



# IDŐFÜGGŐ FOLYAMATOK ALKALMAZÁSA A PROMPT-γ AKTIVÁCIÓS ANALÍZISBEN

# Ph.D. értekezés

# Készítette

# Szentmiklósi László

#### Témavezető: **Dr. Révay Zsolt** tudományos főmunkatárs, MTA Izotópkutató Intézet

# Konzulens: Dr. Nagyné Dr. László Krisztina

egyetemi docens, BME Vegyészmérnöki Kar, Fizikai Kémia Tanszék

# Budapest, 2006.

# Tartalomjegyzék

TARTALOMJEGYZÉK	2
Rövidítések jegyzéke	4
JELÖLÉSEK JEGYZÉKE	5
BEVEZETÉS	6
I. A PROMPT-GAMMA AKTIVÁCIÓS ANALÍZIS ALAPJAI	8
1.1. A PGAA mint elemanalitikai módszer	8
1.1.1. Történeti áttekintés	8
1.1.2. A PGAA tulajdonságai	8
1.1.3. A neutronok keltese, csoportositasa es a kolcsonhatas valoszinusege	9
1.1.4. Az analitikai jei keletkezese a PGAA-ban	. 10
1.2. A MENNYISEGI ELEMZESHEZ HASZNALI USSZEFUGGESEK	. 12
1.2.1. Elemzés a prompi csúcsok alapján 1.2.2 Flomzés a bomlási csúcsok alapján	. 12
1.2.2. Elemzes a bomasi csucsok aiapjan 1.3. Δ NVAL ÁBSZAGGATÓS PGΔ Δ	. 15 14
1.4 A RÓRCSÚCS ALAKIA ÉS ILLESZTÉSE	15
$1.4.1 A {}^{10}R(n \alpha n)^{7}Li^{*}$ reakció mechanizmusa	. 15
1 4 2 A bóranalízis módszerei az irodalomban	17
1.5. A PGAA ANALITIKAI ALKALMAZÁSAI	. 19
Π Μέρξει ές κιέρτέκει έςι μώρς ζερεκ	20
II, WERESI ES KIERTERELESI WODSZERER	20
2.1. A mérőberendezés	. 20
2.1.1. A Budapesti Kutatóreaktor és a neutronvezető rendszer	. 20
2.1.2. A PGAA és a NIPS mérőhely	. 21
2.1.3. A mérőrendszerek paraméterei	. 22
2.1.4. A merorendszerek kalibralasa	. 23
2.1.5. A Jelfelaoigozas	. 23
2.2. A KUTIN ANALIZIS MENETE	. 27
2.2.1. Miniuelokesziles és meres 2.2.2. A snaktrumártákalás	· 27 28
2.2.2. A spectrumertextees 2.2.3 Kvantitativ analizis	30
2.2.5. Rvannarv unanzis	31
	· · · ·
III. SAJAT MODSZEKEK IDOFUGGO FOLYAMATOK VIZSGALATAKA	. 33
3.1. A BESUGÁRZÁST KÖVETŐ SZÁMLÁLÁS	. 33
3.2. LISTAMÓD: IDŐFÜGGŐ FOLYAMATOK ESEMÉNYSZINTŰ VIZSGÁLATA	. 33
3.2.1. Listamódú adatgyűjtés a XIA spektrométerrel	. 33
3.2.2. Holtidő korrekciós modell a listamódú mérésekhez	. 34
3.2.3. Off-line adatfeldolgozás	. 36
3.2.4. A holtidő-korrekciós eljárás validálása	. 37
3.2.5. Idojuggo hatterkorrekcio a lecsengesi gorbekhez	. 39
5.2.0. Haromaimenzios regiok kiertekeiese	. 40
3.3. FUAA MEKESEK NYALABSZAGGAIUVAL	. 42 12
3.3.1. A nyuuuszugguio mukouese 3.3.2. Kvantitatív összafüggásak a nyaláhszaggatás DCAA hoz	. 42 11
3.3.2. Avaninany osszejaggesek a nyanaoszaggaios 1 OAA-noz	. +4 ЛК
3.4 A BÓRCSÍICS ILLESZTÉSE	47
3.4.1. Modell a bórcsúcs illesztésére	. 48
3.4.2. Az illesztés menete	. 50

IV. Eredmények és értékelésük	
4.1. A digitál is spektrometria al kal mazhatósága a PGA A-ban	52
4.1.1. Az energiafelbontás erősítésfüggése	
4.1.2. Az energiafelbontás terhelésfüggése	55
4.1.3. Hosszú idejű stabilitás	56
4.1.4. Következtetések	57
4.2. A BESUGÁRZÁS UTÁNI SZÁMLÁLÁS ANALITIKAI ALKALMAZÁSA	57
4.2.1. A 2004-es mérési sorozat	57
4.2.2. A 2005-ös mérési sorozat	59
4.3. A LISTAMÓDÚ GAMMA-SPEKTROMETRIA ALKALMAZÁSAI	60
4.3.1. Felezésiidő-mérés listamódban	60
4.3.2. A kiértékelési módszerek pontosságának összehasonlítása	61
4.3.3. Csúcsinterferenciák feloldása az idődimenzió bevonásával	64
4.3.4. Ciklikus aktiváció neutronnyalábban	65
4.3.5. Következtetések és alkalmazási lehetőségek	65
4.4. NYALÁBSZAGGATÓS PROMPT-GAMMA AKTIVÁCIÓS ANALÍZIS	66
4.4.1. A szelektivitás és a kimutatási határ javítása	66
4.4.2. Bomlási k <sub>0</sub> -faktorok meghatározása	69
4.4.3. Az eredmények értékelése	
4.5. A BÓRCSÚCS ILLESZTÉSE	73
4.5.1. A modell validálása	73
4.5.2. A bórcsúcs alakjának mátrixfüggése	
4.5.3. Osszehasonlítás a referencia csúcs módszerrel	
4.5.4. Alkalmazás: geológiai és dozimetriai minták analízise	77
IRODALOMJEGYZÉK	
Összefoglalás	
SUMMARY	
ZUSAMMENFASSUNG	
TÉZISPONTOK	
PUBLIKÁCIÓK JEGYZÉKE	
Függelék	
1 Εύαρει ήν. Α Βορρι ερινιατή εαρρεστιρόρος/γος τι τινήντιν την ενεστήσε	01
1. FUGGELEK: A DOPPLER-KISZELESEDETT BORCSUCS ALAKJANAK LEVEZETESE	
2. FUGGELEK. A LASSULASI ALLANDO BECSLESE AZ LSS-MODSZEKKEL	
5. FUGGELEK. A HATASFOK MEGHATAKOZASA KUZELI GEOMETRIA ES KITEKJEDT MINTA ESETEN	
4. FUGGELEK: A γ-CSUCSOK ILLESZTESE FELEMPIRIKUS FUGGVENYEKKEL	
KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS	
NYILATKOZAT	
MELLÉKLET: A DOLGOZAT ALAPJÁT KÉPEZŐ PUBLIKÁCIÓK	100

# Rövidítések jegyzéke

ADC	Analog to Digital converter	Analóg-digitális átalakító
BGO	Bismuth Germanate (Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> ) scintillator	Bizmut-germanát (Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> ) szcintillátor
BNC / BKR	Budapest Neutron Center	Budapesti Kutatóreaktor
BNCT	Boron Neutron Capture Therapy	Bór neutronbefogásos rákterápia
DSP	Digital Signal Processing	Digitális jelfeldolgozás
EMG	Exponentially Modified Gaussian	Exponenciálissal konvolvált Gauss fv.
EPMA	Electron-Probe Micro Analysis	Elektronsugaras mikroanalízis
FEP	Full Energy Peak / Fluorinated-ethylene- propylene	Teljesenergia-csúcs / Fluorozott etilén- propilén
FWHM	Full Width at Half Maximum	Félértékszélesség
H.V.	High Voltage Power Supply	Nagyfeszültség
HPGe	High Purity Germanium detector	Nagytisztaságú germánium detektor
IAEA	International Atomic Energy Agency	Nemzetközi Atomenergia Ügynökség, Bécs, Ausztria
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry	Induktív csatolású plazma tömegspektrometria
ICP-OES	Inductively Coupled Plasma – Optical Emission Spectroscopy	Induktív csatolású plazma optikai emissziós spektroszkópia
LOD	Limit of Detection	Kimutatási határ
LOQ	Limit of Quantitation	Mennyiségi meghatározás alsó határa
LSS	Lindhard-Scharff-Schiott theory	Lindhard-Scharff-Schiott elmélet
MCA	Multi Channel Analyzer	Sokcsatornás amplitúdó analizátor
MCS	Multi Channel Scaler	Sokcsatornás idő analizátor
NAA	Neutron Activation Analysis	Neutronaktivációs analízis
NIPS	Neutron-Induced Prompt γ-ray Spectrometry	Neutronindukált prompt-y spektrometria
NIST	National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA	Nemzeti Szabványügyi és Technológiai Hivatal, USA
PAA	Photon Activation Analysis	Fotonaktivációs analízis
PGAA, PGNAA	Prompt Gamma (Neutron) Activation Analysis	Prompt-Gamma (Neutron) Aktivációs Analízis
PIGE	Particle Induced Gamma-ray Emission	Részecskeindukált y-emisszió
PIXE	Particle Induced X-ray Emission	Részecskeindukált röntgenemisszió
PMT	Photomultiplier Tube	Fotoelektron-sokszorozó
PTFE	Poly-Tetrafluoro-Ethylene (Teflon)	Politetrafluoro-etilén, teflon
RT / FT	Rise Time / Flat Top (of a digital filter)	Felfutási idő / Konstans idő (digitális szűrő esetén)
SRM	Standard Reference Material	Standard Referenciaanyag
XIA	X-Ray Instrumentation Associates, Newar	k, USA
XRF	X-Ray Fluorescence	Röntgenfluoreszcencia

# Jelölések jegyzéke

$a_0, a_1, \dots a_i$	Együtthatók	N	Atomok száma
A	Aktivitás	$N_{ m p}$	Fotonok száma, csúcsterület
	Normalizációs amplitúdó	N <sub>Av</sub>	Avogadro-szám
	(Skew)	N, M, P, Q	Számlálási sebességek
α	Amplitúdó (Skew)		listamódban
b	Alapvonal, háttér	V	Lecsengési paraméter (Tail)
b(j)	Háttérfüggvény	$P_{\gamma}$	Emissziós valószínűség
В	Nyalábaktivációs faktor	p(j)	Csúcsalakfüggvény
$\mathcal{B}(E)$	Bór csúcsalakfüggvény	p'(E)	Normalizált
$B_1, B_2, \dots B_i$	Háttérrégiók		csúcsalakfüggvény
β	Lecsengési paraméter (Skew)	heta	Izotópgyakoriság
С	Fénysebesség		Szög
С	Számlálási tényező	R	Reakciósebesség, számlálási
$\chi^2$	Chi-négyzet függvény		sebesség
D	Bomlási tényező		Normalizációs amplitúdó
	Lassulási állandó		(Right Skew)
δ	Csúcsszélesség		Régió hossza
Ε	Energia	ρ	Lecsengési paraméter
$E_0$	Az analitikai csúcs energiája		(Right Skew)
3	Detektálási hatásfok		Sűrűség
$F_2$	Elágazási arány	S	Telítési tényező
<b>J</b>	Fourier-transzformáció		Normalizációs amplitúdó
Φ	Fluxus		(Step)
$\Phi_0$	Termikus ekvivalens fluxus		Analitikai érzékenység
g(E)	Bór gamma-sűrűségfüggvény	$\boldsymbol{S}(E)$	Bórcsúcs lépcsőfüggvénye
G	Bruttó beütésszám	$\sigma$	Hatáskeresztmetszet
Г	Gauss amplitúdó		Csúcsszélesség
H	Heaviside-függvény	$\sigma_{\gamma}, \sigma_{d}, \sigma_{p}$	Parciális gamma-keltési
Н	Hess-mátrix	// _/ P	hatáskeresztmetszet
n	Holtidő korrekció	<i>t</i> <sub>m</sub>	Mérési idő
'I <i>i</i>	Csatornaszám	$T_{1/2}$	Felezési idő
J K	Nyalábszaggató relatív nyitási	T	Normalizációs amplitúdó
II.	ideie		(Tail)
ko	ko-faktor	τ	Amplitúdó ( <i>Tail</i> )
$k_{-}$	Koincidencia korrekciós faktor		A listamódú holtidőfüggvény
ĸ	A listamódú holtidőfüggyény		digitális szűrő paramétere
л	adatátyiteli naramétere	v	Sebesség
1(i)	Polinom háttár	$\mathcal{V}_0$	Kezdeti sebesség
L	Nyalábszaggató relatív	Ň	Variancia-kovariancia mátrix
L	számlálási ideje	W	Súlyfaktor
2	Bomlási állandó	W	Félértékszélesség (FWHM)
70 M	Tömeg	Ω	Térszög
т M	Pelatív atomtömeg	$x_0$	Csúcspozíció
11/1	Notativ atomitomicg	Ψ	Amplitúdó ( <i>Right Skew</i> )
		-	implicate (mgm biten)

# Bevezetés

Ebben a dolgozatban azt a munkát kívánom bemutatni, amelyet az MTA IZOTÓPKUTATÓ INTÉZET NUKLEÁRIS KUTATÁSOK OSZTÁLYÁN végeztem 2002 és 2005 között. Az osztály egyik kutatási témája, amelybe még diplomázó hallgatóként kapcsolódhattam be, a **prompt-gamma aktivációs analízis** (PGAA, PGNAA)<sup>(1)</sup> továbbfejlesztése és alkalmazása.

A neutronaktivációs analízis, s azon belül a PGAA a **radioanalitikai és nukleáris analitikai módszerek** közé tartozik. Az aktivációs módszerek a minta összetevőinek atommagjait gerjesztik és a kilépő sugárzás minősége és mennyisége alapján kvalitatív és kvantitatív analízis végezhető. Előnyös tulajdonságaik (pl. nagy szelektivitás, érzékenység, roncsolásmentesség, mátrix-függetlenség, panoráma analízis stb.) versenyképessé teszik az elterjedtebb elemanalitikai módszerekkel. A módszercsalád egy lehetséges csoportosítását a B.1. ÁBRA mutatja be, ahol szaggatott vonallal feltüntettem néhány metodikailag hasonló, de az elektronburok gerjesztésén alapuló technikát is.



B.1. ÁBRA. A prompt-gamma aktivációs analízis helye a módszercsaládon belül

Az első analitikai célú neutronaktivációs kísérletet HEVESY GYÖRGY és HILDE LEVI végezte (HEVESY ÉS LEVI 1936) négy évvel a neutron felfedezése után (CHADWICK 1932). Ugyanezekben az években hidrogén tartalmú anyagok neutron-besugárzásával kimutatták a prompt-gamma sugárzást is (AMALDI *ET AL*. 1934; LEA 1934).

A neutronaktivációs analízis három területre bontható. Ha a besugárzást és a  $\gamma$ -fotonok detektálását időben és térben elkülönítve hajtjuk végre és az ún. bomlási  $\gamma$ -fotonokat mérjük, "hagyományos" neutron-aktivációs analízisről (NAA) beszélünk. A prompt- $\gamma$  aktivációs analízisben az aktiválás és a mérés egy időben történik. A Neutron-Resonance Capture

<sup>&</sup>lt;sup>(1)</sup> Az osztályunkon kialakult szokásoknak megfelelően a dolgozatban a PGAA rövidítést fogom használni.

Analysis (NRCA) esetén az analitikai jel neutronok rezonanciaszerű befogásakor keletkezik (POTSMA *ET AL*. 2001).

A γ-fotonok egy része a PGAA-ban a neutronbefogást követő másodlagos folyamatok (pl. radioaktív bomlás) eredménye, s ezek intenzitása jellegzetes időfüggést mutat. Az ilyen "késő gammák" is alkalmasak mennyiségi analízisre, sőt, esetenként a "prompt-gammák"-nál kedvezőbb szelektivitást, alacsonyabb kimutatási határokat kínálnak.

Feladatom az volt, hogy megvizsgáljak néhány, a PGAA-ban előforduló folyamatot és technikát, amelyben az **idő fontos szerepet játszik** és kidolgozzam ezek **spektroszkópiai alkalmazását**. Így növelhető az analitikai pontosság és a szelektivitás, a kimutatási határok pedig csökkenthetők. A vizsgált jelenségek időskálája pikoszekundumtól több hétig terjed, így tanulmányozásukra többféle módszert használtam. Ezt illusztrálja a B.2. ÁBRA.



B.2. ÁBRA. A dolgozatban bemutatott jelenségek és mérési módszerek karakterisztikus időskálája (a jelenségek részleteit az 1. fejezetben, a mérési módszereket a 2. és 3. fejezetben mutatom be)

Munkámat segítette, hogy az elmúlt években generációváltás történt a méréstechnikában. Az évtizedekig használt analóg műszerek helyébe **digitális jelfeldolgozó** egységek léptek. Ezektől azt vártuk, hogy új spektroszkópiai és adatkezelési képességeikkel nagy lökést adnak a gamma-spektrometriának. Az első feladatom volt, hogy megvizsgáljam az új méréstechnika alkalmazhatóságát a PGAA-ban, hiszen ilyen tapasztalatok az irodalomban nem álltak rendelkezésre.

A dolgozat első részében a prompt-gamma aktivációs analízis elméletét, alapvető összefüggéseit mutatom be. Ezt követően a mérőrendszer felépítését és az analízis menetét tárgyalom, végül a kifejlesztett módszereket és az alkalmazásukkal kapott eredményeket ismertetem.

# Első fejezet A prompt-gamma aktivációs analízis alapjai

## 1.1. A PGAA mint elemanalitikai módszer

#### 1.1.1. Történeti áttekintés

Az elmúlt évtizedekben a prompt-gamma aktivációs módszer jelentős fejlődésen ment keresztül. Noha az alapelvek már régóta ismertek voltak, méréstechnikai nehézségek miatt a PGAA csak az 1980-as években kezdett elterjedni. Sokelemes, rutin analitikai módszerként pedig csak a '90-es évek elejétől kezdték alkalmazni.

Az első, kutatóreaktorokhoz kapcsolódó PGAA méréseket az 1960-as években végezték az amerikai Cornell Egyetemen (ISENHOUR ÉS MORRISON 1966A, B). Néhány év múlva megjelentek a félvezető detektorok, amelyek felbontása jelentősen jobb volt, hatásfokuk azonban elmaradt az addig használt szcintillációs detektorokétól. A háttér csökkentésére alkalmazni kezdték a Compton-elnyomást, amely ettől kezdve alapvető részévé vált a PGAA rendszereknek (ORPHAN ÉS RASMUSSEN 1967).

A következő jelentős előrelépés a **neutronvezetők** megjelenése volt. Felismerték ugyanis, hogy a neutronokat a teljes visszaverődés jelenségét felhasználva viszonylag kis veszteséggel, a forrástól több tíz méter távolságra el lehet juttatni. Ez a háttér jelentős csökkenését eredményezte, miközben a nyaláb nem gyengült számottevően. Az első neutronvezető mellé települt rendszerek a franciaországi Saclayban és Grenoble-ben épültek (HENKELMANN ÉS BORN 1973).

A módszer analitikai felhasználását a legutóbbi időkig nehezítette a spektroszkópiai adatok pontatlansága. Az elmúlt évtizedben erőfeszítések történtek a szükséges adatkönyvtár létrehozására (RÉVAY ÉS MOLNÁR 2003; IAEA 2004). A módszer elterjedtségét és elismertségét tovább növelheti a 2004-ben megjelent PGAA **kézikönyv** (MOLNÁR 2004).

A világon ma kb. húsz prompt-gamma mérőhely üzemel. A legjelentősebbek Japánban (JAERI), az Egyesült Államokban (NIST; University of Texas at Austin), Dél-Koreában (KAERI), Indiában (BARC), illetve Argentínában (BAC) vannak, míg Németországban (FRM-II) és Marokkóban (CNESTEN) most épül egy-egy új berendezés. A hazai PGAA laboratórium 1995 óta működik.

