4	Формула (8.3.1) Један спектар
^{133}Ba 2	95.0±3.8	95.4±4.0	
^{152}Eu тачкасти	314±5	311±12	Формула (7.4.4.5) Један спектар
^{152}Eu цилиндрични	33.5±1.7	18.3	
^{152}Eu маринели	32.2±1.6	31.5±0.6	
^{133}Ba 1	48.2±2.3	47.9±3.4	Метод свих исхода Један спектар
^{133}Ba 2	95.0±3.8	94.9±4.0	
^{152}Eu тачкасти	314±5	310±22	Једна варијанта Формуле (7.4.6.4) Један спектар
^{152}Eu цилиндрични	33.5±1.7	21.2	
^{152}Eu маринели	32.2±1.6	32.3±0.5	

Активност тачкастог калибрационог извора ^{60}Co која је добијена на основу 13 мерења на једном гама спектрометру на различитим растојањима од капе детектора када су узете у обзир ефективне угаоне корелације је у одличној сагласности са резултатом који је добио произвођач. Детаљна анализа грешке доноси мерну несигурност око 1.4%. Резултати указују да се може постићи минимална несигурност око 0.5% уколико се поправке на ефективне угаоне корелације израчунају са већом тачношћу.

Активност тачкастих извора ^{133}Ba добијена једноставним поступком такође са поправком на ефективне угаоне корелације и насумично сумирање доноси резултате који имају мерну несигурност око 4%. Резултати су у доброј сагласности <1% са методом који је добио произвођач. Метод свих исхода даје сличне резултате.

За изворе ^{152}Eu резултати мерења зависе од облика извора. Сложеност шеме одражава се на тачност методе која се овде може проценити на минимално око 5%.

За једноставне шеме који се распадају путем емисије 2 фотона у каскади уз одговарајућу процедуру и употребу DSP спектроскопске јединице могу се постићи добри резултати и на брзинама бројања од око 80 kcs⁻¹. За сложеније шеме распада

јавља се проблем са интерферирањем врхова у спектру. У том смислу извор ^{133}Ba и ^{152}Eu треба мерити на брзинама бројања која су испод 10 kcs^{-1} .

У овом раду демонстрирана је предност принципа коинцидентне технике на једном детектору у односу на коинцидентну технику са два детектора јер није било потребе за било каквим хардверским подешавањима. Међутим сложеност технике одразила се на обраду и анализу спектралних података која практично и уноси највећи проблем у постизању већих тачности.

Метод као такав, док се не појаве детектори са много бољом временском и енергетском резолуцијом може имати велики значај у лабораторијској пракси која подразумева обраду и анализу спектралних података као и у рутинској калибрацији када се не захтева тачност испод 1% за двофотонске каскадне емитере и око 5% за сложене гама емитере.

Прилози

Прилог А

Угаоне корелације каскадних фотона

А.1 Коефицијенти угаоних корелација

У одељку 6.1 дата је формула за израчунавање функције угаоних корелација (6.1.1) и формула (6.1.8) за израчунавање ефективних угаоних корелација. У овим формулама фигуришу коефицијенти угаоних корелација (6.1.3) који се израчунавају производима функција (6.1.4) и (6.1.5). У коефицијентима (6.1.4) и (6.1.5) фигуришу F коефицијенти који се израчунавају помоћу 3- j и 6- j симбола. У [63] дата је табела F коефицијената за одговарајуће спинове стања и угаоних момената фотона. Међутим, програм *Mathematica* има уграђене функције за налажење 3- j и 6- j симбола, па је писањем програма у *Mathematici* процедура описана у одељку 6.1 знатно поједностављена.

Дефинисана је функција помоћу које се израчунава F симбол:

```
F[k_,L_,L1_,Ii_1,Ic_] :=  
( (-1) ^ (Ii+Ic-1) ) ( (2L+1) (2L1+1) (2Ic+1) (2k+1) ) ^ (1/2)  
ThreeJSymbol [{L1, 1}, {L1, 1}, {k, 0}] SixJSymbol [{L, L1, k}, {Ic, Ic, Ii  
}]
```

Где је k број коефицијента (2, 4 6,...), L је угаони момент фотона, $L1$ виши мутипол угаоног момента фотона који се уноси уколико је прелаз мешан, Ii је спин иницијалног или финалног стања, а Ic је спин интермедијарног стања.

Прво је дефинисана општа функција за израчунавање коефицијента угаоних корелација који фигуришу у једначини (6.1.3).

```
A[k_,L1_,Ii_,Ic_,δ_] :=  
If[Abs[δ]>0, ( (-1) ^ (Ii+Ic-1) )  
( (2L1+1) (2L1+1) (2Ic+1) (2k+1) ) ^ (1/2)  
ThreeJSymbol [{L1, 1}, {L1, -1}, {k, 0}]  
SixJSymbol [{L1, L1, k}, {Ic, Ic, Ii}] + 2δ ( (-1) ^ (Ii+Ic-1) )  
( (2L1+1) (2Ic+1) (2(L1+1)+1) (2k+1) ) ^ (1/2)  
ThreeJSymbol [{L1, 1}, {L1+1, -1}, {k, 0}]  
SixJSymbol [{L1, L1+1, k}, {Ic, Ic, Ii}] + δ^2 ( (-1) ^ (Ii+Ic-1) )  
( (2(L1+1)+1) (2(L1+1)+1) (2Ic+1) (2k+1) ) ^ (1/2)  
ThreeJSymbol [{L1+1, 1}, {L1+1, -1}, {k, 0}]  
SixJSymbol [{L1+1, L1+1, k}, {Ic, Ic, Ii}] / (1+δ^2), ( (-1) ^ (Ii+Ic-1) )
```

```

((2L1+1) (2L1+1) (2Ic+1) (2k+1))^(1/2)
ThreeJSymbol[{L1, 1}, {L1, -1}, {k, 0}]
SixJSymbol[{L1, L1, k}, {Ic, Ic, Ii}]

```

Функција угаоних корелација два каскадна фотона дефинисана је програмом који се користи претходном функцијом за дефинисање коефицијената угаоних корелација:

```

W[{L1_, δ1_}, {L2_, δ2_}, {ii_, iin_, if_}:=1+Sum[A[k, L1, ii, iin, δ1]
A[k, L2, if, iin, δ2]LegendreP[k, Cos[θ]],
{k, 2, If[And[Abs[δ1]>0, Abs[δ2]>0],
If[EvenQ[Min[2 iin, L1+1, L2+1]], Min[2 iin, L1+1, L2+1],
Min[2 iin, L1+1, L2+1]-1],
If[And[Abs[δ1]>0, δ2==0],
If[EvenQ[Min[2 iin, L1+1, 2 L2]], Min[2 iin, L1+1, 2 L2],
Min[2 iin, L1+1, 2 L2]-1],
If[And[Abs[δ2]>0, δ1==0], If[EvenQ[Min[2 iin, 2 L1, L2+1]],
Min[2 iin, 2 L1, L2+1], Min[2 iin, 2 L1, L2+1]-1],
If[EvenQ[Min[2 iin, 2 L1, 2 L2]], Min[2 iin, 2 L1, 2 L2],
Min[2 iin, 2 L1, 2 L2]-1]]], 2}

```

A.2 Ефективне угаоне корелације

Функција за израчунавање ефективних угаоних корелација је нешто сложенија, јер се морају увести атенуациони фактори који зависе од ефикасности детекције фотона одређене енергије као и упадног правца фотона. Овде је функција за коефицијент апсорпције гама зрачења за германијум и алуминијум дата експлицитно која је претходно фитована на податаке из базе X-com.

```

Wef[{E1_,L1_,δ1_},{E2_,L2_,δ2_},{ii_,iin_,if_},{h_,H_,d1_,d2_,  

r_,l_,d1_,da_,x_}] :=
(miGe=0.0316561261+0.0002319430/s^3-  

0.00079310/s^2+0.0084990217/s-0.0112175448 s+0.002015730  

s^2;miAl=0.015327108+0.000028199513/s^3-  

0.0005806215/s^2+0.005744249060/s-0.0046190547  

s+0.000696183637 s^2;  

En={E1/1000,E2/1000};  

μAl=Table[miAl/.s→En[[i]],{i,1,Length[En]}];  

μGe=Table[miGe/.s→En[[i]],{i,1,Length[En]}];  

dis=r+d1+x;  

{θ1=ArcTan[d1/(dis+H-d1)],θ2=ArcTan[d1/(dis+h-d1)],  

θ3=ArcTan[(d2-d1)/(dis+H-d1)],θ4=ArcTan[(d2-d1)/dis]}];  

f11=Exp[-μAl[[1]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[1]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[1]](h-d1)Sec[θ]]);  

f12=Exp[-μAl[[2]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[2]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[2]](h-d1)Sec[θ]]);  

f21=Exp[-μAl[[1]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[1]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[1]]((h+H+dis-2d1)Sec[θ]-d1 Csc[θ])]);  

f22=Exp[-μAl[[2]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[2]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[2]]((h+H+dis-2d1)Sec[θ]-d1 Csc[θ])]);  

f31=Exp[-μAl[[1]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[1]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[1]](H-d1)Sec[θ]]);  

f32=Exp[-μAl[[2]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[2]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[2]](H-d1)Sec[θ]]);  

f41=Exp[-μAl[[1]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[1]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[1]]((d2-d1)Csc[θ]-(dis)Sec[θ])]);  

f42=Exp[-μAl[[2]](1+da)Sec[θ]] Exp[-μGe[[2]]d1 Sec[θ]]  

(1-Exp[-μGe[[2]]((d2-d1)Csc[θ]-(dis)Sec[θ])]);  

J01=  

NIntegrate[f11 Sin[θ],{θ,0,θ1}]+  

NIntegrate[f21 Sin[θ],{θ,θ1,θ2}]+  

NIntegrate[f31 Sin[θ],{θ,θ2,θ3}]+  

NIntegrate[f41 Sin[θ],{θ,θ3,θ4}];  

J21=  

NIntegrate[f11 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,0,θ1}]+  

NIntegrate[f21 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ1,θ2}]+  

NIntegrate[f31 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ2,θ3}]+  

NIntegrate[f41 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ3,θ4}];  

J41=  

NIntegrate[f11 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,0,θ1}]+  

NIntegrate[f21 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ1,θ2}]+  

NIntegrate[f31 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ2,θ3}]+

```

```

NIntegrate[f41 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ3,θ4}];
J02=
NIntegrate[f12 Sin[θ],{θ,0,θ1}]+
NIntegrate[f22 Sin[θ],{θ,θ1,θ2}]+
NIntegrate[f32 Sin[θ],{θ,θ2,θ3}]+
NIntegrate[f42 Sin[θ],{θ,θ3,θ4}];
J22=
NIntegrate[f12 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,0,θ1}]+
NIntegrate[f22 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ1,θ2}]+
NIntegrate[f32 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ2,θ3}]+
NIntegrate[f42 Sin[θ] LegendreP[2,Cos[θ]],{θ,θ3,θ4}];
J42=
NIntegrate[f12 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,0,θ1}]+
NIntegrate[f22 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ1,θ2}]+
NIntegrate[f32 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ2,θ3}]+
NIntegrate[f42 Sin[θ] LegendreP[4,Cos[θ]],{θ,θ3,θ4}];
Q21=J21/J01;
Q41=J41/J01;
Q22=J22/J02;
Q42=J42/J02;
q={Q21 Q22,Q41 Q42};
(1+Sum[A[k,L1,ii,iin,δ1] A[k,L2,if,iin,δ2] q[[k/2]],
{k,2,If[And[Abs[δ1]>0,Abs[δ2]>0],
If[EvenQ[Min[2 iin,L1+1,L2+1]],Min[2 iin,L1+1,L2+1],
Min[2 iin,L1+1,L2+1]-1],
If[And[Abs[δ1]>0,δ2==0],
If[EvenQ[Min[2 iin,L1+1,2 L2]], Min[2 iin,L1+1,2 L2],
Min[2 iin,L1+1,2 L2]-1],
If[And[Abs[δ2]>0,δ1==0],If[EvenQ[Min[2 iin,2 L1, L2+1]],
Min[2 iin,2 L1, L2+1],Min[2 iin,2 L1,L2+1]-1],
If[EvenQ[Min[2 iin,2 L1,2 L2]],Min[2 iin,2 L1,2 L2],
Min[2 iin,2 L1,2 L2]-1]]]],2})

```

Прилог Б

Дефинисање функције за израчунавање активности извора Ва-133 помоћу спектралних података

Овде је дата процедура којом се у програму *Mathematica* формира систем једначина за брзине бројања у спектралним подацима извора ^{133}Ba . Након уношења ове процедуре дефинисана је функција помоћу које се добијају одговарајуће ефикасности кориговане на право коинцидентно сумирање. Као излазни податак добија се време резолуције, *peak-to-total* функција и активност извора.

Прво се дефинише матрица која се формира помоћу одговарајуће шеме распада, а означава постојеће прелазе при деекситацији потомка ^{133}Ba у ^{133}Cs . На пр. у21 означава да постоји прелаз (емисија γ -фотона или конверзионог електрона са пратећим x -зрачењем) са нивоа 1 у основно стање (0) потомка ^{133}Cs . При формирању процедуре за добијање једначина бројања за изотоп ^{133}Ba , основно стање потомка (^{133}Cs) је обележено са бројем 1. Прво побуђено стање са бројем 2, друго побуђено са бројем 3 и тако даље. Број 6 означава основно стање ^{133}Ba из којег се врши захват електрона.

$$y = \{ \{0, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{y_{21}, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{y_{31}, y_{32}, 0, 0, 0, 0\}, \{y_{41}, y_{42}, y_{43}, 0, 0, 0\}, \{0, y_{52}, y_{53}, y_{54}, 0, 0\}, \{0, 0, 0, y_{64}, y_{65}, 0\} \};$$

Следи дефинисање ознака за могуће исходе при одговарајућем прелазу. На пример d[42] означава прелаз $3 \rightarrow 1$, а скуп у угластој загради дефинише одговарајући исход: pa[42]- потпуна апсорпција x_α -фотона емитованог при конверзији у прелазу $3 \rightarrow 1$, pb[42]-потпуна апсорпција x_β -фотона емитованог при конверзији у прелазу $3 \rightarrow 1$, g[42]-потпуна апсорпција гама фотона емитованог при прелазу $3 \rightarrow 1$ и q[42]-не детектовање прелазу.

$$\begin{aligned} d[65] &= \{pa[65], pb[65], q[65]\}; \\ d[54] &= \{pa[54], pb[54], g[54], q[54]\}; \\ d[53] &= \{pa[53], pb[53], g[53], q[53]\}; \\ d[52] &= \{pa[52], pb[52], g[52], q[52]\}; \\ d[43] &= \{pa[43], pb[43], g[43], q[43]\}; \\ d[42] &= \{pa[42], pb[42], g[42], q[42]\}; \\ d[41] &= \{pa[41], pb[41], g[41], q[41]\}; \\ d[32] &= \{pa[32], pb[32], g[32], q[32]\}; \\ d[31] &= \{pa[31], pb[31], g[31], q[31]\}; \\ d[21] &= \{pa[21], pb[21], g[21], q[21]\}; \\ d[64] &= \{pa[64], pb[64], q[64]\}; \end{aligned}$$

Следи дефинисање ознака за скуп енергија које се могу депоновати у детектору при потпуној апсорпцији одговарајућег фотона. На пример, z[2,1] означава скуп енергија фотона, израженим у eV, који се могу емитовати при прелазу $1 \rightarrow 0$. Прва и друга вредност је свуда иста јер су то x_α и x_β фотони. Трећа вредност означава енергију γ -фотона, а уколико је једнака нули, што је случај са прелазима z[6,5] и z[5,4], прелаз није праћен емисијом γ -фотона. Ово је зато што се ^{133}Ba распада захватом електрона, а z[6,5] и z[5,4] означавају енергије при распаду ^{133}Ba у четврто и треће ексцитовано

стање потомка ^{133}Cs , уз могућност емисије α -фотона. Четврта вредност, која постоји само за гама прелазе свуда је нула, јер уколико нема детекције, депонована енергија у детектору је нула.

```
z[65]={30800,35300,0};
z[54]={30800,35300,53160,0};
z[32]={30800,35300,79610,0};
z[21]={30800,35300,81000,0};
z[31]={30800,35300,160610,0};
z[43]={30800,35300,223240,0};
z[53]={30800,35300,276400,0};
z[42]={30800,35300,302850,0};
z[52]={30800,35300,356010,0};
z[41]={30800,35300,383850,0};
z[64]={30800,35300,0};
```

Следи формирање матрице постојећих прелаза:
MatrixForm[y];

Уколико се ова матрица степенује добијају се путање које се могу реализовати при распаду. Путање распада у n корака добијају се дизањем полазне матрице на n -ти степен, при чему само последња врста прве колоне има смисла. То је зато што само последња врста садржи прелазе који се односе на распад ^{133}Ba у неко од ексцитованих стања потомка ^{133}Cs , а прва колона садржи прелазе који се односе на нужну деексцитацију у основно стање потомка.

```
dec[2]=MatrixPower[y,2][[6,1]];
dec[3]=MatrixPower[y,3][[6,1]];
dec[4]=MatrixPower[y,4][[6,1]];
dec[5]=MatrixPower[y,5][[6,1]];
```

Формирањем скупа прелаза у одговарајућем броју корака могу се дефинисати вероватноће за одговарајуће исходе. На пример, dec[2] је матрица чија последња врста прве колоне садржи све прелазе у два корака. На пример dec[2][[6,1]] = y41y64, указује да постоји распад ^{133}Ba у треће побуђено стање потомка при чему се оно деексцитује директним прелазом у основно стање.

Следи израчунавање матрице вероватноће реализације путање у два корака и формирање одговарајуће матрице за могуће енергије емитованих фотона.

Путања у ДВА КОРАКА: ПУТАЊА 6→4→1

```
pro[641]=Table[d[64][[i]] d[41][[j]],{i,3},{j,4}];
Energy[641]=Table[z[64][[i]] +z[41][[j]],{i,3},{j,4}];
```

pro [641] је матрица која садржи вероватноће за емисију одговарајућих фотона при распаду ^{133}Ba у ^{133}Cs у два корака. Експлицитан облик је:

$$pro[641] = \begin{pmatrix} pa[64]pa[41] & pa[64]pb[41] & pa[64]g[41] & pa[64]q[41] \\ pa[64]pb[41] & pb[64]pb[41] & pb[64]g[41] & pb[64]q[41] \\ q[64]pa[41] & q[64]pb[41] & q[64]g[41] & q[64]q[41] \end{pmatrix}$$

На пример, матрични елемент $\text{pro}[641][[1,1]] = \text{pa}[64]\text{pa}[41]$ означава вероватноћу за каскадну емисију два $x_{K\alpha}$ фотона. Матрични елемент $\text{pro}[641][[1,3]] = \text{pa}[64]\text{pb}[41]$ означава вероватноћу за каскадну емисију $x_{K\alpha}$ фотона и конверзионог $x_{K\beta}$ фотона.

Следи дефинисање матрица вероватноћа и енергија за распада у три корака.

ПУТАЊЕ ТРИ КОРАКА

Према експлицитном облику матрице $\text{dec}[3]$ закључујемо да постоји пет путања у три корака. Такође, уводи се матрица угаоних корелација wef1 између гама фотона емитованих у каскади $4 \rightarrow 2 \rightarrow 1$.

ПУТАЊА $6 \rightarrow 4 \rightarrow 2 \rightarrow 1$

```
wef1 = {{1,1,1,1},{1,1,1,1},{1,1,w310,1},{1,1,1,1}};
pro[6421] = Table[d[64][[i]] d[42][[j]] d[21][[k]]
wef1[[j,k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
Energy[6421]=
Table[z[64][[i]]+z[42][[j]]+z[21][[k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
```

ПУТАЊА $6 \rightarrow 4 \rightarrow 3 \rightarrow 1$

```
wef2={{1,1,1,1},{1,1,1,1},{1,1,w320,1},{1,1,1,1}};
pro[6431]=Table[d[64][[i]] d[43][[j]] d[31][[k]]
wef2[[j,k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
Energy[6431]=Table[z[64][[i]]
+z[43][[j]]+z[31][[k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
```

ПУТАЊА $6 \rightarrow 5 \rightarrow 2 \rightarrow 1$

```
wef3={{1,1,1,1},{1,1,1,1},{1,1,w410,1},{1,1,1,1}};
pro[6521]=Table[d[65][[i]] d[52][[j]] d[21][[k]]
wef3[[j,k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
Energy[6521]=Table[z[65][[i]]
+z[52][[j]]+z[21][[k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
```

ПУТАЊА $6 \rightarrow 5 \rightarrow 3 \rightarrow 1$

```
wef4={{1,1,1,1},{1,1,1,1},{1,1,w420,1},{1,1,1,1}};
pro[6531]=Table[d[65][[i]] d[53][[j]] d[31][[k]]
wef4[[j,k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
Energy[6531]=Table[z[65][[i]]+
z[53][[j]]+z[31][[k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
```

ПУТАЊА $6 \rightarrow 5 \rightarrow 4 \rightarrow 1$

```
wef5={{1,1,1,1},{1,1,1,1},{1,1,w430,1},{1,1,1,1}};
pro[6541]=Table[d[65][[i]] d[54][[j]] d[41][[k]]
wef5[[j,k]],{i,3},{j,4},{k,4}];
Energy[6541]=Table[z[65][[i]]
+z[54][[j]]+z[41][[k]],{i,1,3},{j,4},{k,4}];
```


Функција **penergy[30800]** налази позиције у скупу свих енергија **energyall** које одговарају депонованим енергијама од 30800 eV у детектору. Једначина бројања **cts[30800]** представља суму вероватноћа из матрице свих вероватноћа **proall** које одговарају депоновању фотона енергије 30800 eV. Позиције вероватноћа које одговарају фотонима 30800 eV исте су као и позиције у скупу свих енергија, па се налазе помоћу позиција у скупу дефинисаним помоћу функције **penergy[30800]**.

35.3 keV

```
penergy[35300]=Position[energyall,35300];
cts[35300]=Sum[proball[[penergy[35300][[i]]]],
{i,Length[penergy[35300]]}];
```

53.16 keV

```
penergy[53160]=Position[energyall,53160];
cts[53160]=Sum[proball[[penergy[53160][[i]]]],
{i,Length[penergy[53160]]}];
```

79.61 keV

```
penergy[79610]=Position[energyall,79610];
cts[79610]=Sum[proball[[penergy[79610][[i]]]],
{i,Length[penergy[79610]]}];
```

81.0 keV

```
penergy[81000]=Position[energyall,81000];
cts[81000]=Sum[proball[[penergy[81000][[i]]]],
{i,Length[penergy[81000]]}];
```

160.61 keV

```
penergy[160610]=Position[energyall,160610];
cts[160610]=Sum[proball[[penergy[160610][[i]]]],
{i,Length[penergy[160610]]}];
```

223.24 keV

```
penergy[223240]=Position[energyall,223240];
cts[223240]=Sum[proball[[penergy[223240][[i]]]],
{i,Length[penergy[223240]]}];
```

276.4 keV

```
penergy[276400]=Position[energyall,276400];
cts[276400]=Sum[proball[[penergy[276400][[i]]]],
{i,Length[penergy[276400]]}];
```

302.85 keV

```
penergy[302850]=Position[energyall,302850];
cts[302850]=Sum[proball[[penergy[302850][[i]]]],
```

```
{i, Length[penergy[302850]]}];
```

356.01 keV

```
penergy[356010]=Position[energyall, 356010];  
cts[356010]=Sum[proball[[penergy[356010][[i]]]],  
{i, Length[penergy[356010]]}];
```

357.4 keV

```
penergy[357400]=Position[energyall, 357400];  
cts[357400]=Sum[proball[[penergy[357400][[i]]]],  
{i, Length[penergy[357400]]}];
```

383.85 keV

```
penergy[383850]=Position[energyall, 383850];  
cts[383850]=Sum[proball[[penergy[383850][[i]]]],  
{i, Length[penergy[383850]]}];
```

Сумарни врх (нема crossover прелаза) у спектру извора ^{133}Ba налази се на енергији 437 keV. Следи дефинисање одговарајуће једначине бројања.

437.01 keV

```
penergy[437010]=Position[energyall, 437010];  
cts[437010]=Sum[proball[[penergy[437010][[i]]]],  
{i, Length[penergy[437010]]}];
```

Следи дефинисање укупног одбораја у спектру (континуум плус површина свих врхова).

Тотални одброј

```
penergy[0]=Position[energyall, 0];  
ctstotal=1-  
Sum[proall[[penergy[0][[i]]]], {i, Length[penergy[0]]}];
```

Вероватноћа за одброј негде у спектру налази се као сума свих вероватноћа за не детектовање фотона.

Претходно дефинисане једначине бројања не укључују могућност случајних коинциденција, што при већим брзинама бројања може бити недостатак. Због тога, уводе се једначине бројања које укључују могућност детектовања два или више фотона која су емитована из два језгра.

Једначине бројања са случајним коинциденцијама налазе се помоћу скупа свих енергија које се могу депоновати у детектору при емисији фотона из једног распада. Прво је формирана листа позиција енергија које се могу депоновати у детектору при потпуним апсорпцијама једног гама фотона или више фотона чија сума енергија одговара енергији појединачном фотону.

```
possignenergy=Flatten[{penergy[30800], penergy[35300],  
penergy[53160], penergy[79610], penergy[81000], penergy[160610],  
penergy[223240], penergy[276400], penergy[302850],
```

```
penergy[356010],penergy[383850],penergy[437010],  
penergy[357400]}}];
```

Након што су утврђене позиције енергија фотона, формира се збир свих енергија у скупу енергија појединачних фотона, јер случајне коинциденције при потпуној апсорпцији два фотона дају одброј једнак збиру енергија појединачних фотона. Скуп енергија које су резултат случајних коинциденција је:

```
chanceenergy=Flatten[Table[energyall[[possignenergy[[i]]]+  
energyall[[possignenergy[[j]]]],{i,Length[possignenergy]},  
{j,Length[possignenergy]}]]];
```

Вероватноће за одброј услед случајних коинциденција налази се као производ одговарајућих вероватноћа за детекцију фотона емитованих из једног језгра. .

```
chanceprobability=Flatten[Table[proall[[possignenergy[[i]]]]  
proall[[possignenergy[[j]]]],{i,Length[possignenergy]},  
{j,Length[possignenergy]}]]];
```

Следи формирање једначина бројања за врхове случајних коинциденција који су израженији у спектру или дају допринос врховима пуне енергије.

