

СОФИЙСКИ УНИВЕРСИТЕТ
“Св. КЛИМЕНТ ОХРИДСКИ”



АВТОРЕФЕРАТ
на дисертация за присъждане на ОКС „Доктор“
на тема:

ИЗСЛЕДВАНИЯ ВЪРХУ ПРИЛОЖЕНИЯТА НА МЕТОДА НА
ТРОЙНИТЕ КЪМ ДВОЙНИТЕ СЪВПАДЕНИЯ ЗА АБСОЛЮТНИ
ИЗМЕРВАНИЯ НА АКТИВНОСТ

Чавдар Дуцов

под ръководството на
доц. д-р КРАСИМИР МИТЕВ

ФИЗИЧЕСКИ ФАКУЛТЕТ
КАТЕДРА „АТОМНА ФИЗИКА“
СОФИЯ
юли 2021 г.

СЪДЪРЖАНИЕ

1	Течно-сцинтилационно броене и абсолютно измерване на активност	3
1.1	Модел на свободния параметър в течно-сцинтилационните измервания	6
1.2	Метод на тройните към двойните съвпадения (TDCR)	8
2	СРАВНЕНИЕ НА АЛГОРИТМИ ЗА БРОЕНЕ НА СЪВПАДЕНИЯ	10
2.1	Експериментални постановки	11
2.2	Резултати от сравнението	11
3	РАЗПРЕДЕЛЕНИЕ НА СЦИНТИЛАЦИОННИТЕ СЪБИТИЯ ВЪВ ВРЕМЕТО	15
3.1	Пълна форма на взаимно-корелационното разпределение	16
3.2	Приложение на взаимно-корелационното разпределение	19
4	ИЗМЕРВАНЕ НА ПЕРИОД НА ПОЛУРАЗПАДАНЕ НА ЯДРЕНИ ВЪЗБУДЕНИ СЪСТОЯНИЯ	27
4.1	Анализ на данните	28
4.2	Периоди на полуразпадане на състоянията в Fe-57	28
4.3	Изследване на нивото 59.54 keV на Np-237	29
4.4	Крайни резултати от изследванията на периодите на полуразпадане	30
5	ОЦЕНКА НА СЛУЧАЙНИ СЪВПАДЕНИЯ В TDCR ИЗМЕРВАНИЯ	32
5.1	Методи за оценка на случайните съвпадения	32
5.2	Валидиране на методите	34
6	ЗАБАВЕНАТА ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ И TDCR МЕТОДЪТ	37
6.1	Методи и резултати	37
7	НОВА КОМПЪТЪН-TDCR СИСТЕМА – ПЪРВИ РЕЗУЛТАТИ	43
7.1	Резултати	44
8	ПРИЛОЖЕНИЯ НА TDCR МЕТОДА В ЛАБОРАТОРИЯ МЙЛ	48
8.1	Валидиране на TDCR-SU в CCRI(II)-K2 H-3 ключово сравнение	48
8.2	Валидиране на TDCR-SU за първични измервания на активност на Rn-222 във вода	49
8.3	Измерване на коефициент на разтворимост на Rn-222 в полимери	51
9	ЗАКЛЮЧЕНИЕ	52
	БИБЛИОГРАФИЯ	56

Методът на тройните към двойните съвпадения (TDCR) е течно-сцинтилационен метод използван за абсолютно измерване на активността на множество радионуклиди разпадащи се чрез α -разпадане, β -разпадане или електронен захват. TDCR методът предоставя стабилна оценка за ефективността за регистрация при абсолютни измервания на активност, т.е., измервания които не се базират на сравнение с еталон. Абсолютните измервания дават възможност за първично стандартизиране на активност на радионуклиди. Първичното стандартизиране на радиоактивност посредством TDCR метода представлява и основния фокус на настоящата дисертация.

СТРУКТУРА НА ДИСЕРТАЦИЯТА

Дисертационният труд е структуриран в три части и дванадесет глави. Първата част служи като въведение в полето на метрологията на активност чрез течно-сцинтилационно броене. Втората и третата част съдържат оригиналните изследвания и резултати, получени дисертацията.

В част първа е представено обобщение на природата на течните сцинтилатори и течно-сцинтилационното броене. Акцента е поставен върху методи за стандартизиране на активност и в частност върху TDCR метода.

Част II е фокусирана върху разпределението на интервалите от време между детектирани сцинтилационни събития в течно-сцинтилационен детектор. Първо, програма, разработена за анализа на данни от цифровизатор на импулси, е представена в Глава 3. Последващата Глава 4 описва сравнение между два алгоритъма за обработка на съвпадения и мъртви времена в детектор с три ФЕУ. Глава 5 съдържа извеждане на статистическото разпределение на времеви интервали между детектирани сцинтилационни фотони. Изведените уравнения са верифицирани посредством Монте Карло код, разработен в рамките на дисертацията и представен накратко в Допълнение А. Показано е, че това разпределение може да бъде използвано за оценка на ефективността за регистрация в течно-сцинтилационни измервания. Следващата глава, Глава 6, се занимава с експериментални изследвания върху изведените уравнения и тяхното приложение към реални измервания. Възможността за използването на ново-разработените методи в подкрепа на стандартизирането чрез TDCR метода също е дискутирано. Някои от приложенията на времевите разпределения към рутинни течно-сцинтилационни измервания също са показани.

Част III се фокусира върху използването на информацията от времевите разпределения в метрологията на йонизиращите лъчения и, в частност, TDCR метода. В Глава 7 е представена възможността за измерване на периода на полуразпадане на възбудени ядрени състояния посредством анализ на времевите разпределения от течно-сцинтилационни измервания. В Глава 8 е демонстриран експериментален метод за пресмятане на приноса на случайните съвпадения в течно-сцинтилационен

детектор с три ФЕУ. Освен експерименталният метод са развити и аналитични уравнения, които могат да бъдат използвани за оценка на приноса на случайните съвпадения във вече-съществуващи TDCR детектори. Глава 9 се фокусира върху приноса на забавената сцинтилационна компонента върху активността определена чрез TDCR метода. Изследванията демонстрират проблемите, които могат да възникнат при стандартизиране на нискоенергийни лъчители като ^3H и ^{55}Fe . В Глава 10 е показана разработката и охарактеризирането на нова Комптгън-TDCR детекторна система за първично стандартизиране на течно-сцинтилационни проби. Системата е използвана за изследване на отклика на комерсиални течни сцинтилатори при облъчване с електрони с енергии в диапазона от 2 keV до 8 keV. Възможността за използването на тази информация в стандартизиране на ^3H също е дискутирана. Глава 11 описва някои от приложенията на TDCR метода в дейностите на лабораторията по Метрология на Йонизиращите Лъчения в Софийски Университет.

Накрая, Глава 12 съдържа кратък обзор на изследванията проведени в рамките на дисертацията и подчертава важните заключения от труда. Някои бъдещи насоки за изследвания също са изказани. Допълнителна информация и измервания са дадени в три допълнения.

ТЕЧНО сцинтилационно броене е метод за измерване на активност на дадено вещество разтворено в течен сцинтилатор, чрез измерване на скоростта на броене на светлинните импулси породени от радиоактивните разпадания случващи се в сцинтилатора. Разтворът обикновено се съдържа в стъклено или полиетиленово шишенце и честотата на сцинтилациите, идващи от шишенцето, се измерва чрез детектори наречени течно-сцинтилационни броячи. Повечето детектори са оборудвани с оптична камера, в която се помещава пробата и фотоелектрони умножители (ФЕУ), които регистрират сцинтилационните събития. Събитията се записват за определен период от време и се определя честотата на регистриране на събития. Ефективността за регистрация ε дава връзката между чистата (коригирана за фон) честота на събитията n_0 и активността A , където:

$$A = \frac{n_0}{\varepsilon}. \quad (1.1)$$

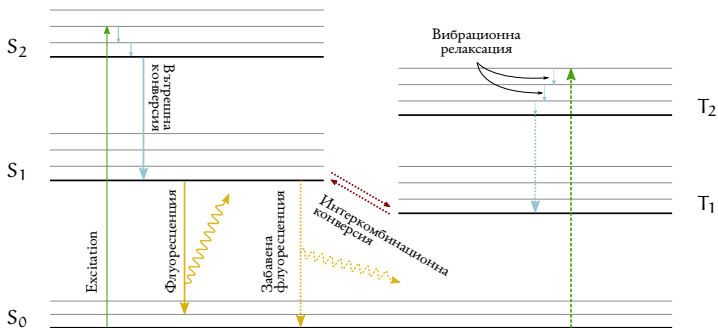
Тъй като радиоактивният източник на практика е в рамките на активния обем на детектора, ефективността за регистрация на течно-сцинтилационните измервания е относително висока. Тя достига до 100% за α -излъчващи радионуклиди и за високоенергийни β -излъчващи радионуклиди. Ефективността за регистрация обаче може да бъде значително по-ниска при нуклиди разпадащи се чрез електронен захват (ЕЗ) или при нискоенергийни β -излъчватели. За такива радионуклиди, ефективността за регистрация ε трябва да бъде известна с висока точност за да се изчисли активността на източника.

Често използван метод за определяне на ефективността за регистрация е калибрирането на течно-сцинтилационния детектор с източник с активност, която е известна с ниска неопределеност. Източниците за калибриране от своя страна също се измерват чрез течно-сцинтилационно броене, за да се определи тяхната активност. Тъй като ефективността в този случай е неизвестна, е необходим модел на излъчваната от течния сцинтилатор светлина и вероятностите за детектирането на тази светлина от ФЕУ. Такъв модел е разработен през 1980-та година от Брода, Малонда и съавтори [1, 2] въз основа на предишни работи [3—5] и се нарича *свободно параметричен модел*. Той е в основата на всички течно-сцинтилационни методи използвани до момента в областта на радионуклидната метрология.

Течната сцинтилация е особено подходяща за откриване и измерване на активност нуклиди, при чиито разпад не се излъчват γ -кванти, като например ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{63}Ni и други. Тъй като единствената емисия от такива нуклиди е заредена частица, тяхното разпадане не може да бъде усетено на повече от няколко сантиметра, ако има плътна среда между източника и детектора. Течно-сцинтилационното броене има предимството в това отношение, тъй като радионуклидът е разтворен в разтво-

рител, който абсорбира отдадената от заредените частици енергия и я прехвърля към сцинтилиращи молекули. Основен компонент в течно-сцинтилационното броене са течните сцинтилатори.

ТЕЧНИ СЦИНТИЛАТОРИ Течните сцинтилатори са органични съединения, които излъчват светлина след поглъщането на енергия. Повечето органични сцинтилатори са съставени от ароматни молекули в които три от валентните електрони на въглерода са хибридизирани в sp^3 конфигурацията и един p електрон остава непроменен. Непроменените p електронни орбитали са симетрични по отношение на равнината на молекулата и образуват делокализирани молекулни орбитали. Такива делокализирани орбитали се срещат в бензена, както и в други ароматни молекули, и техните възбудени състояния са причината за тяхната луминесценцията. Също така, в разтвор, отделните молекули са слабо свързани помежду си чрез сили на Ван дер Ваалс, което спомага за преноса на енергия от една молекула на друга. Този ефект на енергиен трансфер е важен за течните сцинтилатори съставени от повече от един тип молекули. В такива дву- или повече компонентни системи се добавя малко количество много ефективен сцинтилатор в голямо количество органичен разтворител. Разтворителят поглъща основната част от отдадената в сцинтилатора енергия и, чрез взаимодействия между молекулите, енергията на възбуждане може да достигне някоя от молекулите на ефективния сцинтилатор, което с висока вероятност би довело до излъчване на светлина



ФИГУРА 1.1: Схематично представяне на фото-луминесцентните пътища. Плътните линии показват пътя водещ до бърза флуоресценция, а шриховните линии към забавената флуоресценция.

Пътят на енергията – от кинетичната енергия на заредената частица преминаваща през сцинтилатора до луминесцентните фотони, които се излъчват от него – е сложен и преминава през множество стъпки. На практика, основната част от отдадената енергия се превръща в топлина и много малка част, около 1%, в сцинтилационна светлина. Част от възможните пътища на възбуждане и релаксация са схематично представени на [Фигура 1.1](#). След отдаване на енергия на π електроните,

те могат да бъдат в синглетно или триплетно възбудено състояние. Изсветването от синглетни състояния е много бързо, с характерно време няколко наносекунди, и явлението се нарича бърза флуоресценция или просто флуоресценция. Спадането на сцинтилационния сигнал във времето при бързата флуоресценция се извършва по експоненциален закон.

Прехода от триплетно възбудено към основното състояние е забранен процес и се извършва с много ниска вероятност. Съществува обаче възможността за интеркомбинационна конверсия при която възбуждането преминава от триплетно в синглетно състояние. Това може да се случи при взаимодействието на две молекули в T_1 състояние. При достигането на синглетно възбудено състояние релаксацията може да се извърши чрез излъчване на фотон и явлението се нарича забавена флуоресценция. Времето на живот на триплетните състояния е по-дълго от това на синглетните и, поради дву-молекулните взаимодействия, изсветването чрез забавена флуоресценция се контролира от дифузията на възбудените състояния. Зависимостта на интензитета на забавената флуоресценция с времето не е експоненциална и има сложна форма [6]. Характерното време, в което се извършва, е от порядъка на стотици наносекунди.

Плътността на сцинтилациите, образувани в сцинтилатора, зависи от линейното отдаване на енергия на частицата. Колкото по-голяма е спирачната способност, толкова по-висока е плътността на възбуждане. Това води до намалена ефективност на сцинтилатора, ефект, известен като “йонизационно гасене”, който е подобен при всички видове органични сцинтилатори [7]. Заради него светлинният добив на сцинтилатора зависи от линейното отдаване на енергия на частиците – той е най-висок за високо-енергийни електрони и най-нисък за α -частици и тежки ядра. Освен това, за дадена частица, интензитетът на излъчената светлина се променя нелинейно с енергията.

Има няколко опита да се опише поведението на йонизационното гасене по отношение на енергията и вида на частицата. Най-широко използваният модел е полумпирична формула предложена от Бъркс известна като закон на Бъркс, който дава връзката между интензитета на сцинтилационната светлина I и спирачната способност [7]:

$$\frac{dI}{dx} = \frac{\eta_0 \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}}, \quad (1.2)$$

където x е пробегът на частицата в сцинтилатора, dE/dx е спирачната способност на частицата, а η_0 е абсолютната сцинтилационна ефективност.

Съществуват някои проблеми, които възникват при изчисляването на функцията на йонизационно гасене на Бъркс: изборът на оптимална стойност на параметъра kB , изчисляване на стойностите на спирачната способност за енергии под 1 keV и липсата на информация за атомния състав и плътността на използвания сцинтилатор, които са необходими за изчисляване на спирачната способност dE/dx .

ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННИ БРОЯЧИ Течно-сцинтилационните броячи са специализирани системи състоящи се от два или повече ФЕУ, които са поставени в отражателна оптична камера недопускаща външна светлина и са насочени към шишенце с проба разтвор на радиоактивност в течен-сцинтилатор. Тъй като светлината която се детектира е много малко, обикновено от порядъка на няколко фотона, фотоумножителите работят в режим на детектиране на единични фотони. В такъв режим има висок термален шум и голяма вероятност за послесветения. Тъй като в еднофотонен режим сигналите от едно ФЕУ са ненадеждни, две или повече ФЕУ са свързани в схеми на съвпадение. За съвпадения се смятат събития, в които се наблюдават сигнали, в две различни ФЕУта, като времето между тях е по-малко от предварително зададено време, наречено прозорец на съвпаденията.

Течно-сцинтилационното броене е мощна техника за измерване на радиоактивност с много практически приложения. Използва се в сфери като: измерване на активност в природата или ядрени централи [8], стандартизиране на активност на радионуклиди [9], физика на високите енергии и неутринна физика [10], датиране чрез ^{14}C [11], океанографски изследвания [12], изследвания на околната среда и мониторинг [3] и други.

Съществуват няколко метода за стандартизиране на активност на радиоизотопи, които използват течно-сцинтилационно броене. Методът на $4\pi\beta - \gamma$ съвпаденията се използва за стандартизиране на нуклиди, които излъчват β частици и γ кванти. Той не може да бъде използван за чисти β -лъчители и се нуждае от относително сложна комбинация от два различни типа детектори. Методът на проследяването на ефективността CIEMAT/NIST (CNET от *CIEMAT/NIST Efficiency Tracing*) може да се използва за стандартизирането на много радионуклиди чрез комерсиален течно-сцинтилационен детектор [9]. Методът, обаче, не е напълно първичен метод, тъй като се нуждае от нуклид с който да се извърши проследяването – обикновено ^3H . Активността на този нуклид трябва да е стандартизирана предварително чрез TDCR метода. TDCR методът е разработен за директното измерване на активност на нуклиди разпадащи се чрез β разпадане или ЕЗ. Основава се на свободно-параметричния модел, който се прилага върху данните за скоростите на броене в съвпадения в детекторна система с три ФЕУ [9]. Именно върху TDCR метода пада и централния фокус на настоящата дисертация.

1.1 МОДЕЛ НА СВОБОДНИЯ ПАРАМЕТЪР В ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННИТЕ ИЗМЕРВАНИЯ

Ефективността за регистрация за високо-енергийни β -излъчватели α -излъчватели в течен сцинтилатор е практически 100% [13]. Случаят е различен за ниско-енергийни β -излъчватели и някои нуклиди разпадащи се чрез ЕЗ, където ефективността за регистрация е по-малка от 100% и може да варира с условията на измерването. За да се извършват прецизни абсолютни измервания на активността на източника, ефективността за регистрация трябва да е известна с голяма точност. Тя може да бъде

пресметната чрез модел, наречен “свободно-параметричен” модел, базиран на статистическото описание на процесите случващи се в течно-сцинтилационния брояч, както следва: отдаване на енергия в сцинтилатора, зависи от спектъра на радионуклида; йонизационното гасене на сцинтилационната светлина; разпределението на сцинтилационните фотони върху фотокатодите на фотоумножителите; регистрацията на съвпадения между двойки ФЕУ или три ФЕУ.

Като резултат от радиоактивно разпадане, в течно-сцинтилационния коктейл се отдава количество енергия E . Средният брой излъчени фотони \bar{n} може да бъде пресметнат чрез [9]:

$$\bar{n} = \frac{\eta_0 Q(E) E}{h\nu}, \quad (1.3)$$

където $h\nu$ е средната енергия на фотоните, а η_0 е абсолютната сцинтилационна ефективност. Функцията $Q(E)$ отчита йонизационното гасене.

Само част от излъчените фотони се детектират от течно-сцинтилационната система. Средният брой детектирани фотони се дава с:

$$\bar{n} = \bar{n}\phi = \frac{\eta_0 \phi}{h\nu} Q(E) E, \quad (1.4)$$

където ϕ е фактор, който отчита каква част от излъчените фотони се регистрират. Ако броя на излъчените фотони във всяко събитие е Поасоново разпределен, то и броя детектирани фотони има също Поасоново разпределение [9]:

$$p(n, \bar{n}) = \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}}. \quad (1.5)$$

Интерес представлява вероятността да регистрираме измерим сигнал $P_E(n)$, т.е., генерирането на поне един фотоелектрон при \bar{n} фотона детектирани средно. Тя може да бъде получена от вероятността за липса на регистрация $p(0, \bar{n})$:

$$P_E(n) = 1 - p(0; \bar{n}) = 1 - e^{-\bar{n}}. \quad (1.6)$$

В случая на два еднакви фотоумножителя в съвпадение, вероятността за регистриране на поне един фотон едновременно и в двете ФЕУ P_{AB} е:

$$P_{AB} = \left(1 - e^{-\frac{\bar{n}}{2}}\right)^2 \quad (1.7)$$

Аналогично на уравнения (1.6) и (1.7), вероятността за регистрация P в течно-сцинтилационен брояч с R идентични ФЕУ е:

$$P = 1 - e^{-\bar{n}/R}, \quad (1.8)$$

където средния брой фотони детектирани във всички R ФЕУ е:

$$\bar{n} = EQ(E)\phi. \quad (1.9)$$

Величината ϕ , или свободния параметър, в уравнение (1.9) е средната енергия която е нужна за създаване на фотоелектрон на фотокатода на едно ФЕУ, след отчитане на йонизационното гасене. Свободния параметър често се нарича събирателна способност или *Figure of Merit* (FOM).