#### 1.1.2. A PGAA tulajdonságai

A PGAA a **sugárzásos neutronbefogás** jelenségén alapszik. A folyamatban  $\gamma$ -sugárzás jön létre, amely energiájából és intenzitásából egyértelműen következtetünk a minta elemösszetételére. A neutronbefogás, a hélium négyes tömegszámú izotópját kivéve, minden nuklidon végbemegy, tehát a módszer elvben alkalmas valamennyi elem egyidejű meghatározására. Jól vizsgálhatók a könnyű elemek, így a hidrogén, bór, szén, nitrogén, kén és foszfor; a környezeti szempontokból fontos nehézfémek (Cd, Hg), valamint a geológiai indikátor ritkaföldfémek (Sm, Gd, Eu). Lehetőség van panoráma analízisre is: ekkor

egyetlen mérésből egy ismeretlen minta valamennyi összetevőjének koncentrációját, vagy az adott körülmények között érvényes kimutatási határát meghatározzuk.

A PGAA egyik legfontosabb előnye a mintaelőkészítés egyszerűsége. A minta többnyire szilárd vagy folyadék, amelyet vékony teflonzacskóban vagy küvettában sugározunk be. Önhordó mintákat közvetlenül vizsgálunk, a mintaelőkészítés ilyenkor teljesen elhagyható. A mérés alatt sokkal kevesebb atommag alakul át, mint a hagyományos neutronaktivációs analízis esetében, így az izotópösszetétel gyakorlatilag változatlan marad (nincs kiégés) és a minta maradék aktivitása is legtöbbször elhanyagolható. A teljes analitikai eljárás roncsolásmentes, így a PGAA alkalmas értékes minták vizsgálatára.

A neutronbefogással keltett fotonok energiája és intenzitása az atommag szerkezetétől függ, így legtöbbször függetlenek a kémiai kötésektől. A prompt-y módszer ezért az esetek többségében mátrixhatásoktól mentes. A neutronok és a keletkező gamma-sugárzás vastagabb rétegeken is képesek áthatolni. Így a PGAA mérés – sok más műszeres elemanalitikai módszerrel ellentétben (PIXE, PAA, XRF) - térfogati átlagösszetételt szolgáltat. Fókuszált neutronnyalábbal pedig inhomogén minták összetételét lehet megadni a hely függvényében (CHEN ET AL. 1995; CHEN-MAYER ET AL. 2000).

A kimutatási határok elemről elemre nagyságrendeket változnak és az NAA-val és az ICP-MS-el összevetve a legtöbbször nagyobbak. A legérzékenyebben mérhetőeket 0,01 ppm-szinten, a kis hatáskeresztmetszetűeket pedig csak főkomponensként határozhatjuk meg. A budapesti PGAA berendezés analitikai jellemzőit a 2.3. pontban mutatom be.

A módszernek nagy a dinamikus tartománya. Ez azt jelenti, hogy az A anyagnak Bben, illetve B-nek A-ban kimutatható legkisebb mennyiségéből számolt A/B tömegarány akár 6-8 nagyságrendet is átfoghat (RÉVAY ÉS BELGYA 2004).

A mérés és a kiértékelés minden lépése pontosan leírható statisztikai módszerekkel, így az eredmények bizonytalansága megbízhatóan becsülhető. A prompt-jelek intenzitása arányos a besugárzási idővel, tehát hosszabb méréssel az eredmények pontossága növelhető. A módszer önmagát standardizálja és az analitikai eredményeket könnyű standardokra, amely minőségbiztosítási visszavezetni szempontból fontos. Termelékenységben, az elemzés költségeiben és a kiértékelés bonyolultságában ugyanakkor a PGAA hátrányban van több más elemanalitikai technikával szemben.

#### 1.1.3. A neutronok keltése, csoportosítása és a kölcsönhatás valószínűsége

A neutron töltés nélküli részecske, tömege 1,674 927 16 (13)× $10^{-27}$  kg<sup>(2)</sup> (MOLNÁR ÉS FIRESTONE 2003). Csak kötött állapotban stabil: szabadon 10,24 (2) perces felezési idővel protonra,  $\beta^-$ -részecskére és egy anti-neutrinóra bomlik. Szabad neutronok csak magreakciókkal állíthatók elő. A leggyakrabban használt ilyen reakció a maghasadás (HAHN ÉS STRASSMANN 1939), amelyet láncreakció formájában, kutatóreaktorokban keltenek. Más elveken működő neutronforrások, például a <sup>238</sup>Pu-Be-, <sup>241</sup>Am-Be-, fotonukleáris-, <sup>252</sup>Cfforrások, neutron-generátorok (REIJÖNEN ET AL. 2004) lassú neutron hozama sokkal kisebb, így egyelőre kevésbé terjedtek el a PGAA-ban.

A neutronokat az aktivációs analitikában az alábbiak szerint csoportosítjuk. A egyensúlyban lévő neutronokat **termikus**nak nevezzük, környezetével termikus szobahőmérsékleten ez  $kT = 25,26 \text{ meV}^{(3)}$  karakterisztikus energiának, illetve 2198 m s<sup>-1</sup> legvalószínűbb sebességnek felel meg. Energiájuk közel Maxwell-eloszlással írható le. Az

<sup>&</sup>lt;sup>(2)</sup> A mennyiségek után zárójelben megadott számok a  $\pm 1\sigma$  bizonytalanság értékes jegyeit adják meg tömör formában. A jelölés értelmezése jelen esetben tehát  $(1,674\ 927\ 16\pm 0,000\ 000\ 13)\times 10^{-27}$  kg.

ezeknél kisebb, 5 meV körüli kinetikus energiájúakat **hideg**, a kb. 0,1 eV fölöttieket **epitermikus**, a MeV-es tartományban lévőket pedig **gyors**neutronoknak nevezzük. A fenti határok az irodalomban nem egységesek, helyesebb talán az eloszlások alapján különbséget tenni: az epitermikus tartományban 1/E-eloszlással közelíthetők, míg a gyorsneutronok követik a hasadási neutronok spektrumát.

Magreakciókban csak gyorsneutronok állíthatók elő, a neutronbefogás valószínűsége azonban termikus és hideg neutronokra a legnagyobb. A gyorsneutronok könnyű elemekből álló moderátorokban, sorozatos rugalmas ütközéseket követően termalizálódnak. Kutatóreaktorokban gyakran egy második, cseppfolyós hidrogént vagy deutériumot tartalmazó cellát, az ún. **hidegneutron-forrás**t is elhelyeznek, hidegneutron-nyalábok előállítására.

A neutronok és az atommag kölcsönhatásának valószínűségét a **hatáskeresztmetszett**el jellemezzük. A folyamat két gömb – a neutron és az atommag – ütközésével szemléltethető, ahol az atommag geometriai mérete helyett a befogási valószínűséggel arányos fiktív (mikroszkópikus) keresztmetszetet használunk. A neutronbefogási hatáskeresztmetszet sok esetben nagyságrendekkel eltér a geometriaitól. Szokásos mértékegysége a **barn**<sup>(4)</sup>.

Hideg neutronok befogásakor minden, a termikus neutronok esetén kb. 10 meV alatt a legtöbb nuklid követi az ún. 1/v-törvényt, azaz a hatáskeresztmetszet ( $\sigma$ ) a neutronok sebességével, s így kinetikus energiájuk négyzetgyökével fordítottan arányos. Ebben a tartományban a  $\sigma$  értékek egyszerűen kiszámíthatók a  $v_0 = 2200 \text{ m s}^{-1}$  sebességhez tartozó adatokból:

$$\sigma = \sigma_0 \frac{v_0}{v} \tag{1.1}$$

ahol  $\sigma_0 = \sigma(v_0)$  az ún. termikus neutronbefogási hatáskeresztmetszet. A  $\sigma$  a neutronenergia függvényében több helyen megugrik, ún. rezonanciákat mutat. Az első rezonancia pozíciója a kadmium esetében például 0,17 eV, hatása ugyanakkor akár egy nagyságrenddel kisebb energiáig is számottevő, felülről korlátozva az 1/v-összefüggés érvényességét. A rezonanciák a nyaláb energiaeloszlásától függően befolyásolhatják a mért csúcsintenzitásokat; korrekciójukra a PGAA-ban legelterjedtebben az ún. Wescott-féle *g*-faktort alkalmazzák (WESCOTT 1955).

Az elemek jellemzésére az izotópok hatáskeresztmetszetének a természetes gyakorisággal ( $\theta$ ) súlyozott átlagértéket használjuk:

$$\sigma = \sum_{i} \theta_{i} \,\sigma_{i} \tag{1.2}$$

#### 1.1.4. Az analitikai jel keletkezése a PGAA-ban

Lassú neutronok befogásakor először egy közbenső mag jön létre. Ennek energiafeleslege gyakorlatilag megegyezik a neutron kötési energiájával (7 – 9 MeV), mert a neutron mozgási energiája elhanyagolható. A közbenső mag többféle reakciócsatornán keresztül bomolhat, amely járhat  $\gamma$ -foton vagy töltött részecske kibocsátásával.

Az analitikai jel elsődleges forrása a **sugárzásos neutronbefogás**, más néven az  $(n,\gamma)$ -reakció. A töltött részecske emissziója csak könnyű elemeknél számottevő (<sup>3</sup>He(n,p)<sup>3</sup>H, <sup>6</sup>Li(n,t)<sup>4</sup>He, <sup>10</sup>B $(n,\alpha)$ <sup>7</sup>Li, <sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C).

 $<sup>^{(4)}</sup>$  1 barn = 10<sup>-28</sup> m<sup>2</sup>

Az (n, $\gamma$ )-reakcióban a mag a **befogási állapot**ból az **alapállapot** felé haladva **prompt**  $\gamma$ -fotonokat bocsát ki ( $\gamma_1...\gamma_5$ , 1.2. ÁBRA). Ezek energiája és intenzitása az (A+1) tömegszámú magra, így közvetve a kiindulási nuklidra jellemző. A folyamat többnyire  $10^{-12}$  s alatt lezajlik, innen ered a prompt elnevezés. Ha az atommag **metastabil állapot**tal is rendelkezik, sokkal hosszabb idő alatt kerül alapállapotba ( $\mu$ s – több év), és közben késő gamma-sugárzást bocsát ki.



1.1. ÁBRA. Az analitikai jel keletkezése a PGAA-ban

Amennyiben az alapállapotú mag  $\binom{A+1}{Z}X$  stabil, a prompt- $\gamma$  fotonok kibocsátása után a folyamat véget ér. Néhány esetben azonban **radioaktív** nuklid keletkezik, amely meghatározott felezési idővel ( $T_{1/2}$ ) alakul át stabil atommaggá, többnyire  $\beta^-$ -részecske kibocsátása közben. Ritkábban  $\beta^+$ -bomlás vagy elektronbefogás is bekövetkezhet ilyenkor. A PGAA-ban az ilyenkor keletkező, ún. **bomlási \gamma-foton**okat is detektáljuk (az 1.2. ÁBRÁN  $\gamma_6$ ) és felhasználhatjuk az analízisben.





### 1.2. A mennyiségi elemzéshez használt összefüggések

#### 1.2.1. Elemzés a prompt csúcsok alapján

Adott energiájú prompt-foton csak a befogási események bizonyos hányadában keletkezik, amit az emissziós valószínűséggel  $(P_{\gamma})$  jellemzünk. Ennek a mennyiségnek a neutronbefogási hatáskeresztmetszettel és az izotópgyakorisággal  $(\theta)$  vett szorzata az ún. parciális gamma-keltési hatáskeresztmetszet  $(\sigma_{\gamma}, partial gamma-ray production cross-section)$ , amely az egyik legfontosabb mennyiség a PGAA-ban.

$$\sigma_{\gamma} = \sigma_0 P_{\gamma} \theta \tag{1.3}$$

A mennyiségi elemzés alapja, hogy egy  $E_{\gamma}$  energiájú **csúcsban mért számlálási sebesség**  $\left(\frac{dN_P}{dt}\right)$  **arányos az adott energián sugárzó atommagok számával**. Általánosságban egy V térfogatú mintát a neutronnyalábba helyezve a csúcs számlálási sebessége (RÉVAY ÉS BELGYA 2004):

$$\frac{dN_{P}}{dt} = \int_{V} \int_{E_{n}=0}^{\infty} \frac{\mu(\mathbf{r}) N_{Av}}{M} \sigma_{\gamma}(E_{n}) \Phi'(E_{n},\mathbf{r}) \varepsilon'(E_{\gamma},\mathbf{r}) dE_{n} d\mathbf{r}$$
(1.4)

ahol  $N_p$  a csúcsterület, **r** a minta egy pontjába mutató helyvektor,  $\mu(\mathbf{r})$  a vizsgált elem sűrűsége az **r** helyen,  $N_{A\nu}$  az Avogadro-szám, M az elem relatív atomtömege,  $\Phi'(E_n, \mathbf{r})$  a fluxussűrűség a minta **r** pontjában,  $\varepsilon'(E_{\gamma}, \mathbf{r})$  pedig a detektálási hatásfok (ld. 2.1.3. A pont). Ezekkel a helyfüggő mennyiségekkel vehetjük figyelembe rendre az inhomogén összetételt, a neutronnyaláb intenzitás-változását, illetve a gamma-abszorpciót és a geometriai effektusokat. Az általános (1.4) képlethez képest a gyakorlatban egyszerűsítéseket tehetünk:

- a berendezés megfelelő kialakításával a detektorhatásfok helyfüggése kiküszöbölhető,
- az önárnyékolást és az önabszorpciót korrekciós faktorokkal vesszük figyelembe,
- ha a minta kisméretű és vékony, a nyaláb esetleges inhomogenitása nem szignifikáns,
- homogén mintáknál a sűrűség térfogati integrálja helyett a komponens tömegét használjuk,
- a reakciógyakoriság neutronsebességétől való függésére egy konvenciót alkalmazunk. A hatáskeresztmetszetet 2200 m s<sup>-1</sup> sebességű monokromatikus neutronokra (σ<sub>0</sub>) számítjuk át az (1.1) egyenlet alapján (feltételezve, hogy az 1/v-törvény érvényes). Definiálunk egy új fluxus mennyiséget, a **termikus ekvivalens fluxus**t (Φ<sub>0</sub>) úgy, hogy a két mennyiség szorzata számot adjon a tapasztalt reakciógyakoriságról:

$$R = N \int_{E_n=0}^{\infty} \Phi(E_n) \cdot \sigma(E_n) \ dE_n = N \int_{E_n=0}^{\infty} v \cdot n(E_n) \cdot \frac{\sigma_0 v_0}{v} \ dE_n =$$
  
=  $N \cdot \sigma_0 \int_{E_n=0}^{\infty} v_0 \cdot n(E_n) \ dE_n = N \cdot \sigma_0 \cdot \Phi_0$  (1.5)

ahol *n* a neutronsűrűség, *N* a nyaláb útjába eső atomok száma.

Mindezek alapján a  $t_m$  idő alatt összegyűlt csúcsterület  $(N_p)$  az alábbi alakra egyszerűsödik:

$$N_{P} = m S t_{m} = \frac{m N_{Av}}{M} \Phi_{0} \sigma_{\gamma} \varepsilon (E_{\gamma}) t_{m}$$
(1.6)

ahol *m* az elem tömege a mintában, *S* pedig az analitikai érzékenység (cps  $mg^{-1}$ ).

Ha az egyes elemek (nuklidok) csúcsterület-arányát vizsgáljuk, és koncentrációkat számolunk, a legtöbb hatás minden összetevőt egyformán érint. E relatív módszert használva számos bizonytalanságot okozó tényező kiküszöbölhető, például a fluxus számértékére sincs szükség.

#### 1.2.2. Elemzés a bomlási csúcsok alapján

Ha a neutronbefogásban keletkező nuklid radioaktív, a bomlási  $\gamma$ -fotonokat is hasznosíthatjuk az analízisben ( $\gamma_6$  foton az 1.2. ÁBRÁN). Ilyenkor azonban a csúcsok számlálási sebességének időbeli változását a számításokban figyelembe kell venni.

A radioaktivitás alaptörvénye, hogy a bomlások időegység alatti száma, az **aktivitás** (*A*), arányos az aktív magok számával. Az arányossági tényező a  $\lambda$  **bomlási állandó**. A neutron-besugárzás alatt az aktivitás exponenciálisan tart  $N\Phi_0\sigma_0$ -hoz, amelyet telítési aktivitásnak nevezünk.

$$A(t) = N\Phi_0\sigma_0\left(1 - e^{-\lambda t}\right) \tag{1.7}$$

A besugárzást követően a radionuklid mennyisége – a legegyszerűbb esetben – exponenciálisan csökken. Ha a telítődést és a bomlást időben követjük, a felezési időhöz képest finom időfelbontást kell használni. Sokszor azonban egy spektrumban gyűjtjük az eseményeket és a csúcsterületet számítással korrigáljuk.

#### A) Csúcsterület az aktiválás alatt mérve

Ha a prompt-spektrumban bomlási gamma-sugárzásból származó csúcsokat detektálunk, a területet az alábbi összefüggés adja:

$$N_{P} = \int_{t=0}^{t_{m}} \left(\frac{dN_{P}(t)}{dt}\right) dt = \frac{m\theta N_{A\nu}}{M} \Phi_{0}\sigma_{0}P_{\gamma}\varepsilon t_{m} \left[1 - \frac{1 - e^{-\lambda t_{m}}}{\lambda t_{m}}\right]$$
(1.8)

A kapcsos zárójelben lévő mennyiség a **nyalábaktivációs faktor** (*in-beam saturation factor*, *B*) (RÉVAY *ET AL*. 2003), amely megmutatja, hogy  $t_m$  mérési idő alatt az adott bomlási csúcs területe mekkora egy azonos hatáskeresztmetszetű prompt-csúcshoz (1.6) képest.

#### B) Csúcsterület az aktiválás után mérve

Ha a PGAA mérés után a bomlási eseményeket külön spektrumban gyűjtjük, a NAAból átvett faktorokat alkalmazzuk (POMMÉ *ET AL*. 1996):

- A  $t_{irr}$  besugárzási idő alatt a telítési aktivitás  $S = 1 e^{-\lambda t_{irr}}$ -ed részét érjük el: telítési (*saturation*) tényező.
- A  $t_d$  hűtési idő alatt végbemenő bomlások miatt:  $D = e^{-\lambda t_d}$  bomlási (decay) tényező.

• A  $t_{\rm m}$  mérési idő alatt csökkenő aktivitás figyelembe vételére:  $C = \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m}$  számlálási

#### (counting) tényező.

A csúcsterület tehát:

$$N_{P} = \int_{t=t_{irr}+t_{d}}^{t_{irr}+t_{d}+t_{m}} \left(\frac{dN_{P}(t)}{dt}\right) dt = \frac{m\theta N_{Av}}{M} \Phi_{0} \sigma_{0} P_{\gamma} \varepsilon t_{m} \left[1 - e^{-\lambda t_{irr}}\right] e^{-\lambda t_{d}} \left[\frac{1 - e^{-\lambda t_{m}}}{\lambda t_{m}}\right]$$
(1.9)

#### C) Csúcsterület ciklikus aktiválással

A rövid felezési idejű radionuklidok a számlálás alatt elbomlanak, ezért az analitikai jel a mérési idő meghosszabbításával nem nő. A **ciklikus aktivációs analízis**ben ezért a mérési idő alatt több, rövid aktiválás-számlálás ciklust végeznek (GIVENS *ET AL*. 1970; SPYROU 1981; HOU 2000). Ez az elv a PGAA-ban a nyaláb periodikus nyitásával-zárásával, vagy nyalábszaggatóval valósítható meg. Legyen egy ciklus hossza (*T*) a besugárzási, a hűtési, a számlálási és a várakozási  $(t_w)$  idők összege:  $T = t_{irr} + t_d + t_m + t_w$ . Az első ciklus végén az analitikai jel (1.9) szerint számolható. A második ciklus végén azonban az első ciklus maradék aktivitása még számottevő lehet, így:

$$N_{P,2} = N_{P,1} \left( 1 + e^{-\lambda T} \right)$$
 (1.10)

Ezt a gondolatmenetet k ciklusra folytatva, matematikai átalakítások után a kumulatív területre kapjuk (Hou 2000):

$$N_{P} = \frac{m\theta N_{A\nu}}{M\lambda} \Phi_{0}\sigma_{0}P_{\gamma}\varepsilon \left[\frac{k}{\left(1-e^{-\lambda T}\right)} - \frac{e^{-\lambda T}\left(1-e^{-k\lambda T}\right)}{\left(1-e^{-\lambda T}\right)^{2}}\right] \left(1-e^{-\lambda t_{irr}}\right)e^{-\lambda t_{d}}\left(1-e^{-\lambda t_{m}}\right)$$
(1.11)

#### D) Összetett bomlások kinetikája

Összetett bomlási lánc bármely tagjának pillanatnyi aktivitását és anyagmennyiségét egy lineáris differenciálegyenlet-rendszerrel lehet leírni, amelynek megoldása az esetek többségében zárt alakban felírható (BATEMAN 1910; RUBINSON 1949; SALMA 2006). Így határoztam meg a nyalábaktivációs faktort a komplex aktiválás-elágazó bomlás esetére (3.3.3. alfejezet).