161 keV

```
poschanceenergy[159220]=Position[chanceenergy,159220];  
poschanceenergy[160610]=Position[chanceenergy,160610];  
poschanceenergy[162000]=Position[chanceenergy,162000];  
poschanceenergy[163000]=Position[chanceenergy,163000];  
ctsch[159220]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[159220][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[159220]]}];  
ctsch[160610]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[160610][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[160610]]}];  
ctsch[162000]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[162000][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[162000]]}];  
ctsch[163000]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[163000][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[163000]]}];
```

276.4 keV

```
poschanceenergy[276400]=Position[chanceenergy,276400];  
ctsch[276400]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[276400][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[276400]]}];
```

302.85 keV

```
poschanceenergy[302850]=Position[chanceenergy,302850];  
poschanceenergy[304240]=Position[chanceenergy,304240];  
poschanceenergy[307200]=Position[chanceenergy,307200];
```

```

poschanceenergy[311700]=Position[chanceenergy,311700];
ctsch[304240]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[304240][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[304240]]}];
ctsch[307200]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[307200][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[307200]]}];
ctsch[311700]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[311700][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[311700]]}];
ctsch[302850]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[302850][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[302850]]}];

```

356.4 keV

```

poschanceenergy[356010]=Position[chanceenergy,356010];
poschanceenergy[357400]=Position[chanceenergy,357400];
ctsch[357400]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[357400][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[357400]]}];
ctsch[356010]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[356010][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[356010]]}];

```

383.5 keV

```

poschanceenergy[382460]=Position[chanceenergy,382460];
poschanceenergy[383850]=Position[chanceenergy,383850];
poschanceenergy[386810]=Position[chanceenergy,386810];
poschanceenergy[391310]=Position[chanceenergy,391310];
ctsch[382460]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[382460][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[382460]]}];
ctsch[383850]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[383850][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[383850]]}];
ctsch[386810]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[386810][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[386810]]}];
ctsch[391310]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[391310][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[391310]]}];

```

437 keV

```

poschanceenergy[435620]=Position[chanceenergy,435620];
poschanceenergy[437010]=Position[chanceenergy,437010];
poschanceenergy[438400]=Position[chanceenergy,438400];
ctsch[435620]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[435620][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[435620]]}];
ctsch[437010]=

```

```
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[437010][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[437010]]}];  
ctsch[438400]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[438400][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[438400]]}];
```

712 keV

```
poschanceenergy[712020]=Position[chanceenergy,712020];  
poschanceenergy[713410]=Position[chanceenergy,713410];  
poschanceenergy[714800]=Position[chanceenergy,714800];  
ctsch[712020]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[712020][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[712020]]}];  
ctsch[713410]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[713410][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[713410]]}];  
ctsch[714800]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[714800][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[714800]]}];
```

518.01 keV

```
poschanceenergy[518010]=Position[chanceenergy,518010];  
poschanceenergy[516620]=Position[chanceenergy,516620];  
ctsch[516620]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[516620][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[516620]]}];  
ctsch[518010]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[518010][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[518010]]}];
```

552.8 keV

```
poschanceenergy[552800]=Position[chanceenergy,552800];  
ctsch[552800]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[552800][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[552800]]}];
```

579.25 keV

```
poschanceenergy[579250]=Position[chanceenergy,579250];  
poschanceenergy[580640]=Position[chanceenergy,580640];  
ctsch[579250]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[579250][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[579250]]}];  
ctsch[580640]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[580640][[i]]]],  
{i,Length[poschanceenergy[580640]]}];
```

605.7 keV

```
poschanceenergy[605700]=Position[chanceenergy,605700];
```

```
poschanceenergy[607090]=Position[chanceenergy,607090];
ctsch[605700]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[605700][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[605700]]}];
ctsch[607090]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[607090][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[607090]]}];
```

632.41 keV

```
poschanceenergy[632410]=Position[chanceenergy,632410];
poschanceenergy[633800]=Position[chanceenergy,633800];
ctsch[632410]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[632410][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[632410]]}];
ctsch[633800]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[633800][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[633800]]}];
```

659 keV

```
poschanceenergy[658860]=Position[chanceenergy,658860];
poschanceenergy[660250]=Position[chanceenergy,660250];
ctsch[658860]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[658860][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[658860]]}];
ctsch[660250]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[660250][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[660250]]}];
```

686.7 keV

```
poschanceenergy[686700]=Position[chanceenergy,686700];
ctsch[686700]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[686700][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[686700]]}];
```

739.86 keV

```
poschanceenergy[739860]=Position[chanceenergy,739860];
poschanceenergy[741250]=Position[chanceenergy,741250];
ctsch[739860]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[739860][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[739860]]}];
ctsch[741250]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[741250][[i]]]],
{i,Length[poschanceenergy[741250]]}];
```

767.7 keV

```
poschanceenergy[767700]=Position[chanceenergy,767700];
ctsch[767700]=
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[767700][[i]]]],
```

```
{i, Length[poschanceenergy[767700]]}};
```

793.02 keV

```
poschanceenergy[793020]=Position[chanceenergy, 793020];  
poschanceenergy[794410]=Position[chanceenergy, 794410];  
ctsch[793020]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[793020][[i]]]],  
{i, Length[poschanceenergy[793020]]}};  
ctsch[794410]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[794410][[i]]]],  
{i, Length[poschanceenergy[794410]]}};
```

820.86 keV

```
poschanceenergy[820860]=Position[chanceenergy, 820860];  
ctsch[820860]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[820860][[i]]]],  
{i, Length[poschanceenergy[820860]]}};
```

874.02 keV

```
poschanceenergy[874020]=Position[chanceenergy, 874020];  
ctsch[874020]=  
Sum[chanceprobability[[poschanceenergy[874020][[i]]]],  
{i, Length[poschanceenergy[874020]]}};
```

Претходно дефинисане вероватноће које служе за формирање једначина бројања не садрже нумеричке податке потребне за практичну употребу. У том циљу уз помоћ базе података за изотоп ^{133}Ba уводе се неопходни нумерички фактори. Прво се дефинишу матрице које садрже податке о нормализованој вероватноћи за реализацију прелаза са одређеног нивоа. На пример ако постоји три могућа прелаза са четвртог побуђеног нивоа у основно стање, сума вероватноћа за појединачне прелазе мора бити једнака јединици. Следе подаци који фигуришу у матрици X:

```
x={{0,0,0,0,0,0},{1,0,0,0,0,0},{0.102689,0.897311,0,0,0,0},{0.  
3170109,0.66567,0.017309,0,0,0},{0,0.738197,0.0878088,0.173994  
,0,0},{0,0,0,0.138,0.862,0}};
```

Прва врста садржи само нулте вредности јер се потомак ^{133}Ba , ^{133}Cs даље не распада. За прво побуђено стање одговара друга врста у матрици X и једина вредност је у првој колони једнака јединици јер прелаз у основно стање је сигуран прелаз. Последња врста има две вредности, једна је вероватноћа за распад ^{133}Ba у четврто побуђено стање ^{133}Cs (вредност 0.862), а друга је вероватноћа за распад у треће побуђено стање (вредност 0.138). Очигледно је збир једнак јединици. Овде је према подацима из шеме распада занемарена могућност деексцитације у основно и прво и друго побуђено стање ^{133}Cs . Следе подаци за конверзионе коефицијенте за одговарајуће прелазе,

```
a={{0,0,0,0,0,0},{1.74,0,0,0,0,0},{0.31,1.77,0,0,0,0},{0.0203,  
0.0443,0.0995,0,0,0},{0,0.0256,0.0569,6.02,0,0},{0,0,0,0,0,0}}  
;
```

И подаци за енергије γ -фотона који се емитују при одговарајућим прелазима.

$$e_n = \{ \{0, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{81, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{160, 79.61, 0, 0, 0, 0\}, \{383.85, 302.85, 223.24, 0, 0, 0\}, \{0, 356.01, 276.4, 53.16, 0, 0\}, \{0, 0, 0, 30, 35, 0\} \};$$

Матрица која уводи ознаке за ефикасност врха пуне енергије подразумевајући да детектор има заменарљиво малу ефикасност за детекцију X-фотона, тј. уводи се да је ефикасност за X-фотоне једнака нули.

$$e = \{ \{0, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{81}, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{161}, e_{81}, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{384}, e_{303}, e_{223}, 0, 0, 0\}, \{0, e_{356}, e_{276}, e_{53}, 0, 0\}, \{0, 0, 0, 0, 0, 0\} \};$$

Ознака e_{81} означава ефикасност врха пуне енергије на енергији 79.6 keV и 81 keV. Ако желимо да укључимо X-фотоне на 30 и 35 keV уместо горње, треба учитати матрицу ефикасности која садржи и ефикасност за детекцију x-фотона на енергији 35 keV и 31 keV:

$$e = \{ \{0, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{81}, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{161}, e_{81}, 0, 0, 0, 0\}, \{e_{384}, e_{303}, e_{223}, 0, 0, 0\}, \{0, e_{356}, e_{276}, e_{53}, 0, 0\}, \{0, 0, 0, e_{35}, e_{31}, 0\} \};$$

Конверзиони коефицијенти за K X фотоне су дати матрицом.

$$a_k = \{ \{0, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{1.46, 0, 0, 0, 0, 0\}, \{0.24, 1.515, 0, 0, 0, 0\}, \{0.0169, 0.0381, 0.0853, 0, 0, 0\}, \{0, 0.0211, 0.0461, 4.93, 0, 0\}, \{0, 0, 0, 0, 0, 0\} \};$$

Следе подаци за вероватноћу захвата K електрона са прелазом у четврто и треће побуђено стање ^{133}Cs , респективно.

$$p_k = \{0.672, 0.7734\};$$

Следећи податак је вероватноћа уколико је захваћен K електрон да се емитује K_α или K_β фотон, респективно.

$$g_k = \{0.809251, 0.190749\};$$

Следи податак о флуоресцентном приносу, тј. вероватноћи да емитовани x-фотон напусти омотач језгра.

$$w = 0.894;$$

Следи дефиниција матрице тоталне ефикасности за све фотоне који се могу емитовати при распаду ^{133}Ba .

$$t = e (1 + k e_n);$$

Овде је k непознати праметар који ће бити излазна величина при решавању система једначина за ^{133}Ba .

Следи дефиниција вероватноће за детекцију K_α фотона под врхом пуне енергије.

$p_{\alpha 65} = x \cdot a_k / (1+a)$ w $g_k[[1]]$
 $e[[6,5]] + \{\{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,x[[6,4]]\}\} e[[6,5]] p_k[[2]]$ w
 $g_k[[1]], x[[6,5]] e[[6,5]] p_k[[1]]$ w $g_k[[1],0\}$;

Следи дефиниција вероватноће за детекцију K_{β} фотона под врхом пуне енергије:

$p_{\beta 64} = x \cdot a_k / (1+a)$ w $g_k[[2]]$
 $e[[6,4]] + \{\{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,0,0,0\}, \{0,0,0,x[[6,4]]\}\} e[[6,4]] p_k[[2]]$ w
 $g_k[[2]], x[[6,5]] e[[6,4]] p_k[[1]]$ w $g_k[[2],0\}$;

Следи дефиниција вероватноће за детекцију γ -фотона под врхом пуне енергије:

$p_{\gamma 65} = x \cdot e / (1+a)$;

Вероватноћа за не-детекцију фотона било које врсте при реализацији одговарајућег прелаза је:

$q_k = x \cdot (1 - t[[6,4]] \cdot a_k / (1+a) \cdot w \cdot g_k[[1]] - t[[6,5]] \cdot a_k / (1+a) \cdot w \cdot g_k[[2]] - t / (1+a))$;

Коначно се налазе изрази за вероватноће детекције (ознака p) фотона и не-детекције фотона (ознака q) при реализацији одговарајућег прелаза који садрже нумеричке вредности према шеми распада и нуклеарним подацима.

$p_{\alpha 65} = p_{\alpha 65}[[6,5]]$;
 $p_{\beta 64} = p_{\beta 64}[[6,5]]$;
 $q_{65} = q_{65}[[6,5]]$;
 $p_{\alpha 64} = p_{\alpha 64}[[6,4]]$;
 $p_{\beta 64} = p_{\beta 64}[[6,4]]$;
 $q_{64} = q_{64}[[6,4]]$;
 $p_{\alpha 54} = p_{\alpha 54}[[5,4]]$;
 $p_{\beta 54} = p_{\beta 54}[[5,4]]$;
 $g_{54} = p_{\gamma 54}[[5,4]]$;
 $q_{54} = q_{54}[[5,4]]$;
 $p_{\alpha 53} = p_{\alpha 53}[[5,3]]$;
 $p_{\beta 53} = p_{\beta 53}[[5,3]]$;
 $g_{53} = p_{\gamma 53}[[5,3]]$;
 $q_{53} = q_{53}[[5,3]]$;
 $p_{\alpha 52} = p_{\alpha 52}[[5,2]]$;
 $p_{\beta 52} = p_{\beta 52}[[5,2]]$;
 $g_{52} = p_{\gamma 52}[[5,2]]$;
 $q_{52} = q_{52}[[5,2]]$;
 $p_{\alpha 43} = p_{\alpha 43}[[4,3]]$;
 $p_{\beta 43} = p_{\beta 43}[[4,3]]$;
 $g_{43} = p_{\gamma 43}[[4,3]]$;
 $q_{43} = q_{43}[[4,3]]$;
 $p_{\alpha 42} = p_{\alpha 42}[[4,2]]$;
 $p_{\beta 42} = p_{\beta 42}[[4,2]]$;
 $g_{42} = p_{\gamma 42}[[4,2]]$;
 $q_{42} = q_{42}[[4,2]]$;
 $p_{\alpha 41} = p_{\alpha 41}[[4,1]]$;

```

pb[41]=pbeta[[4,1]];
g[41]=pgama[[4,1]];
q[41]=qk[[4,1]];
pa[32]=palfa[[3,2]];
pb[32]=pbeta[[3,2]];
g[32]=pgama[[3,2]];
q[32]=qk[[3,2]];
pa[31]=palfa[[3,1]];
pb[31]=pbeta[[3,1]];
g[31]=pgama[[3,1]];
q[31]=qk[[3,1]];
pa[21]=palfa[[2,1]];
pb[21]=pbeta[[2,1]];
g[21]=pgama[[2,1]];
q[21]=qk[[2,1]];

```

Једначине бројања које садрже корекције на губитке и доприносе услед случајних коинциденција и које садрже све неопходне нумеричке вредности дате су функцијама:

$$n30800[Nt_]:=A \text{ cts}[30800][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n35300[Nt_]:=A \text{ cts}[35300][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n53160[Nt_]:=A \text{ cts}[53160][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n81000[Nt_]:=A (\text{ cts}[81000][[1]] + \text{ cts}[79610][[1]]) (1-dvatau Nt)$$

$$n161000[Nt_]:=A \text{ cts}[160610][[1]] (1-dvatau Nt) + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[160610][[1]] + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[162000][[1]]$$

$$n223240[Nt_]:=A \text{ cts}[223240][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n276400[Nt_]:=A \text{ cts}[276400][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n302850[Nt_]:=A \text{ cts}[302850][[1]] (1-dvatau Nt)$$

$$n356010[Nt_]:=A \text{ cts}[356010][[1]] (1-dvatau Nt) + \\ A \text{ cts}[357400][[1]] (1-dvatau Nt) + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[356010][[1]] + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[357400][[1]]$$

$$n383850[Nt_]:=A \text{ cts}[383850][[1]] (1-dvatau Nt) + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[383850][[1]]$$

$$n437000[Nt_]:=A \text{ cts}[437010][[1]] (1-dvatau Nt) + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[437010][[1]] + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[438400][[1]] + \\ dvatau A^2 \text{ ctsch}[435620][[1]]$$

$$n712000=dvatau A^2 (\text{ ctsch}[712020][[1]] + \\ \text{ ctsch}[713410][[1]])$$

```
ntotal=A ctstotal[[1]];
```

За конкретно растојање извора од детектора треба унети нумеричке вредности ефективних угаоних корелација. Овде је дат пример за растојање извора 1.5 mm од капе детектора за извор ^{133}Ba :

```
{w310=0.998,w320=1.04,w410=1.0031,w420=0.96,w430=0.986,  
w321=0.97,w210=1.003,w421=1.025,w431=1.012,w432=0.997}
```

Уколико се занемарују ефекти угаоних корелација, матричне елементе за ефективне угаоне корелације дефинисане у претходном скупу треба изједначити са јединицом.

Следи дефинисање функције

```
resch[{N53160,N81000,N1616100,N302850,N356000,N383850,N437000,Nsluc,Nt}]
```

која решава горњи систем једначина бројања. Дата функција за конкретне вредности брзине бројања у врховима пуне енергије при чему број уз ознаку N означава енергију у eV, даје ефикасности врха пуне енергије које су кориговане на право и случајно коинцидентно сумирање, време резолуције спектрометра, параметар k који дефинише функцију *peak to total* и активност извора у Bq. При мањим брзинама бројања, што се манифестује да врх случајних коинциденција на енергији 712 keV није статистички значајан, треба унети вредност нула. У овом случају време резолуције које се добија као решење је теоријска вредност која је блиска нули.

```
resch [{N53160_,N81000_,N160610_,N223000_,N276000_,N302850_,  
N356000_,N383850_,N437000_,Nsluc_,Nt_}] :=  
FindRoot[{N53160==n53160[Nt],N81000==n81000[Nt],  
N160610==n161000[Nt],N223000==n223240[Nt],N276000==n276400[Nt],  
,N302850==n302850[Nt],N356000==n356010[Nt],  
N383850==n383850[Nt],N437000==n437000[Nt],  
Nsluc==n712000,Nt==ntotal},  
{e53,N53160/Nt},{e81,N81000/Nt},{e161,N160610/Nt},  
{e223,N223000/Nt},{e276,N276000/Nt},{e303,N302850/Nt},  
{e356,N356000/Nt},{e384,N383850/Nt},  
{dvatau,5 10^(-7)},{k,0.0035},{A,Nt}}]
```

Горња функција не узима у обзир емисију и детекцију пратећег x-зрачења при распаду ^{133}Ba и подразумева читавање матрице ефикасности ϵ где су елементи ϵ_{35} и ϵ_{31} једнаки нули.

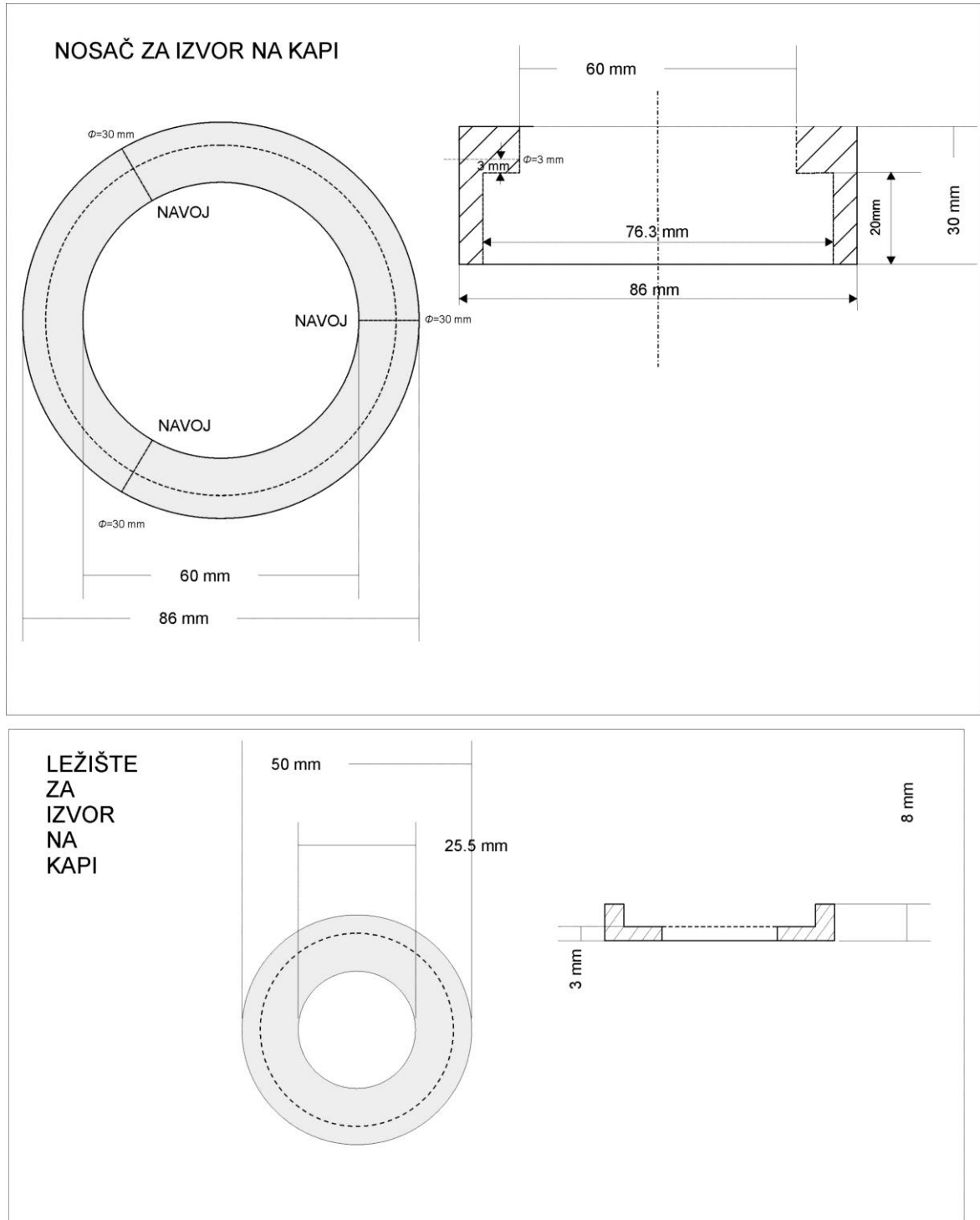
Следи функција која укључује могућност детекције x-фотона. Ова функција подразумева претходно читавање матрице ефикасности која садржи чланове ϵ_{35} и ϵ_{31} . (Страна 120, матрица ϵ)

```
reschX [{N30800_,N35300_,N53160_,N81000_,N160610_,N223000_,  
N276000_,N302850_,N356000_,N383850_,N437000_,Nsluc_,Nt_}] :=  
FindRoot[{N30800==n30800[Nt],N35300==n35300[Nt],  
N53160==n53160[Nt],N81000==n81000[Nt],N160610==n161000[Nt],  
N223000==n223240[Nt],N276000==n276400[Nt],N302850==n302850[Nt],  
,N356000==n356010[Nt],N383850==n383850[Nt],  
N437000==n437000[Nt],Nsluc==n712000,Nt==ntotal},  
{e31,N30800/Nt},{e35,N35300/Nt},{e53,N53160/Nt},
```

```
{e81,N81000/Nt},{e161,N160610/Nt},{e223,N223000/Nt},  
{e276,N276000/Nt},{e303,N302850/Nt},{e356,N356000/Nt},  
{e384,N383850/Nt},{dvatau,5 10^(-7)},{k,0.0035},{A,Nt}]
```

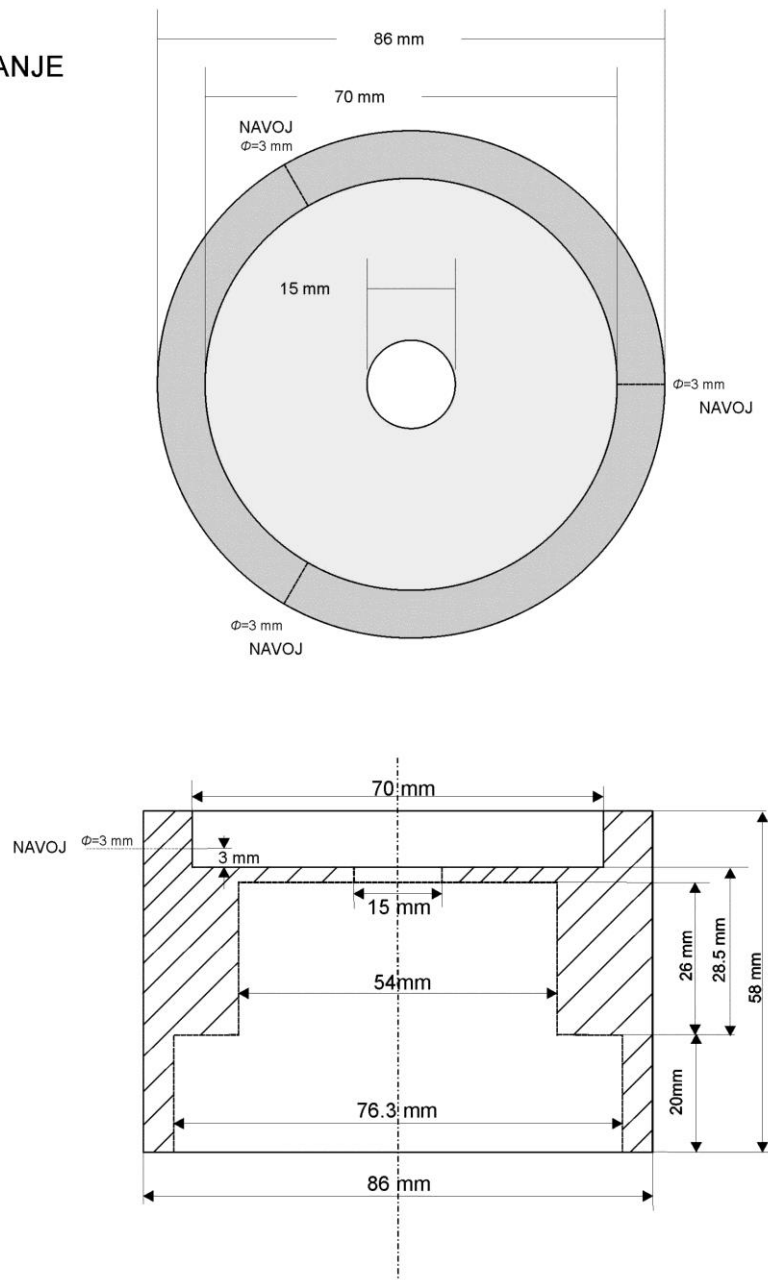
Прилог В

Шеме носача извора

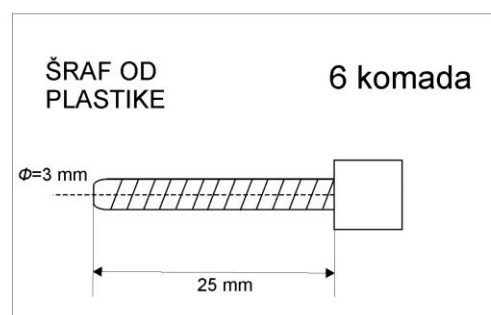
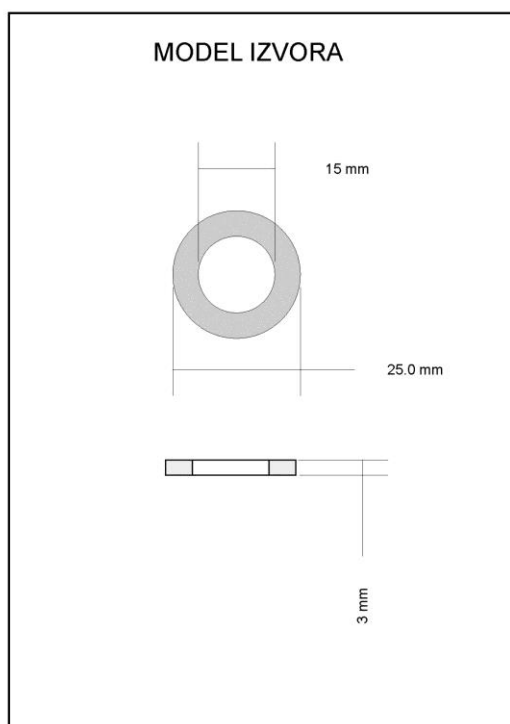
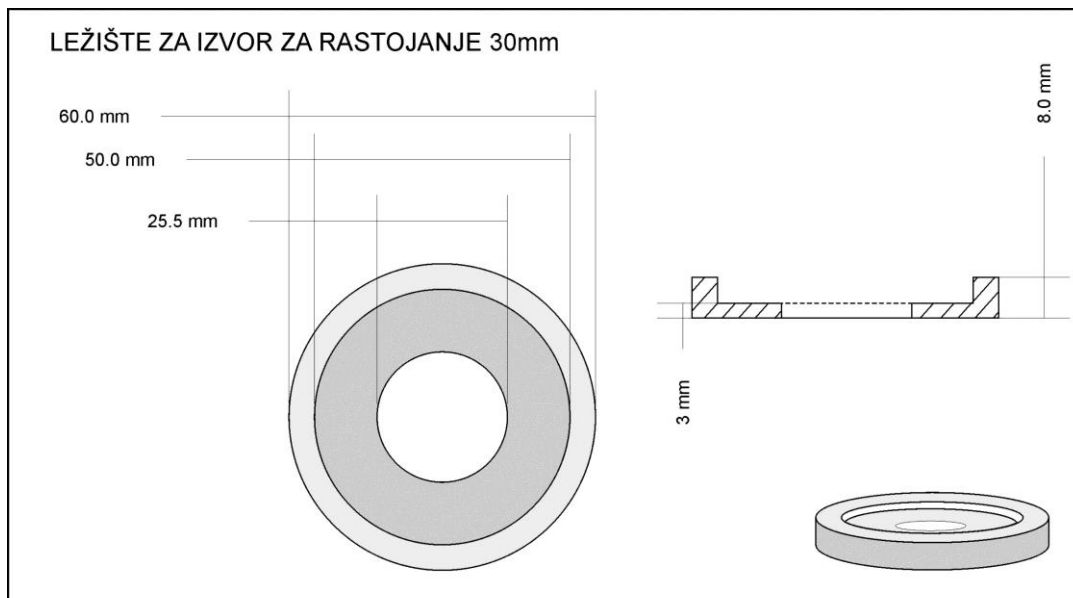


Слика В.1 Носач тачкастог извора за коаксијални HPGe детектор за нулто растојање извор-капа детектора са могућношћу центрирања извора и лежиште за извор.