1.2 МЕТОД НА ТРОЙНИТЕ КЪМ ДВОЙНИТЕ СЪВПАДЕНИЯ (TDCR)

TDCR методът е течно-сцинтилационен метод, който се използва за пресмятането на средния брой детектирани фотони от течно-сцинтилационна проба. Техниката се основава на свободно-параметричния модел, приложен към система с три ФЕУ. За прилагането на метода е нужна специална анализаторна система, която може да преброява двойните АВ, ВС и АС и тройните Т съвпадения. Засичането на което и да е двойно съвпадение се означава с логическата сума на двойните съвпадения:

$$D = AB \vee BC \vee AC, \text{ където } \vee \text{ е логическото "или".} \quad (1.10)$$

Теоретичната ефективност за регистрация в детектор с три ФЕУ може да бъде пресметната посредством уравнение (1.8). В практиката, измерванията които се провеждат не са на моноенергетични източници и излъчванията от радионуклида имат спектър от възможни енергии. Това се отчита чрез интегриране по спектъра на отдадената в сцинтилатора енергия $S(E)$. За детектор с три идентични ФЕУ, ефективността за регистрация на съвпадение между две от тях е:

$$\Phi_2 = \int_0^{E_{\max}} S(E) \left(1 - e^{-\bar{n}/3}\right)^2 dE, \quad (1.11)$$

където E_{\max} е максималната енергия на частиците в спектъра. По същия начин получаваме и ефективността за регистрация на тройно съвпадение:

$$\Phi_T = \int_0^{E_{\max}} S(E) \left(1 - e^{-\bar{n}/3}\right)^3 dE, \quad (1.12)$$

Отношението на ефективността за регистрация на тройните съвпадения към ефективността за регистрация на двойните съвпадения, за детектор с три идентични фотоумножителя, се дава с [9]:

$$\frac{\Phi_T}{\Phi_D} = \frac{\int_0^{E_{\max}} S(E) \left(1 - e^{-\varphi EQ(E)/3}\right)^3 dE}{\int_0^{E_{\max}} S(E) \left[3 \left(1 - e^{-\varphi EQ(E)/3}\right)^2 - 2 \left(1 - e^{-\varphi EQ(E)/3}\right)^3\right] dE}. \quad (1.13)$$

За голям брой детектирани събития, отношението на ефективностите Φ_T/Φ_D клони към отношението на скоростите на броене T/D . Така, варирайки параметъра на събирателната способност φ , теоретичното отношение може да се напасне на експерименталните данни и да се намери оптималния параметър φ .

Уравнение (1.13) е валидно при предположение за идентични ФЕУ, т.е., ФЕУ с еднаква квантова ефективност и разположени симетрично в оптичната камера. В практиката това предположение рядко е изпълнено и за пресмятането на ефективността за регистрация, се налага въвеждането на три свободни параметъра $\varphi_A = \varepsilon_A \varphi$, $\varphi_B = \varepsilon_B \varphi$, $\varphi_C = \varepsilon_C \varphi$, които могат да се получат от уравнения за отношенията Φ_T/Φ_{AB} ,

Φ_T/Φ_{BC} , Φ_T/Φ_{AC} [9]. Параметрите ε_A , ε_B , ε_C са относителните ефективности за регистрация на трите ФЕУ и $\varepsilon_A + \varepsilon_B + \varepsilon_C = 1$.

Подобно на ситуацията с идентични ФЕУ, тук, експерименталните отношения T/AB , T/BC и T/AC клонят към теоретичните отношения Φ_T/Φ_{AB} , Φ_T/Φ_{BC} и Φ_T/Φ_{AC} , при голям брой детектирани събития. Стойностите на трите събирателни способности могат да бъдат намерени чрез минимизационен алгоритъм, като функцията която се минимизира е квадратичната сума на разликите между теоретичните и експерименталните отношения [14]:

$$\Delta = \left(\frac{\Phi_T}{\Phi_{AB}} - \frac{T}{AB} \right)^2 + \left(\frac{\Phi_T}{\Phi_{BC}} - \frac{T}{BC} \right)^2 + \left(\frac{\Phi_T}{\Phi_{AC}} - \frac{T}{AC} \right)^2. \quad (1.14)$$

Минимизирането на уравнението дава стойностите на φ_A , φ_B и φ_C за дадена стойност на параметъра kV във функцията на йонизационното гасене. Знаейки събирателните способности на трите ФЕУ, ефективността за регистрация в някой от каналите на съвпадение може да бъде получен по сходен начин на уравнения (1.11) и (1.12). Обикновено се пресмята ефективността за регистрация в канала на логическата сума на двойните съвпадения D , тъй като там се съдържа най-много информация. Активността в такъв случай се изразява като:

$$A = \frac{D}{\Phi_D(kV, \varphi_A, \varphi_B, \varphi_C)}. \quad (1.15)$$

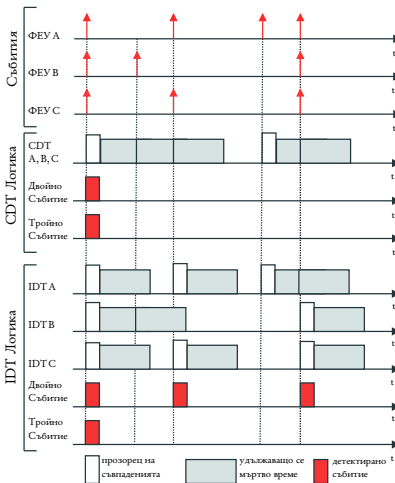
В зависимост от радионуклида, уравнение (1.14) може да има едно решение, в случая на чисти β -лъчители, или три решения, в случая на ЕЗ. Когато уравнението има три решения, ефективността за регистрация трябва да бъде варирана експериментално, за да се определи в коя част от кривата лежи експерименталното T/D отношение.

Ефективността за регистрация, получена чрез TDCR метода, е зависима от избора на kV параметър, който е най-същественят външен параметър за модела. За високо енергийни β -лъчители (над няколко стотин keV), влиянието на избора на параметъра на йонизационното гасене е пренебрежима [9]. За радионуклиди, излъчващи ниско-енергийни електрони (например 3H), зависимостта на пресметнатата активност от избора на kV параметър е значителна.

Тъй като параметъра на йонизационното гасене може да бъде различен за различните сцинтилационни коктейли, то се налага неговото определяне за всяка измерена проба. Това може да стане посредством техниката за вариране на ефективността за регистрация. Чрез измерване на една и съща проба многократно със серия от филтри с различни оптични плътности може да се променя ефективността за регистрация. Тъй като активността на пробата е еднаква във всички измервания, то и пресметнатата активност трябва да е константна. За оптимален се избира kV параметъра, който води до константна пресметнатата активност за различните измервания с различна ефективност за регистрация. Възможно е да съществуват проблеми с този подход, които са разгледани подробно в рамките на дисертацията.

За да се осигури коректната работа на точно-сцинтилационните измервателни системи се налага поставянето на изкуствено мъртво време след всеки детектиран сигнал [15]. Целта на практиката е да се елиминира възможността за детектиране на послесветене от фотоумножителите. В практиката се използва удължаващо се мъртво време, тъй като то осигурява поне някакъв минимален период от време между детектиран сигнал и предходния такъв. Логиката за налагане на мъртво време в детекторна система с едно ФЕУ е тривиална, но съществуват много начини по които може да бъде построена в системи с два или повече фотоумножители, работещи в съвпадение.

В тази глава са разгледани два алгоритъма за броене на съвпадения при провеждане на TDCR измервания – общото мъртво време (*common dead-time* или CDT) и индивидуални мъртви времена (*individual dead-times* или IDT). При първата логика, импулс детектиран в който и да е канал ще стартира мъртвото време във всички канали. При IDT логиката, сигнал детектиран в някой канал стартира мъртвото време само за този канал; всички останали канали продължават да са отворени и да приемат събития. Примерни събития и отклика на двата алгоритъма са представени на [Фигура 2.1](#).



ФИГУРА 2.1: Сравнение на IDT и CDT логика за броене на импулси в случай на двойни и тройни съвпадения. Логиката с индивидуалните мъртви времена може погрешно да класифицира тройни съвпадения като двойни съвпадения, но има много по-кратко мъртво време в канала с двойните съвпадения.

Логиката на глобалното мъртво време е реализирана в широко използвания TDCR модул MAC3 [15]. IDT алгоритъмът беше разработен наскоро в папо TDCR анализаторното устройство [16] базирано на програмируеми електронни схеми (FPGA). Въпреки че CDT логиката е широко разпространена и добре тествана, IDT алгоритъмът предоставя възможности за подобрения в TDCR броенето, поради по-краткото общо наложено мъртво време. Поради това, беше проведено сравнение на двете логи-

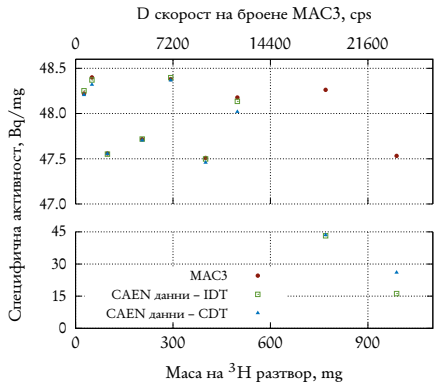
ки за броене чрез три различни експериментални постановки и анализ на изкуствено генерирани серии от сигнали, чрез Монте Карло код за симулация на TDCR събития. Проведените изследвания са представени също така и в публикация [17].

2.1 ЕКСПЕРИМЕНТАЛНИ ПОСТАНОВКИ

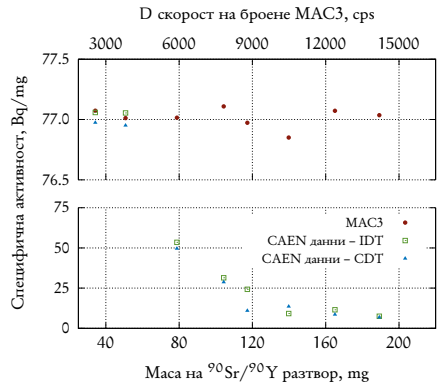
Сравнението между CDT и IDT алгоритмите е проведено по четири различни начина. При първият експеримент, MAC3 модул и цифровизатор на импулси CAEN DT5751 са свързани с изходите на френския гървичен TDCR брояч RCTD1. Цифровизаторът е настроен да записва всеки един импулс в списъци за последваща софтуерна обработка. За обработката на файловете е разработен софтуер, който разполага с възможността да прилага както CDT така и IDT алгоритъма за налагане на мъртво време. Като резултат от изпълнението на програмата се дават скоростите на броене във всички канали на съвпадение. Същият софтуер е използван в почти всички последващи изследвания извършени в дисертацията. Голямо предимство на експерименталната постановка използвава цифровизатора на импулси е, че може да се изследва софтуерната реализация на алгоритмите за съвпадения, като по този начин се елиминират възможни проблеми идващи от различия в хардуера. При вторият експеримент към RCTD1 са свързани паралелно MAC3 и папоTDCR. Целта на това сравнение е да се наблюдава работата на двете логики за броене при в реални измервания. Тъй като папоTDCR е FPGA базирано устройство, той разполага с големи възможности за промяна на хардуера и, освен IDT логиката, в него е програмирана и CDT логиката. Устройството може да анализира идващите сигнали и с двата алгоритъма едновременно. Последното сравнение извършено в рамките на това изследване е чрез анализ на данни генерирани от Монте Карло код за симулация на TDCR измервания. Голямото предимство на последния подход е, че дава възможност за сравнение на двата метода спрямо референтната скорост на броене, която се получава от Монте Карло кода.

2.2 РЕЗУЛТАТИ ОТ СРАВНЕНИЕТО

С първата експериментална установка (RCTD1 – MAC3 + CAEN цифровизатор) са измерени източници ${}^3\text{H}$ с активности между 1.2 kBq и 47 kBq и източници ${}^{90}\text{Sr}/{}^{90}\text{Y}$ с активности между 920 Bq и 14.5 kBq. Резултатите за двете серии източници са показани съответно на [Фигура 2.2](#) и [Фигура 2.3](#). Поради проблеми с компютърната конфигурация към която е свързан цифровизатора се наблюдава загуба на събития при високи скорости на броене. Въпреки това се наблюдава добро съгласуване между двата алгоритъма програмирани в софтуера за анализ на данни от цифровизатора. Резултатите се съгласуват добре и със скоростите на броене получени от MAC3 модула, в региона, където скоростта на пренос на данни към компютъра е достатъчно ниска.



ФИГУРА 2.2: Специфична активност на източник ^3H с постановка №1.



ФИГУРА 2.3: Специфична активност на източник $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ с постановка №1.

Посредством втората експериментална установка (RCTD1 – MAC3 + папоTDCR) са измерени отново източници ^3H и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Резултатите от сравнението са представени в Таблица 2.1. Второто сравнение показва отлично съгласуване между папоTDCR, използвайки IDT логиката, и MAC3, използвайки CDT логиката. Активностите на източниците, пресметнати от скоростите на броене получени с двете различни логики за мъртвото време, се различават с по-малко от 0.25%.

Нуклид	MAC3 Активност, Вq	папоTDCR Активност, Вq	Разлика между MAC3 и папоTDCR			
			D	T	Ефективност	Активност
^3H	4591(23)	4596(19)	0.38%	0.61%	0.25%	0.11%
	13896(22)	13892(48)	0.14%	0.32%	0.17%	-0.03%
	23265(61)	23297(96)	0.24%	0.34%	0.10%	0.14%
	46184(48)	46240(120)	0.12%	0.12%	-0.01%	0.12%
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	915(1)	913(2)	0.06%	0.08%	0.18%	-0.20%
	3877(3)	3878(5)	0.05%	0.02%	0.01%	0.04%
	7987(4)	8007(26)	0.14%	-0.06%	-0.17%	0.25%

ТАБЛИЦА 2.1: Сравнение на скоростите на броене, пресметнатата ефективност за регистрация и активност на пробите с втората експериментална установка – MAC3 и папоTDCR свързани с RCTD1.

Посредством третата експериментална установка са измерени пет източника съдържащи ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и ^{222}Rn . Източниците са измерени с папоTDCR свързан към TDCR детектор разработен в Софийски Университет. Измервателното устройство е настроено да обработва идващите импулси както с CDT логиката, така и с IDT логиката. Резултатите от сравнението са показани на Таблица 2.2.

Нуклид	CDT Активност, Вq	IDT Активност, Вq	Разлика между CDT и IDT			
			D	T	Ефективност	Активност
^3H	871.80(30)	871.80(30)	0.00%	0.00%	-0.01%	0.01%
^{14}C	2327.0(30)	2325.2(30)	0.02%	0.00%	-0.01%	0.04%
^{63}Ni	2110.5(10)	2109.5(10)	0.04%	0.00%	-0.03%	0.07%
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	3010.2(26)	3009.7(25)	0.01%	0.00%	-0.01%	0.01%
^{222}Rn	3050.9(42)	3039.0(45)	0.21%	0.00%	-0.18%	0.39%
	1825.1(16)	1818.0(14)	0.21%	0.00%	-0.18%	0.40%
	1016.8(10)	1013.0(10)	0.20%	0.00%	-0.17%	0.38%
	147.06(50)	146.41(60)	0.23%	0.00%	-0.21%	0.44%
	60.62(30)	60.31(30)	0.25%	0.00%	-0.24%	0.51%

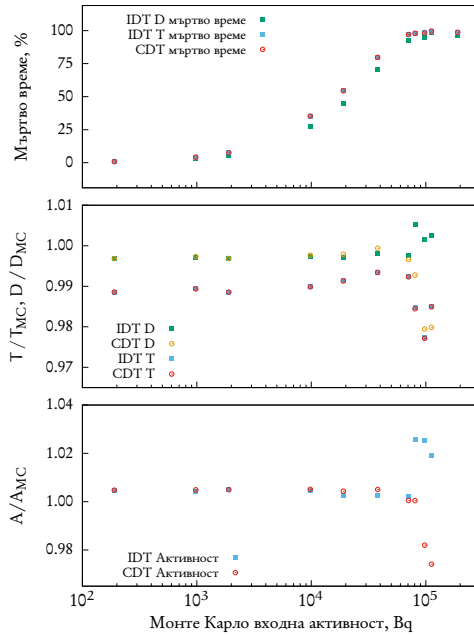
ТАБЛИЦА 2.2: Резултати от третата експериментална постановка.

Наблюдава се отлично съвпадение между измерените активности за β -лъчителите. Разликите между двата алгоритъма са в рамките на 0.07%. Наблюдават се значителни разлики в случая на ^{222}Rn . Разликите вероятно се дължат на ^{214}Po , който има много кратък период на полуразпадане и с голяма вероятност се разпада по време на мъртвото време наложено след детектирането на матерния нуклид ^{214}Bi . В такъв случай IDT логиката може да класифицира погрешно тройно събитие като двойно събитие.

Монте Карло кода за симулация на времето разпределение и броя на детектираните скинтилационни събития е използван за генериране на измервания на ^3H с активности до 200 kBq. Изходните данни са обработени със софтуера за анализ на цифровизирани данни веднъж с CDT логиката и веднъж с IDT логиката. Резултатите от сравнението между получените след обработката скорости на броене и референтните стойности дадени от Монте Карло кода са показани на [Фигура 2.4](#). Разликите в скоростите на броене в канала на двойните съвпадения са по-малки от 0.07% при всички измервания и по-малки от 0.16% в канала на тойните съвпадения. Алгоритъма на индивидуалните мъртви времена има предимството в този случай, тъй като постига същите резултати като CDT, но със значително по-кратко общо мъртво време. Например, живото време при IDT е 81.5% по-дълго от това за CDT при 38 kBq активност.

ЗАКЛЮЧЕНИЯ

В тази глава от дисертацията е показано изчерпателно сравнение на IDT и CDT алгоритмите за прилагане на удължаващо се мъртво време в TDCR измервания. Резултатите са подкрепени от анализ на изкуствено генерирани серии от събития чрез Монте Карло симулации. Наблюдава се отлично съгласуване между двете логики за броене при измерването на чистите β -лъчители ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. В случая на измервания на ^{222}Rn се наблюдават разлики до 0.51% в активностите



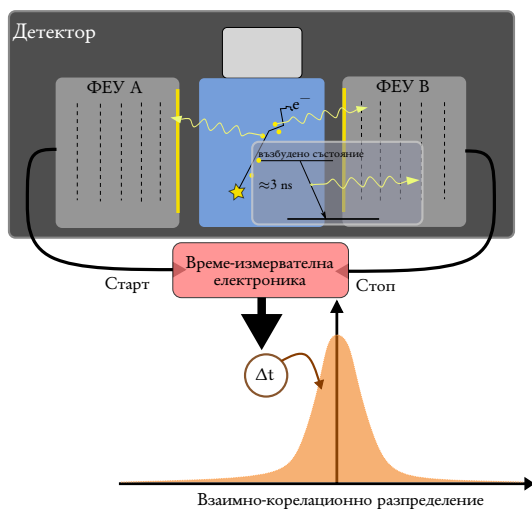
ФИГУРА 2.4: Сравнение между CDT и IDT алгоритмите за броене, чрез анализ на Монте Карло генерирани серии от данни.