## 1.3. A nyalábszaggatós PGAA

A prompt-gamma fotonok keletkezése pillanatszerű, intenzitásuk arányos a mindenkori neutronfluxussal. A bomlási csúcsok számlálási sebessége a véges felezési idő miatt késéssel követi a fluxusváltozást. Ez lehetőséget ad a prompt-jelektől való elválasztásukra, amelyet ISENHOUR és MORRISON 1966-ban egy nyalábszaggató segítségével valósított meg. A szcintillációs detektorok szelektivitásának javítására a zárt fázisban rögzített spektrumot kivonták a nyitott fázisúból (ISENHOUR ÉS MORRISON 1966A). Ezzel a magas szobaháttér és a reaktorból eredő sugárzás nagy részét ki tudták szűrni. A berendezéssel nagy

hatáskeresztmetszetű bórt határoztak meg Sm belső standard segítségével (ISENHOUR ÉS MORRISON 1966B).

A modern PGAA-ban a nyalábszaggatást ZEISLER és munkatársai alkalmazták először (ZEISLER *ET AL*. 2001). Egy Cd-borítású tárcsával modulálták a nyalábot és az adatgyűjtést egy <sup>3</sup>He neutrondetektor jeleivel kapuzták. Ha ennek a számlálási sebessége egy küszöböt meghaladt, azaz a nyaláb nyitva volt, akkor a  $\gamma$ -detektor eseményeit hozzáadták a spektrumhoz, ellenkező esetben kivonták. Így azonos hosszúságú nyitott és zárt fázis esetén a bomlási és a háttércsúcsok eltűntek a prompt-spektrumból. A zárt fázisú spektrumban azonban a Cd magas hátteret keltett (~3000 cps). A technikával a bór és a <sup>24m</sup>Na interferenciáját ( $T_{1/2} = 20,20$  ms) korrigálták NIST SRM (*Standard Reference Material*) mintákban.

A budapesti PGAA laboratóriumban az elmúlt években kezdődtek kutatások a nyalábszaggatós technikával. Eleinte magfizikai célokra (MOLNÁR *ET AL*. 2002A), a neutronnyaláb energiaspektrumának mérésére (RÉVAY *ET AL*. 2004), később demonstrációs analitikai mérésekhez (RÉVAY *ET AL*. 2005B) alkalmazták sikeresen. Itt fogalmazódott meg először, hogy a zárt fázisban rögzített spektrumot, ahol a háttér sokkal alacsonyabb, ki lehet használni a kimutatási határok csökkentésére.

### 1.4. A bórcsúcs alakja és illesztése

#### <u>1.4.1. A ${}^{10}B(n,\alpha\gamma)^7Li^*$ reakció mechanizmusa</u>

A bór elemzésére használt jel nem  $(n,\gamma)$ -, hanem az ún. <sup>10</sup>B $(n,\alpha\gamma)^7$ Li<sup>\*</sup> reakcióból ered. Az 1.3. A) ÁBRÁN szaggatott vonallal jelölt prompt-átmenet olyan gyenge, hogy analitikai szempontból figyelmen kívül hagyható. Az  $\alpha$ -részecske kibocsátása kb. 96%-os valószínűséggel gerjesztett <sup>7</sup>Li–et eredményez, amely kisugároz egy 477,6 keV energiájú  $\gamma$ -fotont. A folyamat kiemelkedő hatáskeresztmetszete a bórt az egyik legjobban mérhető elemé teszi (ld. 2.9. ÁBRA).

Az energia- és impulzusmegmaradási törvényekből következik, hogy az  $\alpha$ -részecske 8,43×10<sup>6</sup> m s<sup>-1</sup>, a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> pedig 4,81×10<sup>6</sup> m s<sup>-1</sup> kezdeti sebességgel lép ki egymással ellentétes, a befogott lassú neutronhoz képest pedig véletlenszerű irányban (lásd a 1.3. B) ÁBRÁT). A  $\gamma$ -foton energiáját az azt kibocsátó <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> nagy sebessége jól mérhetően megváltoztatja, végső soron a csúcs kiszélesedését eredményezve a spektrumban (Doppler-effektus).



A Doppler-eltolódás mértéke a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> mozgásának detektor-irányú vetületétől függ. Ha a folyamat egyetlen <sup>10</sup>B atommagon menne végbe és a detektor tökéletes felbontású volna, a spektrumban téglalapalakú csúcsot kapnánk (1.4. ÁBRA és 1. FÜGGELÉK). Az eltolódás maximális értékét a kezdeti sebesség határozza meg:  $\Delta E_{\text{max}} = \frac{v_0}{c} E_0 = 7,6 \text{ keV}$ .



1.4. ÁBRA. A Doppler-effektus hatása a jelalakra

A valóságban a bór atomok mátrixba vannak beágyazva, amely – összetételétől függően – fékezi a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> részecskét. A <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> 477,6 keV-es nívójának élettartalma összemérhető a lelassuláshoz szükséges idővel, így a közegfüggő lassulás befolyásolja a foton Dopplereltolódását. A  $\gamma$ -fotonok sűrűségfüggvényének alakját a nívó  $\lambda$  bomlási állandójának és a fékeződésre jellemző **lassulási állandónak** (*D*, értelmezését lásd a (1.12) egyenletben) az aránya határozza meg (KUBO ÉS SAKAI 2000).



1.5. ÁBRA. A bór csúcsalak változása a mátrix fékezőerejének függvényében (KUBO ÉS SAKAI 2000)

A töltött részecskék lassulását különböző közegekben már a '60-as években részletesen vizsgálták. A LINDHARDT, SCHARFF és SCHIOTT által megadott egyenletekben a mátrix fékezőerejét nukleáris és elektromos fékezési tagra bontották. (**LSS-elmélet**: LINDHARD ÉS SCHARFF 1961; LINDHARD *ET AL.* 1963). NEUWIRTH, HAUSER és KÜHN a <sup>10</sup>B(n, $\alpha\gamma$ )<sup>7</sup>Li reakcióra kimutatták, hogy a mátrix elektromos fékezőereje arányos a pillanatnyi sebességgel (NEUWIRTH *ET AL.* 1969). A nukleáris tag, amely az atommagokon való szóródást veszi figyelembe, ebben a sebességtartományban elhanyagolható (HAUSER *ET AL.* 1974). A pillanatnyi sebességgel arányos fékezőerő feltételezése exponenciális sebesség-profilhoz vezet:

$$-\frac{dv}{dt} = D \cdot v(t), \text{ azaz } v(t) = v_0 \cdot e^{-Dt}$$
(1.12)

ahol *D* az ún. lassulási állandó (*degradation constant*), és  $v_0 = 4,81 \times 10^6$  m s<sup>-1</sup> a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> kezdeti sebessége.

#### 1.4.2. A bóranalízis módszerei az irodalomban

A bórmeghatározást számos tényező nehezíti (SAH ÉS BROWN 1997). Az oldatos technikák (pl. ICP, spektrofotometria) a minták tökéletes feloldását igénylik, amely veszteséggel járhat a bórvegyületek illékonysága miatt. Más módszerek (XRF, EPMA) kimutatási határai túl magasak, és csak a minta felületi összetételét adják meg. Ezzel szemben PGAA-val a bór térfogati átlagkoncentrációját különösebb mintaelőkészítés nélkül meg lehet mérni. Az analízis alapja a <sup>10</sup>B ( $\theta_{10}$  = 19,9 (7)) (AUDI *ET AL*. 2003) stabil izotópon lejátszódó <sup>10</sup>B(n, $\alpha\gamma$ )<sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> reakció. A <sup>11</sup>B ( $\theta_{11}$  = 80,1 (7)) kis hatáskeresztmetszete miatt analitikai célra nem használható. A minták teljes bórtartalmának megadásakor tehát feltételezzük a természetes izotópösszetételt.

A bór kiszélesedett csúcsa gyakran interferál más elemek  $(n,\gamma)$ -vonalaival. Ilyenkor az analízis fontos lépése a bór és az átfedő csúcsok területének elkülönítése. Ennek egyik, műszeres módja az 1.3. pontban ismertetett nyalábszaggatós technika (ISENHOUR ÉS MORRISON 1966B; ZEISLER *ET AL*. 2001). A rutinméréseknél azonban igyekszünk a feladatot spektroszkópiai úton megoldani. Ennek módszereit az alábbiakban foglaltam össze:

#### A) Csúcsösszegzés és a referencia csúcs módszer

A bórcsúcs teljes tartományának beütéseit összeadjuk a lineáris háttér levonása után. Az összegzés során a bór és az interferáló elemek csúcsainak egyesített területét határozzuk meg, majd utóbbiak járulékát korrekcióba vesszük más csúcsaik alapján (ANDERSON *ET AL*. 1990; HYUN-JE CHO *ET AL*. 2005; PAUL 2005). Az átlapoló vonal és a bór analitikai érzékenységeinek hányadosából egy ekvivalens tömeg számítható, amelyet levonunk a bór tömegéből:

$$m'_B = m_B - s \cdot m_x, \tag{1.13}$$

ahol  $m'_B$  a minta korrigált bórtartalma,  $m_B$  az összegzett területből számított fiktív tömeg. Az s együttható pedig megmutatja, hogy egységnyi tömegű interferáló elem (x, pl. Na) mennyi bórral hoz létre azonos csúcsterületet.

YONEZAWA és munkatársa (YONEZAWA ÉS HAJI WOOD 1995) 24 elemre határozta meg az ekvivalens tömegeket. Ahol lehetséges volt, elemenként két referencia csúcsot használtak. Biológiai és geológiai SRM mintákat vizsgáltak, ahol a legfontosabb interferáló csúcsokat a Na, Si, P, Cl, Mn, Co, Ni, Sr, Cd, Hg és Sm elemekhez lehetett rendelni.

HOFMEYR módszere szimmetrikusnak tételezi fel a bórcsúcsot, és annak két felére külön-külön csúcsösszegzést végez, és a két részösszeg különbségéből fejezi ki a Na csúcs járulékát (HOFMEYR 1988). Az interferencia mértékére ritkábban más módszerekkel kapott adatokból (pl. NAA) is következtethetünk (ANDERSON *ET AL*. 1990).

#### B) Csúcsillesztés szemi-empirikus függvényekkel

MAGARA és YONEZAWA egy közelítő képletet javasolt a bór csúcsalakjának leírására (MAGARA és YONEZAWA 1998), amelyet mások is átvettek (BAECHLER *ET AL*. 2002; BYUN *ET AL*. 2004; YONEZAWA *ET AL*. 1999).

$$f_B(E) = N \int_0^{\pi} \exp\left(-\frac{\left(E - E_0 + k\cos\theta\right)^2}{2\sigma^2}\right) \sin\theta \,d\theta\,,\qquad(1.14)$$

ahol *N* egy amplitúdó jellegű mennyiség,  $E_0$  a pozíció ( $E_0 = 477,6$  keV),  $\sigma$  a Gauss-görbének tekintett csúcsalak-függvény szélességparamétere, *k* pedig egy empirikus alakparaméter. A csúcs alatt az alapvonalat arkusz tangens függvénnyel írták le. Az (1.14) integrálást elvégezve kapjuk (BAECHLER *ET AL*. 2002):

$$f_B(E) = \frac{N\sqrt{2\pi\sigma}}{2k} \left[ \operatorname{erf}\left(\frac{(k+E-E_0)}{\sqrt{2\sigma}}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{(-k+E-E_0)}{\sqrt{2\sigma}}\right) \right]$$
(1.15)

A folyamatot SAKAI és szerzőtársai az LSS-elméletre alapozva írták le, és a modellt alkalmazták is analitikai célokra (SAKAI *ET AL*. 1994). A módszerük hátránya, hogy rendkívül számításigényes és egyik bemenő paramétere nem adható meg ismeretlen mintáknál.

A fentieket továbbfejlesztve KUBO és SAKAI (KUBO ÉS SAKAI 2000) közölték az alábbi analitikus kifejezést a γ-fotonok sűrűségfüggvényére, amely a Doppler-eltolódást és az exponenciális lassulást is figyelembe veszi:

$$g(E) = \frac{c N_p}{2E_0 v_0} \frac{\lambda}{\lambda - D} \left[ 1 - \left( \frac{c |E - E_0|}{E_0 v_0} \right)^{\frac{\lambda - D}{D}} \right], \quad \text{ha} |E - E_0| \le \Delta E_{max}$$

$$g(E) = 0, \quad \text{egyébként}$$
(1.16)

A képletben *c* a fénysebesség,  $E_0 = 477,6$  keV a névleges energia,  $\lambda$  a bomlási állandó,  $\Delta E_{max} = 7,6$  keV a maximális eltolódás, *D* pedig a lassulási állandó. Utóbbi itt már csak empirikus paraméter, értékét az illesztésből határozzuk meg. A spektrumbéli csúcsalak előállításához *g*(*E*)-t numerikusan konvolválni kell a mérőrendszer csúcsalak-függvényével, amelyet a szerzők ezúttal is Gauss-görbének tekintettek. Az (1.14) – (1.15) képletekről belátható, hogy a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> részecske lassulását elhanyagoló (*D* = 0) határesete (1.16)-nak (1. FÜGGELÉK).

## 1.5. A PGAA analitikai alkalmazásai

A PGAA alkalmazásait számos összefoglaló munka (GREENWOOD 1979; MOLNÁR ÉS LINDSTROM 1998; PAUL ÉS LINDSTROM 2000) könyv, könyvfejezet ismerteti (ALFASSI ÉS CHUNG 1995; ANDERSON ÉS KASZTOVSZKY 2004; MOLNÁR 2004; YONEZAWA 2001). Az alábbiakban csoportosítva mutatom be a felhasználási területeket.

- A PGAA módszert, más radioanalitikai módszerekkel együtt, gyakran használják standard referencia anyagok minősítésére és hitelesítésére a környezeti kémiában (LINDSTROM 1997), geológiában (ANDERSON *ET AL*. 1985; YONEZAWA 1996; YONEZAWA 1999) és az iparban (LINDSTROM 1998).
- **Ipari alkalmazás**ok között említhetjük fémek hidrogéntartalmának vagy ötvöző komponenseinek meghatározását (KASZTOVSZKY *ET AL.* 2000; PAUL ÉS LINDSTROM 1998), félvezetők tisztaságának vizsgálatát, boroszilikát üvegek analízisét (RILEY ÉS LINDSTROM 1987), technológia-fejlesztést segítő méréseket (RÉVAY 2004), erőművek nehézfém-kibocsátásának meghatározását és fűtőolajok analízisét (ANDERSON *ET AL.* 1980).
- A **nukleáris technológiában** reaktorgrafit és berillium tisztaságát (JURNEY 1979), illetve a reaktormérgek képződését (PECEQUILO ÉS SUAREZ 1978) vizsgálták. Üzemviteli szempontból rendkívül fontos terület a fűtőelemek burkolatát alkotó cirkóniumötvözetek tartósságának vizsgálata, illetve a primer köri vízrendszer bórsavtartalmának mérése.
- Élelmiszerek (ANDERSON *ET AL.* 1989), növények (ROSSBACH 1991), vetőmagok elemi összetételét mérték, biológiai (SAKAI *ET AL.* 2005), gyógyászati (BNCT) és élettani vizsgálatokat végeztek (OURA ET AL. 2000). A növények növekedésében és az élőlények Ca-anyagcseréjében fontos szerepet játszik a bór, amely PGAA-val kedvezően mérhető a C, H, N, O, S tartalmú mátrixokban.
- Kihasználva a PGAA roncsolás-mentességét, jól vizsgálhatók **régészeti tárgyak**, (SZAKMÁNY ÉS KASZTOVSZKY 2004), **műkincsek** (KASZTOVSZKY *ET AL*. 1998).
- Geológiában, környezeti- és kozmokémiában a főkomponenseket és bizonyos jellegzetes nyomelemeket lehet jól meghatározni PGAA-val, üledékes kőzetekben (MINAI *ET AL.* 1993; YONEZAWA *ET AL.* 2001), vulkáni kőzetekben (GMÉLING *ET AL.* 2006), (PERRY *ET AL.* 2000), meteoritokban (EBIHARA ÉS OURA 2001; KUDĚJOVÁ *ET AL.* 2004; LATIF *ET AL.* 1999) és természetes vizekben.
- A PGAA módszer alkalmas hordozós katalizátorok elemzésére (SÁRKÁNY *ET AL.* 2003; SÁRKÁNY ÉS RÉVAY 2003), ahol kis mennyiségű, de érzékenyen mérhető katalitikus hatású összetevő határozható meg.
- Anyagtudományi alkalmazások (AGHARA *ET AL*. 2005; KASZTOVSZKY *ET AL*. 1999)

# Második fejezet Mérési és kiértékelési módszerek

Ebben a fejezetben a berendezést, a méréstechnika alapelveit és a kollégáim által korábban kidolgozott módszereket mutatom be, amelyeket munkám során felhasználtam.

### 2.1. A mérőberendezés

#### 2.1.1. A Budapesti Kutatóreaktor és a neutronvezető rendszer

A Budapesti Kutatóreaktor (BKR) orosz WWR-SM típusú könnyűvizes reaktor. Aktív zónája egy alumíniumötvözetből készült tartályban helyezkedik el (2.1. B) ÁBRA). A töltet 229 darab 36%-os dúsítású fűtőelemből áll. Az aktív zónát berillium reflektor veszi körül, a láncreakciót bór-karbid tartalmú rudakkal szabályozzák. A reaktor hőteljesítménye 10 MW, a zónában a termikus neutronfluxus  $2,2 \times 10^{14}$  cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. A hűtővíz jellemző hőmérséklete 54–60 °C (BNC 2002). A reaktor 10 napos kampányokban működik, közben hosszabb-rövidebb szünetekkel, évente összesen kb. 4500 órát.

A 10. számú tangenciális csatornába van beépítve a **hidegneutron-forrás**, amely egy 400 cm<sup>3</sup> térfogatú, kb. 20 K hőmérsékletű cseppfolyós hidrogént tartalmazó tartály. Innen a neutronokat természetes nikkel-, vagy szupertükör bevonatú, 100 mm  $\times$  25 mm téglalap keresztmetszetű üvegvezetőkkel juttatják a mérőberendezésekhez. A **neutronvezetők**et bóros paraffin és beton biológiai védelem veszi körül. A PGAA mérőhely a reaktortól 33 m-re helyezkedik el (2.1. A) ÁBRA).



2.1. ÁBRA. A Budapesti Kutatóreaktor, a neutronvezető csarnok és a PGAA-NIPS mérőhely felülnézeti rajza<sup>(5)</sup>

<sup>&</sup>lt;sup>(5)</sup> Az ábra elkészítéséhez felhasználtam korábbi munkatársunk, Ember Péter Pál rajzát.