**NOSAČ
ZA
RASTOJANJE
30 mm**



Слика В.2 Носач тачкастог извора за коаксијални HPGe детектор за растојање извор-капа детектора 30.0 mm са могућношћу центрирања извора.



Слика В.3 Лежиште за извор за растојање 30.0 mm, модел тачкастог извора и пластични шрафови за носаче.

Прилог Г

Објављени радови на тему дисертације

I. Bikit, T. Nemes, D. Mrda. *Simple method for absolute activity measurement of ^{60}Co source.* Nucl. Inst. Meth. A, 603(2009) 333-336.

I. Bikit, T. Nemes, D. Mrda, N. Jovančević. *On the absolute source activity measurement with a single detector: the ^{133}Ba case.* Nucl. Inst. Meth. A, 612(2009) 103-111.

T. Nemes, D. Mrda, I. Bikit. *Absolute activity measurement of ^{152}Eu sources with a single detector.* Nucl. Inst. Meth. A 648(2011) 114-123.



Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A

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

Simple method for absolute activity measurement of ^{60}Co source

Istvan Bikit*, Tomas Nemes, Dusan Mrda

Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Trg Dositeja Obradovica 4, 21000 Novi Sad, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 12 November 2008

Received in revised form

16 January 2009

Accepted 6 February 2009

Available online 20 February 2009

Keywords:

Gamma ray spectrometry

Absolute source activity measurement

Coincidence counting

Sum and random coincidence peak method

ABSTRACT

The activity of ^{60}Co source was measured using the full absorption, sum and random coincidence (pile-up) peaks and the total spectrum area. It is shown that if the true and random coincidences in the single detector are treated correctly, no additional data are needed for absolute source strength measurement. With the source on the detector end-cap (when the angular correlation effects are negligible), this simple method yields absolute activity values deviating from the reference activity by about 1%.

© 2009 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The multi-detector source strength measurement by coincidence counting has been, for a long time, accepted as a unique absolute calibration method [1]. However the absolute source strength measurements by a single detector based on the coincidence summing are much less recognized.

The sum-peak method was introduced in a series of papers by Brinkman et al. [2–5]. They canceled out the problem of angular correlation between the two gamma rays emitted in cascade by placing the point source of ^{60}Co on the top of the detector crystal.

Moving the source further away from the detector, accurate activity measurements by the sum-peak method require angular correlation corrections. Using the Monte Carlo method, Kim and collaborators [6] theoretically calculated angular correlation corrections, which were later successfully applied for activity measurements of point sources of ^{60}Co also by Kim et al. [7]. They obtained spectra of point sources of ^{60}Co at different distances from the HPGe detector end-cap. For each distance, they vary the shaping time of an amplifier and calculate activities. Extrapolating the linear function of activities vs. shaping time of the amplifier for each source and distance from detector to zero shaping time, they achieved excellent accuracy (less than 2% deviation from the reference activity), keeping the total count rate below $15 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$.

Activity measurements for extended sources of ^{60}Co by the sum-peak method are freshly reported by Vidmar et al. [8]. They used Monte Carlo calculations to account for the effects of the special variation of the efficiency across the sample volume and

for angular correlations between the emitted gamma rays. In the sources they used, total count rates were less than $1.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, and the determined activities agreed with their reference values within 1%.

All the methods listed above use additional data besides spectral intensity. In the present paper it is shown that by exact treatment of chance coincidence and pile-up events, the source activity can be absolutely measured from the data in the single spectrum, when angular correlation effects are negligible.

2. Summing effects in the ^{60}Co spectrum

The decay scheme of ^{60}Co is very simple (Fig. 1). There are two intensive gamma rays at energies 1173 and 1332 keV, which are in 99.85% of all decays emitted in the cascade. The probability for the cross-over gamma ray emission with the energy of 2505 keV is negligible.

For the decay scheme of ^{60}Co , the net peak area equations (originally developed by Brinkman and Aten [5]) can be written as follows:

$$N_1 = At\varepsilon_1(1 - \varepsilon_{T2}w)L_\tau \quad (2.1)$$

$$N_2 = At\varepsilon_2(1 - \varepsilon_{T1}w)L_\tau \quad (2.2)$$

where N_1 and N_2 are net peak areas of the full absorption peaks, A is the activity of ^{60}Co , ε_1 and ε_2 are the full absorption peak efficiencies, ε_{T1} and ε_{T2} are the total efficiencies, subscripts 1 and 2 denote the gamma rays at 1173 and 1332 keV, respectively, and t is the time of measurement. The angular correlation factor w is the same for any combination of detections of the two gamma rays, which is verified by Kim et al. [6]. L_τ is the correction factor for

* Corresponding author. Tel.: +381 21 459 368; fax: +381 21 459 367.

E-mail address: bikit@im.ns.ac.yu (I. Bikit).

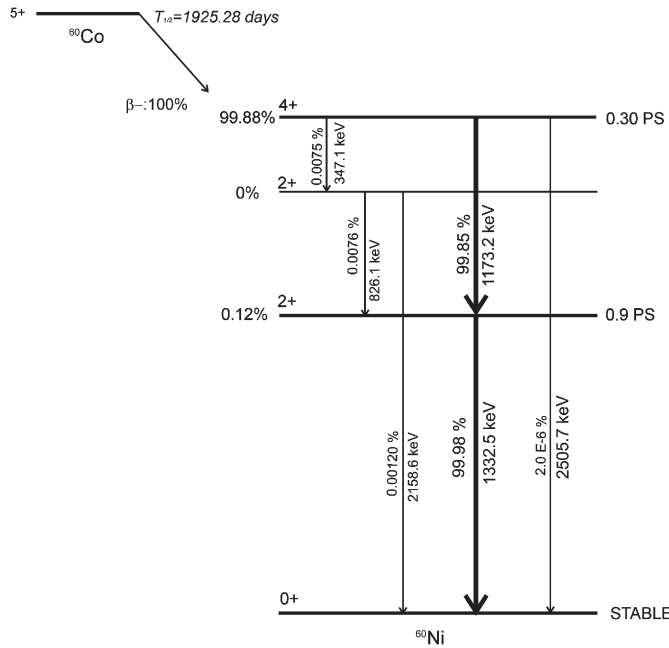


Fig. 1. Decay scheme of ^{60}Co . Probability for emitting gamma rays of energies 1173 and 1332 keV in cascade is 0.9985, while direct emission of gamma ray 2505 keV is 2.0×10^{-8} . Other gamma transitions have probability less than 10^{-5} .

losses from full energy peaks due to finite time resolution of the system. The sum-peak net area is

$$N_{\Sigma} = At\varepsilon_1\varepsilon_2wL_{\tau} + N_C \quad (2.3)$$

where N_C is the number of counts due to chance coincidence events of two totally absorbed gamma rays of energies 1173 and 1332 keV. Neglecting losses due to finite time resolution of the system, the total spectrum area can be expressed as

$$N_T = At(\varepsilon_{T1} + \varepsilon_{T2} - \varepsilon_{T1}\varepsilon_{T2}w). \quad (2.4)$$

Hence from Eqs. (2.1)–(2.4), the activity A is given by

$$A = \frac{1}{t} \left[\frac{N_1N_2}{(N_{\Sigma} - N_C)L_{\tau}} + N_T \right] w. \quad (2.5)$$

3. Chance coincidences and losses from full energy peaks in the spectrum of ^{60}Co

The rate of chance coincidences in the two-detector experiment, where DET 1 registers only energy 1 in the cascade and DET 2 only energy 2 in the cascade, is given by

$$R_C = 2\tau R_1 R_2, \quad (3.1)$$

where R_1 and R_2 are the detector count rates while 2τ is the resolving time of the coincidence circuit. In the single-detector experiment, 2τ is the effective time in which the detection system cannot resolve two events due to chance coincidence or pulse pile-up. This will lead to count losses from full energy peaks that will appear in the spectral continuum. The gain in the sum-peak due to coincidence events from totally absorbed gamma rays of energies 1173 and 1332 keV and losses from peaks due to chance coincidence events can be described making use of 2τ as the time resolution of the spectrometer system.

If the two gamma rays, emitted from different nuclei, are totally absorbed in the detector within the time interval 2τ , in the spectrum will also appear peaks due to chance coincidences only. So beside the sum peak (N_{Σ}), in the ^{60}Co spectrum, 2×1173 and 2×1332 keV peaks are present (Fig. 2).

These random coincidence peak areas can be related to the effective resolving time 2τ by the relations

$$N_{C1} = 2\tau A^2 t (\varepsilon_1(1 - \varepsilon_{T2}w))^2 \quad (3.2)$$

and

$$N_{C2} = 2\tau A^2 t (\varepsilon_2(1 - \varepsilon_{T1}w))^2. \quad (3.3)$$

In the above Eqs. (3.2) and (3.3), losses from counts due to third-order chance coincidences are assumed to be negligible.

The chance coincidence summing probability in a single detector is different for the 1173–1173, 1332–1332 and 1173–1332 events (Fig. 3). If the 1173 keV gamma ray from one nucleus is emitted, it can be summed only with the 1173 keV gamma ray from another nucleus to give the $(2 \times 1173$ keV) peak with the probability proportional to N_{C1} . It is the same case with the $(2 \times 1332$ keV) random sum peak. However, the random sum peak at the energy 2505 keV may originate from the combinations 1173+1332 and 1332+1173, thus having two times higher probability than the previous ones.

Therefore chance coincidence counts in the sum peak, neglecting a third-order chance coincidence losses, can be written as follows:

$$N_C = 4\tau A^2 t \varepsilon_1 \varepsilon_2 (1 - \varepsilon_{T1}w)(1 - \varepsilon_{T2}w). \quad (3.4)$$

Making use of Eqs. (3.2), (3.3) and (3.4), the chance coincidence contribution to the sum peak can be expressed as

$$N_C = 2\sqrt{N_{C1}N_{C2}}. \quad (3.5)$$

Due to finite time resolution (2τ) of the detection system, some counts will be lost from the full energy and true coincidence peaks and collected in other parts of the spectrum. The correction factor for these losses is connected with 2τ by the relation

$$L_{\tau} = 1 - 2\tau A(\varepsilon_{T1} + \varepsilon_{T2} - \varepsilon_{T1}\varepsilon_{T2}w) \quad (3.6)$$

which gives, taking the total counts from Eq. (2.4),

$$L_{\tau} = 1 - \frac{2\tau N_T}{t}. \quad (3.7)$$

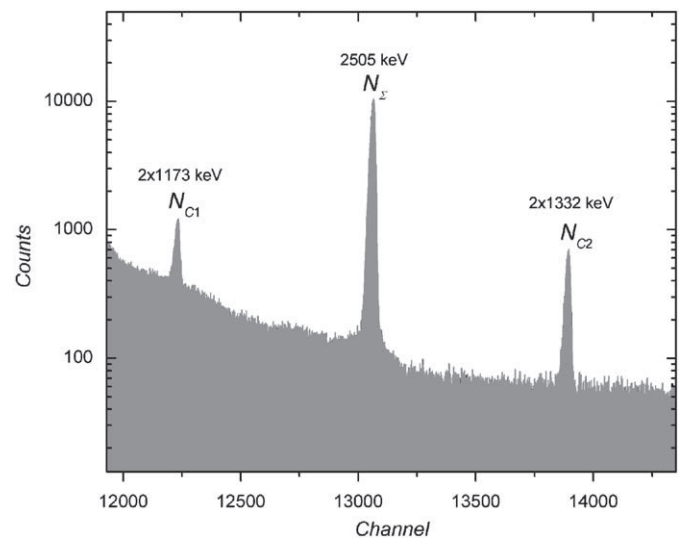


Fig. 2. Spectrum from point source of ^{60}Co (reference activity: 246.1 kBq) placed on the HPGe detector end-cap used in this study. The time of measurement was 600 s live time. Besides the sum-peak at energy 2505 keV there are peaks appearing due to chance coincidences. The counts above 2664 keV are caused by multiple pile-up and random coincidence events.

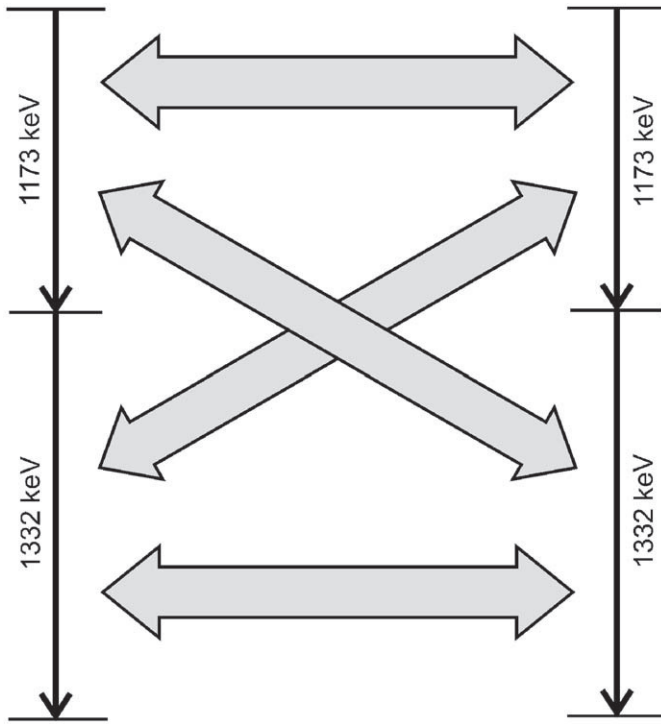


Fig. 3. Possible ways of chance coincidences for two gamma rays emitted from different nuclei of source ^{60}Co that can be detected at the single detector.

Making use of Eqs. (2.1) and (2.2), the chance coincidence counts in the sum peak (3.4) can be rewritten as

$$N_C = \frac{4\tau N_1 N_2}{tL^2}. \quad (3.8)$$

Combining Eqs. (3.7) and (3.8) gives two solutions for resolution time 2τ :

$$2\tau = \frac{t}{N_T} \left[1 + \frac{N_1 N_2}{N_T N_C} \left(1 \pm \sqrt{\frac{2N_T N_C}{N_1 N_2} + 1} \right) \right]. \quad (3.9)$$

Correct resolution time from deduced Eq. (3.9) is given by minus sign:

$$2\tau = \frac{t}{N_T} \left[1 + \frac{N_1 N_2}{2N_T \sqrt{N_{C1} N_{C2}}} \left(1 - \sqrt{\frac{4N_T \sqrt{N_{C1} N_{C2}}}{N_1 N_2} + 1} \right) \right]. \quad (3.10)$$

The formula with the plus sign yields unrealistic, non-physical 2τ values in the millisecond range.

Collecting expressions (3.10), (3.5) and (2.5), neglecting angular correlation correction ($w = 1$), we arrive at the final expression for the source activity:

$$A = \frac{N_T}{t} \left[\left[\left(\frac{N_\Sigma}{2\sqrt{N_{C1} N_{C2}}} - 1 \right) \left(\sqrt{\frac{4N_T \sqrt{N_{C1} N_{C2}}}{N_1 N_2} + 1} - 1 \right) \right]^{-1} + 1 \right]. \quad (3.11)$$

4. Measurements of activity

For the measurements of point sources of ^{60}Co , an HPGe coaxial detector with a relative efficiency of 35% was used. The HPGe detector crystal has the following dimensions: a diameter of 61 mm, a length of 52 mm and a distance of 5 mm from the end-cap. The detector was operated inside the 12 cm wall thickness low-level lead shield. The total background count rate of the detector in the shield in the energy region 18–3150 keV was about

3 s^{-1} , negligible when compared with the count rate obtained with the weaker source ($1.9 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$).

Portable workstation “Inspector 2000” (Model 1300-Canberra) was used for digital processing of signals. “Inspector 2000” contains Digital Signal Processor subsystem that digitizes the preamplifier signals at the front end of the signal processing chain, which improves time and energy resolution [9]. The pile-up rejector/live time corrector was turned on. According to Scates and Hartwell [10] the high rate signal recovery of the Inspector 2000 unit is excellent. Scates and Hartwell [10] tested the high count rate performance of this unit up to input rates of $440 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, and proved that at the input rate range of $100 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ (slightly above the maximal rate in our experiment) the count rate losses are negligible (less than 1%).

Activities of two point sources of ^{60}Co were measured. The reference activities at the date of measurements were as follows: 246(4) kBq (Areva—Framatome ANP, No 40885/186) and 5.46(11) kBq (Amersham No 11188). Measurements with the stronger ^{60}Co source were performed placing the source on the detector end-cap and increasing the distance up to 64.1 mm from the detector end-cap. For these measurements, the live time of measurements was set to be 600 s. Spectrum of the weaker ^{60}Co source was recorded placing the source on the detector cap for 18 h. Spectra were analyzed with the Gamma Acquisition and Analysis software (from the GENIE-2000 package). Because of low-energy tailing, Gaussian fit was avoided. The net peak areas were determined by numerical integration. At 95.4% confidence level, the relative net peak area uncertainties ranged from 0.07% for the peaks with best statistics to 36% for the statistically pure N_{C1} line. Total counts are obtained by integrating the whole spectrum. The losses due to low-level discrimination (approximately at 18.8 keV) were taken into account by extrapolating the low-energy part of the spectrum down to zero (approximately 200 channels). The corrections for losses due to low-level discrimination were less than 2% of the total counts.

5. Results and discussion

The high-energy part of a measured spectrum of ^{60}Co is presented in Fig. 2. The results of measurements are summarized in Table 1 and Fig. 4.

Minimum discrepancy between observed and reference activity of point sources of ^{60}Co is obtained for measurement when the stronger source is placed on the detector end-cap. It is an expected result because angular correlation corrections are minimal when the source is placed on the detector end-cap. The dependence of A/A_0 on the source to detector distance is plotted in Fig. 4. According to Ref. [7], the angular correlation factor for ^{60}Co is 1 for zero source to detector distance, and increases to 1.1 for source to detector distances bigger than 5 cm. Thus, we can conclude that for the sources on the detector end-cap, the angular correlation correction factor is negligible and that the deviation of our A/A_0 values from unity at increasing source to detector distances is caused by angular correlation effects. When the source activity is measured at non-zero source to end-cap distances, corrections for angular correlation effects can be taken from Ref. [7]. The results for the effective resolution time 2τ of the system with the order of magnitude $0.5 \mu\text{s}$ do not depend on the count rate, and independently confirm the consistency of our method. Corrections for losses from peaks due to chance coincidence events are significant (greater than 1%) in activity calculations when the total count rate exceeds about $20 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$. The contribution of the statistical error of the sum-peak to the error of the measured activities is bigger than the contribution of the errors of the chance coincidence peaks. Corrections for gain in the sum-peak

Table 1
Experimental results.

A_0 (kBq)	246(4)	246(4)	246(4)	246(4)	246(4)	5.46(11)
A (kBq)	246.9(11)	240.6(26)	236(5)	232(9)	224(12)	5.400(11)
A/A_0	1.004(4)	0.978(11)	0.959(19)	0.94(4)	0.91(5)	0.9890(20)
d (mm)	1.5	17.3	31.6	48.4	64.1	1.5
N_1 ($\times 10^5$)	47.100(52)	24.100(36)	13.900(26)	8.700(20)	6.100(17)	117.000(79)
N_2 ($\times 10^5$)	42.000(45)	21.600(31)	12.500(23)	7.870(18)	5.490(15)	104.000(69)
N_Σ ($\times 10^4$)	25.00(11)	5.380(49)	1.690(27)	0.662(17)	0.320(12)	54.30(15)
N_{C1} ($\times 10^3$)	19.70(69)	4.99(27)	1.66(10)	0.75(8)	0.31(5)	1.44(52)
N_{C2} ($\times 10^3$)	15.20(36)	4.12(15)	1.38(8)	0.57(5)	0.26(3)	0.822(67)
N_T ($\times 10^6$)	51.874(14)	25.463(10)	14.685(8)	9.317(6)	6.655(5)	126.981(23)
N_C ($\times 10^3$)	34.61(73)	9.07(29)	3.03(13)	1.30(9)	0.56(6)	2.2(4)
Total count rate ($\times 10^3$ s $^{-1}$)	86.4	42.4	24.5	15.5	11.1	1.9
Time of measurement (s live time)	600.00	600.00	600.00	600.00	600.00	65229.25
Dead time (%)	79.60	54.47	36.84	25.46	19.04	3.69
2τ (ns)	480(9)	501(16)	510(21)	560(40)	499(54)	582(107)
L_τ	0.9585(8)	0.9788(7)	0.9875(5)	0.9913(6)	0.9945(6)	0.99887(21)

A_0 —the reference source activity; A —the measured source activity calculated from (3.11); A/A_0 —the measured and reference source activity ratio; d —source to detector end-cap distance; N_1 —the 1173 keV net peak area; N_2 —the 1332 keV net peak area; N_Σ —the 2505 keV sum peak net area; N_{C1} —the 2×1173 keV chance coincidence peak net area; N_{C2} —the 2×1332 keV chance coincidence peak net area; N_T —total counts in the spectrum; N_C —number of chance coincidence counts in the sum-peak calculated by Eq. (3.5); 2τ —effective resolution time of the system calculated by Eq. (3.10); L_τ —correction factor for chance coincidence losses from peaks calculated by Eq. (3.7) using 2τ ; uncertainties are reported with 95.4% confidence level (coverage factor $k = 2$).

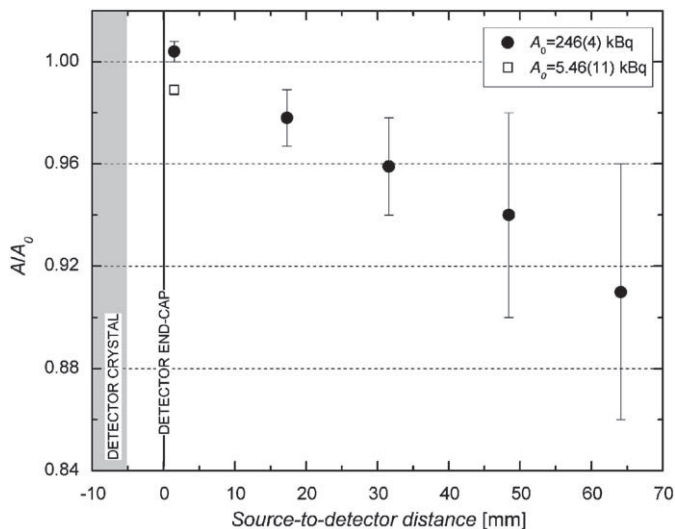


Fig. 4. The measured and reference source activity ratio (A/A_0) obtained for different distances of the point source of ^{60}Co from the detector end-cap.

due to totally absorbed chance coincidence gamma rays of energies 1173 and 1332 keV are important (greater than 1%) only when the total count rate is higher than about 5×10^3 s $^{-1}$. The measured activity for the weaker source on the end-cap is also in good agreement with the reference value.

6. Conclusion

In this paper we developed a simple method for source activity determination by a single detector. In the count range from 2×10^3 to 80×10^3 s $^{-1}$ the measured activities are in very good agreement with the reference values. For the source on the end-cap geometry

(where the angular correlation effects are negligible), the activity of the ^{60}Co source was determined with the relative deviation from the reference activity of about 1%. The statistical uncertainty of the measured values was about 0.5%, while the uncertainty of the reference activity values was about 1.5%. This result exhibits clearly that with exact treatment of the chance coincidence and pile-up events, no additional fitting methods and/or Monte Carlo calculations are needed for accurate source activity measurements. The determination of the source activity from the single-detector spectrum seems to be more reliable than by coincidence counting with more detectors due to problems with coincidence efficiency.