на източниците получени след прилагането на двете логики. Това се дължи на вероятността за погрешно класифициране на тройни събития като двойни от IDT логиката. Резултатите от това изследване са публикувани в статия в списание *Applied Radiation and Isotopes* [17].

За целите на това изследване беше разработен софтуер за анализиране на данни от цифровизатор на сигнали CAEN DT5751. Компютърната програма може да прилага IDT и CDT алгоритмите, както и да снима хистограми на разпределението на сцинтилационните събития във времето. Програмата е използвана многократно във всички последващи измервания проведени с цифровизатора на импулси.

ПОРАДИ крайното време на живот на възбудените състояния на флуоресцентните молекули, сцинтилационните фотони се излъчват в различни моменти от време спрямо момента на радиоактивното разпадане. Времето на излъчване на всеки един фотон обаче е непознат, поради стохастичната природа на радиоактивните разпадания. Това което може да бъде измерено в една течно-сцинтилационна система е разпределението на интервалите от време между сигналите от две ФЕУта – единият от които задава стартовия сигнал, а другият крайния. Тъй като разликата между две случайни величини се дава от операцията взаимна-корелация (cross-correlation), ще наричаме това разпределение „взаимно-корелационно“. Основната цел в тази глава е извеждането на аналитичен израз за взаимно-корелационното разпределение.

Взаимно-корелационното разпределение се дефинира за система с две ФЕУта работещи в схема на съвпадение. Величината която представлява интерес е разпределението на времевите интервали между първите регистрирани събития (първични събития) във всяко ФЕУ в даден прозорец на съвпаденията. Експерименталното получаване на взаимно-корелационното разпределение е показано схематично на [Фигура 3.1](#).



ФИГУРА 3.1: Схематична илюстрация на получаването на взаимно-корелационното разпределение. Стойността на Δt се дава с $\Delta t = t_A - t_B$, където t_A и t_B са времената на детектиране на първичните събития във ФЕУта А и В.

Аналитичното взаимно-корелационно уравнение се основава на две основни предположения. Първото предположение е, че вероятността да наблюдаваме фотон в даден момент от време след преминаването на йонизиращата частица през средата намалява експоненциално с времето. Това предположение е изпълнено за еднокомпонентни сцинтилатори, но при двукомпонентни сцинтилатори е възможно да има непренебрежимо време на нарастване на сцинтилационния сигнал. Въпреки това, приближението се приема за адекватно с цел опростяване на уравненията. Второто предположение което е направено за да се изведе взаимно-корелационното разпределение е, че отклика на ФЕУ е гаусов с дадено средно и стандартно отклонение, които не зависят от броя регистрирани фотони във дадено ФЕУ. Това предположение не би било изпълнено освен ако не се използва блок за привързване по време (*constant fraction дискриминатор*).

В основата на извеждането на разпределението е изразяването на вероятността за пристигане във време t на първия от n общо регистрирани фотона в едно ФЕУ. Тя е равна на вероятността някой от фотоните да бъде регистриран във време t и всички останали $n - 1$ фотона да бъдат регистрирани в по-късен момент. Друга основна част от извеждането на уравнението е представянето на времевия интервал между първичните събития в двете ФЕУта като взаимно-корелацията между времеви им отклик. Важна част представлява и отчитането на това, че при общо n регистрирани фотона в двете ФЕУта, k от тях са регистрирани от едното, а $n - k$ от другото, като разпределението на k за дадено n се дава от биномното разпределение.

3.1 ПЪЛНА ФОРМА НА ВЗАИМНО-КОРЕЛАЦИОННОТО РАЗПРЕДЕЛЕНИЕ

Пълната форма на взаимно-корелационното разпределение, при наложените начални предположения, се дава с:

$$D(\Delta t; \varphi, \lambda, \varepsilon_A, \varepsilon_B, \mu, \sigma) = \frac{1}{L} \underbrace{\int_0^{E_{\max}} S(E)}_{\text{Енергиен спектър}} \underbrace{\sum_2^{\infty} \frac{(\bar{n}(E; \varphi))^n}{n!} e^{-\bar{n}(E; \varphi)}}_{\text{Поасонова статистика}} \sum_{k=1}^{n-1} \underbrace{\binom{n}{k} \varepsilon_A^k \varepsilon_B^{n-k}}_{\text{Комбинаторен член}} \underbrace{\Xi(\Delta t; n, k, \lambda, \mu, \sigma)}_{\text{Взаимна-корелация}} dE, \quad (3.1)$$

където E_{\max} е максималната енергия в спектъра на депозираната енергия $S(E)$, μ е разликата в закъсненението на двете ФЕУ, а σ е квадратичната сума на стандартното отклонение на гаусовия времеви отклик на двете ФЕУта. L е нормализационен

коэффициент, равен на сумата от вероятностите за всички регистрирани събития, като:

$$L = \int_0^{E_{\max}} S(E) \sum_2^{\infty} \frac{(\bar{n}(E; \varphi))^n}{n!} e^{-\bar{n}(E; \varphi)} \sum_{k=1}^{n-1} \binom{n}{k} \varepsilon_A^k \varepsilon_B^{n-k} dE. \quad (3.2)$$

Нормализацията е необходима, тъй като събития с по-малко от един регистриран фотон за ФЕУ няма да доведат до съвпадение и няма да бъдат детектирани. Поасоновото разпределение отчита вероятността да получим n детектирани фотона при дадено разпадане ако има средно \bar{n} детектирани фотона за дадена енергия. Средния брой детектирани фотони \bar{n} спрямо отдадената в коктейла енергия E се дава с:

$$\bar{n}(E; \varphi) = EQ(E)\varphi, \quad (3.3)$$

където $Q(E)$ е фактор, който отчита йонизационното гасене и зависи от енергията на частицата, както и от спиращната способност на частиците в сцинтилатора. Параметърът φ наричаме събирателна способност (в литературата на английски език се използва *Figure of Merit*) и е равен на средния брой детектирани фотони за keV ефективна отдадена в сцинтилатора енергия, т.е., след отчитане на йонизационното гасене. Функцията на йонизационното гасене се дава с полу-емпиричната формула на Бъркс [7]:

$$Q(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \frac{dE}{1 + kB(dE/dx)}, \quad (3.4)$$

където dE/dx е спиращната способност на частицата, а kB е параметъра на Бъркс, който е специфичен за използвания сцинтилатор.

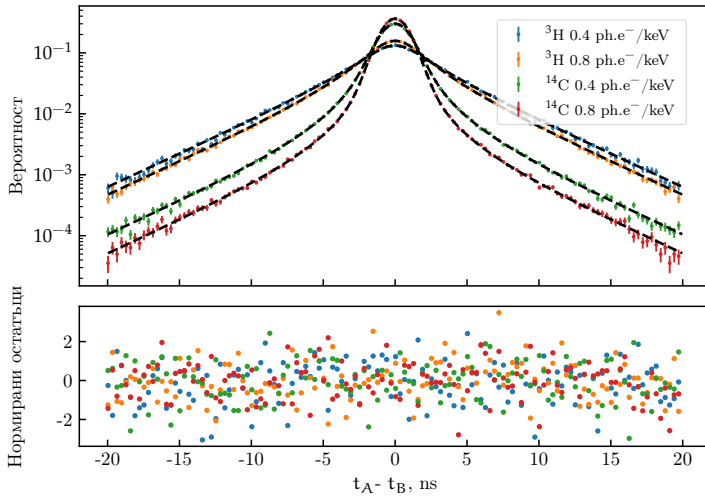
Взаимно-корелационният член $\Xi(\Delta t)$ дава вероятността за дадено Δt между първите фотони от k детектирани фотона в едното ФЕУ и $n - k$ детектирани фотона в другото ФЕУ. Експлицитно, той се дава с:

$$\Xi(\Delta t; n, k, \lambda, \mu, \sigma) = \frac{1}{n} \left(k \text{EMG}_{AB}(\Delta t; (n-k)\lambda, \mu, \sigma) + (n-k) \text{EMG}_{BA}(-\Delta t; k\lambda, -\mu, \sigma) \right), \quad (3.5)$$

където erfc е комплементарната функция на грешката, а EMG означава експоненциално модифицираното гаусово разпределение, което е конволюция между експоненциално и гаусово разпределение и има формата:

$$\text{EMG}(\Delta t; \tau, \mu, \sigma) = \frac{\tau}{2} e^{\frac{\tau}{2}(2\mu + \tau\sigma^2 - 2\Delta t)} \text{erfc} \left(\frac{\mu + \tau\sigma^2 - \Delta t}{\sqrt{2}\sigma} \right). \quad (3.6)$$

Валидността на уравнение (3.1) е потвърдена, чрез сравнение с Монте Карло генерирано взаимно-корелационно разпределение при същите параметри които са



Фигура 3.2: Взаимно-корелационни разпределения на ^{14}C и ^3H симулирани използвайки Монте Карло кода за две различни стойности на φ . Точките са Монте Карло генерирани данни, а линиите са получени с уравнение (3.1).

зададени в уравнението. Сравнението е проведено за симулации на ^3H и ^{14}C при две различни стойности на събирателната способност φ и е показано на [Фигура 3.2](#).

Един от параметрите които определят взаимно-корелационното уравнение е събирателната способност. Ако константата на намаляване на сигнала на сцинтилатора λ и параметрите на отклика на системата (μ, σ, ε) са познати, тогава φ е единственият свободен параметър. Ако изведеният модел описва добре времевите свойства на регистрираните сцинтилационни събития, то тогава φ може да бъде определено от експериментално полученото взаимно-корелационно разпределение. Събирателната способност φ е важна, тъй като тя позволява да се пресметне ефективността за регистрация на система от 2 ФЕУ-та посредством свободно-параметричния модел [18]:

$$\Phi_{AB} = \int_0^{E_{\max}} S(E) \left(1 - e^{-\frac{\bar{n}(E;\varphi)}{2}}\right)^2 dE, \quad (3.7)$$

Свободно-параметричният модел също така дава връзка между средния брой детектирани фотони \bar{n} и φ :

$$\bar{n} = \int_0^{E_{\max}} S(E) EQ(E)\varphi dE. \quad (3.8)$$

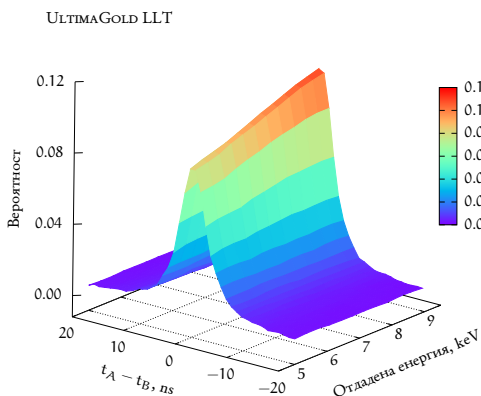
Следователно, ако познаваме средният брой детектирани фотони или параметъра φ , активността на дадена проба може да бъде пресметната.

3.2 ПРИЛОЖЕНИЕ НА ВЗАИМНО-КОРЕЛАЦИОННОТО РАЗПРЕДЕЛЕНИЕ

По-горе беше показано, че формата на взаимно-корелационното разпределение зависи от средния брой детектирани фотони и от спектъра на депозираната в сцинтилатора енергия. Това става особено ясно на [Фигура 3.2](#), където е показано разпределението, пресметнато в случая на ^3H и ^{14}C за две различни стойности на събирателната способност. От тези наблюдения изглежда разумно да изследваме възможността да пресметнем ефективността за регистрация за дадено измерване изследвайки взаимно-корелационното разпределение. Тази възможност е изследвана в Глава 6 в дисертационния труд. Тук ще представим кратък обзор на проведените експерименти и получените резултати.

Като първоначално изследване са измерени чисти проби (без радиоактивност) от комерсиалните сцинтилационни коктейли UltimaGold, UltimaGold LLT и HionicFluor, както и проба Toluene + PPO + POPOP. Пробите са изследвани с компютърен спектрометър, който позволява получаването на зависимостта на светлинния добив на сцинтилатора като функция на отдадената енергия. С негова помощ, също така, може да се получи и взаимно-корелационното разпределение за моноенергетични електрони с различни енергии.

Резултатите от така изследвана проба UltimaGold LLT са показани на [Фигура 3.3](#). На фигурата се вижда ясна зависимост на височината на разпределението от депозираната енергия. Тъй като при по-висока отдадена енергия нараства и средния брой детектирани фотони, то тогава височината на разпределението може да бъде смятана за индикатор на количеството събрана светлина. От своя страна, това следва, че вероятно е възможно да свържем височината на взаимно-корелационното разпределение с ефективността за регистрация.

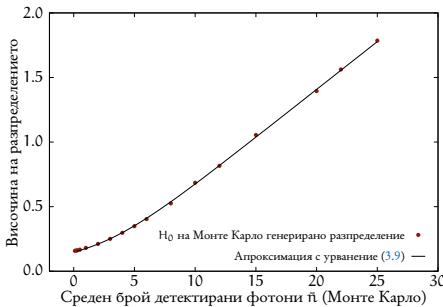


ФИГУРА 3.3: Взаимно-корелационното разпределение $D(\Delta t)$ на UltimaGold LLT течно-сцинтилационен коктейл получен с компютърен спектрометър.

Така височината представлява интересен параметър, който е възможно да бъде използван за охарактеризиране на цялото разпределение, т.е., извън фундаменталните параметри: λ , σ , μ , и др. В дисертационния труд е изведено аналитично уравнение което свързва височината на взаимно-корелационното уравнение с фундаменталните параметри, при опростени приближения. Приближенията са в случай на моноенергетични частици и отсъствие на гаусов отклик на системата. За височината на разпределението в такъв случай получаваме следният израз:

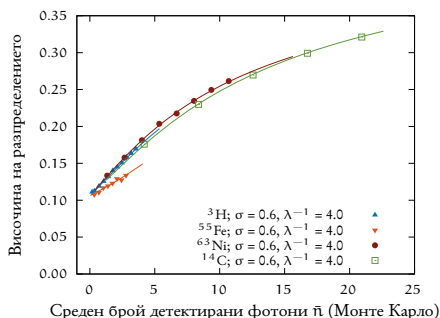
$$H_0 = \frac{\varepsilon(1 - \varepsilon)\lambda(\bar{n} + e^{-\bar{n}} - 1)}{e^{-\bar{n}} - e^{-\bar{n}\varepsilon} - e^{-\bar{n}(1-\varepsilon)} + 1} \quad (3.9)$$

Монте Карло кодът е използван за генериране на серия взаимно-корелационни разпределения при различен брой детектирани фотони, с цел визуализация на уравнението и изследване на ефекта на промяна на средния брой детектирани фотони върху височината на разпределението. Резултатите са показани на [Фигура 3.4](#). От фигурата се вижда, че при достатъчно голям брой регистрирани фотони височината на разпределението зависи линейно от детектираната светлина. Също така, при среден брой детектирани фотони клонящ към нула, височината на разпределението клони към не-нулева стойност, която съответства на височината на разпределението при само по един регистриран фотон във всяко ФЕУ.



ФИГУРА 3.4: Височина на Монте Карло генерирано взаимно-корелационно разпределение без гаусов отклик на ФЕУ-тата. Линията е пресметната аналитично чрез уравнение (3.9).

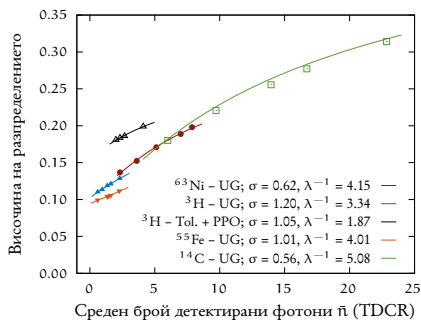
Полученото аналитично уравнение е важна първа стъпка, но то е валидно за твърде опростен случай и не представлява практически интерес. Въпреки това, пресмятането на зависимостта на височината H_0 от параметрите на взаимно-корелационното уравнение е възможно чрез числени методи. Можем да пресметнем $D(\Delta t = \mu; \varphi, \lambda, \varepsilon, \sigma, \mu)$ за набор от параметри φ и след което да интерполираме данните. Това е илюстрирано на [Фигура 3.5](#), където Монте Карло кода е използван за генериране на набор от измервания за ${}^3\text{H}$, ${}^{55}\text{Fe}$, ${}^{14}\text{C}$ и ${}^{63}\text{Ni}$ при множество различни параметри на събирателната способност. Останалите параметри на разпределението са фиксирани. Това което се наблюдава от [Фигура 3.5](#) е, че ако параметрите на взаимно-корелационното уравнение за дадена проба са известни (спектър, константа на спадане на сцинтилационната светлина, гаусов отклик на детектора), то тогава би било възможно да се



ФИГУРА 3.5: Височина на взаимно-корелационни разпределения като функция на средния брой детектирани фотони. Данните са генерирани с Монте Карло код, а линиите са пресметнати от аналитичното уравнение при същите параметри и $\Delta t = \mu$.

направи връзка между височината на разпределението и средния брой детектирани фотони.

За да се изследва допълнително връзката между височината на разпределението и средния брой фотони, бяха измерени взаимно-корелационните разпределения на източници ^{55}Fe , ^3H , ^{63}Ni и ^{14}C . Тези нуклиди са избрани за да предоставят широк набор от среден брой детектирани фотони и ефективности за регистрация. Всеки от източниците е измерен също така и с набор от сиви оптични филтри, които имат за цел да намаляват ефективността за регистрация. По този начин се симулират източници с различен светлинен добив. Резултатите от изследването са показани на [Фигура 3.6](#).



ФИГУРА 3.6: Височина на взаимно-корелационното разпределение като функция на средния брой детектирани фотони. Апроксимацията е направена с аналитичното уравнение (3.1) при $\Delta t = \mu$ за да се определят оптималните λ и σ параметри.

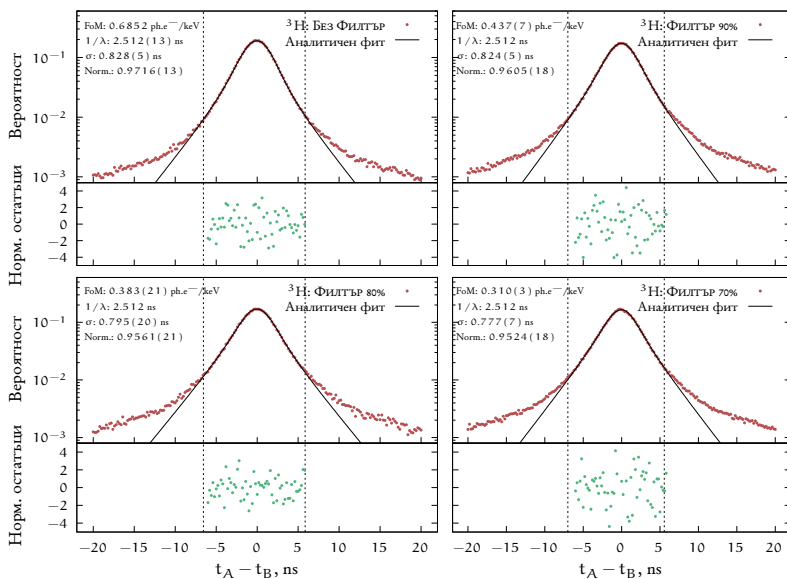
Експерименталните резултати показват, че за малък среден брой детектирани фотони \bar{n} , височината на взаимно-корелационното разпределение H_0 , зависи почти линейно от \bar{n} . За големи \bar{n} , отклика на детектора води до нелинейно поведение. Истинската зависимост може да бъде намерена числено като се фиксира $\Delta t = \mu$ в уравнение (3.1) и се варират параметрите λ и σ . Тук трябва да се отбележи, че оптималните параметри λ и σ изглежда съответстват на някои очаквания за тези стойности. Например, оптималната константа на спадане на сигнала от сцинтилатора за Toluene+PPO е 1.87 ns^{-1} , значително по-малко от $\approx 4 \text{ ns}^{-1}$ определено за

UltimaGold. Това е очаквано, тъй като толуеновият коктейл е много по-бърз и неговата λ се очаква да е около 2 ns^{-1} . Друго наблюдение е, че оптималните σ параметри за ^{63}Ni и ^{14}C са по-ниски от тези за ^3H и ^{55}Fe . Това също е очаквано, тъй като по-големите сигнали на изхода на ФЕУ предизвикани от първите два нуклида ще доведат до по-точно привързване по време от цифровизатора на импулси. Резултатите показват, че, знаейки константата на спадане на сигнала от сцинтилатора λ и параметрите на детектора (ϵ, μ, σ), би било възможно определянето на средния брой детектирани фотони \bar{n} . От този резултат директно може да бъде пресметната ефективността за регистрация и активността на пробата.