A nyalábot a neutronvezető végén kettéosztották, így **két berendezés** üzemeltethető függetlenül (felső nyaláb: **PGAA**, alsó nyaláb: **NIPS** (*Neutron-Induced Prompt-Gamma Spectrometry*), 2.1. C) és 2.2. ÁBRA) (RÉVAY *ET AL*. 2004).

#### 2.1.2. A PGAA és a NIPS mérőhely

A PGAA mérőrendszer egy 125 cm<sup>3</sup> térfogatú **HPGe detektor** köré épült. A központi detektort nyolc **bizmut-germanát szcintillátor** (*BGO*) szegmens veszi körül. A detektor mögött, a hidegujj körül két további, ún. "*catcher*" található. Ha a germánium kristályból kiszóródó  $\gamma$ -fotonok elnyelődnek a tíz szegmens valamelyikében, fényfelvillanás jön létre, amelyet külön-külön fotoelektron-sokszorozóval detektálunk. Ezek összegzett jelével valósítjuk meg a **Compton-elnyomás**t: a germánium detektorban és ugyanakkor valamelyik szcintillátorban is jelet keltő, azaz biztosan nem a teljesenergia csúcsba kerülő foton jelét a feldolgozásnál szelektíven letiltjuk. Így azonos területű csúcshoz legalább ötször kisebb egyszeres, százszor kisebb kétszeres szökési csúcs és akár 5–40-szer alacsonyabb Compton-plató tartozhat (BELGYA *ET AL.* 1997). Előbbi egyszerűsíti a spektrumot, utóbbi javítja a kimutatási határokat és csökkenti a csúcsterületek statisztikus hibáját. A detektort egy kb. 10 cm vastag **ólom**védelem veszi körül, így fotonok csak a **kollimátor**on át juthatnak a detektorba. Ez a kialakítás csökkenti a térszöget, azonban garantálja, hogy  $\gamma$ -fotonok a BGO-ba közvetlenül nem, csak a HPGe detektorból kiszóródva juthatnak.



2.2 ÁBRA. A PGAA és NIPS mérőhelyek elrendezése. A PGAA mintakamra fölött látható a kivett mintatartó keret, jobbra pedig a nyalábszaggató tárcsa

A NIPS mérőhely annyiban különbözik a PGAA rendszertől, hogy

- a detektorkristály kisebb, kb. 100 cm<sup>3</sup> térfogatú,
- nincs Compton-elnyomás; passzív háttércsökkentés ólomtéglákkal lehetséges,
- állítható a geometria, nincs kollimátor a detektor és a mintatartó között,
- a mintatartó csak kisebb minták behelyezésére alkalmas,
- lehetőség van több detektor használatára, illetve koincidencia mérésre (EMBER *ET AL*. 2002)

#### 2.1.3. A mérőrendszerek paraméterei

#### A) Hatásfok

A  $\gamma$ -detektorok egyik legfontosabb jellemzője az abszolút detektálási **hatásfok**, amely a teljesenergia csúcsba kerülő események és a sugárforrás által kibocsátott, adott energiájú fotonok számának hányadosa. Kollimált geometria esetében, mint amilyet a PGAA-ban is alkalmazunk, a hatásfok maximuma közel azonos a relatív térszöggel, ezért az felbontható a geometriai és a detektor hatásfokának szorzatára:

$$\varepsilon_{abs} = \varepsilon_{geom} \cdot \varepsilon_{det} \tag{2.1}$$

Általános esetben ez az egyszerűsítés nem tehető meg, a teljesenergiacsúcs-hatásfok a detektor geometriának, a minta pozíciójának, kiterjedésének, a γ-abszorpciónak és az esetleges valódi koincidencia-veszteségnek szétválaszthatatlan függvénye (MOENS *ET AL.* 1981). (Egy ilyen esetet a 4.2. fejezetben mutatok be, az alkalmazott hatásfokszámítás részleteit pedig a 3. FÜGGELÉK tartalmazza). A detektorhatásfok erősen energiafüggő, log-log skálán 6–8 fokú ortogonális polinommal (2.2) (MOLNÁR *ET AL.* 2002B) vagy *cubic spline* függvénnyel (BELGYA 2005) jól leírható:

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=0}^{n} a_i \left( \ln E \right)^i$$
(2.2)

#### B) Nonlinearitás

A germánium kristályban a  $\gamma$ -fotonok elektron-lyuk párokat keltenek. Egyetlen kölcsönhatásban átlagosan 3 eV nyelődik el, így egy néhány MeV energiájú foton akár milliónál is több töltéshordozót hozhat létre. A detektálás és a jelfeldolgozás részfolyamatai (ld. 2.1.5. fejezet) alapvetően lineárisak, így a spektrumban a csatornaszám az energiával egyenesen arányos lesz. A gyakorlatban ez nem teljesül maradéktalanul. A szisztematikus, ezrelékes-szintű eltérést jellemezzük az ún. **differenciális nonlinearitás**sal. A PGAA energiatartományában az 1–2 csatorna eltolódás akár 1 keV pozícióhibát is okozhat, amely már téves csúcsazonosításhoz vezet, ezért ki kell küszöbölni. A tapasztalatok szerint a nonlinearitás időben lassan változik, emiatt ugyanazt a korrekciós függvényt használhatjuk több hónapon át. A függvény meghatározására szolgál a **nonlinearitás kalibráció**, amely során sugárforrások jól ismert energiájú csúcsait mérjük, majd a pozíciók és az irodalmi értékek eltérésére polinomot illesztünk (FAZEKAS *ET AL*. 1999). Ezzel a függvényel korrigáljuk az analízisben a mért energiákat.

#### C) Energiafelbontás

A PGAA-ban kiemelt fontosságú a **detektor energiafelbontása**. Jellemzésére a csúcsok félértékszélességét használjuk (*FWHM: full width at half maximum*), amely a <sup>60</sup>Co 1332 keV energiájú csúcsára esetünkben 1,8–2,2 keV.

A mérőrendszer felbontását ( $W_T$ ) az elektronika és a detektor együttesen határozzák meg, és három tag négyzetes összegeként adható meg. Ezek rendre az elektronika járuléka (E), a töltéskeltés statisztikus fluktuációja (D) és a tökéletlen töltésösszegyűjtés hatása (X).  $W_T$ energiafüggő mennyiség, a PGAA-ban (50–11 000 keV) legalkalmasabb interpolációs függvény az alábbi (OWENS 1985; KNOLL 2000):

$$W_T = \sqrt{W_E^2 + W_D^2 + W_X^2} = \sqrt{a_0 + a_1 E + a_2 E^2}$$
(2.3)

Az irodalomban legtöbbször a harmadik tagot elhanyagolják  $(W \approx \sqrt{a_0 + a_1 E})$ , csakúgy, mint a spektrumkiértékeléshez nálunk is használt HYPERMET-PC programban. Ez a közelítés kb. 600 keV alatt és 3 MeV fölött alábecsli a mért értékeket (2.3. C) ÁBRA, szaggatott vonal).

#### 2.1.4. A mérőrendszerek kalibrálása

A fenti három függvény meghatározásához olyan  $\gamma$ -forrásokat mérünk, amelyek energia és intenzitás adatai pontosan ismertek és csúcsaik a teljes PGAA energiatartományban egyenletesen oszlanak el. A spektrumokat külön-külön vesszük fel, így alacsonyan tartható a háttér és elkerülhetők az interferenciák. A mérési időt úgy választjuk meg, hogy a fontos csúcsok terület-bizonytalansága legfeljebb 0,5 % legyen. Ekkor a csúcspozíciók hibája (energiától függően) már csak 0,005–0,05 csatorna.

Kis energiákon **radioaktív források** (<sup>152</sup>Eu, <sup>207</sup>Bi, <sup>60</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>226</sup>Ra) vonalait, míg 2–11 MeV között a nitrogén és klór intenzív **prompt-γ csúcs**ait használjuk. A hatásfok-görbét a legpontosabban kalibrált radioaktív forráshoz normáljuk, a többi spektrumból csak relatív intenzitásokat használunk fel. Az eljárás pontos menete megtalálható a (MOLNÁR *ET AL*. 2002B) cikk függelékében.

A számításokat a HYPERMET-PC program EFFICIENCY, NONLINEARITY és FWHM ANALYSIS moduljai segítik (FAZEKAS *ET AL*. 1998). A PGAA detektor és a standard mérőelektronika 2005. május-július között érvényes hatásfok-, nonlinearitás- és félértékszélesség-görbéit a becsült hibákkal együtt a 2.3. ÁBRÁK szemléltetik.







#### 2.1.5. A jelfeldolgozás

A feldolgozás első lépését az **előerősítő** végzi. A nálunk található RC visszacsatolásos előerősítő 10–30 ns felfutású és kb. 45 µs időállandóval lecsengő impulzusokat hoz létre. A további egységek feladata a jelek amplitúdójának meghatározása az energiainformáció meghatározása céljából. Erre a célra évtizedeken keresztül **analóg** spektroszkópiai erősítőket használtak, amelyek szűrik, erősítik és közel Gauss-görbe alakúvá (*semi-Gaussian*) formázzák a jelet. Ennek amplitúdóját analóg-digitális átalakítóval (ADC) leolvassák, majd az esemény a sokcsatornás analizátor (MCA) kártya megfelelő csatornájába kerül. Az analóg rendszerben tehát a jelet csak az MCA előtt digitalizálják.

Néhány éve a műszergyártók megjelentették a **digitális jelfeldolgozó egységek**et (*digital signal processor*, *DSP*). Ezekben az előerősítő jelét már a feldolgozás első lépésében számokká alakítják és a jelformálást numerikus algoritmusokkal (ún. *filter* függvényekkel), az adatfolyamon hajtják végre. Ez számos előnnyel jár az analóg rendszerekhez képest, mivel:

- a jelformálást pontosan az elméletileg levezetett függvényekkel végzik, nem azok elektronikailag megvalósítható valamilyen közelítésével,
- az algoritmusok paraméterei számok, amelyek sokkal **flexibilisebb**en és reprodukálhatóbban állíthatók, mint az analóg rendszerek kapcsolói,
- elvileg csökkenthető az analóg zaj, az időbeli és hőmérsékletváltozás okozta instabilitás,
- az elektronika kompaktabb és integráltság miatt egyszerűbb az üzemeltetés,
- a **mérőprogram** teljes kontrollt biztosít a berendezés felett.

A kétféle mérőrendszer blokksémája a következő:



2.4. ÁBRA. Az analóg és a digitális jelfeldolgozás blokksémája

#### A digitális szűrő:

- numerikusan korrigálja az előerősítő jele lecsengését, azaz biztosítja az alapszint helyreállítását
- kijelöl két, egyforma hosszúságú időablakot ( $R_1$  és  $R_2$ ), köztük kihagyva egy intervallumot,
- a *D* adatpontokat *w* súlyfaktorokkal szorozza és képezi a két részösszeg különbségét:

$$H = \sum_{\forall j \in R_2} D_j \cdot w_j - \sum_{\forall i \in R_1} D_i \cdot w_i$$
(2.4)

A legegyszerűbb esetben a súlyfaktor konstans, ilyenkor a szűrő a jelet trapéz alakúvá formálja. Ennek magassága arányos a kezdeti amplitúdóval, felfutó szakaszának hossza (RT, *Rise Time*) megegyezik  $R_1$  és  $R_2$  időablakéval, a konstans szakasz (FT, *Flat Top*) pedig a kihagyott intervallum hosszával azonos (2.5. ÁBRA).



2.5. ÁBRA. Az előerősítő jele és a digitális szűrés eredménye (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2005A)

Az adatfolyamon két szűrő dolgozik folyamatosan. A rövidebb időállandójú  $(RT = FT = 0,1 \ \mu s)$  a gyors ugrásokat detektálja és az események idejét rögzíti (*Peak detect*). A hosszabb időállandójú szűrő  $(RT \cong 6-12 \ \mu s, FT \cong 1-2 \ \mu s)$  az amplitúdó pontosabb meghatározást végzi (*Energy filter*). Amikor a *Peak Detect* szűrő értéke meghalad egy küszöböt, azaz a rendszer beütést érzékel, kiolvassa annak idejét, majd hozzárendeli az amplitúdót a hosszabb szűrőből. Az esemény végül az amplitúdójának megfelelő csatornába kerül a memóriában. A rendszer holtideje a rövid időállandójú filter foglaltságából határozható meg. Ha két esemény olyan közel érkezik be időben, hogy amplitúdójukat nem lehet külön-külön meghatározni, a rendszer mindkét eseményt figyelmen kívül hagyja (*Pile-up rejection*).

A rutin PGAA mérésekhez jelenleg az analóg mérőláncot használjuk, a digitális rendszereket azonban számos feladatban sikerrel alkalmaztam. A végső célt, az analóg rendszer kiváltását azonban még nem sikerült elérni. Ennek okait a 4.1. alfejezetben tárgyalom.

### 2.2. A rutin analízis menete

#### 2.2.1. Mintaelőkészítés és mérés (RÉVAY 2000)

A prompt- $\gamma$  aktivációs analízisben a **mintaelőkészítés** igen egyszerű. Összetételétől függően kb. 0,5–2 gramm minta szükséges a méréshez, amely lehet szilárd vagy folyadék. Inhomogén vagy durva szemcsés pormintákat szükség szerint homogenizáljuk, majd FEP-(fluorozott etilén-propilén) fóliazacskóba csomagoljuk. Az ilyen minták kiterjedése jellemzően 2×3 cm<sup>2</sup>, vastagsága 1–3 mm. Az önhordó minták közvetlenül a nyalábba helyezhetők, teflonszálakkal rögzítve. Pormintákból pasztillázással készíthetünk önhordó mintákat. A folyadékmintákat teflon küvettában sugározzuk be. A teflon és a FEP kedvező csomagolóanyag, mert kevés és kis intenzitású csúcsot ad a spektrumban, illetve kémiailag ellenálló.

A mintát ezután rögzítjük egy alumínium kerethez, amely pontosan illeszkedik a mintakamrába, s így biztosítja a reprodukálható pozícionálást (ld. még a 2.2. ÁBRÁN). A keret háromféleképpen helyezhető be: a nyalábbal párhuzamosan, arra merőlegesen, vagy 30 fokos szögben. Ha a minta nem illékony vagy bomlékony, a kamrát vákuum alá helyezzük. Ez csökkenti a hátteret a spektrumban, amely fontos, ha a mintából eredő számlálási sebesség kicsi. Szokásosnál nagyobb minták vizsgálatakor a mintakamrát eltávolítjuk, és a tárgy megfelelő részét a nyalábba igazítjuk.

Ezt követően kinyitjuk a nyalábot és megkezdjük a **számlálás**t a CANBERRA GENIE 2000 mérőprogrammal. A prompt-mérés közben döntjük el, hogy mennyi ideig kell mérni a mintát. Így a mintáról csak kevés előzetes ismeretre van szükség és egyetlen méréssel elvben az összes elem meghatározható. A mérési idő a gyakorlatban nagyon különböző lehet. A tapasztalatok szerint például egy 1 grammos geológiai minta spektrumában fél–két óra alatt a főösszetevők és néhány nyomelem legfontosabb csúcsai akár 1 % pontosságot is elérhetnek. Bonyolult spektrumok, kis érzékenységű elemek vagy nagy pontossági igény esetén a mérés több napig is tarthat.



2.6. ÁBRA. A CANBERRA GENIE 2000 mérőprogram képernyőképe adatgyűjtés közben

Amikor elegendő beütés gyűlt össze a spektrumban, a nyalábot bezárjuk és a spektrumot eltároljuk. A további adatfeldolgozáshoz a GENIE 2000 formátumú, \*.CNF kiterjesztésű spektrumot egy általam írt programmal S100 formátumú, \*.MCA fájllá konvertáljuk.

A mérés után a mintákat pár napig egy ólom tárolóban pihentetjük. Ez idő alatt a legtöbb minta aktivitása a mentességi szint alá csökken, így korlátozás nélkül **tovább** használható.

#### 2.2.2. A spektrumértékelés

A spektrumokban az értékes információt a teljesenergia csúcsok pozíciója és területe hordozza. A kiértékelés célja e két paraméter minél pontosabb meghatározása. Az akár több száz csúcsot tartalmazó spektrumokat a kiértékeléshez kisebb, legfeljebb 10 csúcsból álló **régió**kra osztjuk fel.

A hetvenes évek közepén PHILLIPS és MARLOW javasoltak egy félempirikus **csúcsalak-függvény**t (PHILLIPS ÉS MARLOW 1976), amelyet, vagy annak módosított alakját ma is több γ-spektrometriai program használ (HYPERLAB (SIMONITS *ET AL*. 2003); HYPERMET-PC (FAZEKAS *ET AL*. 1997)). A függvény értéke a régió *j*-edik csatornájában a következő:

$$p(j) = \Gamma \cdot \left[ e^{-\left(\frac{j-x_0}{\delta}\right)^2} + \frac{1}{2} A \cdot e^{\left(\frac{j-x_0}{\beta}\right)} \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\delta}{2\beta} + \frac{j-x_0}{\delta}\right) + \frac{1}{2} R \cdot e^{\left(\frac{x_0-j}{\rho}\right)} \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\delta}{2\rho} - \frac{j-x_0}{\delta}\right) \right], \quad (2.5)$$

ahol  $\operatorname{erfc}(x) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{0}^{x} e^{-t^{2}} dt$  a komplemeter hibafüggvény.

A (2.5) csúcsalak első tagja egy **Gauss-görbe**, amely a töltéskeltés statisztikus ingadozását és az elektronikus zaj hatását képviseli. Paraméterei<sup>(6)</sup> az  $x_0$  pozíció, a  $\Gamma$  amplitúdó és a  $\delta$  szélesség, amely a szokásos  $\sigma$  szórásparaméter  $\sqrt{2}$ -szerese.

A második tag, a **bal oldali lecsengés** (*Left Skew*), a töltésösszegyűjtés tökéletlenségére vezethető vissza. A detektor az esetek egy részében kisebb energiájú fotont észlel a ténylegesnél, amely exponenciális energia-eloszlást eredményez. Valóságos körülmények között ennek a fenti Gauss-görbével konvolvált eredőjét tapasztaljuk, amely egy EMG (*Exponentially Modified Gaussian*) függvény. Az A egy normalizációs amplitúdó,  $\beta$  pedig a lecsengés meredeksége; mindkettő energiafüggő mennyiség.

Nagy számlálási sebesség esetén csúcstorzulás léphet fel a jeltorlódás (**pile-up**) miatt. Ezt vesszük figyelembe a **jobb oldali lecsengés**i (*Right Skew*) taggal, amely szintén EMG függvény, *R* és  $\rho$  paraméterekkel. Használatának indokoltsága az elektronika minőségétől és a mérési körülményektől függ. A HYPERMET-PC program ezt a komponenst nem tartalmazza, azonban 3. és 4. fejezetben leírt illesztési feladatokban már szerepeltettem.

A csúcsalakfüggvény tehát egy Gauss-görbe és egy vagy két EMG függvény összege, a csúcs területe pedig komponensek területének összege:

$$N_{P} = \Gamma \cdot \left[ \delta \cdot \sqrt{\pi} + A \cdot \beta \cdot e^{\left( -\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \beta^{2}} \right)} + R \cdot \rho \cdot e^{\left( -\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \rho^{2}} \right)} \right]$$
(2.6)

<sup>&</sup>lt;sup>(6)</sup> A függvényparaméterek részletes értelmezését lásd a 4. függelékben

A modellfüggvény további tagokat tartalmaz a csúcs alatti **háttér** leírására. Ide tartozik az *S* magasságú **lépcsőfüggvény** (*Step*), amely egy *erfc* függvény (a Heavisidefüggvény és egy Gauss-görbe konvolúciója). Ezt a háttérkomponenst a kollimátorban vagy a detektor holtrétegében kis szögben szóródott, eredetileg  $E_0$  energiájú  $\gamma$ -fotonok okozzák. *S* értéke általában a csúcsterület 0,001 – 0,003-szerese, s a kis energiák felé növekszik. A szökési csúcsok alatt fordított lépcsőugrás figyelhető meg, mert az egyik, vagy mindkét annihilációs foton energiájának kis részét még a detektorban leadhatja, mielőtt elhagyja az aktív térfogatot.