In principle, our method is applicable for source strength measurements of all cascade emitting gamma ray sources. The universality of the method will be tested in our future investigations.

Acknowledgments

The authors acknowledge the financial support of the Ministry of Science and Technology of Serbia, in the frame of the Project Nuclear Spectroscopy and Rare Processes (no. 141002).

References

- [1] G.F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, Wiley, New York, 1979.
- [2] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., J.Th. Veenboer, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 14 (1963) 153–157.
- [3] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., J.Th. Veenboer, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 14 (1963) 433–437.
- [4] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 14 (1963) 503–510.
- [5] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 16 (1965) 177–181.
- [6] I.J. Kim, G.M. Sun, H.D. Choi, Y.D. Bae, J. Korean Nucl. Soc. 34 (2002) 22–29.
- [7] I.J. Kim, C.S. Park, H.D. Choi, Appl. Radiat. Isotopes 58 (2003) 227–233.
- [8] T. Vidmar, K. Kossert, O.J. Nöhle, O. Ott, Appl. Radiat. Isotopes (2008).
- [9] Model 1300, InSpector 2000-Hardware Manual, Canberra Industries Inc., 2000.
- [10] D.M. Scates, J.K. Hartwell, Appl. Radiat. Isotopes 63 (2005) 465–473.



Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A

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

On the absolute source activity measurement with a single detector: The ^{133}Ba case

I. Bikit*, T. Nemes, D. Mrda, N. Jovančević

University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovica 4, 21000 Novi Sad, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 27 July 2009

Received in revised form

22 September 2009

Accepted 22 September 2009

Available online 1 October 2009

Keywords:

Gamma-ray spectrometry

True and random coincidence summing

Activity measurement

Sum-peak method

ABSTRACT

The activity of a ^{133}Ba point source is measured with a single HPGe detector by placing the source on the detector end-cap. Activity is obtained using net peak areas and total spectrum area, as well as true and random (pile-up) peaks. For data analysis, two different methods are applied. In one, the method for activity observation that implies an exact treatment of the decay scheme and all possible outcomes introduced by Novković et al. [9] (D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nadđerđ, Nucl. Instr. and Meth. A 582 (2007) 592.) is extended to pile-up events of first order, which predicts 2375 different peaks in the spectrum of ^{133}Ba . In the second method, since the ^{133}Ba decay is followed by emission of one dominant cascade, a simple method was developed for activity measurement of ^{133}Ba source where the summing probability of X-rays with gamma rays can be neglected. It is shown that by taking into account the pile-up events in the spectrum, via the methods described here, accurate direct activity measurements of ^{133}Ba source are possible even at higher count rates. The methods are applied to the spectra with count rates up to $36 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, and the measured activity values agree with the reference values within 1%.

© 2009 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The activity or disintegration rate of some radionuclides may be determined directly from the X- or gamma-ray spectra, without the use of standards, if they decay by the emission of two photons in coincidence (i.e., X- or gamma-ray photons) [1].

The exact treatment of true coincidence events in the whole spectrum was first recognised by Brinkman et al. [2,3] and Brinkman and Aten [4,5] as a way to measure activity with a single detector (also known as the sum-peak method). They performed the sum-peak method by using a single NaI detector to measure the activity of ^{60}Co , ^{46}Sc , ^{22}Na , and ^{18}F sources.

When considering the possibility of true coincidences, quantitative interpretations of spectra may become very complicated, even with relatively simple decay schemes. There are several general ways to treat complex decay schemes and the possible true coincidence events [6,7,8] that are adapted for different purposes.

Novković et al. [9] further developed the formalism for the count rate at peaks appearing in the spectrum from any radionuclide. Considering both summing-in and summing-out, as well as peaks appearing due to true coincidences, they found a method for measuring the activities of sources with complex decay schemes using a single HPGe detector. Assuming that the

decay scheme, as well as the atomic and nuclear data (decay scheme, conversion coefficients, etc.), is known and considering all possible decay pathways and outcomes, they advanced the method introduced by Semkow et al. [6] and described how to create exact count rate equations for any radionuclide. The method requires appropriate software since the number of nuclear parameters and equations created may become very large even with relatively simple decay schemes. Their method was successfully applied to the activity measurements of the sources: ^{139}Ce , ^{57}Co and ^{133}Ba [8,9]. ^{57}Co and ^{133}Ba require approximations to obtain activity from only the peaks and total count rate. Meanwhile, from the equations for ^{139}Ce , the full peak efficiencies can be eliminated. In addition, their method allows observation of the efficiencies of the used detector, which are corrected for true coincidences. Since the number of count rate equations they create in the case of ^{133}Ba is larger than the number of unknowns (full peak efficiencies, total efficiencies and activity), a peak-to-total ratio was related to the full peak efficiencies by an appropriate function with one unknown parameter. Determining the 11 net peak areas from the spectrum of ^{133}Ba and the total spectrum area, the system of nonlinear count rate equations was numerically solved for the efficiencies, peak-to-total ratio and the activities of used sources. They measured the activities of ^{133}Ba point sources in the range 300–2500 Bq and achieved good accuracies, values within 1% of the reference values [9].

In order to minimise the angular correlation effects and to achieve better statistics at the true coincidence peaks, the

* Corresponding author. Tel.: +381 21 459 368; fax: +381 21 459 367.
E-mail address: bikit@df.uns.ac.rs (I. Bikit).

sources can be placed at the detector end-cap (nearly 2π geometry). However, closer distances cause higher count rate. Therefore, depending on the activity of the measured source, the pile-up events may result in random peaks and losses from peaks appearing in spectral continuum, even when the pile-up rejector has been turned on. To accurately measure activity at higher rates with only a single detector, corrections are required for the pile-up contributions to the peaks as well as the losses from full energy peaks. These corrections can be performed by measuring activities with different shaping time of an amplifier and by extrapolating the observed activities to zero shaping time. The method is described in the absolute activity measurements of ^{60}Co source by Kim et al. [10]. A different technique, which requires only one measurement, is to introduce the effective resolving time of the spectrometer system as the unknown quantity and to observe the net areas of pile-up peaks. This approach was also demonstrated by the measuring the activity of a ^{60}Co source by Bikit et al. [11].

In this paper, the method developed by Novković et al. [8] is extended to correct for pile-up contribution and losses from peaks. Extended equations for peaks in the spectrum enable accurate determination of the source activity at higher count rates. The model used here is tested with and without chance coincidence events by measuring the activities of ^{133}Ba point sources. On the other hand, since the ^{133}Ba decays through one dominant cascade, when detection of the X-rays is negligible, a simple method is developed to measure the activity with a single detector.

2. Count rate equations with pile-up events

When a source with a relatively high disintegration rate is placed at the detector end-cap, true and random coincidence events can significantly affect the number of detected events in the whole spectrum. Considering complex decay schemes, in the presence of true and random summing, the rate related to the peak at energy E_i can be expressed as a sum of the rates coming from single nuclei decays (N_{E_i}) and gain coming from two decay events within an effective resolving time 2τ (N'_{E_i}):

$$N_{E_i} = N_{E_i} + N'_{E_i} \quad (2.1)$$

Assuming any decay scheme, the rate N_{E_i} comes from different decay pathways with outcomes of the same deposited energy. Considering also the possibility of pile-up, two detector outcomes that occur within the resolving time can result in an event that will contribute to the counts at full peak. The equations for the probabilities of each outcome corresponding to the single decay events at energy E_i can be constructed considering the decay scheme along with nuclear and atomic data [8]. Since the possible outcomes are independent events, the probability (P_i) for detecting events at energy E_i can be expressed as a sum of all the probabilities corresponding to the possible outcomes with energy E_i . Considering that the probabilities for all outcomes are known, the row matrix of all probabilities corresponds to the different energies can be created as follows:

$$\mathbf{P} = (P_1 \ P_2 \ \dots \ P_n) \quad (2.2)$$

Similarly, the row matrix for all possible deposited energies that are correlated with the probability matrix (2.2) can also be formed:

$$\mathbf{E} = (E_1 \ E_2 \ \dots \ E_n) \quad (2.3)$$

The detailed description of forming the probabilities for all the outcomes corresponding to elements P_i from matrix (2.2) for detection at energy E_i can be found in Ref. [8].

For further considerations, it is very important that probabilities P_i from matrix \mathbf{P} correspond to the deposited energies E_i from matrix \mathbf{E} . The probabilities from \mathbf{P} are functions of not only the nuclear and atomic data, but also of the full peak and total efficiencies of the detector.

Contributions to the count rate at energy E_i , taken from matrix \mathbf{E} and corresponding to events originating from detection of photons from single nuclei decays, can be expressed as a product of activity (A), probability P_i from \mathbf{P} and a factor for pile-up losses L_τ :

$$N_{E_i} = AP_i L_\tau \quad (2.4)$$

The factor for the pile-up losses is assumed to be the same for all deposited energies. Also, the pile-up losses are assumed to be events that appear somewhere in the spectrum continuum.

Introducing the finite effective resolving time of spectrometer (2τ), the chance coincidence contribution of the first order to the peak at energy E_i taken from \mathbf{E} can be expressed by the relation:

$$N'_{E_i} = 2\tau A^2 \left(\sum_{k,l} P_k P_l \right)_{E_i} \quad (2.5)$$

where P_k and P_l denote the probabilities of observing counts at energies E_k and E_l , respectively. In order to obtain rate of pile-up contribution to the peak at the energy E_i , the conditions for choosing P_k and P_l from matrix (2.2) and putting it into (2.5) are related to the condition for choosing the deposited energies $E_k + E_l = E_i$ that must be satisfied.

However, chance coincidence events yield more different deposited energies than matrix (2.3) comprehends. Within the resolving time of the spectrometer, every possible outcome can be obtained with any other, or even the same outcome. Therefore, the matrix of possible detected energies (2.3) can be extended by introducing the detection of chance coincidence events. The matrix of the pile-up peak energies can be obtained by applying the operator \mathbf{C} to the matrix (2.3), where \mathbf{C} is defined by the relation

$$\mathbf{E}_C = \mathbf{C}\mathbf{E} = ((\text{diag}\mathbf{E} \oplus \text{diag}\mathbf{E}) \cdot \mathbf{I})^T \quad (2.6)$$

Here the symbol \mathbf{I} denote the column matrix:

$$\mathbf{I} = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ \vdots \\ 1 \end{pmatrix} \text{ consisting of } n^2 \text{ unit elements, where } n \text{ represents}$$

the number of possible peaks from single decay nuclei. The Kronecker summing " \oplus " is essential for obtaining the pile-up peak energies since the every possible outcome from single decay can be summed with any other consecutive decay outcome within the resolving time. The column matrix \mathbf{I} transforms diagonal matrix of pile-up energies to column matrix. Symbol T denotes transposing operation which transforms column matrix to row matrix. However, the new matrix \mathbf{E}_C also contains the energies from matrix (2.3) which correspond to true cascade events. To deduce the set of all possible detected energies (single peaks, true coincidence and pile-up peaks), the set of values from \mathbf{E} and \mathbf{E}_C are unified:

$$\mathbf{E}_U = (\mathbf{E} \cup \mathbf{E}_C) \quad (2.7)$$

For instance, let us consider the simple decay scheme of β^- emitter (Fig. 1) and, for the sake of simplicity, we will suppose that there is no internal conversion. The energies E_1 and E_2 come from deexcitations via levels $2 \rightarrow 1$ and $1 \rightarrow 0$, respectively, while the E_3 comes from full detection of cascade: $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$. The row matrix containing energies of all possible peaks appearing in the spectrum of detected events from single decay

$$\mathbf{E} = (E_1 \ E_2 \ E_3) \quad (2.8)$$

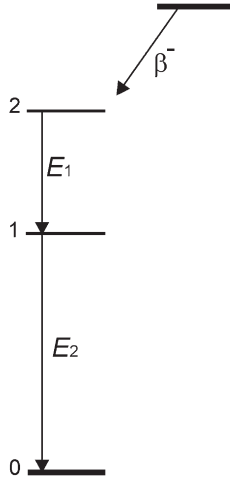


Fig. 1. Simple decay scheme consisting of two excited levels.

Making use of the operator \mathbf{C} defined with (2.6) on the matrix (2.8):

$$\mathbf{E}_C = ((\text{diag}(E_1 \ E_2 \ E_3) \oplus \text{diag}(E_1 \ E_2 \ E_3))\mathbf{I})^T \quad (2.9)$$

yields the following new row matrix

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_C &= (2E_1 \ E_1 + E_2 \ E_1 + E_3 \ E_2 + E_1 \ 2E_2 \ E_2 + E_3 \ E_3 + E_1 \ E_3 + E_2 \ 2E_3) \\ &= (E_{C1} \ E_{C2} \ E_{C3} \ E_{C4} \ E_{C5} \ E_{C6} \ E_{C7} \ E_{C8} \ E_{C9}) \end{aligned} \quad (2.10)$$

which contain energies related to the pile-up events.

The energy $E_1 + E_2$ of the pile-up peak is the same as for the true coincidence peak. So the events related to energies E_{C2} and E_{C4} from (2.10) are the pile-up contribution to the true coincidence peak of energy E_3 from matrix (2.8). Unifying the set of values from matrix (2.8) and (2.10) we obtain the set of different energies of all possible peaks resulting from single nucleus and two nucleus decays within the resolving time:

$$\mathbf{E}_U = \{E_1, E_2, E_3, E_{C1}, E_{C3}, E_{C5}, E_{C6}, E_{C9}\} \quad (2.11)$$

Energy E_{C1} corresponds to the pile-up peak created by two totally absorbed gamma rays of energy E_1 . E_{C3} and E_{C7} are the same, and correspond to pile-up event of detected E_1 together with cascade $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$. Peak at E_{C5} appears due to full detection two gammas with energies E_2 . E_{C6} and E_{C8} are the same and represent energy of pile-up event from detected cascade $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ together with gamma ray of energy E_2 . E_{C9} is the pile-up of two detected cascades. Besides the full peaks at energies E_1 , E_2 and true coincidence peak E_3 , there is 5 additional peaks appearing due to pile-up. It is noticeable that there is pile-up contribution (events from E_{C2} and E_{C4} in (2.10)) to the intensity of existing E_3 true coincidence peak.

The matrix of probabilities for detecting pile-up events related with the pile-up energies from (2.10) can be obtained by applying operator \mathbf{C}_P to the probability matrix \mathbf{P} corresponding to the matrix of single decay detected energies (2.2):

$$\mathbf{P}_C = \mathbf{C}_P \mathbf{P} = ((\text{diag} \mathbf{P} \otimes \text{diag} \mathbf{P}) \mathbf{I})^T \quad (2.13)$$

Applied to the previously mentioned simple example, it gives

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_C &= \left((\text{diag}(P_1 \ P_2 \ P_3) \otimes \text{diag}(P_1 \ P_2 \ P_3)) \mathbf{I} \right)^T \\ &= \begin{pmatrix} P_1^2 & P_1 P_2 & P_1 P_3 & P_2 P_1 & P_2^2 & P_2 P_3 & P_3 P_1 & P_3 P_2 & P_3^2 \end{pmatrix} \\ &= (P_{C1} \ P_{C2} \ P_{C3} \ P_{C4} \ P_{C5} \ P_{C6} \ P_{C7} \ P_{C8} \ P_{C9}) \end{aligned} \quad (2.14)$$

The Kronecker product “ \otimes ” of identical diagonal matrices $\text{diag} \mathbf{P}$ in (2.13) is essential and gives all the combinations of

products between probabilities for each outcome. Thus, every single term as well as its position at \mathbf{P}_C corresponds to the certain position to the pile-up energy value in matrix \mathbf{E}_C .

Now, the peak rates can be expressed in more general form:

$$N_{E_i} = AP_i L_\tau + 2\tau A^2 \left(\sum_j P_{Cj} \right)_{E_i} \quad (2.15)$$

where P_i is taken from (2.2) and is related energy E_i from (2.8). The second term in Eq. (2.15) represents the pile-up contribution to the energy E_i . In order to take into account all pile-up contributions to the line with energy E_i , all probabilities from matrix (2.14) corresponding to the appropriate energy E_i must be summed. However, the rate of pure pile-up lines does not include the first term in Eq. (2.15), but the probabilities corresponding to the same pile-up energy also must be summed.

Considering the simple example of decay scheme (Fig. 1), and supposing that the probabilities for detection of E_1 , E_2 and E_3 are known ($P_1 \ P_2 \ P_3$), the count rate equations are

$$\begin{aligned} N_{E_1} &= AP_1 L_\tau \\ N_{E_2} &= AP_2 L_\tau \\ N_{E_3} &= AP_3 L_\tau + 2(2\tau)A^2 P_1 P_2 \\ N_{E_4} &= (2\tau)A^2 P_1^2 \\ N_{E_5} &= 2(2\tau)A^2 P_1 P_3 \\ N_{E_6} &= (2\tau)A^2 P_2^2 \\ N_{E_7} &= 2(2\tau)A^2 P_2 P_3 \\ N_{E_8} &= (2\tau)A^2 P_3^2 \end{aligned} \quad (2.16)$$

Third equation in (2.16) includes pile-up contribution, while the remaining five equations are the rates for the pure pile-up lines. As can be noticed, the pile-up rates resulting from chance coincidence events of two different energies have multiplying factor 2. This factor appears due to two different possibilities of origin for the pile-up event at certain energy as explained in Ref. [11]. For instance, E_1 can be emitted from first nuclei while E_2 from the second one within resolving time or vice versa. This assumption is also consistent with the matrix (2.14), where the equal probabilities may appear twice corresponding to the same value of pile-up energy.

3. The ^{133}Ba case

The isotope ^{133}Ba decays by the electron capture followed by the emission of gamma and X-rays. The decay scheme of ^{133}Ba , according to the nuclear and atomic data from Chechev and Kuzmenko [12], is presented in Fig. 2. The most likely excited levels (4th and 3rd) for the daughter nucleus ^{133}Cs at energies 437 and 383 keV are fed with probabilities 86% and 14%, respectively. The electron captures to the 2nd and 1st excited levels will be assumed here as negligible, considering their small probability.

3.1. The exact treatment by the chance coincidence extended method

According to the decay scheme of ^{133}Ba , there are gamma transitions that are highly converted. Thus, the exact interpretation of ^{133}Ba spectra, besides gamma emissions, requires an additional consideration of X-ray emissions followed by electron capture as well as X-ray emissions from internal conversion. Such considerations result in 1788 possible outcomes and 167 count rate equations for different non-zero energies [9].

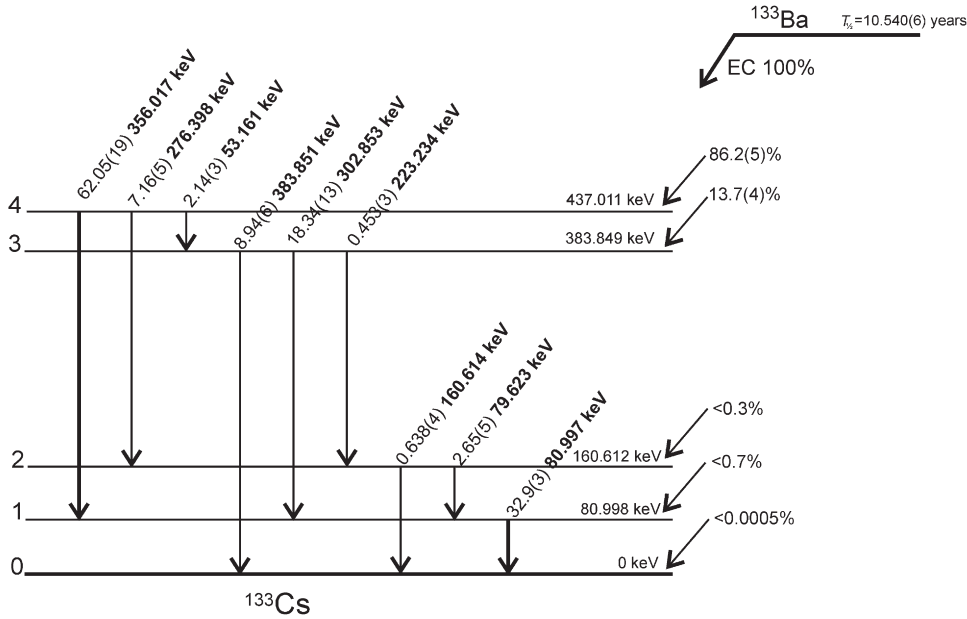


Fig. 2. Decay scheme of isotope ^{133}Ba .

In order to take into account pile-up events, we will assume here that the row matrix of probabilities for detecting different non-zero energies is known:

$$\mathbf{P} = (P_1 \ P_2 \ \dots \ P_{167}), \quad (3.1.1)$$

And we also know the row matrix of deposited energies correlated with (3.1.1):

$$\mathbf{E} = (E_1 \ E_2 \ \dots \ E_{167}) \quad (3.1.2)$$

Applying the operator \mathbf{C} defined with (2.6) to the matrix of deposited energies \mathbf{E} for ^{133}Ba (3.1.2), we obtain the new row matrix with all possible chance coincidence deposited energies, which contains 2369 different terms among 27889 total number of terms:

$$\mathbf{E}_C = (E_{C1} \ E_{C2} \ \dots \ E_{C27889}) \quad (3.1.3)$$

The matrix (3.1.2) with numerical values of energies of the ^{133}Ba is created in the Mathematica 5.0 software. This software is also used for all the necessary matrix operations. The action of the \mathbf{C} to the energy matrix of ^{133}Ba (3.1.2) gave matrix (3.1.3) containing $167^2=27889$ energy terms. However, most of these terms have the equal energy values. Collecting only the different values of energies from the matrix (3.1.3) yielded the set of 2369 different terms. Such a large number is obtained because the X-rays from internal conversion could be related to the every transition.

Unifying the elements from (3.1.2) and (3.1.3) the set of all possible different full peaks corresponding to the single nucleus and two nucleus decays within the resolving time for ^{133}Ba is obtained:

$$\mathbf{E}_U = \{E_1, E_2, \dots, E_{2375}\} \quad (3.1.4)$$

The 6 energy terms correspond to the peaks without pile-up contribution; 161 peaks are related to the single nucleus decay including pile-up contributions, while the remaining 2208 are pure pile-up lines.

Theoretically, the chance coincidence events yield more 2208 possible pile-up peaks, but most of them are with negligible

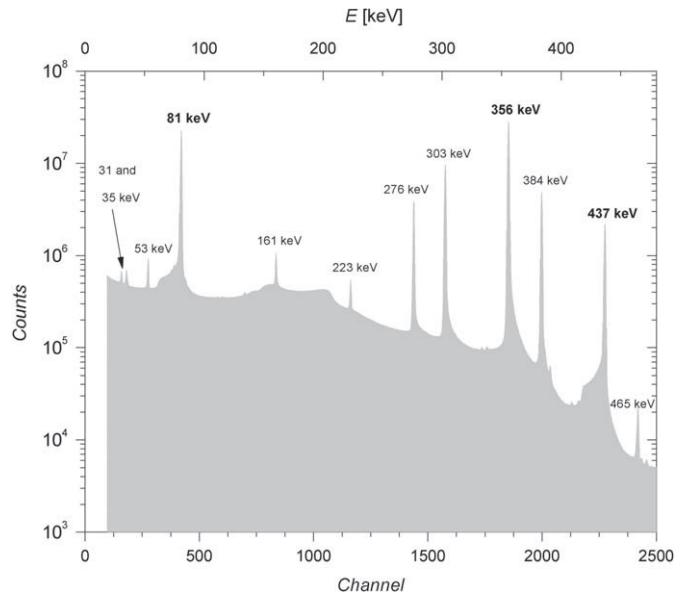


Fig. 3. Part of the spectrum of the ^{133}Ba point source of the reference activity 95.0 kBq obtained with HPGe detector. The source was placed at the detector end-cap.

intensity. Reducing the number of the possible detected energies from (3.1.2) implies a lower number of possible chance coincidence detected energies.

According to the decay scheme (Fig. 2) and spectrum from a ^{133}Ba source (Fig. 3), the most important deposited energies coming from a single nuclei decay events are presented in Table 1.

Creating the row matrix from the set of values in Table 1 and applying the operator \mathbf{C} , the reduced list of possible deposited chance coincidence energies is obtained (Table 2).

Considering the decay scheme of ^{133}Ba (Fig. 2), peaks with energies 53.161, 223.234, 79.623, 80.998, 30.8 and 35.3 keV cannot be created by true coincidences and/or chance coincidence events,

Table 1

The most intense observed peaks in the ^{133}Ba spectra.

E (keV)	30.08	35.3	53.16	79.61	81.0	160.61	223.24	276.4	302.85	356.01	357.4
	383.85	437.01									

Table 2

Pile-up peak energies which are deduced by collecting different terms from row matrix obtained by applying operator **C** to the matrix created from the set of energies from Table 1.

E (keV)	61.6	66.1	70.6	83.96	88.46	106.32	110.41	111.8	114.91	116.3	132.77
	134.16	159.22	160.61	162.0	191.41	195.91	213.77	240.22	241.61	254.04	258.54
	276.4	302.85	304.24	307.2	311.7	321.22	329.56	333.65	338.15	356.01	357.4
	382.46	383.85	386.81	388.2	391.31	392.7	409.17	410.56	414.65	419.15	435.62
	437.01	438.4	446.48	463.46	464.85	467.81	472.31	490.17	499.64	516.62	518.01
	526.09	544.46	552.8	579.25	580.64	597.62	605.7	607.09	632.41	633.8	658.86
	660.25	686.7	712.02	713.41	714.8	739.86	741.25	767.7	793.02	794.41	820.86
	874.02										

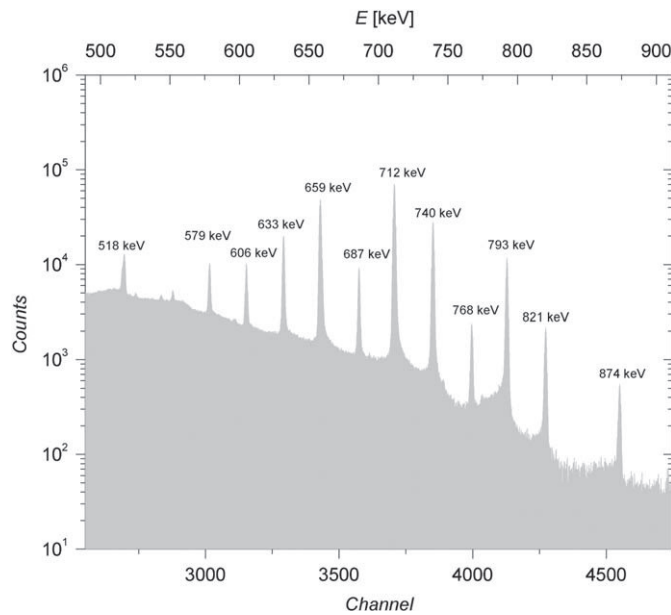


Fig. 4. The pile-up peaks that appear in the spectrum of the point source ^{133}Ba of reference activity 95.0 kBq. The spectrum was recorded by placing the source on the detector end-cap.

since no cascade transitions correspond to these energies. The values in bold font are related to the pile-up peaks, while all other peaks from (Table 2) can be created either from true coincidence events or the pile-up events. Such analysis is taken by comparing the list of all possible detected energies from each single decay outcome (167 different energies) with the list of pile-up peaks obtained. According to the decay scheme (Fig. 2) and the energy of the K_β transition, it can also be concluded that peaks above an energy of 472.31 keV cannot be created without pile-up events. The pile-up peaks in the observed spectrum of ^{133}Ba that are also predicted by Table 2) are presented in Fig. 4.