ВЗАИМНИ КОРЕЛАЦИИ И TDCR ИЗМЕРВАНИЯ Както взаимно-корелационния, така и TDCR метода позволяват определянето на събирателната способност в дадено измерване. За прилагането на TDCR метода е нужен детектор с три ФЕУ, а за взаимно-корелационния метод – с два. Директен начин за получаване на параметрите на измерването φ, λ, σ и μ чрез взаимно-корелационния метод е да се апроксимира експериментално полученото разпределение с функцията $D(\Delta t; \varphi, \lambda, \epsilon_A, \epsilon_B, \mu, \sigma)$ дадена експлицитно в уравнение (3.1). Една трудност при взаимно-корелационния метод, обаче, идва от параметрите φ и λ , които са силно корелирани. Поради това се налага фиксирането на правилния параметър λ за получаване на правилната събирателна способност φ . Фиксирането на λ може да стане чрез измерване на взаимно-корелационно разпределение при известна събирателна способност, например, получена по TDCR метода.

За да се сравнят двата метода беше използван miniTDCR детектора наличен във Физически Факултет на Софийски Университет. Изходите на детектора са свързани към CAEN DT5751 цифровизатор на импулси. Анализът на данните позволява прилагането както на TDCR, така и на взаимно-корелационния метод на един и същ набор от данни. По този начин, определените по двата метода събирателни способности могат да бъдат сравнени директно и на теория трябва да бъдат точно еднакви. С тази система бяха измерени проби ^3H и ^{14}C в Toluene+PPO сцинтилатор. И двете проби бяха измерени с и без сиви филтри с прозрачност между 90% и 60%. Използването на сивите филтри позволява промяната на φ без променяне на параметрите свързани с точно-сцинтилационния коктейл и радионуклида. Събирателната способност при измерването без филтър е определена при анализ на данните посредством TDCR метода. Получената стойност е използвана за намиране на параметъра λ за дадената проба, която след това е използвана за апроксимиране на останалите взаимно-корелационни разпределения.

Като пример можем да разгледаме тритиевите измервания, като същата техника е използвана и в случая на ^{14}C . Взаимно-корелационното разпределение на ФЕУ В и С са получени с програма за обработка на данни от цифровизатор на импулси, разработена в рамките на дисертацията. Тук трябва да се отбележи, че събирателната способност на двойка ФЕУ, например В и С, е $\varphi_{BC} = \varphi(\epsilon_B + \epsilon_C)$, където φ е събирателната способност от TDCR измерването. Експерименталните разпределения са



ФИГУРА 3.7: взаимно-корелационно разпределение на ${}^3\text{H}$ с различни нива на сиви филтри. Спектрите са апроксимирани с уравнение (3.1). Нормираните остатъци са в единици на стандартни отклонения.

апроксимирани с уравнение (3.1), като при измерването без филтър е фиксирана събирателната способност $0.685 \text{ ph.e}^-/\text{keV}$ получени от TDCR метода. Всички останали параметри са оставени да варират свободно. Апроксимацията е извършена в интервала $\pm 6 \text{ ps}$, тъй като взаимно-корелационното разпределение зависи значително от забавената флуоресценция извън този интервал. Резултатите от експеримента са показани на [Фигура 3.7](#). Качеството на апроксимацията е добро и повечето остатъци лежат в рамките на две стандартни отклонения. От първото измерване е получена реципрочната стойност на параметъра λ , $1/\lambda = 2.512(13) \text{ ns}$. Тази константа е използвана при останалите измервания на пробата с филтри. Същият анализ е направен и за измерванията на пробата ${}^{14}\text{C}$.

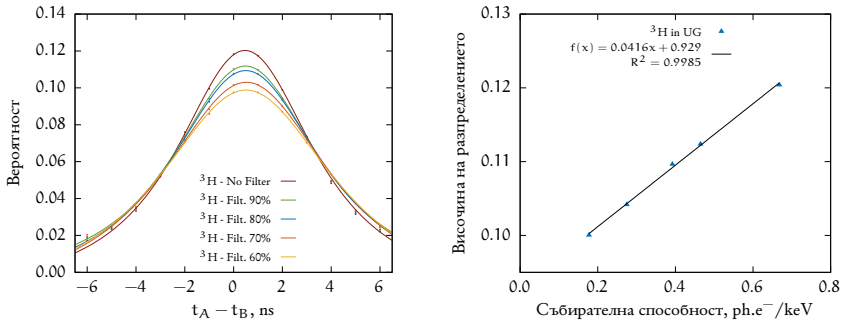
В [Таблица 3.1](#) е показано сравнение между събирателните способности получени по двата метода – TDCR и взаимно-корелационни измервания. Получените параметри се съгласуват добре в рамките на оценените неопределености. Резултатите сочат, че с добро познание на константата на спадане на сигнала от сцинтилатора λ , взаимно-корелационният метод дава добра оценка на събирателната способност. Тук трябва да се отбележи, че неопределеността на събирателната способност по взаимно-корелационния метод е само неопределеността получена от минимизационния алгоритъм и за коректното използване на метода е необходимо да се развие

^3H : φ , $\text{ph.e}^-/\text{keV}$			^{14}C : φ , $\text{ph.e}^-/\text{keV}$		
Филтър	вз-кор.	TDCR	Филтър	вз-кор.	TDCR
Без	—	0.685(20)	Без	—	0.326(6)
90%	0.437(7)	0.434(13)	80%	0.254(6)	0.267(4)
80%	0.383(21)	0.370(11)	70%	0.229(9)	0.233(4)
70%	0.310(3)	0.312(9)	60%	0.201(8)	0.191(3)

ТАБЛИЦА 3.1: Сравнение на събирателната способност получена по взаимно-корелационния и TDCR метода при измервания с различни нива на прозрачност на сиви филтри за източници ^3H и ^{14}C .

пълен бюджет на неопределеностите. Това начинание е извън обсега на сегашното изследване и ще бъде разгледано в бъдеще.

ВЗАИМНИ КОРЕЛАЦИИ И КОНВЕНЦИОНАЛНИ ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННИ ИЗМЕРВАНИЯ Представените в предните два раздела методи показват потенциал за първични измервания на радиоактивност без нуждата от калибрационни измервания. Това би било възможно ако параметрите на измервателната система и коктейля са добре познати предварително. От друга страна, методите използват сложни пресмятания, които не биха били практични за всички приложения. Поради това е смислено да се потърси по-проста връзка между взаимно-корелационните параметри и ефективността за регистрация. Такава връзка вече беше обсъдена – височината на разпределението и събирателната способност.

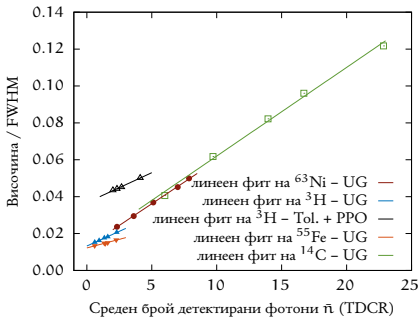


ФИГУРА 3.8: Взаимно-корелационни изследвания на ^3H в UltimaGold.

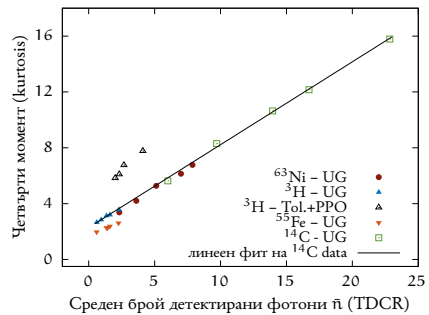
В по-опростен случай можем да разглеждаме височината на взаимно-корелационното разпределение като функция на събирателната способност. За целта са измерени проби ${}^3\text{H}$ и ${}^{55}\text{Fe}$ в UltimaGold коктейл. Височината на взаимно-корелационното разпределение е оценена чрез апроксимация с профил на Фойхт (Voigt) в интервала ± 3 ns. Функцията е избрана, тъй като описва разпределението добре в този интервал и също така е често срещана и може да бъде намерена в много софтуери за апроксимиране.

На **Фигура 3.8** (вляво) е показано взаимно-корелационното разпределение в случая на тритиевата проба измерена с и без сиви филтри. Събирателната способност при всяко измерване е намерена използвайки TDCR метода. Връзката между височината и събирателната способност е показана на същата фигура (вдясно). Сходни резултати са получени и за източник ${}^{55}\text{Fe}$ в същия сцинтилационен коктейл. Наблюдава се отлична линейна зависимост между N_0 и събирателната способност и за двата нуклида. Трябва да се отбележи, че линейността се запазва за много широк интервал от събирателни способности, които отговарят на голяма част от наблюдаваните в практиката.

Линейната зависимост може да бъде много полезна на практика, като, например, може да бъде разработен метод при който калибровъчен източник в даден течност-сцинтилационен коктейл може да бъде измерен с редица филтри за да се получи зависимостта $N_0(\varphi)$. Тази зависимост може да бъде използвана за получаване на обратната функция $\varphi(N_0)$, с която, при дадена измерена височина на разпределението получаваме събирателната способност.



ФИГУРА 3.9: Нормираната височина на взаимно-корелационното разпределение като функция на средния брой регистрирани фотони.



ФИГУРА 3.10: Четвърти момент на взаимно-корелационното разпределение, като функция на средния брой детектирани фотони.

Линейната зависимост между събирателната способност и височината е установена само за ниско-енергийните ${}^{55}\text{Fe}$ и ${}^3\text{H}$. По-универсални зависимости са височината на разпределението нормирана върху пълната ширина на половината височина N_0/FWHM и четвъртият момент на разпределението *kurtosis* като функция на средния брой детектирани фотони \bar{n} . Нормираната височина и четвъртият момент за

взаимно-корелационните разпределения на пет течно-сцинтиляционни източници като функция на средния брой детектирани фотони бяха изследвани. Резултатите са показани на фигури 3.9 и 3.10.

От направените в настоящата дисертация изследвания следва, че взаимно-корелационните измервания предоставят възможността за определяне на ефективността за регистрация при дадено измерване. Това представлява нов подход в абсолютните измервания на активност. Получените до момента резултати са публикувани в [19].

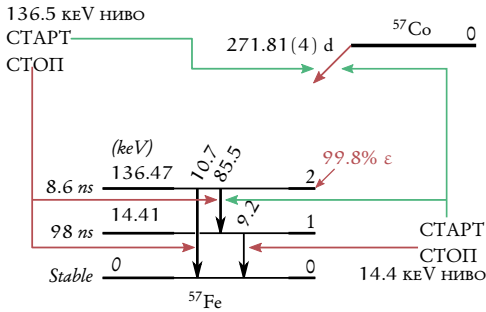
ИЗМЕРВАНЕ НА ПЕРИОД НА ПОЛУРАЗПАДАНЕ НА ЯДРЕНИ ВЪЗБУДЕНИ СЪСТОЯНИЯ ЧРЕЗ ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННИ ИЗМЕРВАНИЯ

ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННИТЕ детектори имат предимства пред други измервателни системи, като 4π геометрия и практически 100% ефективност за регистрация над 40 keV [20]. Поради тези качества, течно-сцинтилационните методи са подходящи за измервания на периоди на полуразпадане на радиоизотопи. В последните години, течно-сцинтилационното броене е използвано успешно за точно определяне на периодите на полуразпадане на множество нуклиди, като например, много дългоживеещите ^{147}Sm (1.08×10^{11} години) [21], ^{176}Lu (3.8×10^{10} години) [22] и ^{10}Be (1.4×10^6 години) [23] или краткоживеещите ^{212}Pb (10.64 h) [24] и ^{214}Po (3.7 μs) [25]. Измервателната техника позволява определяне на периоди на полуразпадане от няколко микросекунди до 10^{11} години. В настоящата работа е изследвана възможността да се определят периодите на полуразпадане на възбудени ядрени състояния. Основното предимство на течно-сцинтилационното броене в такъв случай е измерването на възбудени състояния у кратко живеещи нуклиди, където ниска ефективност за регистрация би довела до твърде дълга продължителност на измерванията. Също така, бързият отклик на фотоумножителите и органичните сцинтилатори водят до прецизно привързване на сигналите по време. Поради това, течната сцинтилация може да е полезен метод за измервания на периоди на полуразпадане в наносекундният регион.

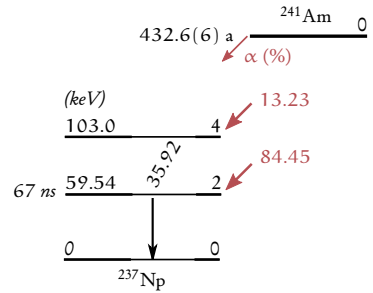
В проведените изследвания са измерени периодите на полуразпадане на 59.54 keV възбуденото състояние в ^{237}Np и на двете дългоживеещи състояния 14.417 keV и 136.47 keV в ядрото на ^{57}Fe . Опростени схеми на разпадане на двата нуклида са показани на фигури 4.1 и 4.2.

Измерванията на периодите на полуразпадане са направени върху две течно-сцинтилационни проби в UltimaGold коктейл, съдържащи водни разтвори съответно на ^{57}Co и ^{241}Am . Пробите са измерени с две измервателни системи. Първата е преносим TDCR брояч, разработен в LNE-LNHB¹ за първични измервания на радиоактивност на течно-сцинтилационни проби. Броячът разполага с три ФЕУ, както и CdTe детектор на рентгенови лъчи. Сигналите от всички четири канала се цифровизират от CAEN DT5751 цифровизатор на импулси, като данните от него са обработени с LIST_MODE_ANALYSIS софтуера. Втората измервателна система се състои само от два ФЕУ, гледащи течно-сцинтилационната проба от противоположни страни. И двата ФЕУ са свързани към същия цифровизатор и данните от тях са обработени по подобен начин. Целта на тази измервателна система е да се демонстрира възможността за определяне на периоди на полуразпадане без нуждата от γ детектор.

¹ Френският първичен метрологичен институт.



ФИГУРА 4.1: Опростена схема на разпадане на ^{57}Co . Показани са само преходи с интензитет над 0.2%. СТАРТ и СТОП сигналите използвани за изследване на двете нива също са означени. Данните и фигурата са адаптирани от [26].



ФИГУРА 4.2: Опростена схема на разпадане на ^{241}Am . Само преходи с интензитет над 3% са показани. Данните и фигурата са адаптирани от [26].

4.1 АНАЛИЗ НА ДАННИТЕ

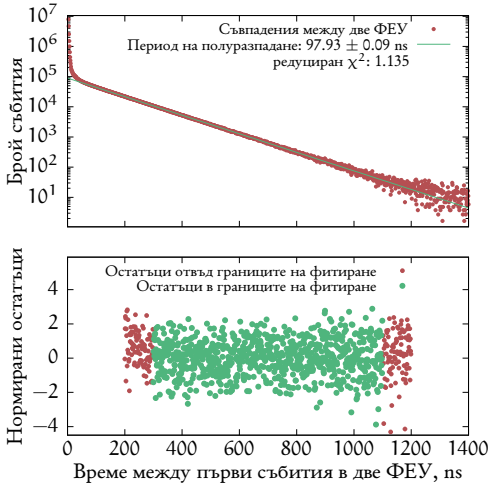
Получените времеви разпределения за измерените възбудени състояния са фитирани с не-линейния метод на най-малките квадрати (Левенберг-Маркард алгоритъм) използвайки софтуера `gnuplot` [27]. Стандартното отклонение на броя събития във всеки бин от хистограмите е пресметнато при предположение за Поасоново разпределение на броя на импулси в бина като корен-квадратен от броя им.

Времевите разпределения отговарящи на спадането на сигнала от трите възбудени състояния, които са обект на изследванията, са получени както при съвпадения между течния сцинтилатор и γ детектора (LS- γ), така и при съвпадения между сигналите от две ФЕУта (LS-LS).

4.2 ПЕРИОДИ НА ПОЛУРАЗПАДАНЕ НА СЪСТОЯНИЯТА В FE-57

Опростената схема на разпадане на ^{57}Co е показана на [Фигура 4.1](#). Поради ниската разделителна способност на течено-сцинтилационното броене и възможността за регистриране на не само γ -кванти, но и Ожé и конверсионни електрони, се налага разглеждането на много канали които допринасят за СТАРТ и СТОП сигналите в случая на LS-LS съвпадения.

За определянето на периода на полуразпадане на нивото 14.41 keV по метода на LS-LS съвпаденията е използван СТАРТ сигнал или от електронния захват на ^{57}Co или от $\gamma_{2,1}(\text{Fe})$ прехода (директно взаимодействие в коктейла, Ожé електрон или конверсионен електрон). Сигнал СТОП в този случай може да бъде нискоенергийно събитие от $\gamma_{(1,0)}(\text{Fe})$ прехода. Тъй като първото възбудено състояние е най-дългоживеещото, то, след достатъчен период от време след електронния захват, единственият сигнал който ще се наблюдава ще бъде от $1 \rightarrow 0$ прехода. Резултатите



ФИГУРА 4.3: LS-LS измервания на 14.4 keV нивото на ^{57}Fe . Стартовият сигнал е даден от нискоенергийно събитие в едно ФЕУ и нискоенергийно събитие в другото ФЕУ. Нормираните остатъци са в единици на стандартни отклонения.

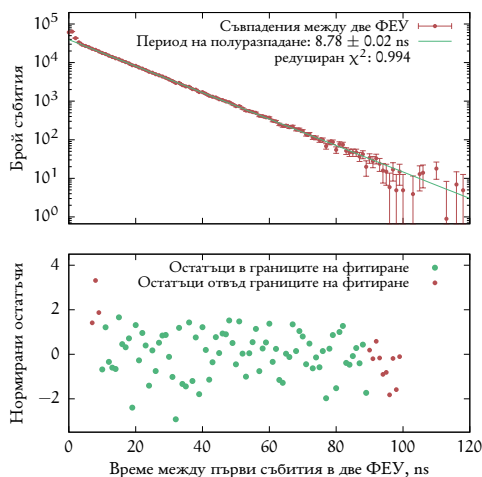
от изследването са показани на [Фигура 4.3](#). Полученият период на полуразпадане на състоянието е 97.93(9) ns.

Анализа на данните е значително опростен при LS- γ съвпаденията. В този случай стартовият сигнал е нискоенергийно събитие в течния сцинтилатор, а СТОП сигналът е 14.4 keV събитие в γ -детектора. Полученият, по този метод период на полуразпадане на състоянието е 97.8(28) ns. Поради много по-ниската ефективност за регистрация на γ детектора, статистиката на измерените събития е значително влошена, поради което е и високата неопределеност на определената стойност.

Особен интерес представлява второто възбудено състояние в ядрото ^{57}Fe , поради краткия си период на полуразпадане – от порядъка на 8 ns. Такива времена са недостижими за разделителната способност по време на γ детектора и измерването му може да бъде постигнато само с LS-LS съвпадения. За целта, като стартов сигнал са използвани нискоенергийни събития, а за СТОП сигнал: 122 – 136 keV събитията идващи от $2 \rightarrow 1$ и $2 \rightarrow 0$ преходите. Резултатите от LS-LS съвпаденията са показани на [Фигура 4.4](#). Бързината на LS-LS техниката позволява изучаването на 9.7 периода на полуразпадане за това състояние. Получената стойност е 8.78(2) ns.