A háttérfüggvény második tagja az ún. **Tail**, szintén egy EMG függvény, amely detektorfelületi hatásokra vezethető vissza. E függvény amplitúdója (T) általában tizedeszázada a csúcsmagasságnak, akárcsak a lecsengés meredeksége (v) a csúcsok szélességének. Elsősorban kis energiájú, intenzív csúcsok esetén jelentkezik.

$$b(j) = \Gamma\left[S\frac{1}{2}\operatorname{erfc}\left(\frac{j-x_0}{\delta}\right)\right] + \Gamma\left[T \operatorname{e}^{\frac{j-x_0}{\nu}} \frac{1}{2}\operatorname{erfc}\left(\frac{j-x_0}{\delta} + \frac{\delta}{2\nu}\right)\right]$$
(2.7)

A régió folytonos hátterét egy legfeljebb másodfokú polinommal közelítjük:

$$l(j) = a_0 + a_1 j + a_2 j^2$$
(2.8)

Egy régió *R* darab csatornájának illesztéséhez a spektrum *m* csúcsot tartalmazó darabját kell kijelölni, lehetőleg úgy, hogy a széleken az alapvonal sima legyen. Erre egy legfeljebb n = 2m+11 paraméteres függvényt illesztünk. A csúcsonkénti két változóhoz (intenzitás, pozíció) járul a *Left Skew*, a *Tail* és a *Right Skew* két-két (relatív amplitúdó és lecsengés) paramétere, a *Step* függvény relatív amplitúdója, a  $\delta$  szélességparamétere és a polinom legfeljebb három együtthatója. A háttér *b* tagjának és az  $a_1$ ,  $a_2$  paraméterek használata opcionális. A súlyozott legkisebb négyzetes **illesztés** során a  $\chi^2$  célfüggvényt minimalizáljuk:

$$\chi^{2} = \frac{1}{R-n} \sum_{j=0}^{R} \frac{\left[ y(j) - \left\{ l(j) + \sum_{m} \left[ p_{m}(j) + b_{m}(j) \right] \right\} \right]^{2}}{y(j)} \to \min!$$
(2.9)

Az optimumban a normált  $\chi^2$  várható értéke 1, szórása pedig  $\sqrt{\frac{2}{R-n}}$ .

A spektrumaink rutinszerű kiértékeléséhez a HYPERMET-PC programot használjuk (RÉVAY *ET AL.* 2005A). Mindenekelőtt kiválasztunk egy kis és egy nagy energiájú, ismert nuklidoktól származó, intenzív csúcsot, amelyekkel **kalibráljuk** az energia-tengelyt és a csúcsszélességet. A program ezután végighalad a spektrumon, megkeresi a háttérből szignifikánsan kiemelkedő csúcsokat, meghatározza a tartományok optimális határait, és régiónként elvégzi a (2.9) függvény minimalizálását. Ebből megkapjuk a csúcsok pozícióját, területét és ezek bizonytalanságát. Végül az **automatikus illesztés** eredményét a  $\chi^2$  értéke és a reziduumok alapján felül kell vizsgálni. Ahol szükséges, további csúcs hozzáadásával vagy törlésével, a modellfüggvény vagy a régióhatárok módosításával javítani kell az illesztésen.

A 2.7. ÁBRA egy jellegzetes spektrumrészlet illesztését mutatja be a HYPERMET-PC programmal. Az aszimmetrikus csúcsok alatt jól látszik a lépcsőugrás függvény.



2.7. ÁBRA. A klór egyik dublettjének illesztése a HYPERMET-PC programmal.

A programot úgy állítjuk be, hogy a csúcspozíciónak a csúcs súlypontját tekintse (RÉVAY *ET AL*. 2001). Az illesztés végeztével betöltjük a **hatásfok- és nonlinearitás-függvényt**. Utóbbit a program úgy transzformálja, hogy a kalibrációs alappontokban értéke nulla legyen. Az utolsó lépésben egy **csúcslistát** készítünk, amely táblázatosan tartalmazza az összes csúcs pozícióját, energiáját, félértékszélességét, területét, mindezek becsült hibáját, valamint az illesztések  $\chi^2$ -értékét.

#### 2.2.3. Kvantitatív analízis (RÉVAY 2000)

Az összetétel-számolást egy MICROSOFT EXCEL **makró**val végezzük, amely a HYPERMET-PC csúcslistáját használja fel. A jól algoritmizálható feladatokat, mint a csúcsazonosítás és a statisztikai vizsgálatok, a program automatikusan elvégzi. A nyers eredményeket az analitikus a mintával kapcsolatos ismeretei alapján módosíthatja.

Első lépésben a makró betölti a csúcslista fájlt, az analitikai adatkönyvtárat, amely minden elemre legfeljebb 25 csúcsot tartalmaz, illetve a háttérvonalak táblázatát. Minden spektrumcsúcshoz kigyűjti a szóba jöhető irodalmi vonalakat ( $\chi_E < 3$ ), illetve kiszámítja az ezeknek megfelelő elemtömegeket az (1.6) és (1.8) képletek alapján. Ezt követően elemek szerint csoportosítja a sorokat és statisztikai tesztekkel kiszűri a kiugró értékeket. Végül a csúcsokból számított tömegekből **súlyozott átlagot képez** és kiszámítja az eredő hibát. Az így kapott átlagos tömegek statisztikus (és az esetleges szisztematikus) hibája sokkal kisebb, mintha az analízist csak egy-egy csúcs alapján végeznénk. A makró kiszámít minden elemre egy **minősítő szám**ot, amely függ a megtalált csúcsok számától és relatív intenzitásuktól. A kis intenzitású csúcsok hiánya csak kismértékben, míg a legintenzívebb csúcsok hiánya jelentősen csökkenti a minősítő számot.

Ha egyes csúcsenergiák nagyon eltérnek az irodalmiaktól, vagy a tömegek az átlagértéktől, a kiértékelő az adott sort figyelmen kívül hagyhatja. Ilyenkor a táblázat minden értéke automatikusan frissül. Egy másik táblázatban a makró kigyűjti a szignifikáns elemeket, azok tömegéből kivonja a hátteret, és végül a tömegekből koncentrációkat számol (atom % és tömeg %).

	в	С	J	L	M	U	۷	Х	AA	AB	AD	AE	AF	AG	AH	AL	AJ	AL	AM
1	meas. E (keV)	E unc	Røi. Int.	8.	No.	mcon	*	dm%	aus	<s>%</s>	en%	dim/s	dE/s	chi^2 for m	chi^2 for E	Р	f dec	-m (int)	interferences
62	2885.24	0.5	8.1	Р	17	0.00439		27									1	0	3397.369(8E) 39
63	841.013	0	100	S	1	0.10654	*	2.4	0.1055	2.1	1.5	0.40	0.00	0.30	1.04	1.00	1	0	
64	2379.61	0.1	59.9	S	2	0.10405	*	2.8				-0.50	1.45				1	0	3401.997(DE)
65	5420.48	0.2	88.9	S	3	0.10221	*	3.6				-0.87	1.05				1	0	6441.812(DE)
66	3220.53	0.1	35.8	S	4	0.10458	*	2.9				-0.31	1.34				1	0	
67	2930.67	0.1	23.9	S	5	0.10513	t	3.4				-0.11	0.74				1	0	
68	4869.47	0.2	18.7	S	6	0.10358	*	4.6				-0.40	1.38				1	0	
69	2753.18	0.1	7.96	S	7	0.10296	*	4.3				-0.56	0.90				1	0	3777.180(DE)
70	3369.69	0.1	7.83	S	8	0.10522	*	4				-0.07	1.58				1	0	
71	1697.18	0.1	3.6	S	9	0.10256	*	7.6				-0.37	-0.17				1	0	2717.163(DE)
72	4430.47	0.2	7.58	S	10	0.10378	*	4.1				-0.40	1.05				1	0	5452.440(DE)
73	2216.63	0.1	3.46	S	11	0.10699	*	10				0.14	-0.18				1	0	
74	1472.36	0	2.5	S	12	0.1077	*	2.9				0.70	0.78				1	0	2496.896(DE)
75	2490.13	0.1	3.61	S	13	0.10465	*	3				-0.28	1.05				1	0	3002.128(SE)
76	3723.6	0.1	3.82	S	14	0.11159	*	4.9				1.16	1.64				1	0	4234.812(SE)
77	1964.83	0.1	1.89	S	15	0.10561	*	10				0.01	-0.27				1	0	2987.394(DE)

2.8. ÁBRA. Az összetétel számoló Excel-makró egyik táblázatának részlete. Ha a "V" oszlopban \* van, az adott csúcs szerepel az átlagolásban. Az "AA63" cellában az átlagos tömeg szerepel, mellette a belső hiba (a tömegek egyedi hibájából) és a külső hiba (a tömegek szórása az átlag körül). Az "AE" és az "AF" oszlopok tartalmazzák a tömegek és az energiák átlagtól való ( $\mu$ ) normalizált eltérését  $\left(\chi = \frac{x - \mu}{\sigma}\right)$ , míg az "AI63" cellában találjuk az elem minősítő számát.

## 2.3. A budapesti PGAA berendezés analitikai paraméterei

Egy elemet akkor mutatunk ki a mintában, ha legalább egy csúcsát biztonsággal azonosítani tudjuk a spektrumban. A HYPERMET-PC algoritmusa akkor talál meg egy csúcsot, ha annak amplitúdója meghaladja a környezetében mért háttér szórásának háromszorosát. Gauss-görbét feltételezve a csúcsterület:  $N_p = \Gamma \delta \sqrt{\pi} = \Gamma \sqrt{\pi} W / 1.6551 \approx \Gamma \cdot W$ . A háttér (b) szórása a csúcs közvetlen közelében  $\sqrt{b}$ . Az ezt háromszorosan meghaladó csúcs amplitúdója  $\Gamma = 3\sqrt{b}$ , azaz egy elem legkisebb kimutatható mennyisége (m<sub>DL</sub>, Limit of *Detection*, *LOD*):

$$m_{DL} = \frac{N_{P,DL}}{S \cdot t} \approx \frac{3 \cdot \sqrt{b} \cdot W(E_{\gamma})}{S \cdot t} = \frac{3 \cdot M \cdot \sqrt{b} \cdot W(E_{\gamma})}{N_{A} \cdot \Phi_{0} \cdot \sigma_{\gamma} \varepsilon(E_{\gamma}) \cdot t}, \qquad (2.10)$$

ahol  $N_{P,DL}$  az adott  $E_{\gamma}$  energiájú csúcs legkisebb, még detektálható területe, S az elem analitikai érzékenysége (egységnyi tömegű elem számlálási sebessége, cps/mg), W a félértékszélesség. A kimutatási határ függ a mátrix keltette háttér nagyságától, tehát mintáról mintára változik. A PGAA mérőhelyünk jellemző kimutatási határait a 2.9. ÁBRA mutatja be, a háttérviszonyokat a 2.10 ÁBRA jellemzi.



2.9. ÁBRA. Az elemek legkisebb kimutatható mennyisége a budapesti PGAA mérőhelyen, a legkedvezőbb detektálási körülményeket feltételezve és 30 000 s mérési időre vonatkoztatva<sup>(7)</sup>





A mennyiségi meghatározás alsó határa (*Limit of Quantitation, LOQ*) függ az eredmények elfogadható bizonytalanságától. Japán és dél-koreai kutatócsoportok kísérletileg igazolták, hogy az elemek kimutatási határa és az analitikai érzékenysége (*S*) egymással fordítottan arányos (YONEZAWA *ET AL*. 1995; BYUN 2004).

<sup>&</sup>lt;sup>(7)</sup> Az ábrát Révay Zsolt állította össze.

# Harmadik fejezet Saját módszerek időfüggő folyamatok vizsgálatára

Az előző fejezetben a fő hangsúly a prompt-események mérésén és kiértékelésén volt. Időfüggő jelenségek vizsgálatához a szokásos analitikai eljárást kiegészítettem vagy helyettesítettem új módszerekkel. Az alábbiakban ezeket mutatom be a lassabb folyamatok felől a gyorsabbak felé haladva.

### 3.1. A besugárzást követő számlálás

A prompt-mérést kiegészítő analitikai információt kaphatunk, ha a besugárzás után újabb spektrumo(ka)t veszünk fel a minta bomlási  $\gamma$ -sugárzásáról. Ilyenkor a prompt-mérés után a mintát az eredeti mintapozícióban vagy a NIPS berendezésen mérjük tovább. A minta áthelyezése és az új mérés indítása 1–2 perc alatt elvégezhető. Az ilyen **bomlási spektrumok**ban a háttér alacsonyabb lehet a prompt spektruménál, így a gyengébb bomlási vonalak is vizsgálhatók, ha felezési idejük legalább néhány perc. A NIPS mérőhelynél mód van a minta–detektor-távolság csökkentésére, így esetenként a kimutatási határ javítására. A mérési geometriát optimalizálni kell, figyelembe véve a növekvő számlálási sebességgel járó spektrumtorzulást és a valódi koincidencia-veszteségeket.

## 3.2. Listamód: időfüggő folyamatok eseményszintű vizsgálata

Egy analitikai jelsorozat energiaspektruma mellett az időspektrum ismerete további hasznos információt szolgáltathat. A többnyire rövid–közepes felezési idejű radionuklidok bomlása többféle módszerrel vizsgálható:

- Sok, egymást követő energiaspektrum felvételével. Az ilyen, rövid ideig mért, rossz statisztikájú spektrumok gyakran ki sem értékelhetők.
- Az MCS (*Multichannel Scaler*) technikával. Ha a teljes spektrum időfüggését vizsgáljuk, a szelektivitás csekély; ha energiaablakokat definiálunk, akkor is csak néhány csúcs lefutását rögzíthetjük. Nehézséget jelenthet nem várt radionuklidok megjelenése, valamint a csúcs alatti háttér levonása. A háttér a nagyobb energiájú csúcsok Compton-platóitól származik, így a többi komponens idődinamikáját követi (ld. 3.2.5 és 3.2.6 pontokat).
- Listamódú adatgyűjtéssel, amikor a szokásos energiaspektrum helyett az egyedi események energiáját és idejét rögzítjük. Ebből később rekonstruáljuk a spektrumokat.

# <u>3.2.1. Listamódú adatgyűjtés a XIA spektrométerrel</u> (MOLNÁR *ET AL*. 2004 ÉS SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006B)

A digitális jelfeldolgozás során az eseményekről nagy mennyiségű információ keletkezik. Ebből igény szerint lehet többet vagy kevesebbet megőrizni, így az analóg  $\gamma$ -spektrométerekhez képest lényegesen több funkció valósítható meg.

Az X-RAY INSTRUMENTATION ASSOCIATES (XIA) cég digitális spektrométere, a POLARIS DGF (XIA GUIDE), egy ún. *Pulse Shape Analysis* üzemmódot is tartalmaz. Ebben az üzemmódban a berendezés képes **eseményszintű információk** eltárolásra, beleértve akár az előerősítő jelalakjának rögzítését is. Ezt azért fejlesztették ki, hogy a jel felfutása alapján a  $\beta$ és  $\gamma$ -részecskéket meg lehessen különböztetni (SKULSKI ÉS MOMAYEZI 2001), illetve a detektálás helye megállapítható legyen. Mi azonban csak az események fejlécét (csatornaszám-idő adatpár) tároltuk el az adatfájlban. Egy eseményfejléc 26 bájt, és 16 bit (64k) felbontású amplitúdó- és 25 – 400 ns pontos időadatot tartalmaz. A listamódú adatfájl akár néhány száz megabájt is lehet, de ennek feldolgozása ma már nem okoz problémát. Ezt a technikát **időfelbontásos gamma-spektrometriá**nak (*Time-resolved gamma-ray spectrometry*) neveztük el.



3.1. ÁBRA. A XIA POLARIS DGF digitális spektrométer<sup>(8)</sup>

A Poisson-eloszlás tulajdonságai miatt konstans eseménygyakoriság esetén az egyedi események megőrzése nem nyújt többletinformációt az integrális energiaspektrumhoz képest; időfüggő forráserősség esetén azonban igen.

#### 3.2.2. Holtidő korrekciós modell a listamódú mérésekhez (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006B)

A listamódú fájl elemei az esemény adatait tartalmazzák, a holtidőt azonban nem. A holtidő ismerete azonban elengedhetetlen a kvantitatív analízisben. Felállítottam ezért egy modellt, amellyel az időben változó holtidő utólag, a kiértékelés során korrigálható.

A részecskeszámláló berendezések holtideje kétféle lehet, kiterjeszthető (*extending*) és a nem-kiterjeszthető (*non-extending*) (KNOLL 2000, 319. OLDAL). Egy esemény beérkezése után egy meghatározott ideig, az ún. **holtidő** alatt, a rendszer nem képes további impulzusok kvantitatív feldolgozására. Az első esetben minden újabb jel tovább nyújtja a holtidőt, a második típusnál azonban a holtidő alatt beérkező események nincsenek hatással a rendszerre. A valódi és a detektált beütésszám közötti összefüggés mindkét esetre ismert.

A listamódban működő POLARIS viselkedése ennél összetettebb. Az adatfeldolgozás alrendszerei már leírhatók a fenti modellek valamelyikével, amelyet a 3.2. ÁBRA mutat be. Az itt látható paraméterek közül  $\delta$  és  $\tau$  értéke a filter függvény paramétereiből határozható meg,  $\tau = 2 \cdot (RT + FT)$ .  $\kappa$  pedig a spektrum egy elemének átlagos átviteli ideje, függ az adatgyűjtő számítógép kiépítettségétől és az adatátvitel módjától (USB vagy LPT). A listamódban a készülék egy 8 kB-os pufferben összegyűjt 629 eseményt (1 *spill*). Ezt követi az adatfeltöltés a PC-be, amely alatt az események gyűjtése szünetel.  $\kappa$  értéke ezért jól becsülhető egy puffer

<sup>&</sup>lt;sup>(8)</sup> A kép forrása: <u>http://www.xia.com</u>

utolsó és a következő első eseményének időkülönbségéből. Esetünkben  $\kappa = 3,33 (10) \times 10^{-4}$ s érték adódott.

A kétfajta holtidő-modell csak konstans esemény-gyakoriság esetére érvényes. A modelleket úgy terjesztettem ki időfüggő esetekre, hogy a mérési időt felosztottam rövid (kb. 1–60 s hosszú) szakaszokra, amelyekben a beütésszám változása már jelentéktelen. Ezeken külön-külön végeztem el a korrekciót (**kvázi-stacionárius közelítés**).

Az alábbi ábrán bemutatott képletekkel összefüggést írhattam fel a P eltárolt másodpercenkénti beütésszám és a Q tényleges számlálási sebesség között.



3.2. ÁBRA. A méréshez használt XIA POLARIS DGF jelfeldolgozási lépései listamódban. A szaggatott vonallal határolt egységek végzik a digitális jelfeldolgozást.

Egy eseményt akkor tárol el a műszer, ha sem a beütéskereső, sem az amplitúdó filter nem foglalt, és adatátvitel sincs folyamatban. A sikeres feldolgozás valószínűsége a részfolyamatok valószínűségének szorzata.