The most intensive pile-up peak (712 keV, Fig. 4) originates from two totally absorbed gamma photons within the effective resolving time of the spectrometer system, appearing mostly due to the transition $4 \rightarrow 1$ (Fig. 2). The fact that pile-up peaks appear in the spectrum and the presence of a spectral continuum above energy 472 keV, can be a hint that the contribution and losses produced by the pile-up are not negligible. The accurate

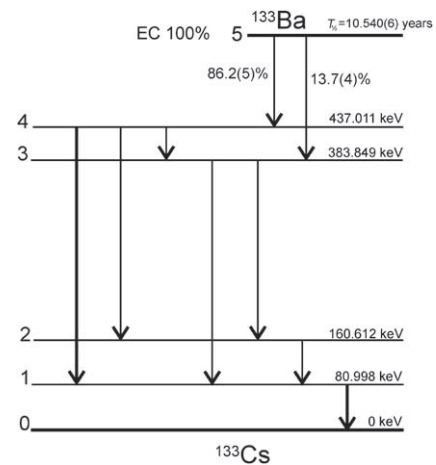


Fig. 5. Simplified decay scheme of ^{133}Ba . The missed transitions are $3 \rightarrow 0$ and $2 \rightarrow 0$.

interpretation of peak rates, especially the sum-peak at 437 keV, will be discussed in Section 5.

3.2. Simplified treatment

According to the observed spectrum (Fig. 3), the detector used in this study has a low efficiency for the X-rays. Analysing the decay scheme of ^{133}Ba and neglecting detection of the X-rays, the lowest simplified decay scheme that can be solved in the sum-peak manner must avoid cross-overs related to the 1st excited level. The decay scheme of ^{133}Ba without transitions $3 \rightarrow 0$ and $2 \rightarrow 0$ is presented in Fig. 5.

The probability for full detection of the cascade $4 \rightarrow 3 \rightarrow 0$ is very small compared to the other cascades that contribute to the sum-peak at 437 keV since the gamma ray belonging transition $4 \rightarrow 3$ is highly converted. Also, cascades that involve the transition $2 \rightarrow 0$ have small pathway probabilities compared to the probability for $4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ cascade transition neglecting also the summing with the 30.8 and 35.3 keV X-rays. In consideration of this, it is possible to introduce reduced full peak efficiencies for energies corresponding to any transitions from level i to level j :

$$\tilde{\epsilon}_{ij} = \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \epsilon_{ij} \quad (3.2.1)$$

Table 3

Pathway probabilities. The subscripts denote the levels involved in the deexcitation (i.e. 5320 means $5 \rightarrow 3 \rightarrow 2 \rightarrow 0$).

p_{5320}	0.000246(20)
p_{54320}	0.000270(20)
p_{53210}	0.00215(12)
p_{543210}	0.00235(14)
p_{5420}	0.0078(5)
p_{530}	0.0435(20)
p_{5430}	0.0477(20)
p_{54210}	0.0685(26)
p_{5310}	0.091(4)
p_{54310}	0.100(4)
p_{5410}	0.636(4)

where α_{ij} is the conversion coefficient and ϵ_{ij} is the full peak efficiency. Similarly, total reduced efficiencies can be written as

$$\tilde{\epsilon}_{Tij} = \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \epsilon_{Tij} \quad (3.2.2)$$

Hence, according to this simplified scheme (Fig. 5), the parameters necessary to create the count rate equations from nuclear data are only the pathway probabilities (Table 3). The count rate equation for the peak at energy 81 keV (R_1), considering the full decay scheme is

$$R_1 = A \tilde{\epsilon}_{10} [p_{5410}(1 - \tilde{\epsilon}_{T41}) + p_{54210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T42})(1 - \tilde{\epsilon}_{T21}) + p_{54310}(1 - \tilde{\epsilon}_{T43})(1 - \tilde{\epsilon}_{T31}) + p_{543210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T43})(1 - \tilde{\epsilon}_{T32}) \times (1 - \tilde{\epsilon}_{T21}) + p_{5310}(1 - \tilde{\epsilon}_{T31}) + p_{53210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T32}) \times (1 - \tilde{\epsilon}_{T21})] (1 + c_1) L_\tau \quad (3.2.3)$$

where p denotes the appropriate pathway probability, subscripts denote the levels involved in the deexcitations (i.e. 5410 means $5 \rightarrow 4 \rightarrow 1 \rightarrow 0$), A is source activity, and c_1 is a correction term that results from fact that rates coming from transitions $2 \rightarrow 1$ and $1 \rightarrow 0$ cannot be resolved.

The rate at 356 keV (R_2) can be written as

$$R_2 = A(1 - \tilde{\epsilon}_{T10})(p_{5410}\tilde{\epsilon}_{41} + p_{54210}\tilde{\epsilon}_{42}\tilde{\epsilon}_{21} + p_{54310}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{31} + p_{543210}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{32}\tilde{\epsilon}_{21})(1 + c_2) L_\tau \quad (3.2.4)$$

where c_2 is the correction factor coming from the fact that cascades from the 4th excited level can result in a peak at energy 357.4 keV. If cascades from the 4th excited level are fully detected without $2 \rightarrow 1$, but with the $1 \rightarrow 0$ line, a peak appears at 357.4 keV which cannot be resolved from line of 356 keV. Similarly, the full decay scheme count rate for the sum-peak at 437 keV taking into account possibility of the pile-up contribution is

$$R_\Sigma = A(p_{5410}\tilde{\epsilon}_{41}\tilde{\epsilon}_{10} + p_{54210}\tilde{\epsilon}_{42}\tilde{\epsilon}_{21}\tilde{\epsilon}_{10} + p_{54310}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{31}\tilde{\epsilon}_{10} + p_{543210}\tilde{\epsilon}_{43}\tilde{\epsilon}_{32}\tilde{\epsilon}_{21}\tilde{\epsilon}_{10})(1 + c_\Sigma) L_\tau + R_C \quad (3.2.5)$$

The term c_Σ attempts to correct for the sum-peak rate when missed transitions in the simplified decay scheme (Fig. 5) are taken into account.

When the losses due to registered pile-up events and detection of X-rays are neglected, using the same symbols and considering the full decay scheme, the total count rate can be written as follows:

$$R_T = A(1 - [(1 - \tilde{\epsilon}_{T10})(p_{5410}(1 - \tilde{\epsilon}_{T41}) + p_{54210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T42})(1 - \tilde{\epsilon}_{T21}) + p_{54310}(1 - \tilde{\epsilon}_{T43})(1 - \tilde{\epsilon}_{T31}) + p_{543210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T43})(1 - \tilde{\epsilon}_{T32}) \times (1 - \tilde{\epsilon}_{T21}) + p_{5310}(1 - \tilde{\epsilon}_{T31}) + p_{53210}(1 - \tilde{\epsilon}_{T32})(1 - \tilde{\epsilon}_{T21})]) (1 + c_T)) \quad (3.2.6)$$

Here a correction term appears due to total counts coming from omitted transitions in the simplified scheme. The explicit equations for the correction terms c_1 , c_2 , c_Σ and c_T were introduced in Eqs. (3.2.6), (3.2.5), (3.2.4) and (3.2.3) are given in the Appendix.

Table 4

Correction terms for different detectors calculated by Monte Carlo technique.

Detector	I	II	III	Mean
Relative efficiency	100%	35%	22%	
c	1.094(14)	1.089(14)	1.088(14)	1.090(18)

The activity from Eqs. (3.2.3), (3.2.4), (3.2.5) and (3.2.6) can be deduced in the form

$$A = \left(\frac{(1 + c_T)(1 + c_\Sigma)}{(1 + c_1)(1 + c_2)} \frac{R_1 R_2}{(R_\Sigma - R_C) L_\tau} + R_T \right) \quad (3.2.7)$$

The relation (3.2.7) can be rewritten in the simplest form if the ratio between the correction terms is replaced by one correction term:

$$A = \left(c \frac{R_1 R_2}{(R_\Sigma - R_C) L_\tau} + R_T \right) \quad (3.2.8)$$

The correction term c , a function of pathway probabilities, conversion coefficients, full peak, and total efficiencies, is defined in the Appendix.

Even when the spectrometer is operated with the pile-up rejection circuit turned on, clearly visible pile-up events appear in the spectrum (Fig. 4). Similar to the interpretation of chance coincidence events in the ^{60}Co spectrum [11], the pile-up contribution to the sum-peak at 437 keV can be calculated by observing the rate at the pile-up peak at energy 712 keV. Introducing the effective resolving time (2τ) of the spectrometer system, the chance coincidence contribution to the sum-peak at 437 keV can be expressed as

$$R_C = 4\tau R_1 R_2 / L_\tau^2 \quad (3.2.9)$$

where R_1 and R_2 are the observed rates in the spectrum at energies 81 and 356 keV, respectively. The rate at the pile-up peak at energy 712 keV can thus be expressed as

$$R_{C2} = 2\tau R_2^2 / L_\tau^2 \quad (3.2.10)$$

Eliminating the resolving time from Eqs. (3.2.9) and (3.2.10), the chance coincidence contribution to the sum-peak at 437 keV, expressed by the observed rates in the spectrum at energies 81, 356 and 712 keV, is

$$R_C = 2R_{C2} R_1 / R_2 \quad (3.2.11)$$

According to Ref. [10], the factor for the observed peak rate losses (L_τ) somewhere in the spectrum can be expressed as

$$L_\tau = 1 - 2\tau R_T \quad (3.2.12)$$

Solving the system of Eqs. (3.2.12) and (3.2.10), the relation for the effective resolving time of spectrometer is deduced as

$$2\tau_\pm = \frac{1}{R_T} \left(1 + \frac{R_2^2}{2R_T R_{C2}} \left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4R_T R_{C2}}{R_2^2}} \right) \right) \quad (3.2.13)$$

While the formula with the minus sign yields the effective resolving time of the spectrometer system, the result with the plus sign can be interpreted as the expectation time between the two registered pile-up events during the live time.

Collecting the expressions (3.2.13), (3.2.12), and (3.2.11), along with (3.2.8), we arrive at the final form for the activity of ^{133}Ba source expressed by observable rates from spectrum:

$$A = R_T \left(c \left(\left(\frac{R_\Sigma R_2}{2R_{C2} R_1} - 1 \right) \left(\sqrt{1 + \frac{4R_T R_{C2}}{R_2^2}} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) \quad (3.2.14)$$

Monte Carlo calculations (Table 4) show that correction term very weakly depends on detector characteristics.

4. The measurements

The measurements of activities of two point sources of the ^{133}Ba are performed by using the HPGe coaxial detector with a relative efficiency of 35%. The detector was operated inside the 12 cm wall thickness low-level lead shield. The total background count rate of the detector in the shield in the energy region 18–3150 keV was about 3 s^{-1} . It is negligible when compared with the observed total count rates for both sources.

A portable workstation “InSpector 2000” (Model 1300-Canberra) was used for digital processing of signals. Since the count rates were very high, in order to achieve the best possible shape of the peaks and resolution, the pile-up rejector/live time corrector was turned on.

The activities of two ^{133}Ba point sources were measured with reference activities at the date of measurements: 48.2(23) kBq (Amersham, no. 11188) and 95.0(38) kBq (Amersham, no 260662-1). In order to minimise possible effects from angular correlations, the sources were placed at the detector end-cap in the detector axis. Spectra were analysed with the software Gamma Acquisition and Analysis (GENIE-2000 package). The Gaussian fit was avoided because of the distorted shape of the peaks (Fig. 1). The net peak areas were determined by careful numerical integration. To estimate the peak count rate deviations, integration boundaries are varied for about $\pm 1 \text{ keV}$ for the most distorted peaks (81 and 437 keV). Such estimations yield deviations larger than 1% for some peak rates, with a pure statistical deviation of few tenths of a percent. The largest deviation is observed for the sum-peak (437 keV) which is 1.3% at 95.45% confidence level. Relative deviations for very well-defined peaks are considered as purely statistical. Total count rates were observed by integrating the whole spectrum from LLD energy (18.8 keV).

5. Results and discussion

For the observing activities by the exact treatment, the system of count rate equations is formed:

$$\begin{aligned} n_{31} &= N'_{30.8} \\ n_{35} &= N'_{35.3} \\ n_{53} &= N'_{53.16} \\ n_{81} &= N'_{81.0} + N'_{79.61} \\ n_{161} &= N'_{160.61} + N'_{160.61} + N'_{162.0} \\ n_{223} &= N'_{223.24} \quad n_{276} = N'_{276.4} \\ n_{303} &= N'_{302.85} \\ n_{356} &= N'_{356.01} + N'_{357.4} + N'_{356.01} + N'_{357.4} \\ n_{384} &= N'_{383.85} + N'_{383.85} \\ n_{437} &= N'_{437.01} + N'_{435.62} + N'_{437.01} + N'_{438.4} \\ n_{712} &= N'_{712.02} + N'_{713.41} \\ n_T &= N_T \end{aligned} \quad (5.1)$$

where n_{E_i} corresponds to the observed peak rates from recorded spectra, and the N_{E_i} denotes the count rate equations that are formed by roles described by Novković et al. [9] taking into account pile-up events (Sections 2 and 3.1). The count rate equations are numerically solved by using Mathematica 5.0 software. The same system observed by Novković et al. [9] can be deduced from system (5.2) if the resolving time of the spectrometer is taken to have zero value. However, the chance coincidence treatment requires additional equation, since the resolving time of the spectrometer is assumed to be an unknown quantity. According to the best statistics, the net peak area at 712 keV and the appropriate count rate equation were selected, which enabled determination of the effective resolving time from system (5.1). In the region of integration of the most peaks, there are more true and pile-up equations which are not included in the

system (5.1). Solving the system first without pile-up corrections and by observing the resolving time of the spectrometer using Eq. (3.2.13), we determined the contribution of pile-up events to the region of integrations of peak rates. Most of the calculated pile-up contributions that are not taken into account in the peak areas of interest contribute far less than 1% to the observed rates.

The activity using the simplified method is obtained by

$$A = R_T \left(1.09 \left(\left(\frac{R_\Sigma R_2}{2R_{C2} R_1} - 1 \right) \left(\sqrt{1 + \frac{4R_T R_{C2}}{R_2^2}} - 1 \right) \right)^{-1} + 1 \right) \quad (5.2)$$

replacing the observed rates presented in Table 5. The mean correction term is replaced into (3.2.14) which gives (5.2). Since the correction (c) term, besides pathway probabilities and conversion coefficients of ^{133}Ba , also depends on full peak and total efficiencies, the generality of Eq. (5.2) is investigated. The correction term can be calculated by proposing different detector data. Full peak and total efficiencies are calculated for three different coaxial HPGe detectors with a point source located at the detector end-cap, using the Monte Carlo technique with the GEANT4 simulation package [13]. These numerical values are replaced into the equations for correction terms (A.1, A.2, A.3 and A.4). The calculations show that the correction term (A.5) very weakly depends on the proposed detectors (Table 4).

Results of the measurements are summarised in Table 5. All the methods used for observing the activities yield values very close to the reference activities, but the difference is noticeable. Both sources produce relatively high count rates, even with the pile-up corrector. Therefore, the pile-up effects are observable in the

Table 5
Experimental results.

	Activity [kBq]	A/A ₀	Activity [kBq]	A/A ₀
Ref. value	48.2(23)	/	95.0(38)	/
Method by Novković et al.	47.0(11)	0.975	90.9(16)	0.957
Extended method (system 5.1)	48.0(11)	0.996	94.7(19)	0.997
Simplified method (Eq. (5.2))	48.4(8)	1.004	95.5(16)	1.005
Observed peaks	Observed count rates			
E (keV)	n(E) (s ⁻¹)		n(E) (s ⁻¹)	
31	16.4(3)		28.40(27)	
35	24.0(3)		41.8(4)	
53	44.4(4)		82.6(3)	
81(R ₁)	2629(33)		5038(67)	
161	64.8(13)		126.8(5)	
223	30.1(7)		56.90(20)	
276	415(3)		794(7)	
303	1091(6)		2065(8)	
356(R ₂)	3284(13)		6224(25)	
384	552(4)		1046(10)	
437(R _Σ)	302.5(30)		573(6)	
712(R _{C2})	5.11(5)		18.7(3)	
n _T (R _T)	16177(324)		31626(632)	
Calculated values of the 2nd importance				
<i>Extended model</i>				
2τ. [ns]	457		459	
k [MeV ⁻¹]	3.38		3.55	
<i>Simplified formula</i>				
2τ. (ns)	467		468	
2τ* (ms)	8.18		2.14	
L _r (%)	99.26		98.50	

Symbols used: A/A₀—ratio between observed activities by different methods and reference activities; 2τ—effective resolving time; 2τ*—expectation time between the two pile-up events during the live time; k—observed parameter for peak-to-total function; L_r—factor for losses from peaks due to pile-up. The uncertainties of activities obtained from system (5.1) are taken as maximum deviation when the count rates are varied in their deviation limits. All deviations of presented values are reported at 95.45% confidence level except the reference activities (99.73%).

Table 6
The most intensive pile-up peak rates which are observed in the spectra of the ^{133}Ba source. A comparison between calculated and observed rates is shown.

Ref. Source Activity		48.2 kBq	48.2 kBq	95.0 kBq	95.0 kBq
E [keV]	Equation used	Cal. Rate [s^{-1}]	Rate Observed [s^{-1}]	Cal. Rate [s^{-1}]	Rate observed [s^{-1}]
518	$n_{518} = N_{516.62}' + N_{518.0}'$	0.900	0.890	3.26	3.25
579	$n_{579} = N_{579.25}' + N_{580.64}'$	0.513	0.507	1.88	1.87
606	$n_{606} = N_{605.7}' + N_{607.09}'$	0.569	0.560	2.07	2.01
633	$n_{633} = N_{632.41}' + N_{633.8}'$	1.27	1.23	4.67	4.68
659	$n_{659} = N_{658.86}' + N_{660.25}'$	3.54	3.52	12.94	12.88
687	$n_{687} = N_{686.7}'$	0.556	0.557	2.02	2.04
740	$n_{740} = N_{739.86}' + N_{741.25}'$	1.97	1.99	7.15	7.17
768	$n_{768} = N_{767.7}'$	0.140	0.147	0.507	0.507
793	$n_{793} = N_{793.02}' + N_{794.41}'$	0.896	0.898	3.19	3.17
821	$n_{821} = N_{820.86}'$	0.150	0.148	0.53	0.55
874	$n_{874} = N_{874.02}'$	0.04	0.037	0.14	0.14

spectrum (Fig. 4) and must be corrected for. Observed activities are in very good agreement with the reference values for the weaker source with or without considering chance coincidence events (observed activity without pile-up events is about 2.5% below the reference value). When the effects of chance coincidences are not taken into account, the observed activity of the source 95.0 kBq by the exact treatment is more than 4% below the reference value. Considering the observed results, it can be expected that avoiding the pile-up events should yield lower activity values at higher count rates. The significance of chance coincidence events in the observed spectrums are confirmed by calculations of pile-up contributions to the sum-peak at 437 keV which are 2.6 % and 5.1 % for the weaker and stronger source, respectively. The activities calculated by simple Eq. (5.2) are in good agreement with the reference values and are within 1% relative deviation from reference values. The exact treatment (system 5.1) yields somewhat lower activity values, while the simplified treatment gives somewhat larger activities. Uncertainties of the simple method are analytically deduced by taking into account deviations of observed rates, conversion coefficients, and peak and total efficiencies obtained by Monte Carlo calculations and pathway probabilities.

Since the solutions of the count rate Eq. (5.1) are also the full peak efficiencies and peak-to-total ratio, count rates for pile-up peaks are calculated and compared with the observed rates in the spectrum (Table 6). Forming the count rate equations for pile-up peaks not used in system and using the observed efficiencies, peak-to-total ratio, activity and resolving time, is a way of verifying the validity of this treatment of pile-up counts in the spectra. A comparison of the observed and calculated rates for pile-up peaks confirmed the validity of the model used very well (Table 6).

6. Conclusion

According to the results presented here and by Novković et al. [9], the activity of ^{133}Ba source can be obtained by a single HPGe detector, placing the source on the detector end-cap without knowing accurate values of detector efficiencies. Since the method proposed by Novković et al. [9] is adapted for lower count rates, where the number of pile-up events is negligibly small [14], systematic errors slowly rise with increasing count rates. The count rate effect up to count rates of about $40 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ is presented in Table 5. The treatment of pile-up events described in the Section 2 extends the method introduced by Novković et al. [9] for more accurate determinations of activity of ^{133}Ba point sources at higher count rates.

On the other hand, the Monte Carlo calculations predict a weak dependence of correction factor versus efficiencies on different detectors (Table 4). Therefore, the simplified formula (5.2) should

yield activity values deviating from reference values by less than about 1%, as observed by any HPGe coaxial detector and by placing the source at the end-cap. The only limitation in deducing activity from ^{133}Ba spectrum by Eq. (5.2) is to perform the measurement with minimised X-rays detection. The simplified formula (5.2) is expected to work well at lower rates as well as at higher rates. However, the effect of triple random coincidences may become significant at greater count rates, and this is left for further studies. It can be noticed that the activity observation by formula (5.2) could be perceived as an absolute measurement if the correction term tends to be 1. That means excluding two transitions (Fig. 4) and also assuming negligible overlap of the $2 \rightarrow 1$ and $1 \rightarrow 0$ lines. However, such approximations yield lower activity values (more than 4% below) compared to the reference values.

Exact absolute measurement of ^{133}Ba source activity in a strict sense is not possible by a single detector. The activity measurement of ^{133}Ba proposed by Novković et al. [9] needs imposing peak-to-total function and starting values of activity and peak efficiencies, while the simplified treatment needs rough efficiency calculations to estimate the correction term. Activity determination by both methods also necessitates knowing nuclear and atomic data for ^{133}Ba . However, it can be expected that measurements of activities by the methods described above yield activity values deviating from real values by less than about 1%, which depends also on the spectrum quality.

In order to obtain the activity of sources by a single spectrometer when X-ray detection is negligible, the development of a simplified treatment presented seems to be general for radionuclides that have strong cascade and weak cross-over transitions, which will be tested in our further studies. On the other hand, it seems that there are no principal limitations on the method proposed by Novković et al. [8,9,14] for activity determination of nuclides with complex decay schemes that may require consideration of pile-up events. Keeping in mind also the capabilities of commercially available DSPs [15], a wide range of source activities could be covered. However, accurate direct activity determination by a single detector in close geometry seems to be a promising approach for radionuclides, even for those with complex decay schemes.

Acknowledgments

The authors acknowledge the financial support of the Ministry of Science and Technology of Serbia, in the frame of the Project Nuclear Spectroscopy and Rare Processes (no. 141002). The authors also appreciate the help of Mrs. G. Pantelić for lending the Amersham (no. 260662-1) ^{133}Ba source. The authors wish to thank M. Pantić and T. Lukić for useful suggestions.

Appendix

Here we give the explicit equations for the correction terms introduced in Section 3.2. The full peak and total efficiencies corresponding to transitions $2 \rightarrow 1$ (79.6 keV) and $1 \rightarrow 0$ (81 keV) are taken to have the same values: $\varepsilon_{21} = \varepsilon_{10} = \varepsilon_1$ and $\varepsilon_{T21} = \varepsilon_{T10} = \varepsilon_{T1}$. The conversion coefficients for the $2 \rightarrow 1$ and $1 \rightarrow 0$ lines are also equalised.

$$C_1 = \frac{\left(1 - \frac{\varepsilon_{T1}}{1 + \alpha_1}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{53210}\right)\right)}{p_{5410} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T41}}{1 + \alpha_{41}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T31}}{1 + \alpha_{31}}\right) \left(p_{54310} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{5310}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T1}}{1 + \alpha_1}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{53210}\right)\right)} \quad (\text{A.1})$$

$$C_2 = \frac{\frac{\varepsilon_1}{1 + \alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1 + \alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1 + \alpha_{32}}\right)}{p_{5410} \frac{\varepsilon_{41}}{1 + \alpha_{41}} + p_{54310} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{31}}{1 + \alpha_{31}} + \frac{\varepsilon_1}{1 + \alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1 + \alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1 + \alpha_{32}}\right)} \quad (\text{A.2})$$

$$C_\Sigma = \frac{\frac{\varepsilon_{20}}{1 + \alpha_{20}} \left(p_{54320} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1 + \alpha_{32}} + p_{5420} \frac{\varepsilon_{42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + p_{5430} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{30}}{1 + \alpha_{30}}}{\frac{\varepsilon_1}{1 + \alpha_1} \left(p_{5410} \frac{\varepsilon_{41}}{1 + \alpha_{41}} + p_{54310} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{31}}{1 + \alpha_{31}} + \frac{\varepsilon_1}{1 + \alpha_1} \left(p_{54210} \frac{\varepsilon_{42}}{1 + \alpha_{42}} + p_{543210} \frac{\varepsilon_{43}}{1 + \alpha_{43}} \frac{\varepsilon_{32}}{1 + \alpha_{32}}\right)\right)} \quad (\text{A.3})$$

$$C_T = \frac{\left(1 - \frac{\varepsilon_{T30}}{1 + \alpha_{30}}\right) \left(p_{5430} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{530}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T20}}{1 + \alpha_{20}}\right) \left(p_{5420} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{54320} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{5320}\right)\right)}{\left(1 - \frac{\varepsilon_{T1}}{1 + \alpha_1}\right) \left(p_{5410} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T41}}{1 + \alpha_{41}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T31}}{1 + \alpha_{31}}\right) \left(p_{54310} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{5310}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T1}}{1 + \alpha_1}\right) \left(p_{54210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T42}}{1 + \alpha_{42}}\right) + \left(1 - \frac{\varepsilon_{T32}}{1 + \alpha_{32}}\right) \left(p_{543210} \left(1 - \frac{\varepsilon_{T43}}{1 + \alpha_{43}}\right) + p_{53210}\right)\right)\right)} \quad (\text{A.4})$$

The correction term included in the Eq. (3.2.14) is defined as the ratio between terms (A.1), (A.2), (A.3) and (A.4):

$$c = \frac{(1 + C_\Sigma)(1 + C_T)}{(1 + C_1)(1 + C_2)} \quad (\text{A.5})$$

References

- [1] M.F. L'Annunziata, Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press, San Diego, 2003.
- [2] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., J.Th. Veenboer, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14 (1963) 153.
- [3] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., J.Th. Veenboer, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14 (1963) 433.
- [4] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14 (1963) 503.
- [5] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 16 (1965) 177.
- [6] T.M. Semkow, G. Mehmood, P.P. Parekh, M. Virgil, Nucl. Instr. and Meth. A 290 (1990) 437.
- [7] C. Jutier, P. Gross, G. Le Petit, Nucl. Instr. and Meth. A 580 (2007) 1344.
- [8] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađđerđ, Nucl. Instr. and Meth. A 578 (2007) 207.
- [9] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađđerđ, Nucl. Instr. and Meth. A 582 (2007) 592.
- [10] I.J. Kim, C.S. Park, H.D. Choi, Appl. Radiat. Isot. 58 (2003) 227.
- [11] I. Bikit, T. Nemes, D. Mrda, Nucl. Instr. and Meth. A 603 (2009) 333.
- [12] V.P. Chechev, N.K. Kuzmenko, Internet information: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ba-133_tables.pdf>.
- [13] S. Agostinelli, et al.(GEANT 4 collaboration), Nucl. Instr. and Meth. A 506 (2003) 250.
- [14] D. Novković, L. Nađđerđ, M. Đurašević, I. Vukanac, A. Kandić, Z. Milošević, Nucl. Instr. and Meth. A, doi:10.1016/j.nima.2009.06.042.
- [15] D.M. Scates, J.K. Hartwell, Appl. Radiat. Isot. 63 (2005) 465.