4.3 ИЗСЛЕДВАНЕ НА НИВОТО 59.54 KEV НА NP-237

^{241}Am се разпада чрез излъчване на α -частица до кратко живеещото изомерно състояние на ^{237}Np с 84.45% вероятност. Опростената схема на разпадане е дадена на [Фигура 4.2](#). Периода на полу-разпадане на изомерното състояние е измерен както по метода на LS-LS съвпаденията, така и по LS- γ съвпаденията. Метода на анализ е идентичен на този при изследванията на състоянията в ^{57}Fe . В случая на LS- γ



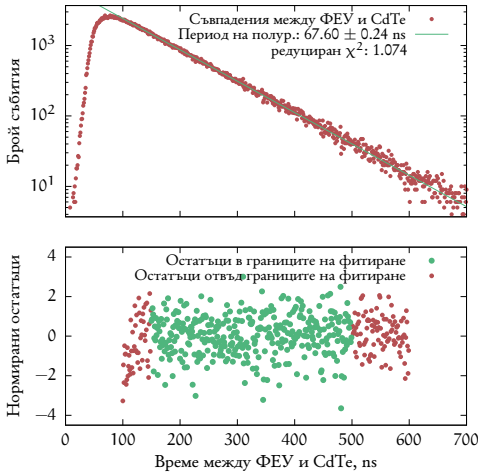
ФИГУРА 4.4: Измерване на периода на полуразпадане на 136.5 keV нивото на ^{57}Fe чрез LS-LS съвпадения. Нормираните остатъци са дадени в брой стандартни отклонения.

съвпаденията е използван α прехода, детектиран от сцинтилационния детектор, като стартов сигнал, а сигнал в 59.54 keV пика в γ детектора като СТОП. В случая на LS-LS съвпадения е използвано високоенергийно събитие отчетено в едното ФЕУ като СТАРТ и нискоенергийно събитие в другото ФЕУ като стоп. Кривата на намаляване за LS- γ съвпаденията е показана на [Фигура 4.5](#). Полученият период на полуразпадане по този метод е 67.60(24) ns. Поради кратката продължителност на измерването при LS-LS съвпаденията, полученият период на полуразпадане е с по-висока неопределеност: 66.80(70) ns. Въпреки това, получените по двата метода стойности се съгласуват добре, в рамките на оценените неопределености.

4.4 КРАЙНИ РЕЗУЛТАТИ ОТ ИЗСЛЕДВАНИЯТА НА ПЕРИОДИТЕ НА ПОЛУРАЗПАДАНЕ

Крайните стойности за периодите на полуразпадане на двете състояния в ^{57}Fe и едното в ^{237}Np са показани на [Таблица 4.1](#). Неопределеностите са оценени след отчитане на различни фактори, които допринасят към тях. Поради ниския брой регистрирани събития в случая на LS-LS съвпаденията за ^{237}Np и LS- γ съвпаденията за ^{57}Fe , тези стойности не са включени в крайния резултат.

В резултат от изследванията са получени периоди на полуразпадане на 14.4 keV и 136.5 keV състоянията на ^{57}Fe , както и 59.54 keV състоянието на ^{237}Np . Измерванията са проведени както с LS-LS, така и с LS- γ съвпадения. Получената стойност за периода на полуразпадане на изомерното състояние на ^{237}Np 67.60(25) ns е в добро съответствие с вече публикувани данни, но с по-ниска неопределеност. Периодът на полуразпадане на 14.4 keV нивото на ^{57}Fe е 97.9(3) ns, което е в съответствие с



ФИГУРА 4.5: Измерване на периода на полуразпадане на нивото 59.54 keV на ^{237}Np чрез LS- γ съвпадения.

ТАБЛИЦА 4.1: Измерени периоди на полу-разпадане и бюджет на неопределеностите. Стойностите за неопределеността са стандартните неопределености.

	136.5 keV ^{57}Fe	14.4 keV ^{57}Fe	59.5 keV ^{237}Np
Неопределеност от фит	0.22%	0.13%	0.33%
Корекция за случайни съвпадения	0.25%	0.15%	0.15%
Граници на фита	0.22%	0.24%	0.10%
Принос от по-високо лежащи състояния	$\leq 0.01\%$	0.05%	—
Избор на канали в спектъра	0.10%	0.25%	$\leq 0.01\%$
Обща неопределеност	0.41%	0.40%	0.37%
Краен резултат	8.780(40) ns	97.90(40) ns	67.60(25) ns

някои от публикуваните данни. Данните в литературата за това ниво не се съгласуват добре помежду си и новият резултат получен тук води до отхвърлянето на някои предишни резултати като недостоверни. Периода на полуразпадане на 136.5 keV нивото на ^{57}Fe също е измерен чрез LS-LS съвпадения и резултатът е 8.78(4) ns, което е в съответствие с публикуваните данни, но също така дава голямо подобрене в неопределеността на измерването.

Изследванията ползват, че течната сцинтилация може да бъде полезен уред за по-точни измервания на някои периоди на полуразпадане. Методът е показан като приложим за периоди на полуразпадане до 8 ns. Резултатите представени в тази глава са публикувани в *Applied Radiation and Isotopes* [28].

ЗА прилагането на TDCR метода са нужни течено-сцинтилационни броячи с три ФЕУ, както и електроника със схеми на съвпадение, която да прилага удължаващо се мъртво време. Както при всички системи работещи в съвпадение, така и при TDCR броячите, съществува възможността две или повече независими събития, които не са предизвикани от една йонизираща частица, да се случат в един и същи прозорец на съвпаденията, което би довело до *случайно съвпадение*. В миналото случайните съвпадения често са били игнорирани, обикновено поради кратките прозорци на съвпадение които се ползват в TDCR измервания (≈ 40 ns). Друг метод за намаляване на тяхното влияние е да се измерват източници с относително ниска активност.

Поради революцията в областта на цифровата електроника стана възможно и използването на по-дълги и избрани от потребителя прозорци на съвпадения. Като ефект се наблюдава нарастването на броя на системи използващи бързи цифровизатори на импулси [29] или FPGA-базирани устройства [16, 30, 31]. Също така има и стремеж към разработване и внедряване на миниатюрни TDCR броячи, чиято цел са измервания на място на радиоактивни източници за медицински цели или за целите на ядрената енергетика [32, 33]. В такива случаи, активността на пробите може да бъде много висока и случайните съвпадения не могат да бъдат пренебрегнати.

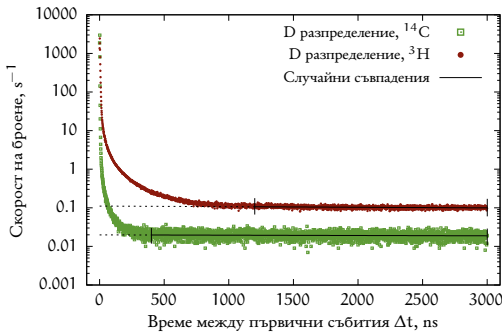
В тази глава на дисертацията са представени два метода за определяне на случайните съвпадения в TDCR измервания, единият от които е изцяло аналитичен. Изведените аналитични уравнения могат да бъдат използвани при всеки съществуващ TDCR брояч, стига той да предоставя информация за скоростта на броене в единичните, двойните и тройните канали. Методите и уравненията са валидирани посредством изкуствено генерирани данни използвайки Монте Карло подход.

5.1 МЕТОДИ ЗА ОЦЕНКА НА СЛУЧАЙНИТЕ СЪВПАДЕНИЯ

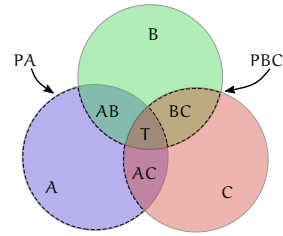
Първият разработен метод за оценка на случайните съвпадения се основава на анализа на зависимостта на скоростта на броене в каналите на съвпадения от широчината на прозореца на съвпадения. Основната идея е, че ако разгледаме разпределението в областта в която всички истински съвпадения са регистрирани, то това, което се наблюдава е само приносът на случайните съвпадения. Идеята е илюстрирана на [Фигура 5.1](#), чрез времевото разпределение на източници ^3H и ^{14}C .

Пълното времево разпределение на събитията f_{tot} може да се представи като сумата на разпределението на истинските събития f_{tc} и разпределението на случайните съвпадения:

$$f_{\text{tot}}(t) = f_{\text{tc}}(t) + a_0 e^{-\lambda t}, \quad (5.1)$$



ФИГУРА 5.1: Времени разпределения в D канала при измерване на ^3H и ^{14}C . Средната стойност на съвпаденията между некорелирани събития е показано с плътна черна линия.



ФИГУРА 5.2: Вен диаграма на некорелираните и корелираните канали на съвпадения. Областите означени с PA и PBC са оградени от шриховани линии.

където α_0 е скоростта на броене на случайните съвпадения във време $t = 0$, а λ е скоростта на броене на събития в канала на съвпадения. Времето разпределение на случайните съвпадения е експоненциално, ако разглеждаме времето на детектиране на некорелирани сцинтилационни фотони като Пуасонов процес. Параметрите на уравнението можем да получим фигурайки разпределението върху експериментално получените данни, както е направено във [Фигура 5.1](#).

Експерименталния метод за оценка на случайните съвпадения има предимството, че не налагаме условия за неговата валидност. Недостатък представлява нуждата от използването на относително сложна електроника за да се получи времето разпределение на регистрирани събития. Поради това беше нужно и разработването на аналитичен подход към оценката на случайните съвпадения.

Аналитичния метод за оценка на случайните съвпадения се основава на анализа на условните вероятности за времеви съвпадения между некорелирани събития. Тъй като в конвенционалните TDCR измервания всички канали на съвпадение са корелирани помежду си, се налага дефинирането на нов набор от канали, които се състоят само от “чисти” съвпадения. Разликата между корелираните и некорелираните TDCR канали е показана схематично на [Фигура 5.2](#).

Скоростите на броене p_i в новоконструирани некорелирани канали може да бъде оценена, чрез уравнения (5.2). С n_i са означени скоростите на броене в до сега използваните канали на съвпадения. Така скоростите на броене на случайните

съвпадения α_i при прозорец на съвпадения с дължина τ може да бъде пресметнат чрез уравнения (5.3).

$$\begin{aligned}
 p_A &= n_A - n_{AC} - n_{AB} + n_T & \alpha_{AB} &= [2(p_A p_B + p_A p_{BC} + p_B p_{AC} + p_{AC} p_{BC}) \\
 p_B &= n_B - n_{AB} - n_{BC} + n_T & &+ (p_S + p_D - p_{AB})(p_{AB} + p_T)]\tau \\
 p_C &= n_C - n_{AC} - n_{BC} + n_T & \alpha_{BC} &= [2(p_B p_C + p_B p_{AC} + p_C p_{AB} + p_{AB} p_{AC}) \\
 p_{AB} &= n_{AB} - n_T & &+ (p_S + p_D - p_{BC})(p_{BC} + p_T)]\tau \\
 p_{BC} &= n_{BC} - n_T & \alpha_{AC} &= [2(p_A p_C + p_A p_{BC} + p_C p_{AB} + p_{AB} p_{BC}) \\
 p_{AC} &= n_{AC} - n_T & &+ (p_S + p_D - p_{AC})(p_{AC} + p_T)]\tau \\
 p_S &= n_S - n_D & \alpha_D &= [2(p_A p_B + p_B p_C + p_C p_A) + p_S(p_D + p_T)]\tau \\
 p_D &= n_D - n_T & \alpha_T &= [2(p_A p_{BC} + p_B p_{AC} + p_C p_{AB}) + (p_S + p_D)p_T \\
 p_T &= n_T & &+ 2(p_{BC} p_{AB} + p_{AC} p_{BC} + p_{AC} p_{AB})]\tau
 \end{aligned}
 \tag{5.2}$$

(5.3)

Уравнения (5.2) и (5.3) представляват голям принос, тъй като могат да бъдат използвани с всички до сега разработени TDCR системи. Уравненията, както и експерименталния метод, са проверени посредством серия експерименти с източници с различна активност както и чрез анализ на Монте Карло генерирани данни.

5.2 ВАЛИДИРАНЕ НА МЕТОДИТЕ

Извършени са три различни експеримента по валидиране на двата метода. В първият експеримент са сравнени резултатите получени с аналитичните уравнения спрямо експерименталния метод. Сравнението е направено с измервания на източници ^3H (23 kBq и 2.4 kBq), ^{55}Fe (24 kBq) и ^{14}C (6 kBq). Получените резултати показват отлично съгласуване между коригираните за случайни съвпадения по двата метода скорости на броене. Разликите са в рамките на 0.06% за скоростите на броене в D канала, което е в рамките на статистиката неопределеност. С този експеримент се утвърждава аналитичния подход, като идентичен на експерименталния.

При вторият експеримент по валидиране на методите е проверена зависимостта на оценената скорост на броене на случайните съвпадения от използвания прозорец на съвпадения. За пресмятането на случайните съвпадения се използват експериментално получените скорости на броене, в които вече се съдържат случайните съвпадения. Възможно е, при увеличаване на прозореца на съвпадение и съответно случайните съвпадения, оценката за скоростта на случайните съвпадения да нарасне. При проведения експеримент е анализирано цифровизирано измерване на 23 kBq източник ^3H при различни прозорци на съвпадение от 200 ns до 3000 ns. Като референтна стойност е използвана скоростта на броене определена по експерименталния метод, тъй като при нейното определяне не се налага прозорец на съвпаденията. Резултатите от експеримента показват отлично съгласуване между двата метода независимо от дължината на прозореца на съвпадения. Във всички случаи от 200 до 3000 ns разликата между коригираните по двата метода скорости на броене са по-малки от 0.1%.

Таблица 5.1: Сравнение на некоригирани и коригирани скорости на броене с референтните скорости на броене генерирани от Монте Карло кода.

Активност	Метод за корекция	Разлика с Монте Карло код, %		
		AB*	D	T
2 kBq	Без	0.11	0.06	0.14
	Анл.	-0.01	-0.02	-0.02
	Експ.	-0.01	-0.02	-0.02
10 kBq	Без	0.59	0.42	0.76
	Анл.	-0.03	0.00	-0.05
	Експ.	-0.01	0.01	-0.04
20 kBq	Без	1.23	0.85	1.59
	Анл.	-0.01	0.01	-0.03
	Експ.	-0.02	0.03	-0.06
40 kBq	Без	2.43	1.64	3.13
	Анл.	-0.07	-0.01	-0.12
	Експ.	0.01	0.04	-0.02
60 kBq	Без	3.69	2.50	4.78
	Анл.	-0.04	0.02	-0.10
	Експ.	-0.03	-0.01	-0.06
100 kBq	Без	6.07	4.11	7.90
	Анл.	-0.12	0.08	-0.29
	Експ.	0.10	0.16	0.13
200 kBq	Без	11.71	7.91	15.28
	Анл.	-0.61	0.20	-1.31
	Експ.	0.08	0.21	-0.18

* Резултатите за ВС и АС каналите са подобни и не са показани с цел краткост на изложението.

В третия експеримент е използван Монте Карло код за генериране на реалистични времеви серии от TDCR събития. Посредством софтуера са генерирани файлове със списъци от събития съответстващи на източник ^3H с активност между 2 kBq и 200 kBq. Файловете са анализирани с LIST_MODE_ANALYSIS софтуера с 800 ns прозорец на съвпадения и 10 μs дължина на мъртвото време.

Монте Карло кодът позволява възможност която не е налична при реалните измервания, а именно – генериране на серия от събития с точно известна скорост на броене в каналите на съвпадения. Благодарение на това, измерените и коригираните скорости на броене могат да бъдат сравнявани с абсолютната истина дадена от Монте Карло кода. Резултатите от последния експеримент са дадени в Таблица 5.1. В таблицата са показани отклоненията между измерените и коригираните по двата метода скорости на броене спрямо отправните скорости на броене генерирани от Монте Карло кода. Както се вижда от таблицата, с нарастване на активността на източника, приносът на случайните съвпадения нараства, като при 200 kBq той достига 15.28% от T събитията (Метод за корекция: Без). При прилагането на експериментална или аналитична корекция за случайните съвпадения, определените скорости на броене не се различават съществено от Монте Карло генерираните до 100 kBq активност. При 200 kBq се наблюдава разминаване между аналитичния метод и отправните скорости

на броене. Тази разлика най-вероятно се дължи на това, че голям брой от събитията в измерената скорост на броене са случайни съвпадения, което води до завишаване на корекцията.

ЗАКЛЮЧЕНИЯ

В тази глава е предложен експериментален метод за оценка на случайните съвпадения в TDCR измервания. Методът е използван за да спомогне извеждането на аналитични уравнения за пресмятане на скоростта на броене на случайните съвпадения. Уравненията могат да бъдат използвани с всички съществуващи TDCR детектори, без да е необходима допълнителна информация. Корекциите за случайни съвпадения дават възможността за изследването на дълги прозорци на съвпадения. Също така, те могат да доведат до подобряване на нелинейността на TDCR системи използвани за изследване на кратки периоди на полу-разпадане, като например при медицинските радионуклиди ^{11}C , ^{15}O или ^{18}F . Резултатите от това изследване бяха публикувани в научна статия в списание *Nuclear Instruments and Methods, Section A* [17].

МАКСИМАЛНИЯТ времеви интервал между времето в което са детектирани две събития, за които се смята, че са в съвпадение, се нарича прозорец на съвпаденията. По идея той се настройва по такъв начин, че да включва голямата част от истинските съвпадения без да води до нежелано повишаване на приноса на случайните съвпадения. Към момента, най-често използваният прозорец на съвпаденията в TDCR измервания е 40 ns (фиксиран в MAC3 анализаторния модул [15]). Поради наличието на забавена флуоресценция в сцинтилаторите е възможно някои сцинтилационни фотони да се излъчат с по-голямо забавяне. Това не би било голям проблем в конвенционални течно-сцинтилационни измервания, но може да доведе до погрешни измервания с TDCR метода, който разчита на точното измерване на отношението на тройните към двойните съвпадения. Те, от своя страна, са различно повлияни от широчината на прозореца на съвпадения, като при голямо количество закъснели събития ще се наблюдава по-голяма загуба на тройни от колкото на двойни съвпадения.

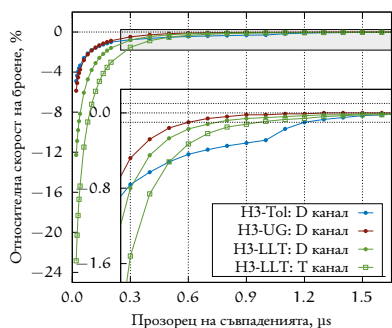
В същността на тази глава е изследването на зависимостта на измерените скорости на броене в каналите на двойни и тройни съвпадения от ширината на прозореца на съвпадения. Такива изследвания предполагат използването на много дълги прозорци на съвпадения за които дори забавената флуоресценция се събира напълно. Това не би било възможно без корекциите за случайни съвпадения разработени в рамките на дисертацията. Фокуса на тук представените изследвания пада върху влиянието на забавената флуоресценция върху измерената с TDCR метода активност.