Az eredményt kétlépéses iterációval kaptam. Először kiszámítottam *N*-et (az  $N_i$  sorozat konvergált értékét, azaz a detektált események számlálási sebességét) a (3.1) képlet segítségével, majd ezt korrigáltam a beütéskereső filter holtidejével (3.2):

$$N_{i+1} = \frac{\left[1 + \kappa \cdot N_i \cdot e^{-N_i \cdot \tau}\right] \cdot e^{-N_i \cdot \tau} \cdot \left(P \cdot \left[1 + \kappa \cdot N_i \cdot e^{-N_i \cdot \tau}\right] - N_i \cdot e^{-N_i \cdot \tau}\right)}{N_i \cdot \tau - 1}.$$
(3.1)

$$Q_{i+1} = Q_i - \frac{Q_i \cdot e^{-Q_i \cdot \delta} - N}{e^{-Q_i \cdot \delta} \cdot (1 - Q_i \cdot \delta)}.$$
(3.2)

A listamódban a **holtidő** jelentősen nagyobb, mint az MCA üzemmódban. A nagyobb adatmennyiség mozgatása és tárolása is többlet erőforrást igényel. A vizsgált típusnál az adatátvitel a szűk keresztmetszet, így ennek gyorsítása kedvező volna<sup>(9)</sup>. Ennek két negatív következménye van: egyrészt legfeljebb 3 000 cps-ig lehet listamódban mérni, másrészt sem másodperces felezési idejű nuklidok mérésére, sem nyalábszaggatós kísérletekben nem volt használható.

<sup>&</sup>lt;sup>(9)</sup> A XIA cég 2006-ban megjelent DXP-XMAP modellje már kétcsatornás puffert tartalmaz, így az adatátvitel közben is gyűjti az eseményeket és 100 MB/sec feltöltési sebességre képes. Web: http://www.xia.com/DXP-XMAP.html#Architecture

Ebben a pontban tehát levezettem egy képletet, amellyel a holtidő a kiértékelés során korrigálható.

#### 3.2.3. Off-line adatfeldolgozás (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006B)

Mivel a lista-módú mérés alatt kisebb az információvesztés, az adatfeldolgozást igyekeztem inkább off-line elvégezni, hogy utólag válogathassak adatok között. Ha az analízis közben egy új összetevőre derül fény, az újramérés helyett elegendő az adatfájlt más szempontok szerint újra feldolgozni.

A kiértékelés során

- a listamódban rögzített eseményeket megfelelően csoportosítjuk (pl. hisztogramot készítünk),
- a számunkra érdekesek adatokat elkülönítjük (pl. csak egy energiatartomány időfüggését vizsgáljuk),
- elvégezzük a kvázi-stacionárius holtidő korrekciót.

Ennek végrehajtására számítógépes programot készítettem, amelynek képernyőképét a következő ábra mutatja be:

🗟 XIA Polaris List Mo	ode Evaluation
Main Settings Standar	rd Outputs Advanced Outputs 3D Output
─ Specify the Polaris Lis D:\ListaModC\AL_V2\ File size: 6.62 MBytes Last updated at: 2003	st Mode input file: \PS0037.bin s .09.22. 15:29:58 C Skip Spills from:
Energy Calibration: — Energy Bin width: Actual Bin width: 0.7	0.1921125 keV/channel @ 64 k 76845 keV
Specify Output Files: Create PHA histo Create MCS histo Create 3D histro	togram Extract Event Energies and togram(s) Dump the input data stream
<u></u>	Exit Start
Progress: 23%	Estimated Remaining Time: 00:34

3.3. ÁBRA. Az off-line kiértékelést és holtidő-korrekciót végző program képernyőképe

Az első lépésben a BROWSE gombra kattintva betöltjük a listamódú adatfájlt (\*.BIN) és megadjuk a közelítő energiakalibrációt, majd kiválasztjuk a kimeneti formátumokat. Lehetőség van egy vagy több energiaspektrum (*MCA*), időspektrum (*MCS*), **3D régió** és eseménylista egyidejű létrehozására. A futás végén a program CSV fájlokba írja az eredményeket.


3.4. ÁBRA. Az off-line kiértékeléssel kapható kimeneti formátumok

#### 3.2.4. A holtidő-korrekciós eljárás validálása (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2006B)

#### A) Közvetlen összehasonlítás az MCA méréssel

Az első teszteket konstans számlálási sebességgel hajtottam végre azonos beállításokkal, hagyományos és listamódban. Egy <sup>152</sup>Eu-forrást mértem meg, hét különböző távolságra a detektortól, így egyenletesen lefedtem a 0 – 3000 cps beütésszám-tartományt. MCA üzemmódban ez mindössze 0,1 – 4%-os holtidőt okozott, amelyet a készülék még helyesen korrigál. Egymillió beütést gyűjtöttem össze minden spektrumban, amelynek statisztikus hibája csak 0,1%. Végül összehasonlítottam az MCA spektrumok számlálási sebességét a holtidő-korrekciós modellből számítottal, és meghatároztam a két érték normalizált eltérését:  $\chi = \frac{R-Q}{\sqrt{s_R^2 + s_Q^2}}$ . Az alábbi táblázat adatai szerint a két mennyiség jól

megegyezik:

Sorszám	On-line korrigált MCA számlálási sehesség (R. cns)	Listamód, eltárolt események (P. cps)	Listamód, értékelhető események (N. cps)	Listamód, "valódi" számlálási sehesség (O. cns)	X
1	3007.9	1457.0	3006 1	3009.8	-0.57
2	2468 3	1318 5	2462.8	2467.6	0.21
$\frac{1}{3}$	1953.4	1155.5	1949.8	1951 3	0.85
4	1469.6	964 9	1468.6	1469.5	0.04
5	1005.5	738.9	1003.8	1005.1	0.33
6	481.6	415.0	481.9	482.0	-0.59
7	116,7	111,6	116,4	116,4	1,97

3.1. TÁBLÁZAT. Az on-line korrigált és a modellből számított számlálási sebességek összehasonlítása

#### B) A modell ellenőrzése időben változó beütésszámok esetén

A kvázi-stacionárius közelítést és a  $\kappa$  adatátviteli időállandó számértékét egy másik <sup>116m</sup>In holtidő vizsgálatához az kísérletben ellenőriztem. А változó izotóp  $(T_{1/2} = 54,41 (6) \text{ perc})$  bomlását használtam. A pillanatnyi holtidőt 15 másodperces felbontással követtem egy <sup>241</sup>Am forrás 59,5 keV-es vonalának számlálásával, amely már ilyen rövid idő alatt is elegendő beütést adott a csúcsban. Ezt hasonlítottam össze a fenti függvényből számított értékekkel. A számított és a mért korrekciós értékek egy, az origóból induló 45°-os egyenes körül szórnak: a regressziós egyenes tengelymetszetére – 0,003 (6), meredekségére pedig 1,001 (13) értékeket kaptam. Az eloszlás átlaga 1,0009 (20), az adatok szórása 0,039 volt, 330 adatpont alapján. Az arányokat hisztogramon is ábrázoltam.



A kísérlet megerősítette a modell helyességét változó holtidő esetén is. A továbbiakban a holtidőt számítással korrigáltam, így elkerülhettem a radioaktív forrás alkalmazását.

<u>3.2.5. Időfüggő háttérkorrekció a lecsengési görbékhez (</u>MOLNÁR *ET AL*. 2004 ÉS SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006B)

Egy teljesenergia csúcsnak és Compton-platójának azonos az idődinamikája. A csúcsok nagyenergiájú oldalán a háttér idődinamikáját az összes nagyobb energiájú csúcs együtt határozza meg a Compton-platókon keresztül, míg a kisenergiájú oldalon ehhez hozzáadódik a vizsgált csúcs járuléka is. A háttér tehát a vonal két oldalán különböző idődinamikájú, amelyet a következő eljárással vettem figyelembe:

- A 3.6. ÁBRÁN jelölt módon felvettem három egyforma széles régiót, a csúcs alatt és a két oldalán szimmetrikusan,
- meghatároztam minden időcsatornában a Ch<sub>1</sub>–Ch<sub>2</sub>, Ch<sub>2</sub>–Ch<sub>3</sub> és a Ch<sub>3</sub>–Ch<sub>4</sub> régiókba eső beütéseket. Jelöljük ezeket rendre *B*<sub>1</sub>-gyel, *G*-vel és *B*<sub>2</sub>-vel.
- A csúcs pillanatnyi nettó beütésszámát  $(N_P)$  a középső régió teljes beütésszámának (G) és az ábrán  $B_3$ -mal jelölt háttér különbsége adja:  $N_P = G B_3$ .
- $B_3$  jól becsülhető a két szomszédos régió átlagával:  $B_3 = (B_1 + B_2)/2$ .
- Meghatároztam az  $N'_{P}$  korrigált beütésszámot a (3.1) és a (3.2) segítségével.
- A hibaterjedési törvénnyel kiszámítottam az eredő hibáját. (A holtidő-korrekció után N'<sub>p</sub> már nem Poisson-eloszlású, azaz a szórásnégyzete nem egyezik meg az amplitúdójával.)
- $N'_{P}$  -t időben ábrázolva kaptam a csúcs idődinamikáját.
- Ebből illesztéssel meghatároztam a bomlási állandót, illetve idő szerinti összegzéssel a csúcsterületet.



3.6. ÁBRA. A háttérkorrekcióhoz használt régiók illusztrálása

A háttér fent ismertetett levonása után a **lecsengési görbék**re elegendő az  $a_0 \cdot e^{-\lambda t}$  görbe illesztése. Időben változó háttér esetén így az amplitúdó és a bomlási állandó az MCS módszerhez képest pontosabban becsülhető.

A módszer eredményét egy Al- és V-tartalmú tesztminta bomlási spektrumán mutatom be (3.7. ÁBRA). Az illesztésből kapott felezési idők (<sup>28</sup>Al: 133,0 (16) s, <sup>52</sup>V: 222 (5) s) hibahatáron belül megegyeznek az irodalmi adatokkal (134,48 (7) és 224,6 (3) s).



3.7. ÁBRA. Al- és V-tartalmú teszt-minta bomlási spektruma (lent) és a két csúcs lecsengési görbéje (fent). A felső panelek értéktengelye logaritmikus beosztású.

#### 3.2.6. Háromdimenziós régiók kiértékelése (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2005B)

A nuklidokra jellemző energia- és időfüggést egyszerre vizsgálhatjuk a **háromdimenziós** csúcsokra illesztett **függvényekkel**. A (2.5) csúcsalak és a (2.7) – (2.8) háttérkomponensek alkalmassá tehetők kétváltozós (energia-idő-beütésszám) adatmátrix leírására, a  $\Gamma$  csúcsamplitúdó és az *l* háttértag időfüggővé alakításával. Így minden amplitúdó-jellegű mennyiség időben változó lesz.

Az aktiválási szakaszban a bomlási csúcs amplitúdója a  $\Gamma = \Gamma_{\infty} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t})$  alakú, a lecsengéskor pedig  $\Gamma = \Gamma_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$ . A prompt vonalak esetében a változás pillanatszerű, az amplitúdó a nyaláb bezárása után azonnal nullára csökken.

A háttér a k különböző felezési idejű csúcs Compton-platójának és a vizsgált csúcs lépcsőfüggvénynek összege:

$$\sum_{k} \left[ \left( a_{0,k} + a_{1,k} \cdot j + a_{2,k} \cdot j^{2} \right) \cdot \left( 1 - e^{-\lambda_{k} t} \right) \right] + \Gamma \cdot S \cdot \operatorname{erfc} \left( \frac{E_{j} - E_{0}}{\delta} \right) \qquad \text{aktiváláskor,} \qquad (3.3)$$

$$\sum_{k} \left[ \left( a_{0,k} + a_{1,k} \cdot j + a_{2,k} \cdot j^2 \right) \cdot e^{-\lambda_k t} \right] + \Gamma \cdot S \cdot \operatorname{erfc}\left( \frac{E_j - E_0}{\delta} \right) \qquad \text{lecsengéskor,} \quad (3.4)$$

Az  $E_0$  energiájú csúcs nettó területét ( $N_P$ ) az illesztett háromdimenziós csúcsalakfüggvény (f) energia és idő szerinti integráljából kapjuk:

$$N_{P}(E_{0}) = \int_{t=0}^{t_{\max}} \int_{E=-\infty}^{\infty} f(E,t) dE dt = \left[ \Gamma_{\infty} \cdot \left( \delta \cdot \sqrt{\pi} + A \cdot \beta \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \beta^{2}}} + R \cdot \rho \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \rho^{2}}} \right) \right] \cdot \frac{\left( e^{-\lambda \cdot t_{\max}} - 1 + t_{\max} \cdot \lambda \right)}{\lambda \cdot \Delta t} \qquad \text{aktiváláskor} \qquad (3.5)$$
$$\left[ \Gamma_{0} \cdot \left( \delta \cdot \sqrt{\pi} + A \cdot \beta \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \beta^{2}}} + R \cdot \rho \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \rho^{2}}} \right) \right] \cdot \frac{\left( 1 - e^{-\lambda \cdot t_{\max}} \right)}{\lambda \cdot \Delta t} \qquad \text{lecsengéskor} \qquad (3.6)$$
$$\left[ \Gamma \cdot \left( \delta \cdot \sqrt{\pi} + A \cdot \beta \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \beta^{2}}} + R \cdot \rho \cdot e^{-\frac{\delta^{2}}{4 \cdot \rho^{2}}} \right) \right] \cdot \frac{t_{\max}}{\Delta t} \qquad \text{prompt csúcsokra} \qquad (3.7)$$

A (3.5) – (3.7) egyenletekben  $t_{\text{max}}$  az illesztendő régió időtartama,  $\lambda$  a bomlási állandó,  $\Delta t$  a hisztogram időrekeszeinek szélessége. A képletekbe  $\delta$  és  $\beta$  értékeit energia egységekben kell behelyettesíteni. Az A,  $\delta$  és  $\beta$  paraméterek értéke adott energiára kalibrációval, míg  $\lambda$ irodalmi adatokból határozható meg. Kisebb statisztikus hibájú eredményt kaptam, ha az illesztéskor e paramétereket fixen tartottam.



3.8. ÁBRA. Az <sup>116m</sup>In 416,86 keV-es bomlási csúcsának háromdimenziós hisztogramja (A), az illesztett modellfüggvény (B) és a reziduumok (C).

Ebben a pontban tehát bemutattam egy módszert, amelyben a csúcsokat és a háttérkomponenseket háromdimenziós függvényekkel írtam le. Ezzel az volt a célom, hogy az idődimenzió bevonásával a szelektivitást növeljem (ld. részletesen a 4.3.3. pontban).

## 3.3. PGAA mérések nyalábszaggatóval

#### 3.3.1. A nyalábszaggató működése (RÉVAY ET AL. 2005B ÉS SZENTMIKLÓSI ET AL. 2007)

Laboratóriumunkban már évek óta folytak kísérletek a nyalábszaggatós PGAA-val; ebbe a kutató-fejlesztő munkába kapcsolódtam be doktori munkám során. Sikerült kialakítani egy olyan rendszert, amely jól használható rövid és közepes felezési idejű radionuklidok (ezen keresztül bizonyos elemek) mennyiségi analízisére és nukleáris adataik pontos meghatározására.

A rövid felezési idejű nuklidok aktivitása a besugárzás során az először növekszik, majd állandósul a telítési értéken. Így a besugárzás közben számlálva a mérési idő meghosszabbításával a bomlási csúcsok statisztikai pontossága növelhető, hasonlóan a prompt csúcsokhoz. A nyalábszaggatós mérés során egyszerre használhatjuk ki a **nyalábbeli mérés**nek és a bomlási vonalak alacsony hátterű számlálásának előnyeit.

A nyalábszaggató-rendszer részei a tárcsa (*chopper*), a vezérlő elektronika és a jelfeldolgozó egység. A **nyalábszaggató** egy alumínium tárcsa, amely két-két nyitott és zárt negyedből áll, és egy villanymotor forgatja. A zárt szegmenseket <sup>6</sup>Li-tartalmú neutronelnyelő polimer borítja, amely a nyalábintenzitást kb. kétezred részére gyengíti és nem termel zavaró  $\gamma$ -hátteret. A chopper 375 mm-rel a minta síkja előtt található (v.ö. 2.1. és 2.2. ÁBRÁK). A tárcsa geometriai méretei az alábbiak:



3.9. ÁBRA. A nyalábszaggató geometriai méretei

A rajz felső részén lévő két dióda-pár az **időzítés**t biztosítja. Amikor a zárt szegmens az adó és a vevő dióda közé kerül, a fotodióda árama lecsökken. Ezt logikai jellé alakítva kapuzzuk az adatgyűjtést, azaz a nyitott és zárt fázisban külön-külön spektrumban gyűjtjük az eseményeket.

A nyaláb bezárulta után a véges sebességű neutronoknak idő kell, míg a tárcsa-minta távolságot befutják. Csak ekkor csökken a mintát érő neutronfluxus a tárcsa áteresztésének szintjére. Az eközben keltett fotonokat a prompt spektrumban gyűjtjük, hogy a bomlási

spektrumban minél kisebb legyen a prompt-háttér. Az időzítésben ezért a nyalábzáráshoz képest késleltetést alkalmazunk, amely a 2. dióda vízszintes eltolásával állítható be. A diódát a középvonaltól távolítva a késleltetési idő növekszik. A tárcsa egy fordulata során lezajló eseményeket a következő ábra illusztrálja.



3.10. ÁBRA. Főbb események a tárcsa egy fordulata alatt (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2007). Az alsó görbe a nyaláb állapotát mutatja, a felette lévő két görbe a diódák logikai állapota. A felső két görbe a prompt és a bomlási  $\gamma$ -spektrum kapujele. Az átmeneti tartomány alatt az eseményeket a prompt spektrumhoz mérjük.

- 1 A nyaláb kezd bezárulni. A részlegesen nyitott állapot alatt a prompt spektrumba kerülnek az események.
- 2 A tárcsa teljesen bezárta a nyalábot.
- **3** A késleltetés letelte után már nincsenek neutronok a mintapozícióban. Az események innentől a bomlási spektrumba kerülnek.
- 4 A nyitás előtt röviddel a bomlási spektrum gyűjtését letiltjuk, a promptét engedélyezzük
- 5 A nyaláb újra elkezd kinyílni.
- 6 A nyaláb teljesen nyitva van.

A két **spektrum** párhuzamos **rögzítés**ére két megoldást dolgoztam ki. Az elsőt a rutin analízishez használt analóg rendszerből alakítottam ki úgy, hogy két független mérőlánc működjön egyszerre, Compton-elnyomásos üzemmódban.

A másik megoldásnál a XIA POLARIS digitális spektrométer memóriáját két részre osztottam, és úgy állítottam be, hogy a "SYNC" bemenetének megfelelően az eseményeket az egyik vagy a másik memória-félbe irányítsa. Így a műszer a prompt spektrumot a felső, a bomlási spektrumot az alsó memória-részben gyűjtötte. A PGAA detektorral tapasztalható "inkompatibilitás" (ld. 4.1. alfejezet) miatt a csúcsalakok kevésbé voltak szépek, mint az analóg rendszer esetén. A két mérőelektronika blokkvázlatát a 3.11. ÁBRA szemlélteti.