Absolute activity measurement of ^{152}Eu sources with a single detector

T. Nemes^b, D. Mrda^a, I. Bikit^{a,*}

^a Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Trg Dositeja Obradovića 4, 21000 Novi Sad, Serbia

^b Faculty of Engineering, University of Novi Sad, Trg Dositeja Obradovića 6, 21000 Novi Sad, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 23 December 2010

Received in revised form

23 May 2011

Accepted 23 May 2011

Available online 1 June 2011

Keywords:

Gamma-ray spectrometry

Absolute activity

Sum peak method

Coincidence counting

ABSTRACT

We investigated the possibility of absolute source activity measurements by a single gamma spectrometer. The measurements were performed for three (point, cylinder and Marinelli shaped) calibrated ^{152}Eu sources. Making use of data on peak, sum-peak and total spectrum area in the single spectrum, we developed the activity determination method based on the dominant gamma cascades in the ^{152}Eu decay. We have shown that spectral data of ^{152}Eu point and Marinelli shaped source can yield activity information with uncertainty below 10%.

© 2011 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Beta-gamma coincidence counting is widely used technique for the standardization of radioactive sources due to its precision and independency for large number of radionuclides on the decay data. If decay is followed by emission of different particles, two detectors with coincidence circuit are commonly used for the measurements. However, complications appear due to non-ideal behavior of the detectors, dead time effects, decay scheme dependent difficulties, etc. [1].

Useful fact is that spectrum of cascade photon emitting source recorded by a single detector beside single peaks may also contains information on the coincidence rate due true coincidence summing (TCS). This is recognized by Brinkman et al. [2] who had shown that radioactive sources, whose decay is followed by successive emission of two photons, can be standardized using single detector. This method is known as the sum-peak method and has been reported as accurate below 2% for the standardization of a few radionuclides in a point source geometry [3–5]. Strictly, the method requires equal efficiencies across the volume of the sample, which is satisfied only for point sources. First attempts to standardize voluminous sources by the sum peak method failed because activities obtained were considerably lower than real values [6]. Nowadays, keeping in mind availability of nuclear data and attenuation coefficients, MC techniques enable very accurate calculations of corrections required for extended sources due to variation of the efficiency across the

volume of the sample and angular correlation effects [7]. However, extended source standardization by the means of the sum peak method requires large number of simulations and the complex decay nuclei standardization is reported in a few papers [8–11].

In order to simplify the method and to have it applicable to nuclei with complex decay schemes and for point and voluminous sources, we performed investigations on point and voluminous ^{152}Eu sources widely used for energy and efficiency calibration of gamma spectrometers.

2. Sum-peak counting of isotope ^{152}Eu

2.1. General treatment of decay schemes

In order to develop the sum peak method for the ^{152}Eu source we considered general decay scheme, which is presented in the Fig. 1. However, besides some limitations on the decay scheme, one has to also introduce specific experimental conditions:

- efficiency variations due to finite size of the source are negligible;
- the measurement is carried out in such arrangement that angular correlations are negligible;
- random event contributions to the peaks are negligible compared to the regular and TCS events;
- the beta particles, conversion electrons and X-rays are non detectable;
- mean life of the excited levels of daughter are much smaller than resolving time of the spectrometer;

* Corresponding author. Tel.: +381 21 459 368; fax: +381 21 459 367.
E-mail address: bikit@df.uns.ac.rs (I. Bikit).

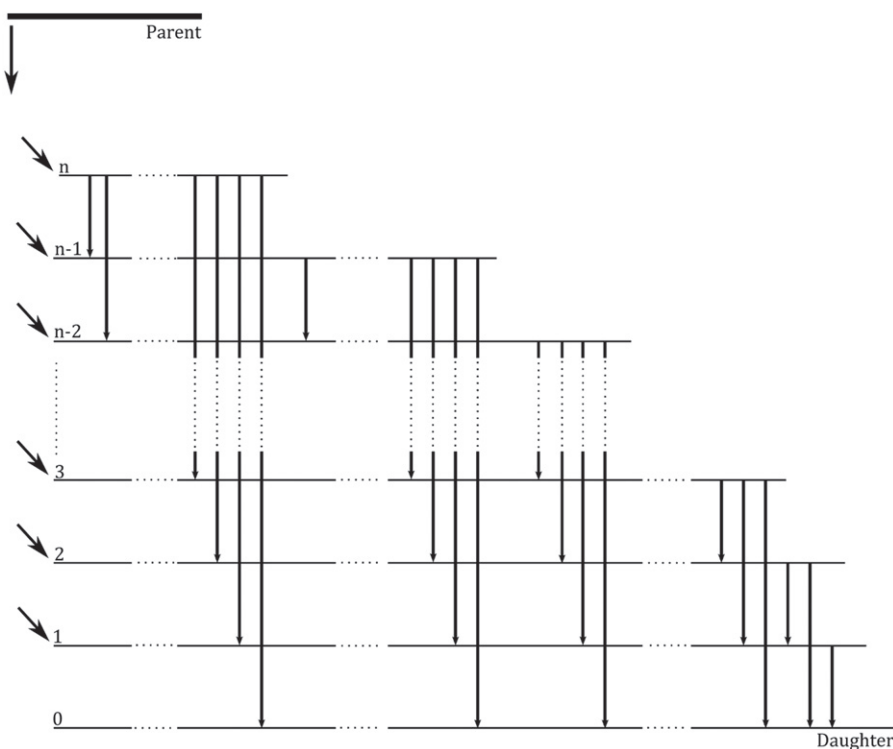


Fig. 1. General decay scheme consisting of n excited levels.

- direct decay of parent to the ground state of daughter does not exist;
- all emitted gamma photons have different energies.

According to decay scheme presented in the Fig. 1 and above assumptions, the rate at the full-energy peak at energy related to the gamma photons emitted from transition $1 \rightarrow 0$ would be:

$$N(1 \rightarrow 0) = A\tilde{\varepsilon}_{1 \rightarrow 0}(p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1}) + p_{3 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 1}) + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})(1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{2 \rightarrow 1})) \quad (1)$$

with A and p being the activity of the source and the probability for realization of pathway denoted in the subscript, respectively; $\tilde{\varepsilon}$ and $\tilde{\eta}$ are reduced full-energy peak and total efficiencies, respectively, which are defined by the relations

$$\tilde{\varepsilon}_{i \rightarrow j} = \frac{\varepsilon_{i \rightarrow j}}{1 + \alpha_{i \rightarrow j}} \quad (2)$$

and

$$\tilde{\eta}_{i \rightarrow j} = \frac{\eta_{i \rightarrow j}}{1 + \alpha_{i \rightarrow j}} \quad (3)$$

where ε and η are the full-energy peak and total efficiencies, respectively; $\alpha_{i \rightarrow j}$ is an appropriate total conversion coefficient.

Similarly the rate at the full-energy peak corresponding to the energy difference between second and first excited level of daughter can be expressed by the relation

$$N(2 \rightarrow 1) = A\tilde{\varepsilon}_{2 \rightarrow 1}(1 - \eta_{1 \rightarrow 0})(p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})) \quad (4)$$

The coincidence rate originating from the cascade $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ at energy corresponding to the energy difference between second excited and ground state is

$$N_C(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0) = A\tilde{\varepsilon}_{2 \rightarrow 1}\tilde{\varepsilon}_{1 \rightarrow 0}(p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + p_{3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \tilde{\eta}_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \tilde{\eta}_{3 \rightarrow 2})) \quad (5)$$

while the total count rate in the spectrum originating from pathways involving $1 \rightarrow 0$ transition can be expressed by

$$N_D(1 \rightarrow 0) = A(P_{1 \rightarrow 0} - ((1 - \eta_{1 \rightarrow 0})(p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \eta_{2 \rightarrow 1}) + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0}(1 - \eta_{n \rightarrow n-1}) \dots (1 - \eta_{2 \rightarrow 1}))) \quad (6)$$

where

$$P_{1 \rightarrow 0} = p_{1 \rightarrow 0} + p_{2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} + \dots + p_{n \rightarrow n-1 \rightarrow \dots \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0} \quad (7)$$

Efficiencies can be eliminated from Eqs. (1), (4)–(6), so activity can be expressed by

$$AP_{1 \rightarrow 0} = N_D(1 \rightarrow 0) + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(2 \rightarrow 1)}{N_C(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \quad (8)$$

Deduced Eq. (8) can be generalized for all transitions to the ground state of daughter

$$AP_{i \rightarrow 0} = N_D(i \rightarrow 0) + \frac{N(i \rightarrow 0)N(i+1 \rightarrow i)}{N_C(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)} \quad (9)$$

where $i = \{1, 2, 3, \dots, n-1\}$. However, the rates $N(i \rightarrow 0)$, $N(i+1 \rightarrow 0)$ and $N(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)$ in Eq. (9) originates only from pathways including cascade $i+1 \rightarrow i \rightarrow 0$. That is the main limitation to the applicability of the Eq. (9) to the spectral data obtained by a single gamma spectrometer. Nevertheless, keeping in mind the assumptions that decay of parent to the ground state of daughter does not exist, follows the condition

$$\sum_{i=1}^{n-1} P_{i \rightarrow 0} = 1. \quad (10)$$

By summation of right side of Eq. (9) against index i

$$\sum_{i=1}^{n-1} \left(N_D(i \rightarrow 0) + \frac{N(i \rightarrow 0)N(i+1 \rightarrow i)}{N_C(i+1 \rightarrow i \rightarrow 0)} \right) \quad (11)$$

one obtains activity equation in the form

$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(2 \rightarrow 1)}{N_C(2 \rightarrow 1 \rightarrow 0)} + \frac{N(3 \rightarrow 2)N(2 \rightarrow 0)}{N_C(3 \rightarrow 2 \rightarrow 0)} + \dots + \frac{N(n \rightarrow n-1)N(n-1 \rightarrow 0)}{N_C(n \rightarrow n-1 \rightarrow 0)} \quad (12)$$

where N_D corresponding to rate of detected decays (total count rate), while all other terms are the rates of none detected decays. However, the Eq. (12) is not directly applicable to the spectral data alone. For instance, the coincidence rate of $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ photons cannot be measured from the appropriate sum peak because existence of crossover of $2 \rightarrow 0$ (Fig. 1). Furthermore, the rate of $N(3 \rightarrow 2)$ originating from pathways including only transition $2 \rightarrow 0$ also cannot be measured because there are contributions from $3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ pathways. Similar considerations for other rates lead to the same conclusions. However, the decay scheme presented in the Fig. 1 is general, and introducing some simplifications are necessary if one has to apply Eq. (12). For instance, favorable situation will be if crossovers for the first excited levels do not exist (transitions: $2 \rightarrow 0, 3 \rightarrow 0 \dots n \rightarrow 0$). In such a situation one obtains $n-1$ activity equations

$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_C(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \quad (13)$$

where $i = \{2, 3, \dots, n\}$ and all rates can be observed from spectral data.

The Eq. (13) can also be directly applicable to the spectral data if we assume decay scheme including several cascades, which are crossovers for the first excited level but without summing-in contributions. Simple example is presented in the Fig. 2.

Using the formulation expressed by the Eq. (12), activity equation corresponding to the decay scheme presented in the

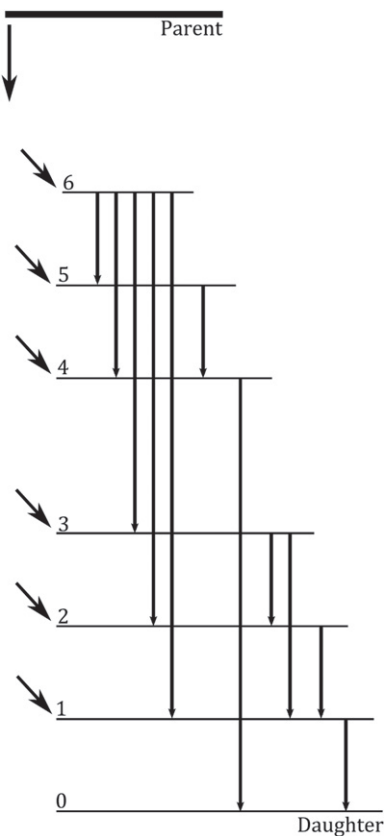


Fig. 2. Specific decay scheme, which can be solved exactly for activity.

Fig. 2 is

$$A = N_D + \frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_C(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} + \frac{N(5 \rightarrow 4)N(4 \rightarrow 0)}{N_C(5 \rightarrow 4 \rightarrow 0)} \quad (14)$$

where $i = \{2, 3\}$, and coincidence rates one has to obtain from appropriate sum peaks.

2.2. The ^{152}Eu case

The ^{152}Eu disintegrates by electron capture to ^{152}Sm and by beta minus emission to ^{152}Gd . Further analysis is based on the decay scheme and nuclear data of ^{152}Eu from Ref. [12].

If one introduces the approximation that all decays of ^{152}Eu go via pathways including $1 \rightarrow 0$ and $9 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm and $1 \rightarrow 0$ of ^{152}Gd , this means

$$p_{1 \rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) + p_{9 \rightarrow 0}^{\text{Sm}}(\gamma + ce) + p_{1 \rightarrow 0}^{\text{Gd}}(\gamma + ce) = 0.993(12) \approx 1 \quad (15)$$

where $p_{n,0}^X(\gamma + ce)$ are the appropriate transition probabilities (photon emission+conversion electron emission), one obtains activity equation

$$A = N_D + \left(\frac{N(1 \rightarrow 0)N(i \rightarrow 1)}{N_C(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{N(9 \rightarrow 0)N(j \rightarrow 0)}{N_C(j \rightarrow 9 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{N(1 \rightarrow 0)N(k \rightarrow 1)}{N_C(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)} \right)_{\text{Gd}} \quad (16)$$

where i, j and k must be selected according to limitations, which can be best considered from Fig. 2 and decay scheme of ^{152}Eu [12]. By the analysis of the transition probabilities, gamma photon energies and the decay scheme included in the Ref. [12], index i might have values: 2, 7, 8, 10, 12, 13, 14 and 16. However, considerations of the gamma intensities and photon energies imply that indices 2 and 10 are related to the rates at the full-energy peaks, which can be observed from spectral data without corrections above 0.1%. On the other hand, while index j might have values of 13 and 16, the only choice is 16, because peak at 1529.8 keV is overlapped with peak of 1528.1 keV. Finally, index k might have three values: 3, 7 and 11. First, second and fourth term in Eq. (16) can be determined from spectral data alone. Third term may require some corrections. The rates at the full-energy peaks at 1085.8, 564 and 1649.8 keV also arises from pathways including $1 \rightarrow 0$ transition of ^{152}Sm . Therefore, we calculated correction for third term in Eq. (16) making use the point source efficiency curve for the coaxial detector. Our calculations showed that appropriate correction is between 0.95 and 1.05, which depends on the source-to-detector distance. However, keeping in mind the transition probability of $9 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm , which is equal to 10.15%, follows that the correction applied to the third term in Eq. (16) will refine activity value within $\sim 0.5\%$. On the other hand, the sum peak at 1649.8 keV is overlapped with nearby peaks so peak area can be determined within 10% accuracy (Fig. 3).

Assuming approximation expressed by Eq. (15) and uncertainties of the transition probabilities follows the lowest theoretical limit of method accuracy of about 1.5%, and also that usage of three different sum-peaks in the spectrum of ^{152}Eu is necessary. However, additional difficulties arising due to efficiency variations across a sample, random summations and angular correlations will be discussed in the following sections.

3. Extended source problem

For the clarity sakes, we will consider simple two step gamma-cascade emitting radionuclide with negligible angular correlation effects. Here we also assume that activity is uniformly distributed across the volume of a sample. If we divide the source into n

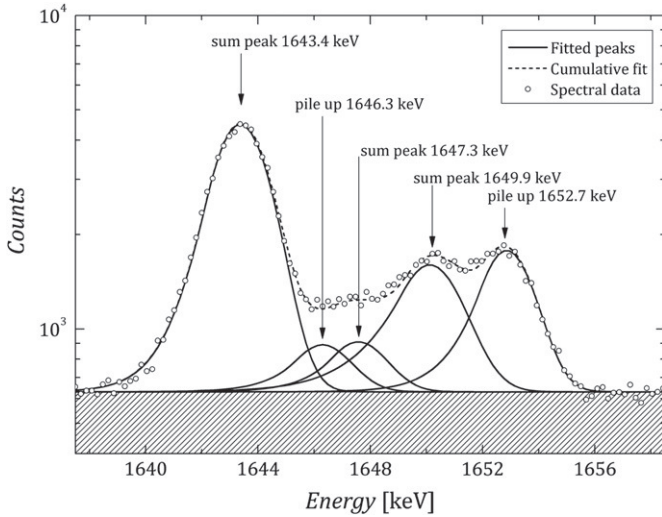


Fig. 3. Region of interest for the sum peak of 1649.8 keV. Sum peak at 1647.3 keV originating from cascade $19 \rightarrow 5 \rightarrow 1$ is also presented. The spectrum was observed using 35% HPGe coaxial detector by placing the point ^{152}Eu source along the detector axis at the distance from endcap of 32 mm.

elementary point sources with equal activities, it follows the sum peak equation for the activity of elementary source

$$a = A/n = N_D^i + \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i} \quad (17)$$

where N_1^i, N_2^i are peak rates originating from elementary source and N_Σ^i is their sum peak. N_D^i is the total count rate originating also from elementary source. By summation of activities corresponding to each elementary source, overall activity of extended source is

$$A = N_D + \sum_{i=1}^n \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i} \quad (18)$$

However, the spectral data are integral so it is possible only to obtain overall rates, which can be expressed by the contribution from each elementary source

$$N_1 = \sum_{i=1}^n N_1^i, \quad N_2 = \sum_{i=1}^n N_2^i \quad \text{and} \quad N_\Sigma = \sum_{i=1}^n N_\Sigma^i \quad (19)$$

and unequal efficiencies across the volume of sample imply

$$\sum_{i=1}^n \frac{N_1^i N_2^i}{N_\Sigma^i} \neq \frac{\sum_{i=1}^n N_1^i \sum_{i=1}^n N_2^i}{\sum_{i=1}^n N_\Sigma^i} \quad (20)$$

which means, in general, that exact activity equation for extended sources expressed by observable rates does not exist. However, if one suppose that for given extended source one of the following conditions can be fulfilled

$$\frac{N_1^i}{N_\Sigma^i} = \text{const.} \quad \text{or} \quad \frac{N_2^i}{N_\Sigma^i} = \text{const.} \quad (21)$$

inequality in Eq. (20) can be replaced by equality. That means the activity of extended source is measurable by equation

$$A = N_D + \frac{N_1 N_2}{N_\Sigma} \quad (22)$$

where N_1, N_2 and N_Σ are overall rates from spectral data and N_D is total count rate of extended source.

Explicit equation for the one peak rate, by assuming negligible angular correlations, corresponding to simple two step cascade

emitting elementary source is

$$N_1^i = a \varepsilon_1^i (1 - \eta_2^i) \quad (23)$$

while the sum peak rate is

$$N_\Sigma^i = a \varepsilon_1^i \varepsilon_2^i \quad (24)$$

where $\varepsilon_1^i, \varepsilon_2^i$ and η_2^i denotes the full-energy peak and total efficiencies for the first and the second gamma ray emitted in the cascade. It follows the peak to sum-peak rate for elementary source

$$\frac{N_1^i}{N_\Sigma^i} = \frac{1 - \eta_2^i}{\varepsilon_2^i} \quad (25)$$

From the above discussion, and also considering Eqs. (20) and (25), it can be concluded that larger efficiency variations across the volume of the sample will cause larger discrepancies of activities if Eq. (22) is used for activity measurement.

4. Angular correlations of ^{152}Eu

While the angular correlations of ^{152}Eu can be avoided in efficiency calculations [13] in presence of TCS, activity measurements by the sum-peak method may require calculation of effective angular correlations [3] what depends on the experimental arrangement. The effective angular correlation term in the sum peak activity equation for a simple two step cascade source can appear as a multiplying factor. This can be generalized to the sum-peak method of complex decay scheme consisting of n two step cascades and also by assuming finite size of the source. If we suppose that emissions of X-rays followed by internal conversion or electron capture cannot be detected, making use similar treatment of scheme decomposition described in Section 2, it can be shown that sum-peak activity equation for extended source consisting of n two step non interfering gamma cascades without crossovers and with non negligible angular correlations, can be expressed in the form

$$A = \sum_{i=1}^n \sum_k \left(\frac{N_1^{ik} N_2^{ik}}{N_\Sigma^{ik}} + N_D^{ik} \right) w_{ik} \quad (26)$$

where i indicates summation over each fictive source, while k denotes summation across the volume of the extended sample. N_1^{ik} and N_2^{ik} are the peak rates and N_Σ^{ik} denotes appropriate sum-peak rate originating from elementary source. N_D^{ik} is total count rate originating from particular cascade at certain position; w_{ik} is the effective angular correlation term corresponding to appropriate gamma cascade and elementary source. In the case of ^{152}Eu , the main problem appears due to fact that the cascades selected for measurement (Section 2) can originate from pathways consisting of more than two gamma emissions. However, if we consider the full decay scheme of ^{152}Eu and appropriate pathway probabilities our calculation has shown that 9.2% of $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, 96.7% of $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ and 100% of $16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ transitions of ^{152}Sm are two step emissions. Furthermore, 39% of $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, 99.5% of $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ and 98.3% of $11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ transitions of ^{152}Gd also are also two step emissions. However, by increasing the distance of source from detector, the probability for non detection of photons emitted simultaneously with two step cascades will be closer to unity, and the sum peak rate originating from triple cascades will be negligible. This implies that accuracy of twofold cascades angular correlation theory will increase by increasing the source distance from detector.

Calculations of effective angular correlation function necessitate theoretical calculations of efficiency for all possible incident angles for certain energy of the gamma ray [14,15] due to finite detector size. The function of relative efficiency versus incident

angle for a given energy can be obtained by MC technique or first interaction model. The first interaction model is very simple but capable to yield relative efficiencies required for the angular correlation calculation differing from MC results for less than 1% [16]. Therefore, keeping in mind simplicity, we used the first interaction model to estimate effective angular correlation corrections corresponding to each gamma cascade used for activity measurement of ^{152}Eu source.

In our experiments, point sources were placed along the detector axis (Fig. 4). Hence, we determined the efficiency functions within indicated domains and boundary of integrations using detector data supplied by manufacturer. Taking into account only total attenuation coefficients for germanium from NIST database and germanium density of 5.323 g/cm^3 , we obtained the relative efficiency curves versus incident angle for all relevant energies. Typical shape of the efficiency curve versus incident angle of the gamma ray is also presented in the Fig. 4.

The angular correlation function for a particular cascade transition needs determination of angular correlation coefficients. These can be calculated making use of data on the spin of the levels, multipolarity of transitions, mixing ratios for particular transition and tabular data of F -coefficients [15]. De excitations of $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Gd) and $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Sm) consist of pure E2 transitions, therefore the angular correlation

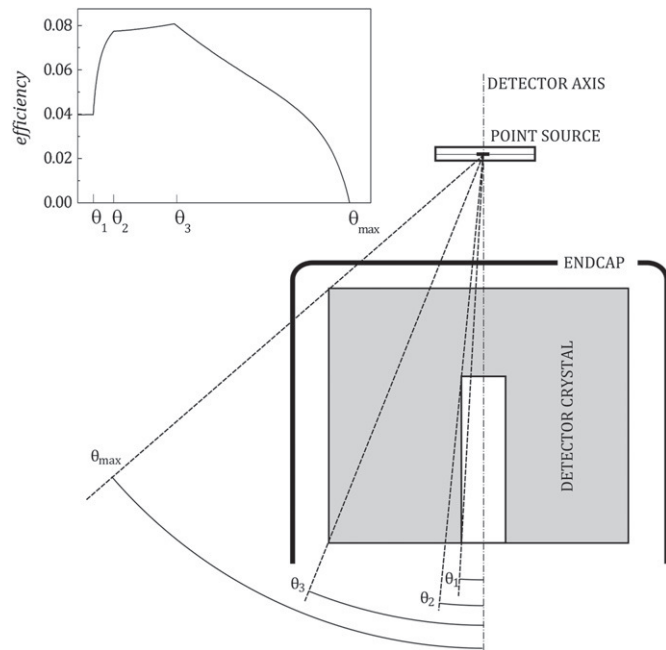


Fig. 4. Detector–point source geometry. Indicated angles represent the different domains of efficiency functions and integration boundaries used for calculation of effective angular correlation corrections for ^{152}Eu gamma cascades. Typical shape of the efficiency function versus incident angle is also presented.

Table 1
Angular correlation coefficients.