6.1 МЕТОДИ И РЕЗУЛТАТИ

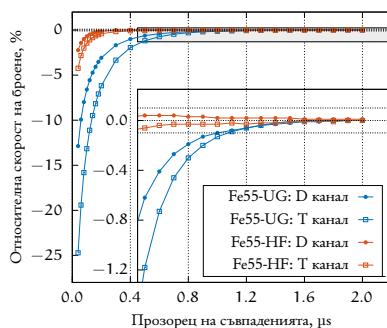
В рамките на това изследване са измерени източници ^3H , ^{55}Fe , ^{63}Ni и ^{14}C чрез TDCR детектор свързан с CAEN DT5751 цифровизатор на импулси, който записва всички събития във файлове за последваща обработка с LIST_MODE_ANALYSIS софтуера. При анализа на данните първо са получени скоростите на броене в каналите на съвпадения като функция на използвания прозорец на съвпадение с дължина между 20 ns и 2000 ns. Всички скорости на броене са коригирани за случайни съвпадения. Получените зависимости дават информация за това каква е нужната ширина на случайните съвпадения за да се събере голямата част (99.9%) от истинските съвпадения. Данните за скоростите на броене след това са използвани за пресмятане на активността на измерените проби при различни прозорци на съвпадения. Това позволява изучаването на ефекта от загубата на истински събития или включването на все-повече забавена флуоресценция върху пресметнатата активност. Резултатите са интерпретирани с помощта на Монте Карло симулации на TDCR измервания защото при тях е възможно да се отделят бързата и бавната флуоресценция.

ЗАВИСИМОСТ НА СКОРОСТТА НА БРОЕНЕ ОТ ПРОЗОРЕЦА НА СЪВПАДИЕНИЯ
На **Фигура 6.1** и **Фигура 6.2** е показана зависимостта на скоростта на броене в D и T каналите от ширината на прозореца на съвпадения за източници ^3H и ^{55}Fe в коктейли UltimaGold, UltimaGold LLT, HionicFluor и Toluene+PPO. Скоростите на броене са приравнени към скоростта на броене при прозорец на съвпаденията 2 μs , за който се смята, че съдържа 100% от истинските съвпадения. От проведените експерименти се наблюдава, че:

- Загубата на тройни съвпадения е по-голяма от загубата на двойни съвпадения.
- Коктейлът UltimaGold LLT има най-висок принос на забавена флуоресценция към общата сцинтилационна светлина.
- Резултатите от ^{55}Fe и ^3H с един и същи коктейл (UltimaGold) показват, че скоростта на броене като функция на прозореца на съвпадения зависи от вида и спектъра на нуклида.
- HionicFluor е най-бързият тестван коктейл и има най-малък принос на забавена флуоресценция.
- Ако се извършват измервания на ^3H и ^{55}Fe , необходимият прозорец на съвпадения за събиране на 99.9% от истинските съвпадения е близо 1 μs – значително повече от обикновено използваните 40 ns.



ФИГУРА 6.1: Относителна скорост на броене спрямо тази при 2000 ns прозорец на съвпаденията. Показаните измервания са за източници ^3H в коктейли Toluene + PPO, UltimaGold и UltimaGold LLT. Сивата област оградява региона който е увеличен във вложената графика.

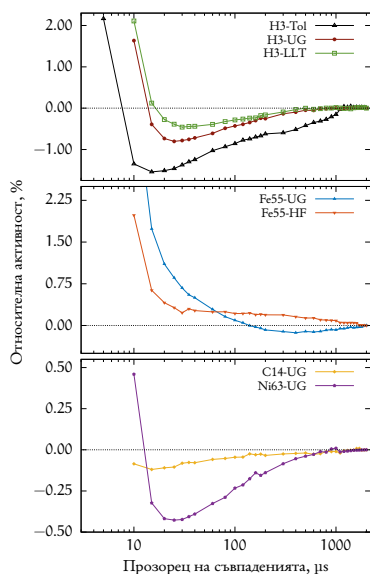


ФИГУРА 6.2: Относителна скорост на броене спрямо тази при 2000 ns прозорец на съвпаденията. Показаните измервания са за източници ^{55}Fe в коктейли UltimaGold и HionicFluor. Сивата област оградява региона който е увеличен във вложената графика.

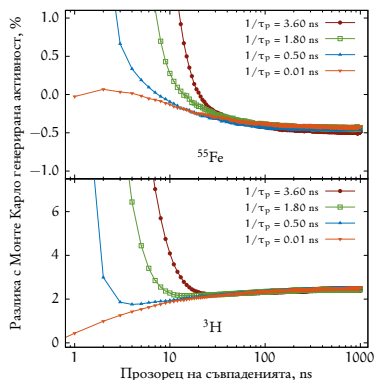
Първата точка е много важна, тъй като предполага, че отношението T/D също зависи от ширината на прозореца на съвпадения. Така, загубата на съвпадения ще

доведе не само до намаляване на скоростта на броене, но и на промяна на оценката за ефективността за регистрация. Тези ефекти са много по-слабо изразени за нуклидите с по-висока средна енергия на β -частиците – ^{63}Ni и ^{55}Fe .

ЗАВИСИМОСТ НА ИЗМЕРЕНАТА АКТИВНОСТ ОТ ПРОЗОРЕЦА НА СЪВПАДЕНИЯ Скоростите на броене получени при различните прозорци на съвпадения са използвани за пресмятане на ефективността за регистрация чрез TDCR метода. Активността се пресмята като скоростта на броене в канала на двойните съвпадения D върху ефективността за регистрация. Получените активности за всеки източник са нормирани върху активността при 2000 ns прозорец на съвпадения и резултатите са показани на [Фигура 6.3](#) (ляво).



ФИГУРА 6.3: Ляво: Истински измервания на активност нормирана към активността при 2000 ns. Важно е да се отбележи, че реперната активност не е непременно истинската. Дясно: Монте Карло симулации на ^{55}Fe и ^3H . Пресметнатата активност е нормирана на истинската активност зададена в кода.



Наблюдава се значителна зависимост на пресметнатата активност от ширината на прозореца на съвпаденията в случаите на ^3H , ^{55}Fe и ^{63}Ni . Зависимостта за всички нуклиди има много сходна форма при кратки прозорци на съвпадение – рязко повишаване на пресметнатата активност. При прозорци на съвпадение, по-дълги от 40 ns, активността се покачва в случая на ^3H и ^{63}Ni и спада в случая на ^{55}Fe . Интересен ефект е, че активността зависи в по-малка степен от прозореца на съвпадения при LLT коктейла от колкото при UG. Възможно обяснение на ефекта е дадено по-долу. Изследванията показват, че избирането на правилен прозорец на съвпаденията в случая на измервания на нискоенергийни β -лъчители, като ^3H , ^{55}Fe и ^{63}Ni е с ключово значение. Проблем остава определянето на кой точно прозорец на съвпаденията

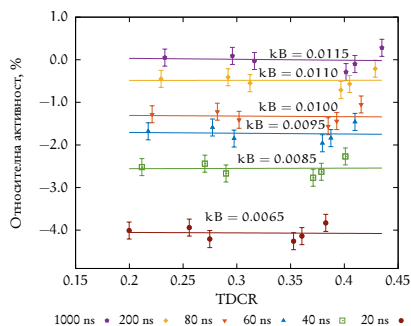
трябва да бъде избран. Съображенията за много широк прозорец са водени от идеята да се събере цялата сцинтилационна светлина, без загуби, което ще доведе до стабилна оценка на T/D отношението. Аргумент в полза на по-тесен прозорец е идеята, че детектирането на по-голям процент от забавената флуоресценция може да доведе до грешки при използването на уравнението на Бъркс, което е възможно да не я моделира правилно.

За подкрепа на изследванията е използван Монте Карло код, разработен в рамките на дисертацията, за генериране на реалистични серии от TDCR събития. Кода разполага с възможността да моделира както бързата така и забавената компонента на сцинтилационната светлина. Проведени са симулации на източници ^3H и ^{55}Fe при еднакви условия за бавната компонента, но променяйки константата на спадане на бързата компонента между 0.01 ns и 3.60 ns. Активността пресметната за различните прозорци на съвпадения е нормирана на генерираната от Монте Карло кода активност. Резултатите са показани на [Фигура 6.3](#) (дясно). В случая на ^{55}Fe наблюдаваме, че при широки прозорци на съвпадение, пресметнатата активност подценява истинската, а, при много кратки прозорци, пресметнатата активност надценява истинската. Когато симулираният източник има спектъра на ^3H , то тогава не съществува прозорец на съвпаденията за който се получава истинската активност.

ОПТИМАЛЕН КВ ПАРАМЕТЪР И ПРОЗОРЕЦА НА СЪВПАДЕНИЯ При конвенционалните TDCR измервания, стойността на оптималния кВ параметър се намира, чрез метода за вариране на ефективността за регистрация. Основната хипотеза е, че, при използване на правилния кВ параметър, пресметнатата активност не зависи от ефективността за регистрация [9, 13].

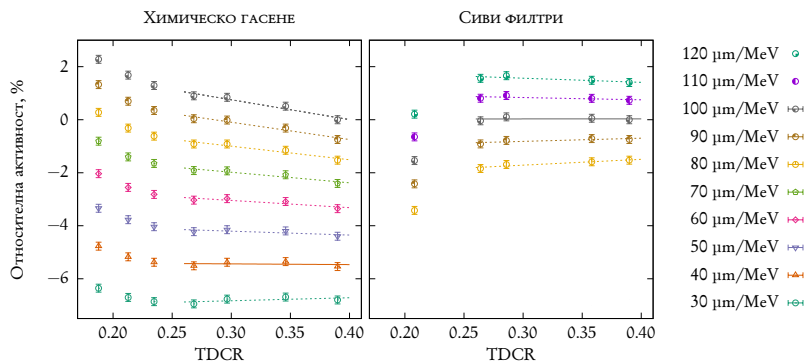
Източник ^3H в UltimaGold LLT коктейл е измерен със серия от оптични сиви филтри с цел промяна на ефективността за регистрация. Активността на източника е пресметната за различните ефективности на регистрация и оптималния кВ параметър е получен. Процедурата е повторена при използване на различни прозорци на съвпаденията от 20 ns до 1000 ns. На [Фигура 6.4](#) е показана зависимостта на оценената активност от ефективността за регистрация (TDCR параметъра), за тези стойности на кВ, за които наклона на функцията е най-близо до нулата.

Наблюдава се значителна зависимост на оптималния кВ параметър от ширината на използвания прозорец на съвпаденията. Възможно обяснение на ефекта е, че при намаляване на ефективността за регистрация се увеличава приноса на забавената флуоресценция към общата детектирана сцинтилационна светлина. Така, при по-ниски ефективности, TDCR метода надценява активността повече, отколкото при по-високи ефективности. Тъй като кВ е единствения външно определен параметър, той се нагажда така, че да компенсират този ефект, като в резултат бива подценен, т.е., метода за вариране на ефективността на регистрация е възможно да води до подценени стойности на кВ параметъра. Тази хипотеза е разгледана в подробности в [Глава 7](#), чрез Комптън-TDCR измервания на комерсиални течни сцинтилатори.



ФИГУРА 6.4: Относителна активност на проба ^3H в UltimaGold LLT при оптималната стойност на k_B за различни прозорци на съвпаденията. Стойността на k_B е дадена в единици $\mu\text{m}/\text{MeV}$.

В рамките на това изследване е сравнен и резултата за оптималния k_B параметър получен посредством оптични сиви филтри и химическо гасене. За целта са изготвени проби ^3H в UltimaGold с различни концентрации на тетрахлометан (химически гасител на светлина), който намалява ефективността за регистрация. Пробата без гасител е измерена със серия сиви филтри. Сравнението на оптималния k_B параметър получен по двата метода е показано на [Фигура 6.5](#). Разликата в получените стойности отдаваме на влиянието на забавената флуоресценция. Съществува хипотеза, че химическото гасене да влияе основно на бързата сцинтилационна компонента и чрез добавянето на увеличаващи се количества гасител, да се увеличава и принася на забавената флуоресценция [7]. Това би довело до прогресивно надценяване на активността на пробата и съответното компенсиране с по-нисък k_B параметър.

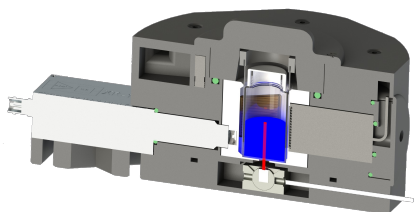


ФИГУРА 6.5: Относителна активност като функция на TDCR параметъра при намаляване на ефективност с химическо гасене и сиви филтри. Линейния фит с наклон най-близък до нулата е показан с пълтна линия.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ В рамките на проведените изследвания е повдигната темата за голямото влияние на избора на прозорец на съвпадения при измервания на ниско енергийни лъчители посредством TDCR метода. Резултатите не дават яснота каква трябва да е продължителността на прозореца на съвпадения, но показват нуждата от независим метод, който не се влияе от забавената флуоресценция. Резултатите са представени в публикация в списание *Nuclear Instruments and Methods, Section A* [Dutsov2020bb] и са главната мотивация за изследванията с Комптгън-TDCR метода, представени в [Глава 7](#).

РЕЗУЛТАТИТЕ показани в Глава 6 показват, че TDCR метода е възможно да доведе до отместена оценка на активността при наличието на значителен принос на забавена флуоресценция. Едно възможно решение на проблема може да се намери в Комптън-TDCR измерванията. Системата за провеждане на такъв тип измервания се състои от външен източник на моноенергетични γ -лъчи и детектор на комптънови фотони работещ в схема на съвпадение с TDCR детектор. По този начин, чрез γ -детектора могат да се селектират електрони депозиращи в пробата с определена енергия, а чрез TDCR детектора да се получи светлинният добив на сцинтилатора за тези електрони. Това позволява получаването на зависимостта на светимостта на сцинтилатора от енергията на комптъновите електрони, която може да бъде използвана в последствие за пресмятане на ефективността за регистрация в случая на измерване на друга проба със същия сцинтилатор и в същите геометрични условия. Детекторната система (Комптън-TDCR или C-TDCR) също така позволява и определянето на активността на пробите по три различни метода – TDCR, Compton Source Efficiency Tracing (CSET) и TDCR използвайки експериментално определената зависимост между светлинен добив и депозирана енергия.

Във френската национална лаборатория “Анри Бекерел” беше предложена концептуално и разработена Комптън-TDCR система състояща се от преносим TDCR детектор, външен източник ^{241}Am и CdTe детектор на рентгенови лъчи. Трите ФЕУта и рентгеновия детектор са свързани с CAEN DT5751 цифровизатор на импулси и получените данни са обработени с LIST_MODE_ANALYSIS софтуера. Схема на детекторната система е представена на Фигура 7.1. Държачът на външния ^{241}Am източник позволява трансация и ротация на източника с цел промяна на ъгъла между лъча и рентгеновия детектор. По този начин може да се променя разпределението по енергии на депозираните комптънови електрони.



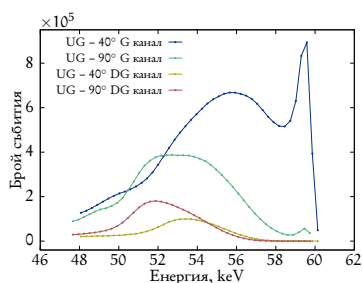
ФИГУРА 7.1: Разрез на C-TDCR детекторната система. Червената линия показва лъча на външния източник на γ -лъчи. Фигурата беше предоставена за използване в дисертацията от Беноа Сабо (LNE-LNHB).

В настоящата глава са представени резултати по определяне на светлинния добив на комерсиални течни сцинтилатори. C-TDCR системата е използвана също така и за измерване на активност на проба ^3H в UltimaGold коктейл по три различни метода – TDCR, CSET и C-TDCR.

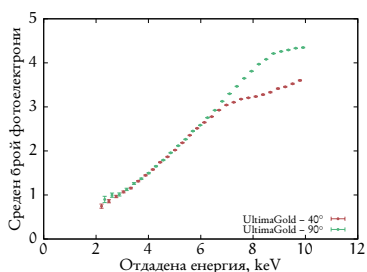
7.1 РЕЗУЛТАТИ

Държачът на външният източник е конструиран по такъв начин, че да позволява ротация и транслация с цел смяна на ъгъла между източника и детектора. Така е възможно избирането на най-вероятната за наблюдаване енергия на комптъновите електрони. Постановката също така позволява и сравнението на получения светлинен добив на сцинтилатора при различна геометрия на влитащите γ -лъчи. Така евентуални систематични грешки породени от несиметричност на използваните ФЕУ би била по-ясно видна.

Като първоначално валидиране на системата е измерена проба 10 ml UltimaGold сцинтилационен коктейл в две геометрични разположения между източника и детектора – 40° и 90° . Спектрите получени в CdTe детектора са показани на [Фигура 7.2](#). На фигурата са начертани също така и спектрите в случай на съвпадение със събитие регистрирано от TDCR детектора. На спектрите съответстващи само на събития в CdTe (синьо и зелено), игнорирайки наличието на TDCR детектор, ясно се вижда пика съответстващ на 59.54 keV γ -лъчи, които не са взаимодействали с пробата. Също така наблюдаваме и промяна на формата и средната енергия на комптъновото плато при промяна на ъгъла между източника и детектора. По-малък ъгъл съответства на по-голяма вероятност за регистриране на по-малко комптъново отместване и съответно по-ниска депозирана в коктейла енергия на електроните. Разглеждайки CdTe събитията в съвпадение с TDCR детектора (червено и жълто), пика 59.54 keV изчезва напълно, тъй като директно преминали през пробата лъчи не взаимодействат с нея и не водят до сигнал в TDCR-а.



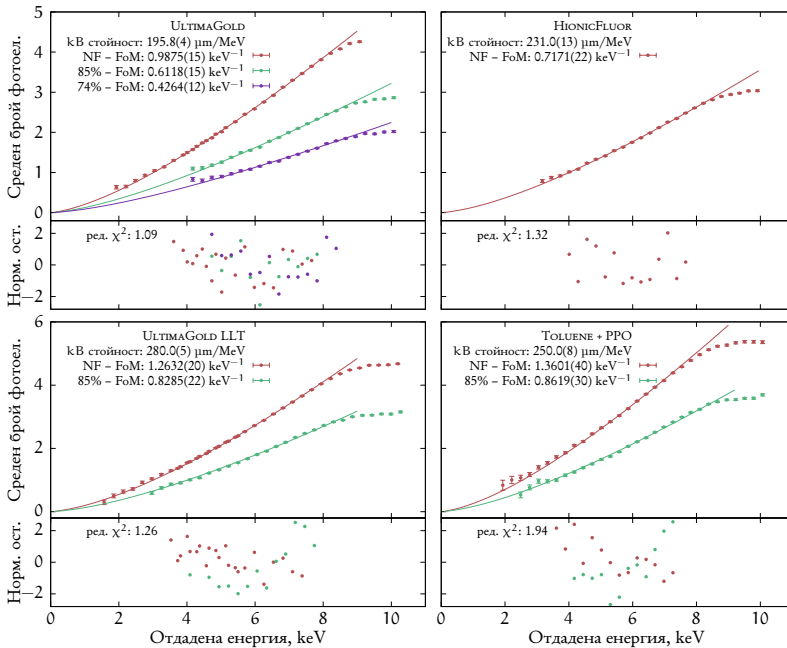
ФИГУРА 7.2: Енергиен спектър в CdTe детектора с и без съвпадения с TDCR детектора.



ФИГУРА 7.3: Относителен светлинен добив при 40° и 90° между източника и детектора.

На [Фигура 7.3](#) е показан относителния светлинен добив на сцинтилатора, под формата на среден брой регистрирани фотони, като функция на депозираната в коктейла енергия, получена от информация от комптъновия спектрометър. Отличното съгласуване между измерванията при двата ъгъла е добър индикатор, че системата е стабилна и е симетрична спрямо отклика на отделните ФЕУта. Отклоненията при по-високи енергии се дължат на приноса на двойни и тройни комптънови разсейва-

ния. При много ниски енергии броя регистрирани събития в съвпадение с TDCR детектора е много нисък поради малкото количество излъчена от пробата светлина.



ФИГУРА 7.4: Среден брой регистрирани фотони като функция на отдадената в сцинтилатора енергия. Кривите са фитирани с уравнение (7.1).