3.11. ÁBRA. A nyalábszaggatós mérésekhez összeállított két mérőrendszer vázlata. A pontvonallal jelölt kapcsolatok csak az analóg, a szaggatottan rajzolt vonalak csak a digitális rendszerhez szükségesek. (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2007)

<u>3.3.2. Kvantitatív összefüggések a nyalábszaggatós PGAA-hoz</u> (MOLNÁR *ET AL*. 2004, SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2007 ÉS SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006D)

A nyalábszaggatós PGAA a ciklikus aktivációs analízis (CNAA) speciális esetének tekinthető, ahol nagyon sok (>100 000) rövid ciklust hajtunk végre. A CNAA-ra érvényes összefüggésekből egyszerűsített képletet vezettem le a bomlási csúcsok területére a zárt-fázisú spektrumban. Először képeztem a GIVENS-egyenletből számolt csúcsterület ( $N_p$ , (1.11) képlet) és nyalábbeli folyamatos aktiválásból kapható csúcsterület ( $N'_p$ , (1.8) egyenlet) arányát:

$$\frac{N_{P}}{N_{P}^{\prime}} = \frac{\frac{m\theta N_{A\nu}}{M\lambda} \Phi_{0}\sigma_{0}P_{\gamma}\varepsilon \left[\frac{k}{\left(1-e^{-\lambda T}\right)} - \frac{e^{-\lambda T}\left(1-e^{-k\lambda T}\right)}{\left(1-e^{-\lambda T}\right)^{2}}\right] \left(1-e^{-\lambda t_{irr}}\right)e^{-\lambda t_{d}}\left(1-e^{-\lambda t_{c}}\right)}{\frac{m\theta N_{A\nu}}{M} \Phi_{0}\sigma_{0}P_{\gamma}\varepsilon t_{m}\left[1-\frac{1-e^{-\lambda t_{m}}}{\lambda t_{m}}\right]}$$
(3.8)

Ha  $x = \lambda \cdot T \ll 1$  (*T* a ciklusidő, ~80 ms), azaz a vizsgált radionuklid felezési ideje legalább néhány száz milliszekundum (az esetek kb. 90%-a), a hányados határértéke  $k \to \infty$ ,  $x \to 0$  és  $t_m = kT$  esetén két konstans szorzatává egyszerűsödik:

$$\lim_{\substack{k \to \infty, \\ \lambda T \to 0}} \left( \frac{N_P}{N_P'} \right) = \frac{t_{irr}}{T} \cdot \frac{t_c}{T} = K \cdot L$$
(3.9)

ahol k a ciklusok száma, K a nyitott állapot relatív hossza (esetünkben 0,5, mert a tárcsa szegmensei egyformák), L a bomlási spektrum számlálásának a ciklusidőhöz viszonyított hossza. Ez azt jelenti, hogy az (1.8) egyenletet (3.9)-al szorozva megkapjuk a csúcsterületet a bomlási spektrumban. Úgy számolhatunk, mintha csak a mérési idő L-ed részében mérnénk és mintát időben állandó fluxus  $\overline{\Phi}$ egy aktiválná átlagos értékkel а  $\left(\overline{\Phi} = \frac{1}{T} \int_{0}^{t_{irr}} \Phi_0(t) dt = \Phi_0 \cdot \frac{t_{irr}}{T} = \Phi_0 \cdot K\right).$  A csúcsterület így kb. ötödrészére csökken  $(K \cdot L \approx 0, 2 - 0, 25)$  a szokásos PGAA-hoz képest. Amint azt később látni fogjuk, az eredő jel/zaj-viszony ennek ellenére kedvező irányba változhat, a kimutatási határ bizonyos esetekben javítható.

A fentiek alapján a zárt fázisban detektált bomlási csúcs területe:

$$N_{P,d} = \sigma_{\gamma,d} \Phi_0 K N_d \varepsilon (E_d) L t_m \eta_d \left[ 1 - \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m} \right], \qquad (3.10)$$

a nyitott fázisban a promptcsúcs-terület:

$$N_{P,p} = \sigma_{\gamma,p} \Phi_0 K N_p \varepsilon(E_p) t_m \eta_p \tag{3.11}$$

A (3.10) egyenlet zárójeles tényezője a folytonos aktiválásnál is használt nyalábaktivációs faktor (*B*),  $\eta_p$ -vel és  $\eta_d$ -vel a prompt és bomlási spektrum holtidő-veszteségeit vesszük figyelembe.





Relatív mérés esetén a (3.10) és (3.11) egyenletek hányadosát használjuk. A csúcsarányokból ezért számos tényező bizonytalansága kiesik (ld. 4.4.2. fejezet).

Ha a ciklusidő összemérhető a felezési idővel  $(\lambda \cdot T > 1)$ , az eredeti GIVENS-egyenlet egy másik egyszerűsített alakját alkalmaztam. A (1.11) egyenlet kapcsos zárójelben lévő tényezőjének a határértéke nagyszámú (*k*) ciklus esetén:

$$\lim_{k \to \infty} \left[ \frac{k}{\left(1 - e^{-\lambda T}\right)} - \frac{e^{-\lambda T} \left(1 - e^{-k\lambda T}\right)}{\left(1 - e^{-\lambda T}\right)^2} \right] = \frac{k}{\left(1 - e^{-\lambda T}\right)}$$
(3.12)

A ciklusok számát egyes mérésekben egy EG&G ORTEC 994 counterrel számláltam, de a legtöbb esetben elegendő volt azt a mérési idő és a ciklusidő hányadosaként becsülni a következő összefüggéssel:

$$N_{P,d} = \frac{N\Phi_0 \sigma_d \varepsilon(E_d)}{\lambda} \cdot \frac{\left(1 - e^{-\lambda t_{irr}}\right) e^{-\lambda t_w} \left(1 - e^{-\lambda t_c}\right)}{\left(1 - e^{-\lambda T}\right)} \cdot \frac{t_m}{t_c} \eta_d$$
(3.13)

Szinte az egyetlen, a gyakorlatban is használt nuklid, amelyre a (3.13) képlet vonatkozik a <sup>24m</sup>Na, 20,20 ms-os felezési idővel. A <sup>72m</sup>Ga ( $T_{1/2} = 39,68$  ms), a <sup>71m</sup>Ge ( $T_{1/2} = 20,40$  ms), a <sup>103m</sup>Ru ( $T_{1/2} = 1,69$  ms), a <sup>114m2</sup>In ( $T_{1/2} = 43,1$  ms), a <sup>175m</sup>Yb ( $T_{1/2} = 68,2$  ms) és a <sup>194m1</sup>Ir ( $T_{1/2} = 31,85$  ms) bomlási csúcsainak analitikai felhasználása ritka.

Fontos különbség, hogy a (3.13) egyenlet explicit módon tartalmazza a besugárzási, várakozási és a számlálási időket, továbbá a ciklusidőt, nemcsak ezek arányát a ciklusidőhöz képest, mint a (3.10)-ben. Ezért a tárcsa fordulatszám-stabilitása befolyásolja a mérés pontosságát. Jelenleg ez közel 5% többlet-bizonytalanságot okoz a végeredményben.

#### 3.3.3. A nyalábaktivációs faktor IV. típusú nuklidokra (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006D)

A  $k_0$ -NAA-ban a radioaktív bomlásokat nyolc csoportba sorolták, amelyeken belül esetenként altípusokat is megkülönböztetnek. Az analitikailag fontos nuklidokat be lehet sorolni valamelyik csoportba és a levezetett képletekkel az aktivitás kiszámítható (POMMÉ *ET AL*. 1996; DE CORTE ÉS SIMONITS 2003). A PGAA-ban ezek közül csak néhány típus fordul elő, a képződő radionuklidok leggyakrabban az I. (legegyszerűbb aktiválási-bomlási eset) és a IV. csoportba (elágazó aktiválás metastabil állapottal) tartoznak.

A dolgozatban eddig használt  $B = 1 - \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m}$  nyalábaktivációs faktor az I. típusú

radionuklidokra igaz (pl. <sup>20</sup>F, <sup>28</sup>A1, <sup>56</sup>Mn). Ebben a pontban a IV típus korrekciós faktorát vezetjük le. A **komplex aktiválás-elágazó bomlás** esetén a neutronbefogást követően a radionuklid keletkezhet metastabil állapotban vagy alapállapotban. Az előbbi, néhány kivételtől eltekintve, adott felezési idővel szintén az alapállapotra vezet. Az analitikai jel a radionuklid további bomlásából ered, amely intenzitását és időbeli lefutását mindkét aktiválási ág befolyásolja.

A következő ábrán jelölt két bomlási állandó viszonya alapján két alcsoportot különböztetnek meg, IV/A és IV/B néven. A IV/A csoportban  $\lambda_3 > \lambda_2$ , a másik esetben pedig a metastabil állapot felezési ideje a rövidebb ( $\lambda_2 >> \lambda_3$ ), és a sebesség meghatározó lépés az

alapállapotú radionuklid bomlása (<sup>24</sup>Na, <sup>38</sup>Cl, <sup>82</sup>Br,  $\lambda_2 >> \lambda_3$ ). Az ábrán #1 a kiindulási nuklid, #2 egy metastabil állapot, #3 az analitikai radionuklid;  $\sigma_{\gamma}^{m}$  a metastabil állapotba,  $\sigma_{\gamma}^{g}$  pedig a közvetlenül az alapállapotba vezető aktiválás hatáskeresztmetszete,  $F_2$  a 2. állapot bomlási valószínűsége a 3. állapotba.



3.13. ÁBRA. A komplex aktiválás-elágazó bomlás blokksémája.

A BATEMAN-RUBINSON egyenletekből az analitikai csúcs időfüggő számlálási sebességét kifejezve:

$$R_{3}(t) = \Phi N_{1} \varepsilon \left(E_{d}\right) \left\{ \sigma_{\gamma}^{m} F_{2} \left[ 1 - e^{-\lambda_{3}t} - \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{3} - \lambda_{2}} \left( e^{-\lambda_{2}t} - e^{-\lambda_{3}t} \right) \right] + \sigma_{\gamma}^{g} \left( 1 - e^{-\lambda_{3}t} \right) \right\}$$
(3.14)

Az egyenletből a IV/B esetben visszakapjuk a nyalábaktivációs faktor eddig használt alakját,  $\lambda = \lambda_3$  és  $\sigma_{\gamma} = (F_2 \sigma_{\gamma}^m + \sigma_{\gamma}^g)$  helyettesítéssel. Ebből következik, hogy nyalábban történő besugárzással a két ágon végbemenő aktiválás összegét tudjuk meghatározni, csakúgy, mint az NAA-ban.

A IV/A nuklidokra a nyalábaktivációs faktort (3.14) integrálásával határoztam meg:

$$B = \frac{1}{t_m} \int_{t=0}^{t_m} \left\{ \frac{\sigma_{\gamma}^m}{\sigma_{\gamma}^g} F_2 \left[ 1 - e^{-\lambda_3 t} - \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \left( e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_3 t} \right) \right] + \left( 1 - e^{-\lambda_3 t} \right) \right\} dt =$$

$$= 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_3 t_m}}{\lambda_3 t_m} + \frac{\sigma_{\gamma}^m}{\sigma_{\gamma}^g} F_2 \left[ 1 + \frac{\lambda_2^2 \left( 1 - e^{-\lambda_3 t_m} \right) - \lambda_3^2 \left( 1 - e^{-\lambda_2 t_m} \right)}{\left( \lambda_3 - \lambda_2 \right) \lambda_2 \lambda_3 t_m} \right]$$
(3.15)

A számításhoz szükség van a  $\frac{\sigma_{\gamma}^m}{\sigma_{\gamma}^g}F_2$  szorzófaktor számértékére, amelyet az időfüggés

követéséből határozhatunk meg, vagy az irodalomból kell venni.

## 3.4. A bórcsúcs illesztése

A bórcsúcs kiértékelését laboratóriumunkban eddig a referencia-csúcs módszerrel végeztük (ld. 1.4.2. A) pontban). Ezt a 2.2.3. alfejezetben bemutatott Excel makró végzi, amely azonban csak a legfontosabb, a Na 472,2 keV-es csúcsának interferenciáját tudja korrigálni. Egy geokémiai témához kapcsolódva vizsgáltam meg és fejlesztettem tovább a 450–500 keV-es spektrumrégió kiértékelési módszereit.

#### 3.4.1. Modell a bórcsúcs illesztésére (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006C)

Először a 1.4.2. B) pontban bemutatott két irodalmi modellt próbáltam használni a csúcsillesztéshez. Kiderült, hogy eredeti formájában egyik sem alkalmas spektrumaink bórcsúcsának kiértékelésére. Ennek okai a kisebb-nagyobb egyszerűsítések (pl. Gauss-görbe alakú csúcsok, a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> részecske fékeződésének elhanyagolása), amelyek hatása a statisztikai bizonytalanság csökkenésével (azaz a csúcsterület növekedésével) egyre jelentősebbé válik. Ez a  $\chi^2$ -érték rohamos romlásához, az illesztési paraméterek és a csúcsterület bizonytalanságának növekedéséhez vezet. Ennek éppen az ellenkezőjét követeljük meg a modelltől. Nagy területű bórcsúcsok ugyanakkor sokszor előfordulnak, a <sup>10</sup>B kiemelkedő hatáskeresztmetszete miatt.

Az (1.14) MAGARA-YONEZAWA képlet, a tapasztalataim szerint, csak közel téglalapalakú és kis területű (< 30 000 beütés) csúcsok leírására megfelelő. A formulát használó publikációkban is ilyen spektrumokat mutatnak be (bór nyomnyi mennyiségét tartalmazó vizes oldat és biológiai mátrix, ahol kicsi a fékező-erő, tehát "szögletes" marad a csúcs) (BAECHLER *ET AL*. 2002; BYUN *ET AL*. 2004). Ezért ezt a modellt elvetettem.

A lassulást is figyelembe vevő KUBO-SAKAI modellel (1.16) sem volt kielégítő az illeszkedés, mert a bórcsúcs platójának **ferdeség**ére és csúcs kismértékű **aszimmetriá**jára nem ad magyarázatot. A csúcs platóján (balra) és a vállainál (jobbra) jellegzetes eltérések tapasztalhatók:



3.14. ÁBRA. A KUBO-SAKAI modell jellegzetes eltérései a mért csúcsalaktól

A problémák kiküszöbölésére módosítottam a modellt:

- 1.) A konvolúcióhoz a Gauss-görbe helyett a részletes HYPERMET csúcsalak függvényt alkalmaztam,
- 2.) pontosabb háttérfüggvényt vezettem be a bór csúcs alatti lépcső leírására,
- 3.) figyelembe vettem az energiafüggő hatásfokot.

1.) A konvolúcióhoz használt csúcsalak a (2.5) függvény egy speciális változata, egységnyi területre normálva ( $N_P$ ), nulla köré transzformálva ( $\Delta E_j = E_j - E_0$ ) és energia-reprezentációban felírva:

$$p'\left(\Delta E_{j}\right) = \frac{1}{N_{P}} \left[ e^{-\left(\frac{\Delta E_{j}}{\delta}\right)^{2}} + \frac{1}{2}A \cdot e^{\left(\frac{\Delta E_{j}}{\beta}\right)} \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\delta}{2\beta} + \frac{\Delta E_{j}}{\delta}\right) + \frac{1}{2}R \cdot e^{\left(-\frac{\Delta E_{j}}{\rho}\right)} \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\delta}{2\rho} - \frac{\Delta E_{j}}{\delta}\right) \right]$$
(3.16)

Az összefüggésbe  $\beta$ ,  $\delta$  és  $\rho$  változókat is energia-egységekben kell behelyettesíteni. A bórcsúcs tényleges alakját az (1.16) egyenletben definiált g(E) és  $p'(\Delta E)$  numerikus konvolúcióval számítottam ki, mert zárt alakot nem sikerült levezetni.

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}(E_j) = \boldsymbol{g} * \boldsymbol{p}' \equiv \sum_{E_k = -\infty}^{\infty} \boldsymbol{g}(E_j - E_k) \cdot \boldsymbol{p}'(E_k) \equiv \boldsymbol{\mathcal{J}}^{-1} \left[ \boldsymbol{\mathcal{J}}(\boldsymbol{g}) \cdot \boldsymbol{\mathcal{J}}(\boldsymbol{p}') \right]$$
(3.17)

ahol **3** a Fourier-transzformációt,  $\mathbf{J}^{-1}$  az inverz Fourier-transzformációt jelöli. A numerikus konvolúció leghatékonyabban Fourier-transzformációval végezhető el: a g(E) és a  $p'(\Delta E)$  függvényeket 0,1 keV-es lépésközzel tabuláljuk, majd numerikusan Fourier transzformáljuk (FFT). A két komplex vektort a Fourier-tartományban szorozva elvégezzük a konvolúciót, majd az eredményt visszatranszformáljuk. Így a számolás  $n^2$  helyett  $n \log_2(n)$  művelettel elvégezhető. Tetszőleges energián a függvényértéket a két legközelebbi adatpont között lineárisan interpolálva kapjuk.

2.) Eredetileg a hátteret egy egyenessel vagy egy arkusz tangens függvénnyel közelítették. Az általam javasolt megoldás egy polinom és egy "szétkent" lépcsőfüggvény összege. A lépcsőfüggvény levezetésénél a HYPERMET koncepciót követtem, azaz a bórcsúccsal konvonváltam egy Heaviside-függvényt. Analitikus eredmény érdekében a valódi csúcsalakot ( $\mathcal{B}$ ) a g konvolválatlan függvénnyel helyettesítettem, amely nem okozott lényeges különbséget a háttérfüggvény menetében. Ez a D paraméteren keresztül követi a bórcsúcs alakváltozását: szögletesebb csúcsforma esetén az új lécsőfüggvény csaknem egyenes, D > 2 esetben viszont tényleg hasonló az arkusz tangens függvényhez.

$$\boldsymbol{\mathcal{S}}\left(\boldsymbol{E}_{j}\right) = \boldsymbol{\Sigma} - \boldsymbol{\Sigma} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{N_{0}} \cdot \boldsymbol{\mathcal{S}}\left(\boldsymbol{E}_{j} - \boldsymbol{E}_{k}\right) \cdot H\left(\boldsymbol{E}_{k}, \boldsymbol{E}_{0}\right) d\boldsymbol{E}_{k} \approx \boldsymbol{\Sigma} - \boldsymbol{\Sigma} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{N_{0}} \cdot \boldsymbol{g}\left(\boldsymbol{E}_{j} - \boldsymbol{E}_{k}\right) \cdot H\left(\boldsymbol{E}_{k}, \boldsymbol{E}_{0}\right) d\boldsymbol{E}_{k} \qquad (3.18)$$

3.) A bórcsúcs platójának ferdesége két okra vezethető vissza: a "szétkent" lépcsőugrás függvény és a hatásfok energiafüggése. Utóbbi a vizsgált tartományban kb. 2–5%-ot változik, detektortól függően. Nagy csúcsoknál ez már jelentős eltérést okoz, ezért figyelembe kell venni. Ennek megfelelően a 477,6 keV energiára normált hatásfokkal szoroztam a 𝔅 csúcsalak-függvényt ((3.19) egyenlet).

A fenti módosítások után a modell már **jól visszaadja a mért csúcsok alakját**, beilleszthetővé vált az eddigi spektroszkópiai gyakorlatunkba. Alkalmazhatóságának felső határát sikerült 1 - 2 nagyságrenddel kitolni, így akár milliós területű bórcsúcsokat illesztéssel is sikeresen ki lehetett értékelni.

#### 3.4.2. Az illesztés menete

A modell függvény tagjai a bór csúcs, a hozzá tartozó lépcső, a folytonos háttér és az esetlegesen jelen lévő további csúcsok járulékai. Az illesztés során tehát az alábbi célfüggvényt minimalizáljuk, amely a (2.9) egyenlet kibővített alakja:

$$\chi^{2} = \frac{1}{R-n} \sum_{j=0}^{R} \frac{\left[ y(j) - \left\{ \boldsymbol{\mathcal{E}}\left(E_{j}\right) + \boldsymbol{\mathcal{$$

ahol *R* a régió csatornáinak száma, *n* az illesztendő változók száma, *y* a csatornákban lévő beütésszám, *B* a bórcsúcs alakját leíró függvény (3.17), *e* a hatásfok, *S* a bórcsúcshoz tartozó lépcsőfüggvény (3.18) szerint, *l* a legfeljebb másodfokú polinom, *p* és *b* pedig a régióban található további csúcsok járulékai. Ha a régióban nincs interferáló csúcs (*m* = 0), a számlálóban feltüntetett  $\sum_{m>0}$  [ ] tag kimarad. A (3.19) mennyiség minimalizálásával súlyozott

legkisebb négyzetes becslést kapunk a paraméterekre.