Transition	Cascade	Mixing ratio δ	A_{22}	A_{44}
$2 \rightarrow E2_1 \rightarrow E2_0(\text{Sm})$	$4(2)2(2)0$	0	0.1020	0.0091
$3 \rightarrow E2_1 \rightarrow E2_0(\text{Gd})$	$4(2)2(2)0$	0	0.1020	0.0091
$7 \rightarrow E1 + M2_1 \rightarrow E2_0(\text{Gd})$	$3(1)2(2)0$	0.002 ± 6	-0.073 ± 5	$ A_{44} < 10^{-5}$
$11 \rightarrow M1 + E2_1 \rightarrow E2_0(\text{Gd})$	$3(1)2(2)0$	$+29^{+40}_{-11}$	-0.231 ± 16	-0.0816^{+17}_{-22}
$10 \rightarrow M1 + E2_1 \rightarrow E2_0(\text{Sm})$	$3(1)2(2)0$	$-8.7(6)$	-0.114^{+7}_{-6}	-0.0806^{+21}_{-16}
$16 \rightarrow E1 + M2_9 \rightarrow E2_0(\text{Sm})$	$2(1)2(2)0$	$+0.07^{+11}_{-9}$	0.30^{+7}_{-6}	0.0016^{+90}_{-15}

Akk are the angular correlation coefficients with normalization $A_{00}=1$. Mixing ratios are taken from Ref. [17]. Uncertainties of coefficients are calculated by considering uncertainties of the mixing ratios.

coefficients are determined very accurately. On the other hand, other cascades consist of mixed transitions and angular correlation coefficients strongly depend to the mixing ratios. Accordingly, the angular correlation coefficients we calculated using tabular data for F -coefficients and taking into account mixing ratios from Ref. [17] with associated uncertainties. The calculated values of angular correlation coefficients are presented in the Table 1.

The details of the calculations of effective angular correlations for single detector experiment and point source geometry are given in Refs. [13,16]. The same procedure using the first interaction model and the angular correlation coefficients (Table 1) leads to the effective angular correlation curve as the function of the source-to-detector distance for the ^{152}Eu cascades were used (Fig. 5).

5. Random coincidences in the ^{152}Eu spectral data

Measurements at high counting rate affect the spectrum quality so difficulties may appear due to distorted peak shapes [18]. However, DSP spectroscopy units coupled with resistive

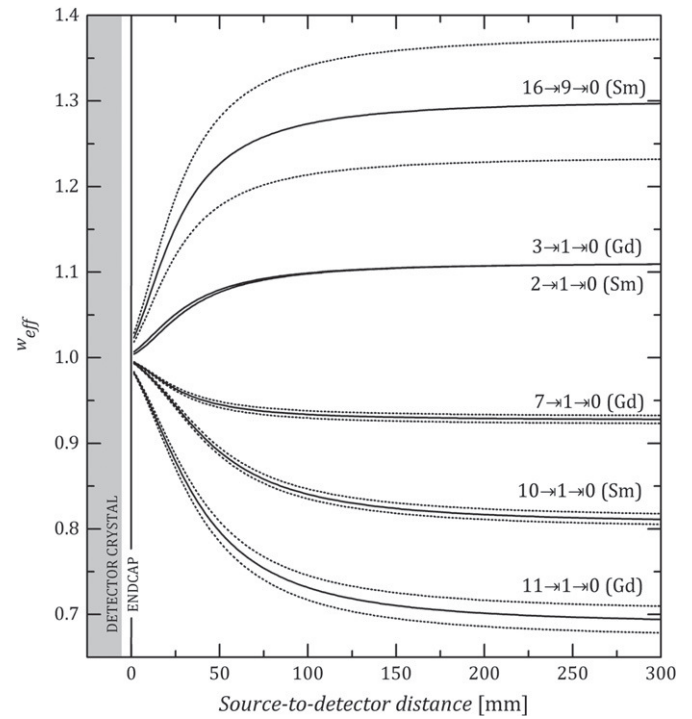


Fig. 5. Effective angular correlation correction curves of point sources versus source to detector distance correspond to different gamma cascades followed by decay of ^{152}Eu source. The plots are obtained using first interaction model and numerical integrations. Dotted lines represent the upper and lower limits of effective angular correlations caused by uncertainty of the mixing ratios.

feedback preamplifier enables accurate live time corrections in the wide range of count rates [19] and ensure better peak shapes. Scates and Hartwell [19] demonstrated accuracy of LTC circuit of same spectroscopy unit we used and showed that errors of peak rates of ^{152}Eu source do not exceed 5% up to input rates of 255 kHz. However the problem of peak pile up losses, random peak contributions and also possible interfering of nearby peaks remains, because there is a minimal time interval within two separated events, which cannot be resolved. The crucial data for the method described here are the sum-peak rates originating from true coincidences, so it is necessary to distinguish true coincidence data from random coincidence contributions. However, peak pile up losses accepted somewhere in spectrum continuum are also possible, and peak area corrections are required. The goal of our method is to deduce activity only from spectral data. In such a manner, existences of pile-up peaks (which do not have true coincidence contributions) is an advantage and enables one to deduce effective resolving time [20], which can be used for estimation of the random corrections. In the case of ^{152}Eu we have found that well defined pile-up peak in the spectrum of ^{152}Eu is at 1752.3 keV. It appears due to full detection of 344.3 keV photon emitted from ^{152}Gd and 1408 keV photon from ^{152}Sm . Since these photons originate from different daughter nuclei, and single photon or cascade photon emission at this energy do not exist, it is clear that the peak at 1752.3 keV is a pile up peak. According to our previous papers [5,10], similar analysis of spectral data and decay scheme of ^{152}Eu leads to formula for effective resolving time

$$2\tau = \frac{1}{N_D} \left(1 + \frac{N(344.3)N(1408)}{2N_D N(1752.3)} \left(1 - \sqrt{\frac{4N_D N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} + 1} \right) \right) \quad (27)$$

where N denotes uncorrected peak areas, while the number in the parenthesis correspond to the peak energies.

$$N_C(E_1 + E_2) = 2(2\tau)N'(E_1)N'(E_2) \quad (28)$$

where $N'(E_1)$ and $N'(E_2)$ being corrected rates for pile up losses.

Using the effective resolving time obtained by Eq. (27) and random contribution expressed by Eq. (28), pile up gain to the areas of the sum peaks can be estimated from

$$N_C(E_1 + E_2) = \frac{N(1752.3)N(E_1)N(E_2)}{N(344.3)N(1408)} \quad (29)$$

where N denotes observed count rates at the full-energy peak at energy denoted in the parenthesis.

From the above discussion, it follows that simple pile up gain correction to the sum peaks can be estimated making use of one pile up peak and appropriate single peaks of ^{152}Eu source. It is also obvious that Eq. (29) is independent of accuracy of live time correction, but more with assumption that spectral data satisfy Poisson statistical behavior.

At higher rates there is probability that two uncorrelated events can be detected within the effective resolving time of the spectrometer, which could produce loss in the full-energy peak. The pile up losses from peaks appearing somewhere in spectrum continuum can be estimated from spectral data making use of effective resolving time (Eq. 27) and total spectrum area

$$L_c \simeq 1 - 2\tau N_D. \quad (30)$$

However, while it is expected that corrections described will refine results of measurements, keeping also in mind large number of gamma lines in the case of ^{152}Eu and existence of large peaks tailing, overlapping with nearby peaks remain as the problem at higher rates.

6. Activity equations

6.1. Absolute activity equations

Deduced Eq. (16) for absolute activity measurements of ^{152}Eu source are limited since not include any pile up and angular correlation correction terms. According to our considerations of random events in the previous section, pile corrections can be simply incorporated into activity equation. Additionally, the angular correlation corrections terms also can be added into basic Eq. (16) if we suppose that:

- sum peaks are created due to detection only from twofold cascades;
- effective angular correlation correction terms are significant only for the sum peak rates while not for regular peaks and total count rates;
- summations with X-rays is negligible;
- the efficiencies and angular correlation are the same across the volume of the sample.

Now, making use assumptions above and if we collect all considerations described in previous sections, it can be shown that absolute activity measurements of ^{152}Eu source can be calculated using following equation:

$$A = N_D + \left(\frac{w_{\text{eff}}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{\frac{N_C(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(121.8)N(i \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{w_{\text{eff}}(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0)}{\frac{N_C(1649.8)}{N(564)N(1085.8)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{\text{Sm}} + \left(\frac{w_{\text{eff}}(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{\frac{N_C(k \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(344.3)N(k \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)}} \right)_{\text{Gd}} \quad (31)$$

where N is observed rate at the full-energy peak at energy denoted in the parenthesis with indices selection discussed in the Section 2; w_{eff} denotes effective angular correlation term at certain point source position for indicated cascade, N_D is total count rate and L_c is factor for pile up loss correction calculated by Eqs. (27) and (30). Derived Eq. (31) adopted for absolute activity measurements necessitate determination of areas of six regular peaks, three sum peaks and total spectrum area and also establishment of effective angular correlation corrections for the particular setup. Additionally, pile up corrections need observation of pile up peak at 1752.3 keV and one more regular peak at 1408 keV. However problem remains with deducing reliable peak rates. At higher rates uncertainty can be expanded due to interfering relevant peaks with pile up events.

6.2. Direct activity equations

While the problems of deducing total count rates originating from fictive sources and elimination of total transition probabilities are exceeded by summation of three terms corresponding to non detected decays, third term in Eq. (31) introduce the highest uncertainty, because sum peak at 1649.8 keV is created from different two step cascade emissions with different angular correlation function. Also this sum peak has the lowest statistics.

Different cascades will introduce different uncertainties in the method. Therefore, it is desirable to make the method applicable by the means of one well defined sum peak and appropriate cascade. If we take that probabilities of transitions to the ground state of ^{152}Eu source are known quantities, direct activity measurement by the means of one cascade is possible. For instance, if we replace the appropriate cascade peak rates in Eq. (7) and

introduce approximation that total count rate in the spectra originating from pathways includes only transitions $i \rightarrow 0$

$$N_D(i \rightarrow 0) \simeq N_D P_{i \rightarrow 0} \quad (32)$$

where N_D is total count rate, follows one activity equation without efficiencies

$$A = N_D + \frac{N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow i \rightarrow 0)w_{eff}(j \rightarrow i \rightarrow 0)}{P_{i \rightarrow 0}(N(j \rightarrow i \rightarrow 0) - 2(2\tau)N(i \rightarrow 0)N(j \rightarrow i))L_\tau}. \quad (33)$$

Governing with the same principle, assuming that numerical values of total transition probabilities for 121.8 keV line, 1085.8 and 344.3 keV line are known quantities (Ref. [12]), and using approximation that total counts originating from particular pathways are given by product of total count rate observed multiplied by appropriate total transition probability, equations for direct activity measurements follows

$$A = N_D + \frac{w_{eff}(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{p_{1 \rightarrow 0}^{Sm}(\gamma + ce) \left(\frac{N(i \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(121.8)N(i \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_\tau} \quad (34)$$

$$A = N_D + \frac{w_{eff}^{Gd}(j \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{p_{1 \rightarrow 0}^{Gd}(\gamma + ce) \left(\frac{N(j \rightarrow 1 \rightarrow 0)}{N(344.3)N(j \rightarrow 1)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_\tau} \quad (35)$$

$$A = N_D + \frac{w_{eff}^{Sm}(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0)}{p_{9 \rightarrow 0}^{Sm}(\gamma + ce) \left(\frac{N(16 \rightarrow 9 \rightarrow 0)}{N(1085.9)N(16 \rightarrow 9)} - \frac{N(1752.3)}{N(344.3)N(1408)} \right) L_\tau} \quad (36)$$

where $i=\{2,10\}$, and $j=\{3, 7, 11\}$, N_D is observable total count rate, w_{eff} is effective angular correlation term for appropriate cascade, $p(\gamma + ce)$ is total transition probability for indicated transition in the subscript, N is rate at the full-energy peak at energy denoted in the parenthesis and L_τ is factor for peak pile up loss correction. The accuracy of deduced equations depends on the source to detector distance. If the point source is placed farther from detector, approximation of total count rate is better since detected decays will be a lower fraction of activity. Effective angular correlations will be also more reliable since the sum peaks will be created mostly from twofold cascade photon events. Furthermore, determination of effective angular correlation curve is less dependent on detector efficiencies if the source is placed farther from detector. On the other hand, drawback of low statistics remains because the sum peak rate will decrease by increasing the distance from detector.

7. Activity measurements

The activity measurements of three calibrated sources of ^{152}Eu are carried out: one point source at different dates and two uniformly distributed sources in a cylindrical bottle (500 mL) and standard Marinelli beaker (450 mL). The measurements are performed using the coaxial HPGe detector with the relative efficiency of 35%. The portable workstation Inspector 2000 is used for digital processing of signals, which is controlled by PC with installed Genie 2000 software package (Fig. 6).

Measurement geometries are presented in the Fig. 6. Three measurements are carried out for one point source at different dates and at different distance from the endcap along the detector axis. Voluminous sources, cylindrical bottle and Marinelli, also are placed on the endcap of detector and one measurement is carried out for each source. Pile-up rejection/live time corrector circuit was turned on to preserve better accuracy of deduced peak rates.

The peak areas are deduced using Genie 2000 software package and interactive peak fit analysis for single and multiple peaks. While the all peak areas of interest were observed using standard fitting procedure including peak width and tailing calibrations, the net peak area of 1112.1 keV was corrected by multiplying factor of 0.986, which follows from gamma photon probabilities, because overlapping with 1109.2 keV line for point source spectral data. Total counts are obtained by integrating whole spectrum from LLD to the high energy cut off. The measurement times, dead times, spectrum range and relevant peak areas obtained by fitting procedures are summarized in the Table 2.

However, while the peak shapes are much better with pile-up rejection, existence of pile up peaks are indication of peak pile up losses and possible random peak contributions. Clearly visible pile-up peaks appear at the point source spectra. On the other hand, our analysis on the spectral data of the cylindrical bottle and Marinelli beaker spectra of ^{152}Eu sources has shown that pile-up events are almost negligible in comparison to true events.

The results of absolute measurements are summarized in Table 4. All the activity values for point sources are obtained making use Eq. (31). Next to each count rate of non detected decays appropriate angular correlation term is presented. In the absence of angular correlations, all rates of non detected decays from ^{152}Gd will be the same. However, this is not real situation so using effective angular correlations yield overall corrections to the results of activities within 5% for the measurements performed at 30 and 32 mm distance from endcap. Angular correlation corrections applied to activity measurements for the source placed on the endcap of the detector do not change results within 1%.

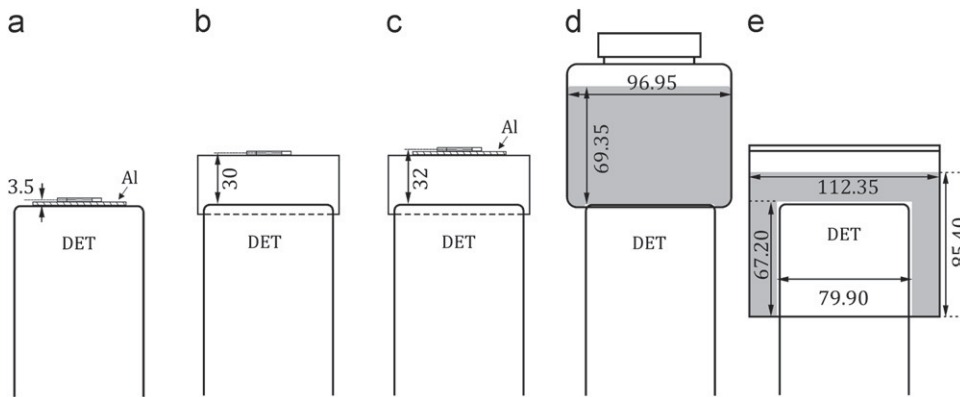


Fig. 6. Measurement geometries of ^{152}Eu sources: (a) point source at the aluminum absorber of thickness of 2 mm, (b) point source at 30 mm from detector endcap, (c) point source at 32 mm from detector endcap with aluminum absorber of 2 mm thickness between them, (d) cylindrical source and (e) Marinelli beaker source. Gray color represents the matrix of ^{152}Eu source.

Table 2
Spectral data of ^{152}Eu sources.

	Point sources			Voluminous sources		
	Distance from endcap			Shape		
	3.5 mm	30 mm	32 mm	Cylindrical	Marinelli	
Spectrum range [keV]	18.3–3140.6			9.3–3142.5		
Live time [s]	13633.340	3600.560	44391.970	75748.820	9537.280	
Dead time [%]	81.39	51.82	43.35	5.75	10.86	
Transition	Peak energy [keV]	Net peak areas				
(1→0) Sm	121.78	$1.40(5) \times 10^8$	$1.75(3) \times 10^7$	$1.66(2) \times 10^8$	$1.688(10) \times 10^7$	$4.830(5) \times 10^6$
(2→1) Sm	244.70	$2.35(3) \times 10^7$	$2.93(3) \times 10^6$	$2.90(3) \times 10^7$	$3.309(5) \times 10^6$	$9.384(23) \times 10^5$
(1→0) Gd	344.28	$7.44(20) \times 10^7$	$8.28(8) \times 10^6$	$8.14(7) \times 10^7$	$1.010(3) \times 10^7$	$2.915(3) \times 10^6$
(2→1→0) Sm	366.48	*	*	*	$8.48(6) \times 10^4$	$3.38(13) \times 10^4$
(3→1) Gd	411.12	$4.20(9) \times 10^6$	$5.47(5) \times 10^5$	$5.50(5) \times 10^6$	$8.50(9) \times 10^4$	$1.898(13) \times 10^5$
(16→9) Sm	563.99	$9.20(28) \times 10^5$	$9.94(20) \times 10^4$	$9.87(5) \times 10^5$	$1.255(6) \times 10^5$	$3.56(11) \times 10^4$
(3→1→0) Sm	755.40	$5.1(5) \times 10^5$	$1.9(4) \times 10^4$	$1.6(3) \times 10^5$	$2.37(5) \times 10^4$	$9.29(26) \times 10^3$
(7→1) Gd	778.90	$1.68(3) \times 10^7$	$1.91(3) \times 10^6$	$1.947(10) \times 10^7$	$2.654(3) \times 10^6$	$7.273(18) \times 10^5$
(9→0) Sm	1085.84	$1.396(20) \times 10^7$	$1.266(10) \times 10^6$	$1.272(5) \times 10^7$	$1.808(3) \times 10^6$	$5.062(15) \times 10^5$
(11→1) Gd	1089.74	$2.00(5) \times 10^6$	$2.25(8) \times 10^5$	$2.17(7) \times 10^6$	$2.948(7) \times 10^5$	$8.04(4) \times 10^4$
(10→1) Sm	1112.08	$1.45(3) \times 10^7$	$1.518(20) \times 10^6$	$1.557(14) \times 10^7$	$2.225(5) \times 10^6$	$5.976(25) \times 10^5$
(7→1→0) Gd	1123.18	$1.72(10) \times 10^6$	$6.05(18) \times 10^4$	$4.73(9) \times 10^5$	$7.46(3) \times 10^4$	$3.07(8) \times 10^4$
(10→1→0) Sm	1233.87	$1.44(4) \times 10^6$	$4.95(10) \times 10^4$	$3.70(4) \times 10^5$	$4.71(11) \times 10^4$	$1.89(6) \times 10^4$
(13→1) Sm	1407.95	$1.80(4) \times 10^7$	$1.87(3) \times 10^6$	$1.96(3) \times 10^7$	$2.870(3) \times 10^6$	$7.710(14) \times 10^5$
(11→1→0) Gd	1434.03	$1.79(5) \times 10^5$	$6.3(3) \times 10^3$	$4.48(8) \times 10^4$	$7.4(3) \times 10^3$	$3.34(18) \times 10^3$
(16→9→0) Sm	1649.91	$5.8(5) \times 10^4$	$1.8(4) \times 10^3$	$1.341(20) \times 10^4$	$1.45(5) \times 10^3$	$5.7(4) \times 10^2$
(1→0)Gd+(13→1) Sm	1752.23	$1.14(3) \times 10^5$	$4.69(23) \times 10^3$	$3.90(6) \times 10^4$	$3.2(4) \times 10^2$	$1.84(20) \times 10^2$
All	Total spectrum area	$1.191(19) \times 10^9$	$1.381(14) \times 10^8$	$1.320(13) \times 10^9$	$2.286(23) \times 10^8$	$5.65(6) \times 10^7$

Errors of peak areas are quoted at level of confidence of 68.3%.

* Could not be determined because large peak widths.

Calculations of effective angular correlation corrections for extended sources with dimensions of the same order of magnitude as sensitive volume of detector are rather tedious. To estimate uncertainty due to variation of efficiencies and angular correlations, we applied Eq. (31) to the voluminous source spectral data without correction term of angular correlations. However, surprisingly good results (deviations less than 4% from reference values) of final activities are obtained for Marinelli beaker while not for cylindrical bottle source.

Discrepancies between mean activities and the reference activities do not exceed 10% for point and Marinelli shaped source when spectral data are recorded up to $\sim 50\%$ dead time. The largest discrepancies for point source measurements are obtained at counting rate of $89 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$. Thus we may conclude that large pile up events and spectral distortions can make Eq. (31) inadequate for measurements and imply limitation of method by the means of the count rates. However, the remaining two point source measurements, still with large dead times, yield good activity values. By considering also gamma intensities and a good shape of the peaks corresponding to transitions $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ and $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Gd imply that these are the best choice for absolute activity measurements while $16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm is the only option. The cascade $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm was omitted for point source measurements. The reason for this is that the peak areas of 366.5 keV line were not resolvable from 367.8 keV line due to larger distortion and width of the peaks of point source spectra.

The Eqs. (34)–(36) for direct activity measurement can be also tested on the same observed data (Table 2) if one uses numerical values of total transition probabilities [12] and calculated effective angular correlation terms (Table 3). The results are summarized in Table 4.

The results of direct activity measurements exhibit that the cascades $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm and $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Gd yield the best

results for point sources as well as for Marinelli shaped source, but still with large uncertainty, up to 16%.

8. Uncertainties of the method

The main uncertainty component of the method follows from the accuracy of peak area determinations, which vary from 1% to 20% for point source spectral data. The uncertainty of peak areas are estimated by variation of the integration boundaries because of the centroid instability of about $\pm 1 \text{ keV}$ at higher rates and using different continuum and fitting options. While the statistical error below 1% can be easily obtained even for the sum peaks, pile-up events and overlapping with nearby peaks introduce additional errors. However, since these uncertainties appear only as a fraction in the Eq. (31), overall uncertainties originating from peak area de convolutions don't exceed 5% to point source absolute measurements. On the other hand, lower count rates for voluminous sources enabled more reliable peak areas and overall uncertainty component from peaks fit data do not exceed 3%.

Uncertainties of angular correlations are taken into account for point sources making use data of errors of mixing ratios and adding 1% error, which follows from possible discrepancies between first interaction model and MC simulations [16]. Furthermore, errors due to presence of angular correlations of higher order are incorporated into the basic Eq. (31), especially when $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ and $11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Sm , and $3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ of ^{152}Gd cascades are used for measurements. For voluminous sources, the angular correlations are not taken into account, and beside efficiency variations across the volume of the sample variations of the angular correlations also introduce additional errors. However, while the uncertainty evaluation for voluminous sources is incomplete, existence of results within limits of error

Table 3
Measured absolute activities of different ^{152}Eu sources.

Sum-peak [keV]	Point source Distance from endcap						Voluminous sources Shape	
	3.5 mm		30 mm		32 mm		Cylindrical	Marinelli
	N_{ND}^i [10^3 s^{-1}]	w_{eff}	N_{ND}^i [10^3 s^{-1}]	w_{eff}	N_{ND}^i [10^3 s^{-1}]	w_{eff}	N_{ND}^i [10^3 s^{-1}]	N_{ND}^i [10^3 s^{-1}]
366.5	*	*	*	*	*	*	8.67(27)	14.2(5)
1233.9	124(7)	0.990(10)	182(6)	0.932(10)	194(4)	0.927(10)	10.58(25)	16.2(5)
1649.9	17.3(16)	1.034(12)	20(4)	1.17(4)	21.9(4)	1.18(5)	2.07(7)	3.31(25)
755.4	50(5)	1.010(10)	73(16)	1.059(11)	69(14)	1.061(11)	4.81(18)	6.29(18)
1123.2	60(4)	0.992(10)	80(3)	0.959(10)	83.5(19)	0.957(10)	4.77(14)	7.23(19)
1434	69(4)	0.975(10)	92(6)	0.858(13)	100(4)	0.851(13)	5.34(27)	7.4(4)
N_D [10^3 s^{-1}]	87.4(9)		38.3(4)		29.7(3)		3.02(3)	5.93(6)
L_τ	0.9542(23)		0.9804(10)		0.9859(7)		~1	~1
Measured activities by Eq. (30)								
	[10^5 Bq]		[10^5 Bq]		[10^5 Bq]		[10^4 Bq]	[10^4 Bq]
366.5, 1649.9, 755.4	*	*	*	*	*	*	1.86(20)	3.0(3)
121.8, 1649.9, 755.4	2.8(4)		3.1(4)		3.1(4)		2.05(22)	3.2(3)
366.5, 1649.9, 1123	*	*	*	*	*	*	1.85(20)	3.1(3)
121.8, 1649.9, 1123	2.9(5)		3.1(4)		3.2(4)		2.04(22)	3.3(4)
366.5, 1649.9, 1434	*	*	*	*	*	*	1.91(21)	3.1(3)
121.8, 1649.9, 1434	3.0(5)		3.1(4)		3.2(4)		2.10(23)	3.3(4)
Mean Activity	2.9(3)		3.10(21)		3.15(21)		1.96(9)	3.13(14)
Reference activity	3.14(5)		3.17(5)		3.14(5)		3.35(17)	3.22(16)
A/A_0	0.91(9)		0.98(7)		1.0(7)		0.59(5)	0.97(5)

The symbols used in the table are the same as in the text; A/A_0 denotes mean experimental to reference source activity ratio. The uncertainties of non detected decays (NND) are reported by only taking into account peak area determination error at level of confidence of 68.3%.

* Non detected decays and activities are not calculated because relevant peaks were not resolvable due to larger widths caused by high count rate. The errors of activities of certain cascades are calculated taking into account all uncertainty contributions described in Section 8 at level of confidence of 95.45%, while the errors of weighted mean activities are calculated as statistical errors of mean values.

Table 4
Results of direct activity measurements of ^{152}Eu source.