Голям интерес за TDCR измерванията, а и като цяло за метрологията на радиоактивност чрез течна сцинтилация, представлява точното познание на светлинния добив на сцинтилатора като функция на отдадената енергия. Най-широко използваното уравнение за неговото описание е полу-емпиричната формула на Бъркс $Q(E; kB)$ (уравнение (1.2)). Средния брой детектирани фотони за дадена депозирана енергия тогава се дава с:

$$\bar{n}(E) = \varphi Q(E; kB)E, \quad (7.1)$$

където φ е събирателната способност на детектора, а kB е параметъра на Бъркс, охарактеризиращ йонизационното гасене, който е специфичен за всеки сцинтилатор. Апроксимирайки експериментално полученият светлинен добив с уравнение (7.1) е възможно да се получат оптималните стойности за kB и φ . Тъй като по идея параметъра kB не би трябвало да зависи от събирателната способност, то тогава могат да бъдат проведени няколко измервания на една и съща проба с различни оптични филтри. Така би се променяла само събирателната способност, но не и

параметъра kV , който може да бъде фиксиран при апроксимирането на отделните криви на светлинния добив за една и съща проба. Този подход ще доведе до по-точното определяне и на двата параметъра.

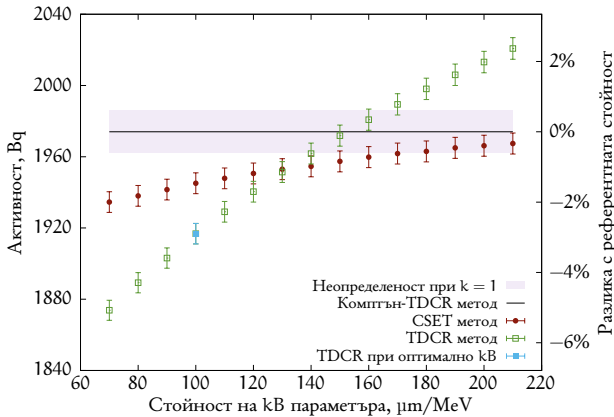
Такъв експеримент е проведен с четири проби от различни сцинтилатори: UltimaGold, UltimaGold LLT, HionicFluor на компанията PerkinElmer и Toluene + PPO сцинтилатор изготвен на място. Относителния светлинен добив от всички сцинтилатори е измерен за енергии до 8 keV . Някои от пробите са измерени също и с оптични филтри. При измерванията с филтри, отделните криви са фитирани с една и съща стойност на параметъра kV , а параметрите отговарящи на събирателната способност φ_1 са оставени да варират по отделно за всяко измерване.

Резултатите от експеримента са представени на [Фигура 7.4](#). Наблюдава се много добро апроксимиране на кривите на светлинния добив от уравнението на Бъркс. Във всички случаи редуцирания χ^2 е по-малък от 2. Получените от фитираните kV параметри са между $195 \mu\text{m/MeV}$ за UltimaGold и $280 \mu\text{m/MeV}$ за UltimaGold LLT. Трябва да се отбележи, че фиксирането на общ kV параметър между няколко измервания с различна събирателна способност води до неговото по-прецизно определяне. Получените стойности за параметъра kV значително се отличават от обичайно наблюдаваните при прилагането на често използваната техника с вариране на ефективността за регистрация. Обичайно цитираните в литературата стойности за kV параметъра за тези коктейли варира между 75 и $140 \mu\text{m/MeV}$. Има ясно несъответствие между получените с C-TDCR метода резултати и конвенционалния метод. Едно обяснение за тази разлика е хипотезата дадена в [Глава 6](#), че, при наличието на значителен принос на забавена флуоресценция, параметъра kV би бил подценен от конвенционалния метод за вариране на ефективността за регистрация.

СРАВНЕНИЕ МЕЖДУ TDCR, CSET И C-TDCR Всички проведени до тук експерименти са за чисти течно-сцинтилационни коктейли без радиоактивни източници. Голямо предимство на C-TDCR системата е, че, поради възможността за детектиране на съвпадения между TDCR и CdTe детекторите, е възможно измерването на светлинния добив от моноенергетични електрони дори на радиоактивен източник. Единственото условие е източникът да няма γ или рентгенови емисии които да допринасят към спектъра на комптъново разсеяните γ -лъчи и по този начин да внесат шум. Така със C-TDCR системата, може да бъде измерен светлинният добив от източник ${}^3\text{H}$, който да се използва в последствие при TDCR измерване за определяне на неговата активност. Това позволява сравнението на TDCR и C-TDCR методите за измерване на активност с една и съща проба върху един и същи детектор и при едни и същи условия. Системата може да бъде използвана също и за CSET метода, описан в подробности в [34].

За сравнението на трите метода е подготвен източник ${}^3\text{H}$ в UltimaGold, който е измерен на C-TDCR системата – веднъж с външен източник ${}^{241}\text{Am}$ и веднъж без. Светлинният добив от източника е получен по C-TDCR метода и е използван за пресмятане на ефективността за регистрация на тритиевата проба. Неопределеността

на измерването е оценена, като са използвани различни модели за фитиране на светлинния добив. Това е нужно, тъй като спектъра на ^3H достига до 18.6 keV енергия, която е повече от максималната енергия на компютъровите електрони с C-TDCR системата. CSET метода също е приложен с част от спектъра на компютъровите електрони, които играят ролята на виртуален източник, за който се пресмята събирателната способност на детектора и се ползва в последващото измерване на пробата в TDCR режима.



ФИГУРА 7.5: Активност на източник ^3H в UltimaGold определена по три метода.

Резултатите от измерването на активността по трите метода са показани на [Фигура 7.5](#). Всички активности са дадени спрямо тази получена от C-TDCR метода. Активностите определени по TDCR и CSET методите зависят от стойността на параметъра kB. Както се вижда от сравнението, тази зависимост е много по-силна при TDCR метода, отколкото при CSET. Оптималната стойност за параметъра kB намерена чрез техниката за вариране на ефективността за регистрация е ($kB = 100 \mu\text{m}/\text{MeV}$). При тази стойност на параметъра на Бъркс, активността определена по TDCR метода е 3% по-ниска от активността определена чрез C-TDCR. Разликата между CSET и C-TDCR при тази стойност на kB е значително по-ниска, но отново не е пренебрежима. И трите метода дават сходни активности за по-високи стойности на параметъра kB 140 – 160 $\mu\text{m}/\text{MeV}$.

Резултатите от експериментите потвърждават хипотезата изложена в [Глава 6](#), че техниката за вариране на ефективността за регистрация за определяне на kB параметъра занижава неговата стойност, което от своя страна води до значително занижаване на пресметнатата активност от TDCR метода в случая на ниско енергиен излъчвател като ^3H . Вероятно по-добри резултати при определяне на оптималния kB параметър и активността на проби могат да бъдат постигнати с C-TDCR метода.

ТАЗИ глава представя валидирането на TDCR системата, разработена и действаща в Софийски Университет, чрез участие в международно ключово сравнение за измерване на активност на ^3H организирано от Международното Бюро по Мерки и Теглилки BIPM. Тук също така е представено валидирането на анализатора папоTDCR разработен от компанията labZY. Описани са накратко някои от практическите приложения на TDCR техниката за целите на изследванията, които се провеждат в лабораторията по Метрология на Йонизиращите Лъчения (МЙЛ), и по-конкретно, първичните измервания на активност на ^{222}Rn .

Във ФзФ на СУ беше разработен TDCR детектор (TDCR-SU), който се използва за първични измервания на активност на течно-сцинтилационни проби в лаборатория МЙЛ, като по този начин могат да се подготвят референтни източници за калибриране на останалите течно-сцинтилационни инструменти в лабораторията. Важна част от TDCR-SU детектора е папоTDCR устройството. По времето на разработването на TDCR-SU анализатора папоTDCR беше току що пуснат на пазара и една от първите произведени единици беше закупена за използване в Софийски Университет. Поради това, преди използването на папоTDCR, има нужда от неговото охарактеризиране.

Правилното действие на папоTDCR устройството беше изследвано в рамките на тази дисертация, чрез сравнения с широко-използвания MAC3 модул за TDCR измервания. За сравненията бяха проведени измервания на активност на проби ^3H и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ в коктейл UltimaGold. Резултатите от сравнението между MAC3 и папоTDCR показват отлично съвпадение между двата анализатора [16]. Сравнението показва, че папоTDCR има отлични метрологични качества и може да бъде използван в TDCR-SU системата за първични измервания на активност.

8.1 ВАЛИДИРАНЕ НА TDCR-SU В CCRI(II)-K2 H-3 КЛЮЧОВО СРАВНЕНИЕ

През 2018-та година беше проведено ключово сравнение за измерването на активност на разтвор на тритиева вода организирано от Консултативния Комитет за Йонизиращи Лъчения (CCRI) BIPM. Ключовите сравнения измерват степента на еквивалентност (*degree of equivalence*) на националните стандарти и са обикновено дългогодишни начинания, където пилотна лаборатория намира стандарт подходящ за разпространение между лаборатории, събира данните от всички лаборатории и пише доклад който се публикува в базата от данни за ключови сравнения на BIPM [35].

Разтвор на тритиева вода беше изпратен до десет национални метрологични института¹, както и до лаборатория МЙЛ към СУ. Всички участващи лаборатории

¹ CENTIS (Куба), SIEMAT (Испания), ENEA (Италия), IRA-METAS (Швейцария), LNE-LNHB (Франция), NIM (Китай), NPI (Обединено Кралство), NRC (Канада), POLATOM (Полша), PTB (Германия)

са използвали TDCR метода за измерване на специфичната активност на разтвора. В нашата лаборатория използвахме TDCR-SU детектора, така че сравнението служи за валидиране на възможностите на системата за измерване на активност на ^3H .

Тритиевата вода изпратена от LNHB беше използвана за направата на десет течносцинтилационни проби със 7 μl тритиева вода и 10 ml коктейл. Направени са и проби със същото количество коктейл и дейонизирана вода които служат като фонови. Пробите и фоновете са измерени на TDCR-SU. Активността на всяка проба е пресметната използвайки измерените отношения на тройни към двойни съвпадения, T/AB, T/BC, T/AC и T/D, след коригиране на скоростите на броене за фон. За оценка на активността е използван TDCR07с кода [36].

Крайният резултат за активността на пробата тритиева вода е намерен като средното на всички измерени проби и е 52.68(36) kBq/g за референтната дата 1^{ви} Февруари 2018. Относителната стандартна неопределеност е 0.69% при $k = 1$. Финалният резултат беше изпратен на организаторите на сравнението и той, заедно с резултатите от другите лаборатории, е публикуван в [37]. Крайното заключение от сравнението е, че резултатите от всички лаборатории са съпоставими в рамките на докладваните неопределености. Референтната стойност от ключовото сравнение е 53.16(13) kBq/g. То е съпоставимо със специфичната активност определена в лаборатория МЙЛ използвайки TDCR-SU детектора. Успешното участие на лабораторията в ключовото сравнение организирано от ВІРМ показва, че TDCR-SU детектора и методите за анализ използвани в лаборатория МЙЛ са сравними с методите използвани във водещите метрологични институти при първични измервания на активност на тритиева вода.

8.2 ВАЛИДИРАНЕ НА TDCR-SU ЗА ПЪРВИЧНИ ИЗМЕРВАНИЯ НА АКТИВНОСТ НА RN-222 ВЪВ ВОДА

Калибрирането на течносцинтилационни инструменти за измервания на ^{222}Rn типично се извършва със стандартизирани разтвори на ^{226}Ra . Този тип калибриране може да доведе до грешки породени от натрупването на изотопа ^{210}Pb , чиито разпадания също се регистрират при течносцинтилационните измервания на пробата, но е трудно да се направят корекции за тях [38]. По тази причина за приготвянето на референтни източници за калибриране при измервания на ^{222}Rn в лаборатория МЙЛ беше избран TDCR метода. Първичното измерване на активност на ^{222}Rn чрез TDCR измервания е предложено и разработено от Ph. Cassette et al. през 2006-та година [39].

TDCR-SU детекторът беше валидиран за първични измервания на активност на ^{222}Rn във вода чрез участие в две международни сравнения описани по-долу.

МЕЖДУНАРОДНО СРАВНЕНИЕ ОРГАНИЗИРАНО ОТ JRC Съвместния Изследователски Център (JRC) на Европейската Комисия организира широкомащабен европейски тест за умения (*proficiency test*) за определяне на специфичната активност

на ^{222}Rn в питейна вода (REM 2018 PT). В сравнението участваха 101 лаборатории или номинирани от съответните национални власти, или поканени от JRC да участват [40]. Лабораторията МЙЛ при СУ също беше поканена да участва. Теста за умения се състои в определянето на специфичната активност на ^{222}Rn във водна проба която е изпратена от JRC и съдържа един литър австрийска натурална изворна вода. От получената вода бяха изготвени 10 точно-сцинтилационни проби за измерване с детектор RackBeta 1219.

Детектора RackBeta 1219 беше калибриран посредством стандартизирани проби ^{222}Rn във вода, като активността на радона е измерена на TDCR-SU детектора. Получената ефективност за регистрация за ^{222}Rn и неговите кратко живеещи дъщерни продукти на RackBeta спектрометъра е 4.999(22). Забележете, че максимално възможната ефективност за регистрация е 5.012, тъй като има средно 4.012 разпадания на кратко живеещи дъщерни продукти за всяко разпадане на ^{222}Rn .

Финалната получена стойност за активността на ^{222}Rn в пробата изворна вода е 273.4(91) Bq/kg при $k = 1$. Референтната специфична активност на ^{222}Rn дадена от JRC за сравнението REM 2018 PT е $A_{\text{ref}} = 318(16)$ Bq/kg. Финалният резултат докладван от нашата лаборатория попада в приемливия интервал поставен от организаторите, който е $A_{\text{ref}} \pm 20\%$ [40]. Следователно, участието на лаборатория МЙЛ в сравнението се счита за успешно.

МЕЖДУНАРОДНО СРАВНЕНИЕ ОРГАНИЗИРАНО ОТ IRSN Международно сравнение по измерване на ^{222}Rn във вода беше организирано от Департамента за Анализ на Околната Среда и Метрология на френския институт за радиационна защита и ядрена безопасност (IRSN). В сравнението участваха двадесет лаборатории, включително и лаборатория МЙЛ при СУ. Резултатите които са докладват от лабораториите се събират от IRSN, сравняват се с референтни стойности, изучават се статистически и се разпространяват до участващите лаборатории, до ASN (френската агенция отговаряща за радиационна и ядрена безопасност) и до членовете на френския комитет по акредитация на измервания на радиоактивност в околната среда [41].

Тестовите проби изпратени от IRSN са 1.2 l алуминиеви шишета напълнени до ръба с вода абсорбирала радон при лабораторни условия. Водната проба е използвана за направата на 8 точно-сцинтилационни проби за измерване на RackBeta 1219 спектрометър. Спектрометъра е калибриран посредством едната от пробите, чиято активност е измерена на TDCR-SU детектора. Крайната докладвана стойност за специфичната активност на ^{222}Rn във водата изпратена от IRSN е 666(40) Bq/l при $k = 2$. Официалната стойност докладвана от IRSN за сравнението е 677(55) Bq/l [41]. Наблюдавано е отлично съвпадение между официалната стойност и резултата получен в лаборатория МЙЛ.

Успешното участие на лаборатория МЙЛ при СУ в двете сравнения удостоверява това, че техниките на калибриране, пробовземане и измерване които се използват в лабораторията дават неотместени оценки за специфичната активност на ^{222}Rn във вода.

8.3 ИЗМЕРВАНЕ НА КОЕФИЦИЕНТ НА РАЗТВОРИМОСТ НА RN-222 В ПОЛИМЕРИ

Известна е възможността на някои полимери да абсорбират радиоактивни благородни газове, например полипропилен [42], полиетилен [43], полистирен [44], поликарбонати [45], пластмасови сцинтилатори [46, 47] и други. Това свойство позволява на някои материали да бъдат използвани като абсорбери на радон, които след разтваряне в течен сцинтилатор могат да бъдат използвани за определяне на активността на ^{222}Rn с течно-сцинтилационни измервания. Сорбцията и десорбцията на радон в полимери се описва с дифузионното уравнение [45], като за модела са нужни два параметъра – *дължината на дифузия*, т.е., средното разстояние което атом на ^{222}Rn изминава в материала преди разпадането си и *коэффициента на разтворимост*, т.е., отношението на концентрацията на газа на повърхността на материала към концентрацията на газа във обкръжаващата среда.

За определяне на коэффициента на разтворимост е необходимо да се определи активността на ^{222}Rn която се съдържа в полимера точно след като е изваден от среда с известна концентрация на ^{222}Rn . Добър метод за измерването на активността на радон в полимерни проби е с течно-сцинтилационно броене след разтварянето им в течен сцинтилатор.

Коефициентите на разтворимост и дължините на дифузия на ^{222}Rn в някои полимери ² бяха измерени при различни температури в лаборатория МЙЛ. Един от експериментите беше свързан с определянето на ефективността за регистрация за ^{222}Rn абсорбиран във фолио Makrofol N в толуенов коктейл на детектор RackBeta 1219. За провеждане на калибровката е поставено фолио Makrofol N в среда с повишена концентрация на ^{222}Rn ; след премахване от средата, фолиото е разтворено в толуенов сцинтилационен коктейл и пробата е измерена на RackBeta детектора и на TDCR-SU детектора. Ефективността за регистрация на ^{222}Rn на RackBeta детектора е оценена от отношението на скоростта на броене на детектора и активността в пробата определена по TDCR метода. Получената стойност е 4.964(29). Резултатите за коэффициенти на разтворимост и дължината на дифузия на полимерите е дадена в [48]. От практическа гледна точка, TDCR-SU детектора е отличен референтен инструмент за калибриране на течно-сцинтилационни детектори за измерване на активност на източници съдържащи ^{222}Rn .

В обобщение можем да кажем, че TDCR-SU детектора, в комбинация с разработените в тази дисертация TDCR методи, представляват отлична референтна система за вътрешно-лабораторно калибриране при течно-сцинтилационни измервания.

² polypropylene, low-density polyethylene, low-density polyethylene with antislip coating, high density polyethylene, Makrofol N, Makrofol DE и Makrofol DE за компакт-дискове

В ЗАКЛЮЧЕНИЕ, в рамките на дисертацията беше изведено взаимно-корелационно то разпределение, описващо времевите интервали между първите регистрирани събития във всяко ФЕУ в даден прозорец на съвпаденията. Изследвана е възможността, за използването на разработения модел, за апроксимиране на експериментални взаимно-корелационни разпределения и за извличане на информация за събирателната способност в измерването. От направените изследвания следва, че взаимно-корелационните измервания предоставят възможността за определяне на ефективността за регистрация при дадено измерване. Това представлява нов подход в абсолютните измервания на активност.

Може би най-големият принос на дисертацията, в областта на радионуклидната метрология чрез TDCR метода, са предложените методи за корекции за случайни съвпадения. Те могат да се използват във всяка съществуваща TDCR система. Корекциите позволяват измерване на радиоактивни източници с много висока активност, които могат да се срещнат при извършване на *in situ* измервания на медицински радиоизотопи. Премахването на влиянието на случайни съвпадения дава възможност да се използват дълги прозорци на съвпаденията и да се изследва зависимостта от времето на забавена флуоресценция, за която беше показано, че има непренебрежимо влияние върху изчислената посредством TDCR метода активност.

Изследванията на влиянието на прозореца на съвпадения върху TDCR измерванията показват, че за някои коктейли има значителна зависимост на изчислената активност от прозореца на съвпадения. Също така се наблюдава несъответствие между параметъра във функцията на йонизационното гасене, получен чрез вариране на ефективността със сиви филтри или чрез с химично гасене. Резултатът от изследванията е, че подчертаваме нежеланото влияние на забавената флуоресценция върху първичните измервания на активност чрез течено-сцинтилационно броене.