Cascade	Point sources			Voluminous sources	
	3.5 mm	30 mm	32 mm	Cylindrical	Marinelli
	Measured Activity				
	[10^5 Bq]	[10^5 Bq]	[10^5 Bq]	[10^4 Bq]	[10^4 Bq]
$2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Sm)-Eq. (34)	*	*	*	1.71(21)	2.9(4)
$10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Sm)-Eq. (34)	2.9(5)	3.1(4)	3.2(4)	2.02(23)	3.2(4)
$3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Gd)-Eq. (35)	2.7(6)	3.0(14)	2.9(14)	2.04(26)	2.9(3)
$7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Gd)-Eq. (35)	3.0(5)	3.2(4)	3.2(4)	2.03(24)	3.2(4)
$11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ (Gd)-Eq. (35)	3.3(5)	3.2(5)	3.4(5)	2.2(3)	3.3(5)
$16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ (Sm)-Eq. (36)	2.6(6)	2.7(11)	2.8(4)	2.34(28)	3.9(7)
Mean activity	2.95(23)	3.1(4)	3.1(3)	2.01(11)	3.11(19)
Ref activity	3.14(5)	3.17(5)	3.14(5)	3.35(17)	3.22(16)
A/A_0	0.94(8)	0.99(12)	1.00(10)	0.60(5)	0.97(6)

All errors are quoted at confidence level of 95.45% taking into account uncertainties described in Section 8.

* Activities are not calculated because relevant sum peaks were not resolvable due to larger widths caused by high count rate. The mean values are reported as weighted mean.

of reference activity values for Marinelli shaped source exhibit that calculated uncertainty is realistic.

Uncertainties of transition probabilities are also taken into account using nuclear data from Ref. [12] for absolute activity equations as well as for direct activity equations. Their influences to the final activities are more pronounced to the results obtained from Eqs. (34)–(36) than to Eq. (31).

Live time correction error is taken from Ref. [19] according to count rates observed. For point source measurements, 5% is added

in evaluation of uncertainty due to error of live time correction, while 3% for voluminous sources. Uncertainties appearing due to pile up losses and contributions are taken into account as error of pile up peak area determination errors since these corrections are incorporated into activity equations.

The errors of total spectrum areas observed are estimated to 1%. However, discrepancies between the true input rates and rates observed are included in the live time correction errors.

9. Conclusion

We have shown that the method presented can be used for ^{152}Eu source activity determination making use only spectral data but with non competitive accuracy to the regular two detector coincidence absolute measurements [21].

Uncertainties of the mean activities of point sources obtained by spectral data and Eq. (31) are between 7–9%. The absolute method described here yields results of activities, which are in agreement with reference values within 10% up to count rates of $38 \times 10^4 \text{ cs}^{-1}$. The simple point source model without angular correlations applied to cylindrical bottle source yield unacceptable activity results, which are almost two times smaller than the reference value. On the other hand, the results obtained for Marinelli shaped source exhibits clearly that application of the simple point source model without angular correlation corrections yield activity values with 5% experimental uncertainty and are in good agreement with reference values. Mean values of direct activity measurements exhibit somewhat larger errors (8–12% for point source and 6% for Marinelli) what is related to the more dependency on the nuclear data, angular correlations and uncertainties of the sum peaks. However, there is a clear difference among activities obtained using different cascades. According to results presented, activities obtained by $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ cascade of ^{152}Sm and $7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ cascade of ^{152}Gd exhibit that these are the best choice.

Acknowledgments

The authors acknowledge the financial support of the Ministry of Science and Technology of Serbia, in the frame of the Project Nuclear Spectroscopy and Rare Processes (no. 141002).

References

- [1] S. Pommé, *Metrologia* 44 (2007) 17.
- [2] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten Jr., J.Th. Veenboer, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 14 (1963) 153.
- [3] I.J. Kim, C.S. Park, H.D. Choi, *Appl. Radiat. Isot.* 58 (2003) 227.
- [4] M. Capogni, A. Ceccatelli, P. De Felice, A. Fazio, *Appl. Radiat. Isot.* 64 (2006) 1229.
- [5] I. Bikit, T. Nemes, D. Mrda, *Nucl. Instr. and Meth. A* 603 (2009) 333.
- [6] L.G. Sutherland, J.D. Buchanan, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 18 (1967) 786.
- [7] T. Vidmar, K. Kossert, O.J. Nähle, O. Ott, *Appl. Radiat. Isot.* 67 (2009) 160.
- [8] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađđerđ, *Nucl. Instr. and Meth. A* 578 (2007) 207.
- [9] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađđerđ, *Nucl. Instr. and Meth. A* 582 (2007) 592.
- [10] I. Bikit, T. Nemes, D. Mrda, *Nucl. Instr. and Meth. A* 612 (2009) 103.
- [11] A. Iwahara, R. Poledna, C.J. da Silva, L. Tuhata, *Appl. Radiat. Isot.* 67 (2009) 1887.
- [12] V.R. Vanin, R.M. de Castro, E. Browne, ^{152}Eu in: Table of Radionuclides, (Vol. 2-A=151 to 242), in: Bē et al. (Ed.), Monographie BIPM-5, BIPM, Sévres, 2004, pp. 25–43.
- [13] M. Roteta, E. Toraño-García, *Nucl. Instr. and Meth. A* 369 (1996) 665.
- [14] A.M. Feingold, S. Frankel, *Phys. Rev.* 97 (1955) 1025.
- [15] K. Siegbahn (Ed.), Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, vol. 2, North Holland, Amsterdam, 1966, pp. 997–1198.
- [16] I.J. Kim, G.M. Sun, H.D. Choi, Y.D. Bae, *J. Korean Nucl. Soc.* 34 (2002) 22.
- [17] R.B. Firestone, V.S. Shirley, S.Y. Frank Chu, C.M. Baglin, J. Zipkin, Table of Isotopes V 1.0, Wiley-Interscience, 1996.
- [18] R.J. Gehrke, J.R. Davidson, *Appl. Radiat. Isot.* 62 (2005) 479.
- [19] D.M. Scates, J.K. Hartwell, *Appl. Radiat. Isot.* 63 (2005) 465.
- [20] G.F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, John Wiley & Sons, New York, 1979.
- [21] L. Johansson, T. Altzitzoglou, G. Sibbens, B. Denecke, D.F.G. Reher, *Nucl. Instr. and Meth. A* 505 (2003) 378.

Литература

- [1] R. Collé. *Radionuclide standardization by primary methods: An overview*. Journal of radioanalytical Nuclear Chemistry, Vol. 280, No.2 (2009) 265-273
- [2] NCRP(1985). National Council On Radiation Protection And Measurements. A Handbook Of Radioactivity Measurements Procedures. NCRP Report No.58. National Council On Radiation Protection And Measurements, Bethesda, Mariland.
- [3] Bé M-M *et al.* *Tables of Radionuclides*. (Vol 1-A=1 до 150; vol 2-A=151 до 242) и 2006 (Vol 3-A=3 до 244) Monographie BIPM-5.
- [4] S. Pommé. *Methods for primary standardization of activity*. Metrologia 44 (2007) S17-S26
- [5] K. Debertin. *The Art of realizing Becquerel*. Applied Radiation And Isotopes, Vol 47, No.4 (1996) pp. 423-431
- [6] G. Sibbens, T Altzizoglou. *Preparation of radioactive sources for radionuclide metrology*. Metrologia 44(2007) S71-S78
- [7] L. Johanson, T. Altzizoglou, G. Sibbens, B. Denecke, D.F.G. Reher. *Six direct methods for standardization of ^{152}Eu* . Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. A 508(2003)378-387.
- [8] G. Ratel, C. Michote. BIPM *comparison BIPM.RI(II)-K1.Eu-152 of the activity measurements of the radionuclide ^{152}Eu and links for the international comparison CCRI(II)-K2.Eu-152*. Final Report for Eu-152 (2004).
- [9] T.S. Park, J.M. Lee, H.Y. Hwang. Standardization of ^{152}Eu and ^{88}Y . Appl. Radiat. and Isot. 56(2002) 275-280.
- [10] K.D. Holdenbrand. Scintillation Detectors, y Experimental Techniques in Nuclear Physics, D.N., Poenaru, W. Greiner (ed.) . Walter de Gruyter (1997) 59-86.
- [11] C., Stéphan. Gas Filled Detectors, y Experimental Techniques in Nuclear Physics, D.N., Poenaru, W. Greiner (ed.) . Walter de Gruyter (1997) 11-57.
- [12] *Germanium detectors*. Canberra, Inc. 2003.
- [13] J.P. Ponpon. Semiconductor Detectors, y Experimental Techniques in Nuclear Physics, D.N., Poenaru, W. Greiner (ed.) . Walter de Gruyter (1997) 87-116.
- [14] V. Polushkin. Nuclear Electronics. Superconducting detectors and processing techniques. John Willey & Sons (2004), England.
- [15] F. N. Flakus. Detecting and Measuring ionizing radiation-a short history. IAEA Bulletin, 23 No.4.
- [16] R.M. Keyser, T.R. Timothy, B.D.Russell. Improved Performance in Germanium Detector Gamma Spectrometers based on Digital Signal Processing. Ortec.
- [17] D.T. Vo, P.A. Russo. Comparison of the portable digital spectrometer systems. Los Alamos National laboratory. LA-13895-MS. February (2002).
- [18] R.M. Keyser, S. Member, R.C. Trammell, S. Member. Performance of an enhanced throughput feature in a high-count rate system. ORTEC, 801 South Illinois Avenue, Oak Ridge, TN 37831-0895.
- [19] D.M. Scates, J.K. Hartwell. A comparison of the high count-rate performance of three commercially available digital signal processors. Applied Rad. Isot. 63(2005) 465-473.
- [20] N. Reguigui, J. Morel, H. Ben Kraiem, A. Mahjoub. Characterization of three digital signal processor systems used in gamma ray spectrometry. Appl. Radiat. And Isot. 56(2002) 93-97.
- [21] G.R. Gilmore. Practical Gamma-ray spectrometry. John Willey and Sons. 2008.
- [22] M. Walker. Quaternary dating methods. John Willey and Sons, (England, 2005), 20-23.

- [23] H. Geiger, A. Werner. Die Zahl der von Radium ausgesandten α -Teilchen, Z. Phys. 21(1924) 187.
- [24] W. Bothe. Zur Vereinfachung von koinzidenzzählungen. Z. f. Phys. 59, 1.
- [25] H.J. Von Baeyer. Anwendung der Koinzidenzmethode auf die Untersuchung von Kernprozessen. Z. Phys. 95 (1935), 417.
- [26] J.V. Dunworth. The application of the method of coincidence counting to experiments in nuclear physics. Rev. Sci. Ins. 11 (1940) 167
- [27] W.R. Leo, Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1978, 302-308.
- [28] A. Iwahara, M.A.L. da Silva, A.E.C. Filho, E.M. de Oliveira Bernardes, J.U. Delgado. Determination of disintegration rates and γ -ray emission probabilities of ^{65}Zn and ^{241}Am . Appl. Radiat. And Isot. 63(2005) 107-113
- [29] S. Pommé. Methods for Primary Standardization of Activity. Metrologia 44 (2007) S17-S26
- [30] D. Smith, Improved correction Formulae for Coincidence Counting, Nucl. Instr. Meth. 152(1978) 505-519.
- [31] B.R.S. Simpson, W.M. van Wyngaardt. Absolute activity of ^{133}Ba by liquid scintillation coincidence counting using the $4\pi(e, X)\text{-}\gamma$ extrapolation technique. Appl. Radiat. and Isot. 66(2008) 929-933.
- [32] E.L. Gricorescu, M. Sahagia, A. Razdolescu, A. Luca, R.M. Radwan. Standardization of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{75}Se by the Beta-efficiency Extrpolation Method. Appl. Radiat. Isot. 49(1998)1165-1170.
- [33] T.S. Park, H.Y. Hwang, J.M. Lee, An Improved Coincidence Counting Technique for Standardization of Radionuclides, Appl. Radiat. Isot. 49(1998)1147-1151.
- [34] J. Keightley, T.S. Park. Digital coincidence counting for radionuclide standardization. Metrologia 44(2007) S32-S35.
- [35] E. Schönfeld, H. janssen, R. Klein, J.C. Hardy, V. Iacob, M. Sanchez-Vega, H.C. Griffin, M.A. Ludington. Production of Co-60 sources for high-accuracy efficiency calibrations of gamma-ray spectrometers. Appl. Radiat. And Isot. 56(2002) 215-221.
- [36] T. Yamada, Y. Nakamura, Y. Kawada, Y. Sato, Y. Hino, Standardization of ^{152}Eu and ^{154}Eu by $4\pi\beta\text{-}4\pi\gamma$ coincidence method and $4\pi(\beta+\gamma)$ integral counting. Appl. Radiat. And Isot. 64(2006) 1220-1224.
- [37] Bobin: Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. Metrologia 44(2007) S27-S31.
- [38] R. Broda, P. Cassette, K. Kossert. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. Metrologia 44(2007) S36-S52.
- [39] G. A., Brinkman, A. H. W. Jr Aten, J. Th. Veenboer. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-I Calibration by means of a single nuclide. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14(1963) 153-157
- [40] G. A., Brinkman, A. H. W. Jr Aten, J. Th. Veenboer. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-II Determination of of the total efficiency. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14(1963) 433-437
- [41] G. A., Brinkman, A. H. W. Jr Aten. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-III Calibration of β^+ -emitters. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14(1963) 503-510
- [42] G. A., Brinkman, A. H. W. Jr Aten, J. Th. Veenboer. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-IV. Determination of photoelectric efficiency. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 16(1965) 15-18
- [43] G. A., Brinkman, A. H. W. Jr Aten. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-V. Calibration of isotopes with complex decay schemes. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 16(1965) 177-181
- [44] K. Debertin, R.G. Helmer. Gamma-and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors. North-Holand, Amsterdam, 1988.

- [45] K. Debertin, U. Schötzig. Coincidence summing corrections in Ge(Li)-spectrometry at low source to detector distances. 158(1979) 471-477
- [46] I.J. Kim, C.S. Park, H.D. Choi: Absolute calibration of ^{60}Co by using sum-peak method and an HPGe detector. Applied Radiation And Isotopes, Vol 58(2003) pp. 227-233.
- [47] I.J. Kim, G. M. Sun, H.D. Choi. Calculation of effective angular correlation in the HPGe spectroscopy of Co-60 γ -rays. Journal of the Korean Nuclear Society. 34(2002)22-29
- [48] O. Sima, D. Arnold. On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. Appl. Radiat. and Isot. 67(2009) 701-705.
- [49] C.S. Park, G.M. Sun, H.D. Choi. Experimental and Simulated Efficiency of a HPGe Detector in the Energy Range of 0.06-11 MeV. Journal of Korean Nucl Society. 35(2003) 234-242.
- [50] T. Vidmar, K. Kossert, O.J. Nähle, O. Ott. Application of the sum-peak method to activity standardizations of extended ^{60}Co sources. Appl. Radiat. Isot. 67(2009) 160-163.
- [51] A. Iwahara, R. Poledna, C.J. da Silva, L. Tauhata. Primary activity standardization of ^{57}Co by sum-peak. Appl. Radiat. Isot. (2009)
- [52] M. Capogni, A. Ceccatelli, P. De Felice, A. Fazio. Random-summing correction and pile-up rejection in the sum-peak method. Appl. Radiat. Isot. 64(2006) 1229-1233
- [53] T. M. Semkow, G. Mehmood, P.P. Parekh, M. Virgil. Coincidence summing in gamma-ray spectroscopy. Nucl. Instr. Methods in Phys. Res. A 290(1990) 437-444.
- [54] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađderđ. Coincidence summing of X- and γ -rays in γ -ray spectrometry. Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. A 578(2007)207-217.
- [55] D. Novković, M. Đurašević, A. Kandić, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nađderđ. Coincidence summing of X-and gamma rays of ^{133}Ba . Nucl. Instr. Meth. 582(2007) 592-602
- [56] D. Novković, L. Nađderđ, M. Đurašević, I. Vukanac A. Kandić, , Z. Milošević, The direct measurement of ^{133}Ba activity by the sum-peak method. Nucl. Instr. Meth. (2009)
- [57] S. Pommé, J.P. Alzetta, J. Uyttenhove, B. Denecke, G. Arana, P. Robouch. Accuracy and precision of loss-free counting in γ -ray spectrometry. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 422(1999) 388-394
- [58] S. Pommé, P. Robouch, G. Arana, M. Eguskiza, M. M.I. Maguregui. Is it safe to use Poisson statistics in nuclear spectroscopy? J. Radioanal. Nucl. Chemistry, 244(2000) 501-506
- [59] R.M. Keyser, S. Member, R.C. Tramell, S. Member. Performance of an Enhanced Throughput Feature in a High-Count rate System. Ortec.
- [60] Model 1300, Inspector 2000. Hardware Manual. Canberra (2000).
- [61] G.F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. Willey, New York, 1979.
- [62] R.J. Gerhke, J.R. Davidson. Acquisition of quality γ -ray spectra with HPGe spectrometers. Appl. Radiat. Isot. 62(2005) 479-499.
- [63] K. Siegbahn, ed., Alpha-, Beta-, and Gamma-Ray Spectroscopy, Vol. 2 (North-Holland, Amsterdam, 1965).
- [64] M. Roteta, E. Garcia-Toraño. An evaluation of the influence of γ - γ angular correlation on the coincidence-summing corrections in γ -ray spectrometry. Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. A 369(1996)665-670.
- [65] R.B. Firestone, ed. by V. G. Shirley, Table of Isotopes, CD-Rom edition. V1. March 1996.
- [66] H. Frauenfelder, R. M. Steffen, Angular Correlations in ref. [61] p997.
- [67] M.E. Rose. The Analysis of angular Correlation and Angular Distribution Data. Phys. Rev. 91, No3 (1953) 610-615
- [68] A.M. Feingold, S. Frankel. Geometrical Corrections in Angular Correlation Measurements. Phys. Rev. 97, No4 (1955) 1025-1030.
- [69] S. Agostinell et al. (Geant 4 collaboration), Nucl. Instr. and Meth. A 506(2003)250

- [70] K. Abbas, F. Simonelli, F.D'Alberti, M. Forte, M.F. Stroosnijder. Reliability of two calculation codes for efficiency calibrations of HPGe detectors. *Appl. Radiat. and Isotopes*. 56 (2002) 703-709.
- [71] T. Vidmar, N. Celik, N.C.Diaz, A. Dlabac, I.O.B. Ewa, J.A.C. Gonzáles, M. Hult, S. Jovanović, M.C. Lépy, N. Mihaljević, O.Sima, F. Tzika, M.J. Vargas, T. Vasilopolou, G. Vidmar. Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Appl. Radiat. And Isot.* 68(2010) 335-359.
- [72] I. Vukanac, M. Đurašević, A. Kandić, D. Novković, L. Nađđerđ, Z. Milošević. *Appl. Radiat. Isot.* 66(2008) 792-795.
- [73] S. Jovanović, A. Dlabac, N. Mihaljević. ANGLE v2.1 – New version of the computer code for semiconductor detector gamma-efficiency calculations. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* (2010).
- [74] N. Tsoulfanidis. *Measurement and detection of radiation*. Taylor & Francis (1995) 283-291
- [75] Mathematica 7.0., Wolfram Research, Inc., USA.
- [76] R. G. Helmer. ⁶⁰Co data in Bé M-M *et al. Tables de Radionuclides*. (Vol 1-A=1 до 150; vol 2-A=151 до 242) и 2006 (Vol 3-A=3 до 244) Monographie BIPM-5.
- [77] V. P. Chechev, N. K. Kuzmenko. *Table de Radionucléides* (2004). ¹³³Ba.
- [78] L. Nađđerđ, M.D. Davidović, D.M. Davidović, M.J. Milošević, D.J. Jordanov, S.J. Stanković, S.L. Prvanović. A possible improvement of the determination of ¹³³Ba activity and detection efficiency by the sum-peak method, by inclusion of the previously neglected transitions. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 698(2103) 60-65
- [79] V. R. Vanin, R.M. de Castro, E Browne. ¹⁵²Eu data in Bé M-M *et al. Tables of Radionuclides*. (Vol 1-A=1 до 150; vol 2-A=151 до 242) и 2006 (Vol 3-A=3 до 244) Monographie BIPM-5.
- [80] Genie 2000 software package V3.0, Gamma Acquisition and Analysis, Canberra (2004) USA
- [81] Genie 2000 software package V3.0, Customization tools, canberra (2004) USA
- [82] ANGLE V3.0, Advanced Efficiency Calibration Software for High Purity Germanium Gamma-Ray Detectors. S. Jovanovic, A. Dlabac. 2010 www.dlabac.com/Angle

Кратка биографија



Немеш Томас је рођен у Оџацима 04.05.1979. Основно и средње образовање је стекао у родном месту. Студије физике, смер Дипломирани физичар, је завршио 2005. у Новом Саду са просечном оценом 8,23 и темом дипломског рада у области гама спектроскопије. По завршетку студија и регулисања војне обавезе радио је 2,5 године у основним школама у Општини Оџаци. Након уписа и завршетка мастер студија на Природно-Математичком факултету на Департману за физику у Новом Саду добија посао сарадника у настави, а касније асистента на Департману за Опште дисциплине у техници при Катедри за Физику на Факултету Техничких Наука у Новом Саду. У оквиру истраживања на тему докторске дисертације има објављена три научна рада. У слободно време бави се пецањем, свирањем бубњева и макетарством.

УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА

<i>Редни број:</i> РБР	
<i>Идентификациони број:</i> ИБР	
<i>Тип документације:</i> ТД	Монографска документација
<i>Тип записа:</i> ТЗ	Текстуални штампани материјал
<i>Врста рада:</i> ВР	Докторска дисертација
<i>Име и презиме аутора:</i> АУ	Томас Немеш
<i>Ментор:</i> МН	др Иштван Бикит
<i>Наслов рада:</i> НР	Апсолутно одређивање активности гама емитера помоћу једног детектора
<i>Језик публикације:</i> ЈП	Српски (ћирилица)
<i>Језик извода:</i> ЈИ	српски/енглески
<i>Земља публиковања:</i> ЗП	Република србија
<i>Уже географско подручје:</i> УГП	Војводина
<i>Година:</i> ГО	2015.
<i>Издавач:</i> ИЗ	Ауторски репринт
<i>Место и адреса:</i> МА	Природно-Математички Факултет, Нови Сад, Трг Доситеја Обрадовића 3
<i>Физички опис рада:</i> ФО	9 глава/155 страна/55 слика(26 графикона и 9 шема)/82 референце /4 прилога
<i>Научна област:</i> НО	Физика
<i>Нучна дисциплина:</i> НД	Нуклеарна физика, гама спектрометрија
<i>Предметна одредница, кључне речи:</i> ПО	Апсолутна активност, гама спектрометар, коинцидентно мерење, праве и случајне коинциденције
УДК	
<i>Чува се:</i> ЧУ	У библиотеци Департмана за Физику Природно-Математичког факултета у Новом Саду, Трг Доситеја Обрадовића 4, Нови Сад

Важна напомена:

Нема

ВН

Извод:

ИЗ

Испитана је тачност методе мерења апсолутне активности гама емитера помоћу једног гама спектрометра на већим брзинама бројања. У оквиру истраживања нађен је једноставан поступак за корекцију спектралних података на случајне коинциденције.

Принцип коинцидентне технике и корекције сумарног врха и врхова пуне енергије помоћу врхова у спектру насталим само услед случајних коинциденција примењен је на радиоизотопе са једноставном и веома сложенем шемом. Изведене су једноставне формуле за мерења активности са и без корекције на ефективне угаоне корелације у којима фигуришу подаци само из једног гама спектра чиме је постигнута знатна једноставност у техници мерења.

Резултати овог истраживања показали су да се активност двофотонских гама емитера може измерити помоћу HPGe детектора и дигиталне спектроскопске јединице са тачношћу испод 1% на разним брзинама бројања само помоћу једног спектра. Резултати за изotope са сложенем шемом добијени једноставном техником указују да се техника може применити на рутинска мерења где грешка не превазилази 10%.

Датум прихватања теме од стране

18.Март, 2010.

НН већа:

ДП

Датум одбране:

ДО

Чланови комисије:

КО

др Душан Мрђа, ванредни професор ПМФ-а у Новом Саду, председник
др Иштван Бикит, професор емеритус ПМФ-а у Новом Саду, ментор
др Миљко Сатарић, редовни професор ФТН-а у Новом Саду, члан
др Ана Козмидис Петровић, редовни професор ФТН-а у Новом Саду, члан

**UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCES
KEY WORD DOCUMENTATION**

<i>Accession number::</i> ANO	
<i>Identification number:</i> INO	
<i>Document type::</i> DT	Monograph documentation
<i>Type of record:</i> TR	Printed text
<i>Contens code:</i> CC	PhD Theses
<i>Author:</i> AU	Tomas Nemeš
<i>Mentor:</i> MN	Ph.D Ištvan Bikit
<i>Title:</i> TI	Absolute activity measurement of gamma emitters with a single detector
<i>Language of text:</i> LT	Serbian (Cyrilic)
<i>Language of abstract:</i> LA	Serbian/English
<i>Country of publication:</i> CP	Serbia
<i>Locality of publication:</i> LP	Vojvodina
<i>Publication year:</i> PY	2015.
<i>Publisher</i> PU	Author's reprint
<i>Publication place:</i> PP	Faculty of Sciences, Novi Sad, Trg Dositeja Obradovića 3
<i>Physical description:</i> PD	(155 pages/55 figures (26 graphs, 9 schemes) 82 references, 4 appendices
<i>Scientific field:</i> SF	Physics
<i>Scientific discipline:</i> SD	Nuclear physics, gamma spectrometry
<i>Subject, Key words:</i> SKW	Absolute activity, gamma spectrometer, coincidence measurement, true and random coincidences
<i>UC</i>	
<i>Holding data:</i> HD	Department of Physics Library, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

<i>Note:</i> N	None
<i>Abstract:</i> AB	<p>It has been investigated the accuracy of absolute activity measurement of gamma emitters with a single gamma spectrometer at higher count rates. In this research it has been found relatively simple procedure for random summing correction of spectral data.</p> <p>Principle of coincidence technique and random summing correction of sum peaks and full energy peaks using pile up peaks is applied to measure absolute activity of simple and complicated decay scheme radioisotopes. Simple equations were deduced for absolute activity measurements with and without correction for effective angular correlations. Variables in these equations are spectral data only. Great simplicity is achieved in coincidence technique of absolute activity measurement.</p> <p>It was shown that absolute activity of radioisotopes emitting simultaneously two gamma photons can be measured with accuracy below 1% at high count rates using HPGe detector and DSP spectroscopy unit. Measurements of complicated decay scheme radioisotopes shown that simple technique is able to bring satisfactory results with accuracies below 10%.</p>
<i>Accepted by the Scientific Board on:</i> ASB	18. March, 2010.
<i>Defended:</i> DE	
<i>Thesis defend board:</i> DB	<p>Ph.D Dušan Mrđa, associated professor, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, president Ph.D Ištvan Bikit, Emeritus professor, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, mentor Ph.D Miljko Satarić, full professor, Faculty of Technical Sciences, University of Novi Sad, member Ph.D Ana Kozmidis Petrović, full professor, Faculty of Technical Sciences, University of Novi Sad, member</p>