Като възможно решение на проблемите, свързани с неопределеността в светлинния добив на сцинтилатора, беше разработена и характеризирана C-TDCR система. Показано беше, че нелинейността на светлинния отклик на сцинтилатора може да бъде изследвана в интервала между 2 keV и 8 keV енергия на комптъновите електрони. Получен е светлинният добив на няколко комерсиални сцинтилационни коктейла в зависимост от отдадената енергия. Оптималните kB параметри във всички случаи са значително по-високи от тези, които обикновено се използват при TDCR измервания. Това показва, че конвенционалните TDCR измервания на нискоенергийни излъчватели като ^3H и ^{55}Fe могат да подценят активността на пробата с два или три процента. Смятаме, че точността на стандартизацията на нискоенергийните излъчватели може да бъде подобрена чрез използването на C-TDCR техниката.

В рамките на тази работа беше показано, че течено-сцинтилационното броене и анализа на цифровизирани данни могат да бъдат полезен уред за изследването на периодите на полуразпадане на някои ядрени възбудени състояния. Периодите

на полуразпадане на дългоживеещите възбудени състояния в ^{57}Fe и ^{237}Np бяха измерени посредством течна сцинтилация с 0.4% неопределеност.

Можем да кажем, че в рамките на дисертацията бяха разработени полезни програми с приложение в течно-сцинтилационните изследвания. Беше разработена програма наречена LIST_MODE_ANALYSIS която има за цел анализ на цифровизирани данни от TDCR и CdTe измервания. Освен това, беше разработен и Монте Карло код за симулиране на времето на засичане на сцинтилационни събития в детектор с три ФЕУта. Кодът е използван за валидиране на теоретичен модел за пресмятане на разпределението на детектирани бързи сцинтилации. Бърз софтуер за пресмятане на теоретичния модел беше разработен с цел фитиране на уравненията към измерени данни.

ПРИНОСИ СВЪРЗАНИ С ПОЛУЧАВАНЕ НА НОВО ЗНАНИЕ В ОБЛАСТТА НА ИЗМЕРВАНЕ НА АКТИВНОСТ ЧРЕЗ ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННО БРОЕНЕ

- За пръв път са предложени методи за оценка на случайните съвпадения в TDCR измервания [P1].
- Изведено е взаимно-корелационното разпределение на времената между детектирани сцинтилационни събития и е показано как то може да бъде използвано за пресмятане на ефективността за регистрация и активността на пробата [P2].

ПРИНОСИ СВЪРЗАНИ С МЕТОДИЧНИ АСПЕКТИ В ОБЛАСТТА НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННОТО БРОЕНЕ

- Демонстрирано е влиянието на забавената флуоресценция върху активността пресметната посредством TDCR метода [P3].
- Проведено е сравнение на два алгоритъма за налагане на удължаващо се мъртво време в TDCR измервания [P4], което демонстрира техните предимства и недостатъци.
- Показана е възможността за използване на цифровизирани течно-сцинтилационни измервания за прецизно определяне на периода на полуразпадане на някои ядрени възбудени състояния [P5].
- Разработен е софтуер за анализ на данни от цифровизатор на импулси с приложения в TDCR измервания, взаимно-корелационни измервания и измервания посредством Комптън-TDCR метода.
- Разработен е Монте Карло код за симулация на времеовото разпределение и броя на детектираните сцинтилационни събития при течно-сцинтилационни измервания.

- [P1] C. Dutsov, P. Cassette, B. Sabot и К. Mitev. 'Evaluation of the accidental coincidence counting rates in TDCR counting'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 977 (2020), с. 164292. DOI: [10.1016/j.nima.2020.164292](https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164292).
- [P2] Krasimir Mitev, Chavdar Dutsov, Philippe Cassette и Benoît Sabot. 'Time-domain based evaluation of of detection efficiency in liquid scintillation counting'. В: *Scientific Reports* 11 (2021), с. 12424. DOI: [10.1038/s41598-021-91873-1](https://doi.org/10.1038/s41598-021-91873-1).
- [P3] C. Dutsov, P. Cassette, К. Mitev и В. Sabot. 'In quest of the optimal coincidence resolving time in TDCR LSC'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 987 (2021), с. 164846. DOI: [10.1016/j.nima.2020.164846](https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164846).
- [P4] C. Dutsov, К. Mitev, P. Cassette и V. Jordanov. 'Study of two different coincidence counting algorithms in TDCR measurements'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 154 (2019), с. 108895. DOI: [10.1016/j.apradiso.2019.108895](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.108895).
- [P5] Chavdar Dutsov, Benoît Sabot, Philippe Cassette и Krasimir Mitev. 'Measurement of the half-life of excited nuclear states using liquid scintillation counting'. В: *Applied Radiation and Isotopes* (in press).
- [P6] V. Jordanov, P. Cassette, Ch. Dutsov и К. Mitev. 'Development and applications of a miniature TDCR acquisition system for in-situ radionuclide metrology'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 954 (февр. 2020), с. 161202. DOI: [10.1016/j.nima.2018.09.037](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.09.037).
- [P7] Ph Cassette, A Arinc, M Capogni, P De Felice, C Dutsov, R Galea, E Garcia-Torano, K Kossert, J Liang, К Mitev и др. 'Results of the CCRI (II)-K2. H-3 key comparison 2018: measurement of the activity concentration of a tritiated-water source'. В: *Metrologia* 57.1A (2020), с. 06004. DOI: [10.1088/0026-1394/57/1A/06004](https://doi.org/10.1088/0026-1394/57/1A/06004).
- [P8] M. Hamel, B. Sabot, C. Dutsov, G. H. V. Bertrand и К. Mitev. 'Tuning the decay time of liquid scintillators'. В: *Journal of Luminescence* 235 (2021), с. 118021. DOI: [10.1016/j.jlumin.2021.118021](https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2021.118021).
- [P9] S. Georgiev, К. Mitev, C. Dutsov, Т. Boshkova и I. Dimitrova. 'Partition coefficients and diffusion lengths of ^{222}Rn in some polymers at different temperatures'. В: *International Journal of Environmental Research and Public Health* 16.22 (2019). DOI: [10.3390/ijerph16224523](https://doi.org/10.3390/ijerph16224523).

- [01] K. Mitev, P. Cassette, D. Pressyanov, S. Georgiev, C. Dutsov, N. Michielsen и B. Sabot. 'Methods for the experimental study of ^{220}Rn homogeneity in calibration chambers'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 165 (2020), с. 109259. DOI: [10.1016/j.apradiso.2020.109259](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109259).
- [02] R. Merín, A. Tarancón, K. Mitev, S. Georgiev, C. Dutsov, H. Bagán и J. F. García. 'Evaluation of synthesis conditions for plastic scintillation foils used to measure α - and β -emitting radionuclides'. В: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 319.1 (2019), с. 135—145. DOI: [10.1007/s10967-018-6341-z](https://doi.org/10.1007/s10967-018-6341-z).

- [1] Ryszard Broda, Krzysztof Pochwalcki и Tomasz Radoszewski. 'Calculation of liquid-scintillation detector efficiency'. В: *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes* 39.2 (1988), 159–164. DOI: [10.1016/0883-2889\(88\)90161-x](https://doi.org/10.1016/0883-2889(88)90161-x).
- [2] A. Grau Malonda и Bert M. Coursey. 'Calculation of beta-particle counting efficiency for liquid-scintillation systems with three phototubes'. В: *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes* 39.12 (ян. 1988), с. 1191—1196. DOI: [10.1016/0883-2889\(88\)90098-6](https://doi.org/10.1016/0883-2889(88)90098-6).
- [3] Donald L. Horrocks. *Applications of Liquid Scintillation Counting*. Elsevier, 1974. DOI: [10.1016/b978-0-12-356240-1.x5001-x](https://doi.org/10.1016/b978-0-12-356240-1.x5001-x).
- [4] J A В Gibson и H J Gale. 'Absolute standardization with liquid scintillation counters'. В: *J. Phys. E: Sci. Instrum.* 1.2 (февр. 1968), с. 99—106. DOI: [10.1088/0022-3735/1/2/305](https://doi.org/10.1088/0022-3735/1/2/305).
- [5] V. Kolarov, Y. Le Gallic и R. Vatin. 'Mesure absolue directe de l'activité des émetteurs β purs par scintillation liquide'. В: *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 21.8 (авг. 1970), с. 443—452. DOI: [10.1016/0020-708x\(70\)90090-6](https://doi.org/10.1016/0020-708x(70)90090-6).
- [6] T. A. King и R. Voltz. 'The time dependence of scintillation intensity in aromatic materials'. В: *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 289.1418 (ян. 1966), с. 424—439. DOI: [10.1098/rspa.1966.0021](https://doi.org/10.1098/rspa.1966.0021).
- [7] J. B. Birks. *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. Oxford: Pergamon Press, 1964.
- [8] Xiaolin Hou и Xiongxin Dai. 'Environmental liquid scintillation analysis'. В: *Handbook of Radioactivity Analysis: Volume 2*. Elsevier, 2020, с. 41—136. DOI: [10.1016/b978-0-12-814395-7.00002-7](https://doi.org/10.1016/b978-0-12-814395-7.00002-7).
- [9] Ryszard Broda, Philippe Casette и Karsten Kossert. 'Radionuclide metrology using liquid scintillation counting'. В: *Metrologia* 44.4 (2007), S36.
- [10] Stefanie N. Smith и John G. Learned. 'Liquid scintillation detectors for high energy neutrinos'. В: *Progress in Particle and Nuclear Physics* 64.2 (апр. 2010), с. 384—389. DOI: [10.1016/j.ppnp.2009.12.055](https://doi.org/10.1016/j.ppnp.2009.12.055).
- [11] Henry A Polach. 'Evaluation and Status of Liquid Scintillation Counting for Radiocarbon Dating'. В: *Radiocarbon* 29.1 (1987), с. 1—11.
- [12] L. Liang Wee Kwong, J. J. La Rosa, S. H. Lee и P. P. Povinec. В: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 248.3 (2001), с. 751—755. DOI: [10.1023/a:1010657131856](https://doi.org/10.1023/a:1010657131856).
- [13] P Casette, R Broda, D Hainos и T Terlikowska. 'Analysis of detection-efficiency variation techniques for the implementation of the TDCR method in liquid scintillation counting'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 52.3 (март 2000), с. 643—648. DOI: [10.1016/s0969-8043\(99\)00224-9](https://doi.org/10.1016/s0969-8043(99)00224-9).
- [14] R Broda. 'A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 58.5 (май 2003), с. 585—594. DOI: [10.1016/s0969-8043\(03\)00056-3](https://doi.org/10.1016/s0969-8043(03)00056-3).
- [15] J. Bouchard и P. Casette. 'MAC3: an electronic module for the processing of pulses delivered by a three photomultiplier liquid scintillation counting system'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 52.3 (март 2000), с. 669—672. DOI: [10.1016/s0969-8043\(99\)00228-6](https://doi.org/10.1016/s0969-8043(99)00228-6).
- [16] V. Jordanov, P. Casette, Ch. Dutsov и K. Mitev. 'Development and applications of a miniature TDCR acquisition system for in-situ radionuclide metrology'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 954 (февр. 2020), с. 161202. DOI: [10.1016/j.nima.2018.09.037](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.09.037).
- [17] Ch Dutsov, K. Mitev, P. Casette и V. Jordanov. 'Study of two different coincidence counting algorithms in TDCR measurements'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 154 (дек. 2019), с. 108895. DOI: [10.1016/j.apradiso.2019.108895](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.108895).
- [18] A. G. Malonda. *Free Parameter Models in Liquid Scintillation Counting*. Colección Documentos CIEMAT. CIEMAT, 1999. ISBN: 978-8478-34-3-5-0-8.
- [19] Krasimir Mitev, Chaydar Dutsov, Philippe Casette и Benoît Sabot. 'Time-domain based evaluation of detection efficiency in liquid scintillation counting'. В: *Scientific Reports* 11 (2021), с. 12424. DOI: [10.1038/s41598-021-91873-1](https://doi.org/10.1038/s41598-021-91873-1).

- [20] M. F. L'Annunziata. *Editor, Handbook of Radioactivity Analysis*. Third. Amsterdam, The Netherlands: Academic Press, Elsevier., 2012.
- [21] Karsten Kossert, Gerhard Jörg, Ole Nähle и Christoph Lierse v. Gostomski. 'High-precision measurement of the half-life of ^{147}Sm '. В: *Applied Radiation and Isotopes* 67.9 (сент. 2009), с. 1702—1706. DOI: [10.1016/j.apradiso.2009.03.013](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.03.013).
- [22] Karsten Kossert, Gerhard Jörg и Christoph Lierse v. Gostomski. 'Experimental half-life determination of ^{176}Lu '. В: *Applied Radiation and Isotopes* 81 (нояб. 2013), с. 140—145. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.03.033](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.033).
- [23] Jérôme Chmeleff, Friedhelm von Blanckenburg, Karsten Kossert и Dieter Jakob. 'Determination of the ^{10}Be half-life by multicollector ICP-MS and liquid scintillation counting'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268.2 (ян. 2010), с. 192—199. DOI: [10.1016/j.nimb.2009.09.012](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.09.012).
- [24] Karsten Kossert. 'Half-life measurement of ^{212}Pb by means of a liquid scintillator-based ^{220}Rn trap'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 125 (июли 2017), с. 15—17. DOI: [10.1016/j.apradiso.2017.03.026](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.03.026).
- [25] Karsten Kossert, Marcell Péter Takács и Ole Nähle. 'Determination of the activity of ^{225}Ac and of the half-lives of ^{213}Po and ^{225}Ac '. В: *Applied Radiation and Isotopes* 156 (февр. 2020), с. 109020. DOI: [10.1016/j.apradiso.2019.109020](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.109020).
- [26] М. М. Бэ и др. *Table of Radionuclides*. Т. 8. Monographie BIPM-5. Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France: Bureau International des Poids et Mesures, 2016. ISBN: 978-928-222-2-6-4-5.
- [27] gnuplot. *gnuplot fitting algorithms manual*. http://gnuplot.sourceforge.net/docs_4.2/node82.html. Accessed on 16.05.2021. gnuplot, 2020.
- [28] Chavdar Dutsov, Benoît Sabot, Philippe Cassette и Krasimir Mitev. 'Measurement of the half-life of excited nuclear states using liquid scintillation counting'. В: *Applied Radiation and Isotopes* (in press).
- [29] Giuliano Mini, Francesco Pepe, Carlo Tintori и Marco Capogni. 'A full digital approach to the TDCR method'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 87 (май 2014), с. 166—170. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.11.103](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.103).
- [30] T. Steele, L. Mo, L. Bignell, M. Smith и D. Alexiev. 'FASEA: A FPGA Acquisition System and Software Event Analysis for liquid scintillation counting'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 609.2-3 (окт. 2009), с. 217—220. DOI: [10.1016/j.nima.2009.07.045](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.07.045).
- [31] C. Bobin, J. Bouchard и V. Censier. 'First results in the development of an on-line digital counting platform dedicated to primary measurements'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 68.7-8 (июли 2010), с. 1519—1522. DOI: [10.1016/j.apradiso.2009.11.067](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.11.067).
- [32] K. Mitev, P. Cassette, V. Jordanov, H. R. Liu и Ch. Dutsov. 'Design and performance of a miniature TDCR counting system'. В: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 314.2 (сент. 2017), с. 583—589. DOI: [10.1007/s10967-017-5451-3](https://doi.org/10.1007/s10967-017-5451-3).
- [33] Marco Capogni и Pierino De Felice. 'A prototype of a portable TDCR system at ENEA'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 93 (нояб. 2014), с. 45—51. DOI: [10.1016/j.apradiso.2014.03.021](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.03.021).
- [34] P. Cassette и P. Do. 'The Compton source efficiency tracing method in liquid scintillation counting: A new standardization method using a TDCR counter with a Compton spectrometer'. В: *Appl. Radiation Isotopes* 66.6-7 (2008), с. 1026—1032. DOI: [10.1016/j.apradiso.2008.02.062](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2008.02.062).
- [35] Consultative Committee for Mass and Related Quantities. *Key Comparison Report Template*. <https://www.bipm.org/documents/20126/2071009/CCM+Key+Comparison+Report+Template.pdf/cf0a4b60-2ece-819c-e50f-f91972f29901>. Accessed on 16.06.2021. BIPM, 2019.
- [36] *Detection efficiency calculation for pure-beta radionuclides, program with short tutorial*. http://www.nucleide.org/ICRM_LSC_WG/icrmsoftware.htm. Accessed on 16.05.2021. LNHB, 2021.
- [37] Ph Cassette, A Arinc, M Capogni, P De Felice, C Dutsov, R Galea, E Garcia-Torano, K Kossert, J Liang, K Mitev и др. 'Results of the CCRI (II)-K2. H-3 key comparison 2018: measurement of the activity concentration of a tritiated-water source'. В: *Metrologia* 57.1A (2020), с. 06004. DOI: [10.1088/0026-1394/57/1A/06004](https://doi.org/10.1088/0026-1394/57/1A/06004).

- [38] Laina Salonen. 'Calibration of the direct LSC method for radon in drinking water: Interference from ^{210}Pb and its progenies accumulated in ^{226}Ra standard solution'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 68.1 (ян. 2010), с. 131—138. DOI: [10.1016/j.apradiso.2009.08.006](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.08.006).
- [39] P. Cassette, M. Sahagia, L. Grigorescu, M. C. Lépy и J. L. Picolo. 'Standardization of ^{222}Rn by LSC and comparison with α - and γ -spectrometry'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 64.10-11 (окт. 2006), с. 1465—1470. DOI: [10.1016/j.apradiso.2006.02.068](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.02.068).
- [40] European Commission. Joint Research Centre. *Technical report on the REM 2018 radon-in-water proficiency test*. Publications Office, 2020. DOI: [10.2760/805627](https://doi.org/10.2760/805627).
- [41] Vadim Tsouanko-Sitnikov. *Results of the Proficiency Test 163 RN 300*. Environmental Analysis и Metrology Department, IRSN, 2020.
- [42] Н. Мөге и L. M. Hubbard. ' ^{222}Rn Absorption in Plastic Holders for Alpha Track Detectors: A Source of Error'. В: *Rad. Prot. Dosim.* 74 (1997), с. 85—91.
- [43] Wolfgang Rau. 'Measurement of radon diffusion in polyethylene based on alpha detection'. В: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 664 (2012), с. 65—70.
- [44] Masaaki Saito, Yoshiyuki Tanizaki и Shigeru Takata. 'A New Monitor for Radon in Water Using Absorptive Plastic Scintillation Counting'. В: *Radioisotopes (Tokyo)* 55.2 (2006). in Japanese, с. 55—60.
- [45] D. Pressyanov, A. Van Deynse, J. Buysse, A. Poffijn и G. Meesen. 'Polycarbonates: A New Retrospective Radon Monitor'. В: *Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe*. International Radiation Protection Association. Cedex, France, 1999, с. 716—722.
- [46] Krasimir K. Mitev. 'Measurement of ^{222}Rn by absorption in plastic scintillators and alpha/beta pulse shape discrimination'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 110 (2016), с. 236—243.
- [47] Krasimir K. Mitev, P. Cassette, S. Georgiev, I. Dimitrova, B. Sabot, T. Boshkova и I. Tartes. 'Determination of ^{222}Rn absorption properties of polycarbonate foils by liquid scintillation counting. Application to ^{222}Rn measurements'. В: *Applied Radiation and Isotopes* 109 (2016), с. 270—275.
- [48] S. Georgiev, K. Mitev, C. Dutsov, T. Boshkova и I. Dimitrova. 'Partition coefficients and diffusion lengths of ^{222}Rn in some polymers at different temperatures'. В: *International Journal of Environmental Research and Public Health* 16.22 (2019). DOI: [10.3390/ijerph16224523](https://doi.org/10.3390/ijerph16224523).