Az illesztés végrehajtására egy GAMMAFIT nevű **csúcskiértékelő program**ot készítettem. A program a bórcsúcs illesztésén kívül alkalmas szokásos spektrumrégiók és a kiszélesedett annihilációs csúcs (511 keV-en) illesztésére is. Először be kell tölteni a spektrumfájlt, szükség esetén az energia-kalibrációt és a relatív hatásfokot. Ezek után ki kell jelölni a régió határait, típusát, majd a SET REGION gombra kattintva kezdeti értéket adni a változóknak. A FIT menüben a modellfüggvény minden komponensét ki- és bekapcsolhatjuk. Az aktív paraméterekre beállítható, hogy fixen tartjuk, vagy adott határok között illesztjük őket. A (3.19) egyenlet minimalizálását a BFGS változó metrikájú minimalizáló algoritmussal végezzük (POPPER ÉS CSIZMÁS 1993, 157. OLDAL). A szükséges gradienseket a bórcsúcsot tartalmazó régió esetén numerikusan, a többi esetben analitikus összefüggésekből számítja a program. A számítások optimalizálásának köszönhetően a bórcsúcs körüli régió illesztésének idejét a kereskedelmi programoknál (pl. MICROSOFT EXCEL–SOLVER) tapasztalt tíz percről sikerült fél perc alá csökkenteni. Ez már alkalmas a mindennapos használatra.

A program a paraméterek hibáját a HESS-mátrix inverzéből határozza meg, amely az optimum környezetében a variancia-kovariancia mátrix kétszerese:

$$\frac{1}{2}\mathbf{H}^{-1} \cong \frac{1}{2} \left\| \frac{\partial^2 \chi^2(\underline{x})}{\partial x_i \partial x_j} \right\|^{-1} \equiv \mathbf{V}$$
(3.20)

Ebből a paraméterek bizonytalansága a  $\delta x_i = \sqrt{V_{i,i}}$  összefüggéssel, a paraméterek tetszőleges f függvényének hibája pedig a  $\delta f(\underline{x}) = \sqrt{\sum_{i,j} \frac{df(\underline{x})}{dx_i} \frac{df(\underline{x})}{dx_j} V_{i,j}}$  képlettel számitható ki.

A következő ábra egy illesztés eredményét mutatja. A felső panelen a spektrum, alatta a reziduumok, jobb oldalt pedig a paraméterek és azok hibái láthatók. A modell a négyszázezres bórcsúcs-terület és a Na-interferencia mellett is jól leírja a mért spektrumot (a  $\chi^2$  a hibahatáron belül egységnyi).



3.15. ÁBRA. A GEOLOGICAL SURVEY OF JAPAN 1. számú riolit (GSJ-R#1) geológiai standard mintájának csúcsillesztése a GAMMAFIT programmal.

A jobb alsó mezőben lévő változók jelentése:

- PosB: a bórcsúcs pozíciója (keV)
- N0: a bórcsúcs amplitúdó-paramétere
- D: a lassulási állandó (ps<sup>-1</sup>)
- SB: a bórcsúcs lépcsőfüggvényének magassága
- AreaB: a bórcsúcs területe
- Pos[0], Amp[0] és Area[0]: a Na csúcsának pozíciója (keV), amplitúdója és csúcsterülete
- DEL:  $\delta$ (keV)
- FWHM: félértékszélesség (keV)
- AST, BST: a *Left Skew* magassága  $\Gamma$ -hoz képest a HYPERMET konvenció szerint; a lecsengési paraméter  $\delta$  többszöröseiben
- BLN: konstans alapvonal

# Negyedik fejezet Eredmények és értékelésük

Az előző két fejezetben ismertettem a mérési és kiértékelési módszereket, amelyet a munkám során használtam. Ebben a fejezetben az elért eredményeket mutatom be.

## 4.1. A digitális spektrometria alkalmazhatósága a PGAA-ban

2002 tavaszán kezdett kutatócsoportunk foglalkozni a digitális méréstechnikával (*Digital Signal Processing, DSP*). Doktori munkám első részében ebben a projektben kaptam feladatokat. Mivel a **digitális spektrométerek** csak néhány éve jelentek meg a piacon, kevés irodalmi adat állt rendelkezésre. Ezek is csaknem kizárólag a passzív számlálásban (REGUIGUI *ET AL.* 2002) és a reaktor NAA-ban (JAMES ÉS RAULERSON 2001) szerzett tapasztalatokat írták le.

A PGAA – a szokásostól eltérő beállítások miatt – más, gyakran szigorúbb követelményeket támaszt a berendezésekkel szemben, mint az elterjedtebb felhasználási területek. Számunkra fontos a jó energiafelbontás, a kis nonlinearitás, hosszabb méréseknél a jó idő- és hőmérsékletstabilitás. Lényeges volna továbbá, hogy a csúcsalak és egyéb spektroszkópiai paraméterek a számlálási sebesség növelésével ne romoljanak jelentősen, mint az analóg rendszerünknél. Irodalmi források hiányában meg kellett vizsgálnunk a berendezések tulajdonságait PGAA mérési körülmények között.

Három digitális készüléket hasonlítottunk össze az analóg rendszerünkkel. Ezek közül kettő a CANBERRA cég terméke. A DSA-2000 egy asztali modell, integrált nagyfeszültségű tápegységet, a Compton-elnyomáshoz szükséges áramköröket, MCA/MCS memóriát tartalmaz, így egy teljes mérőláncot képes helyettesíteni. A DSP-2060 egy NIM modul és csak a spektroszkópiai erősítőt és az ADC-t váltja ki; a spektrum gyűjtéséhez az MCA kártyára továbbra is szükség van. A harmadik DSP a már bemutatott XIA POLARIS volt. Noha némely berendezés MCA memóriája a szokásos 16k helyett 32k, sőt 64k volt, az összevethetőség és a spektrumillesztő szoftverünk korlátja miatt a legtöbb mérésnél 16k csatornaszámot használtunk. Az alább bemutatott mérést a NIPS mérőhely 13%-os detektorával végeztünk.

#### 4.1.1. Az energiafelbontás erősítésfüggése (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2005A)

A műszergyártók a digitális spektrométerek specifikációját a **reaktor NAA**-nak és a passzív számlálásnak megfelelő **beállítások**ra adják meg. Első feladat ennek az ellenőrzése volt. Ehhez <sup>152</sup>Eu-forrás spektrumait vettük fel 6,60 csatorna/keV erősítésnél (kb. 2,5 MeV-es méréshatár), 1600 cps számlálási sebességgel. Minden berendezést felbontásra optimalizált beállításokkal használtunk. A spektrumokat kiértékeltük és a HYPERMET FWHM ANALYSIS moduljával meghatároztuk a félértékszélesség energiafüggését. Mivel csak 1,5 MeV alatti csúcsokat mértünk, a programba épített  $\sqrt{a_0 + a_1 \cdot E}$  modell még használható volt. A négy műszerrel kapott eredmények, amint azt az 5.1 A) ábra mutatja, csaknem egybe estek, és hibahatáron belül visszaadták a detektorral elérhető 1,8 keV specifikált felbontást 1332 keV energiánál.



4.1. ÁBRA. A mért energiafelbontás az NAA és a PGAA energiatartományban

A méréssorozatot **PGAA méréshatár**ral megismételve (1,3 csatorna/keV, 12,5 MeV) a várakozásokhoz képest **rosszabb eredményt kaptunk**. Összevetve a 4.1. A) és B) ábrát láthatjuk, hogy a készülékek között jelentős különbség van; a görbék 0,2–0,7 keV-el felfelé csúsztak el. Noha a gyártó cégek gyakran hangsúlyozzák, hogy a digitális méréstechnika elméletileg kevésbé érzékeny a zajokra, a valóságban ennek éppen az ellenkezőjét tapasztaltuk: az analóg rendszernél mértük a legjobb felbontás értékeket. A legszembetűnőbb eltérést a spektrum kisenergiás részén mértük. Itt a tipikus csúcsszélesség 12 MeV méréshatárral kb. 1,2 keV, míg a CANBERRA DSA-2000-rel közel 50%-al nagyobb. A két

CANBERRA gyártmány között mintegy 0,2 keV-es konstans különbség figyelhető meg az asztali modell rovására. Ezt az integrált elemek okozta többlet-zajforrásoknak tulajdonítottuk.

A  $W = \sqrt{a_0 + a_1 \cdot E}$  függvény paraméterei közül  $a_1$  a detektorra jellemző állandó  $(a_1 = 2,34(10) \text{ eV})$ , bármilyen műszerrel vagy beállítással mérünk. A felbontás-romlás tehát kizárólag az elektronika jelkiszélesítő hatásának tulajdonítható. Több közbenső méréshatárt megvizsgálva a felbontás-romlást a jel/zaj viszony csökkenésével magyaráztuk. A nagyobb energiatartomány esetén az adott energiájú jelhez kisebb feszültségérték tartozik, amelyre a készülékben egy erősítéstől független zajkomponens rakódik. Az elektronika jelkiszélesítő hatásának  $(\sqrt{a_0})$  változását a méréshatár függvényében a 4.2 ÁBRA mutatja be.



4.2. ÁBRA. Az elektronika jelkiszélesítő tagja  $(\sqrt{a_0})$  a méréshatár függvényében közel lineárisan nő. A PGAA tartományt a rajzon ellipszis jelöli.

Alkalmunk volt megvizsgálni egy ORTEC DSPEC Plus berendezést is a LAWRENCE BERKELEY laboratóriumban (BERKELEY, USA). Hasonló, lineárisan romló trendet tapasztaltunk ez esetben is. Az ott mért pontok abszolút értéke azonban közvetlenül nem vethető össze a Budapesten mért adatokkal, az eltérő detektor és a környezet okozta zajok miatt.

Meg kell jegyeznünk továbbá, hogy a 25% hatásfokú detektorunkkal mindegyik digitális műszer inkompatibilisnek mutatkozott. Ennek valószínű oka, hogy néhány régebbi detektor előerősítő-jele nem tökéletesen exponenciális lecsengésű. Míg az analóg rendszer ezt gond nélkül kezelni tudta, a digitális rendszereknél jelentős csúcstorzulást és -kiszélesedést okozott. Ez egybevág JAMES és RAULERSON (JAMES ÉS RAULERSON 2001) tapasztalataival. A felmerült problémákat jeleztük a gyártó cégek felé, amelyek lényegében elismerték azokat. Az ORTEC cég 2004-ben, a MODERN TRENDS IN ACTIVATION ANALYSIS-11 konferencián mutatott be egy, az energiafelbontási problémákat csökkentő fejlesztést, amely három trapézfüggvényt használ az előerősítő alapvonalcsúszásának kiküszöbölésére. Tranzisztor-visszaállítású előerősítővel (*transistor-reset preamplifier*) sajnos nem tudtuk vizsgálni a berendezéseket.

A csúcsalak szempontjából azonban kedvező tapasztalatokat szereztünk. A digitális rendszereken mért spektrumokban a *Left Skew* tag amplitúdója és lecsengése is kisebb volt az analóg rendszerhez képest, így a csúcsalak sokkal közelebb állt a Gausshoz.

#### 4.1.2. Az energiafelbontás terhelésfüggése

Különböző töménységű kobalt-nitrát oldatokról vettünk fel spektrumokat a NIPS mérőhelyen. Néhány intenzív csúcsot kiértékelve meghatároztuk a félértékszélességeket, és azokat a számlálási sebesség (*output count rate*) függvényében ábrázoltuk. A XIA rendszer **felbontása nem változik jelentősen** az általunk használt számlálási sebesség tartományban, míg a CANBERRA DSA-2000 és DSP-2060 esetében határozott romlás volt megfigyelhető.



energiája szerepel.

#### 4.1.3. Hosszú idejű stabilitás (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2005A)

Az alábbi ábra egy hőmérséklet-stabilitási teszt eredményét mutatja be. Egy nyári időszakban, amikor a szobában a napi hőmérsékletingadozás elérte a tíz fokot, óránként spektrumokat vettünk fel egy <sup>152</sup>Eu forrásról. A csúcsok illesztéséből meghatároztuk az energia kalibráció lineáris tagját, amelynek kezdeti értéke 6,60 keV/csatorna volt. Végül az első ponthoz képest mért csúcseltolódást ppm egységekbe számítottuk át. A kapott eredmények **24 órás periodicitást mutattak**, és antikorrelációban voltak a hőmérséklettel. A mért ingadozás jóval belül van a <50 ppm/°C specifikáción és nincs észrevehető hatása a csúcsszélességre.



4.4. ÁBRA. A csúcspozíció ingadozása az időben, nagy hőmérsékletváltozás esetén

Hasonlóan, hosszú mérési sorozatot végeztünk a felbontás ellenőrzésére is. A CANBERRA rendszereknél a felbontás nem változott szignifikánsan, azonban a XIA esetében a felbontásban ugrásokat tapasztaltunk. Ezt egy rendszertelenül működő külső **zajforrás**sal hoztuk kapcsolatba, amely a konstans zajszintet változtatta és nem az erősítést (mert az összes csúcs felbontása energiától függetlenül kb. ugyanannyit romlik). A probléma mértékét az időközben kiadott új vezérlőszoftver jelentősen csökkentette.



4.5. ÁBRA. A XIA POLARIS energiafelbontásának változása egy külső zajforrás hatására, 2003. február 26 – március 2 között.

#### 4.1.4. Következtetések

Vizsgálataink eredményeként megállapítottuk, hogy a digitális jelfeldolgozásnak számos előnye van. Ezek között kell említeni a megnövelt flexibilitást, az idő és hőmérséklet stabilitást, valamint a szabályosabb csúcsalakot. Néhány, a PGAA felhasználást nehezítő probléma még megoldásra vár, elsősorban a berendezések energiafelbontása, kompatibilitása és zajérzékenysége terén.

Elő	NYÖK	Hátrányok	
✓ ✓ ✓ ✓	Jobb terhelhetőség Flexibilitás Pontosabb holtidő-korrekció Jobb idő és hőmérséklet stabilitás zajok távollétében	<ul> <li>Kis erősítésnél (PGAA mérési tarto- mányban) rosszabb energiafelbontás</li> <li>Zajérzékenység</li> <li>Inkompatibilitás a régi detektorokkal</li> </ul>	

- ✓ Szabályosabb csúcsalak
- Új mérési és adatkezelési lehetőségek, számítógépes vezérlés
  - 4.1. TÁBLÁZAT. A digitális spektrométerek előnyei és hátrányai

### 4.2. A besugárzás utáni számlálás analitikai alkalmazása

Ipari felkérésre, 2004 őszén és 2005 őszén, két mérési sorozat keretében fémhalogenid technológiai alapanyagokat vizsgáltunk. A feladat az volt, hogy a csomagolás megbontása és az anyag károsítása nélkül meghatározzuk a minták összetételét, illetve kimutassunk esetlegesen jelenlévő szennyezéseket. Ezek a követelmények kizárták mind az oldatos elemanalitikai technikák, mind a hagyományos neutronaktivációs analízis használatát. Kihasználva a neutronok és a  $\gamma$ -fotonok nagy áthatolóképességét, a PGAA módszer képesnek tűnt az analitikai célok teljesítésére. E konkrét analitikai feladaton kívánjuk bemutatni, hogy a **kimutatási határok csökkentése** a bomlási vonalak alkalmazásával lehetséges.

#### 4.2.1. A 2004-es mérési sorozat

A minták védőgázzal töltött kvarcüveg ampullákba voltak csomagolva. Főkomponensként NaI-ot, ScI<sub>3</sub>-ot, valamint kisebb mennyiségben ThI<sub>4</sub>-ot tartalmaztak. A PGAA módban 1–2 óra mérési idő alatt a Na, Sc és I elemeket már meg lehetett határozni. Sajnos a PGAA spektrumból a Th-ot a bonyolult spektrum, a viszonylag kis érzékenység és az interferenciák miatt nem lehetett közvetlenül meghatározni. A legzavaróbb interferencia a Th és a Na legintenzívebb csúcsai között lépett fel (472,30 keV, illetve 472,20 keV).

A minta valamennyi komponenséből keletkezik radioaktív nuklid, ezért a bomlási csúcsokon alapuló analitikai eljárásokat próbáltam alkalmazni. Ezzel a spektrum egyszerűsítését és a Th kimutatási határának csökkentését kívántam elérni. Az előző fejezetben vázolt két technikát, a nyalábszaggatós PGAA-t és a besugárzás utáni számlálás módszerét vizsgáltam meg.

Először próbamérést végeztem nyalábszaggatós PGAA-val egy éjszakán át. A bomlási spektrumban intenzíven megjelentek a szkandium, a jód és a nátrium csúcsai, azonban a várakozással ellentétben a tórium keresett csúcsa 459,2 keV energián nem.

A megoldást végül a minták bomlási  $\gamma$ -sugárzásának **besugárzás utáni számlálás**a jelentette. A NIPS mérőhelyen kialakított számlálóhelyen a geometriai hatásfokot meg tudtam növelni, így a Th 459 keV energiájú csúcsát sikerült a kimutatási határ fölé vinni. A közeli geometria miatt a pontforrás-hatásfokot egyvonalas (koincidencia-mentes) forrásokkal határoztam meg (<sup>51</sup>Cr, <sup>54</sup>Mn, <sup>57</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>109</sup>Cd, <sup>137</sup>Cs, <sup>198</sup>Au). A kiterjedt mintára vonatkozó hatásfokot Monte-Carlo szimulációval, a koincidencia-korrekciót ( $k_c$ ) pedig a TRUECOINC programmal kaptam (ld. 3. FÜGGELÉK). A bomlási spektrumból az alábbi összefüggéssel sikerült meghatározni a tórium-jód mólarányt( $n_{Th/I}$ ). Ezt a PGAA mérésből kapott Na, Sc és I adatokkal egyesítve minden összetevő mennyisége megadható.

$$n_{Th/I} = \frac{N_{P,Th} \sigma_{\gamma,I} \varepsilon_I \left(1 - e^{-\lambda_I t_{irr}}\right) e^{-\lambda_I t_d} \left(1 - e^{-\lambda_I t_{m,r}}\right) \lambda_{Th} k_{c,I}}{N_{P,I} \sigma_{\gamma,Th} \varepsilon_{Th} \left(1 - e^{-\lambda_{Th} t_{irr}}\right) e^{-\lambda_{Th} t_d} \left(1 - e^{-\lambda_{Th} t_{m,r}}\right) \lambda_I k_{c,Th}}$$
(4.1)

A feladatot végül 1–2 órás PGAA számlálással és az azt követő, 1–2 órás bomlási méréssel meg tudtam oldani. A viszonylag rövid PGAA mérés után a Sc és főleg a Na hosszabb felezési idejű vonalai még nem voltak túl intenzívek a bomlási spektrumban, így az általuk létrehozott Compton-plató alacsony maradt. Előnyös volt a feladat szempontból, hogy a tórium csúcsa a nagyon intenzív jód csúcs (E = 442,9 keV) felett található. Mivel a két mérendő radionuklid felezési ideje csaknem megegyezett (<sup>128</sup>I T<sub>1/2</sub> = 24,99 (2) perc) és <sup>233</sup>Th (T<sub>1/2</sub> = 22,3 (2) min), a változó holtidő korrigálásában elkövetett esetleges hiba az eredményt alig befolyásolja.

Az adatok alapján jó egyezést találtam a várható összetétellel. A legtöbb esetben a tapasztalt eltérés közel van a hibahatárhoz.

	Névleges összetétel	Minta a	zonosító	Névleges össz atátal	Minta azo	onosító
	osszetetet (atom%)	1	2	(tömeg%)	1	2
Na	43,2	43,6 (13)	43,8 (11)	12,4	12.6 (6)	12,7 (2)
Sc	2,98	2,84 (10)	3,07 (10)	1,67	1,60 (8)	1,75 (7)
Ι	53,5	53,2 (14)	52,7 (11)	85,0	84,8 (7)	84,5 (6)
Th	0,34	0,33 (4)	0,34 (7)	0,93	0,97 (13)	1,00 (22)
		3	4		3	4
Na	45,0	46,1 (11)	44,3 (12)	13,2	13,7 (5)	12,9 (5)
Sc	2,27	2,35 (7)	2,40 (8)	1,29	1,35 (5)	1,36 (6)
Ι	52,5	51,4 (12)	53,0 (12)	85,0	84.3 (6)	85,1 (6)
Th	0,19	0,19 (6)	0,21 (3)	0,54	0,57 (19)	0,62 (10)
		5	6		5	6
Na	44,9	44,1 (11)	45,2 (11)	13,1	12,7 (5)	13,2 (5)
Sc	2,06	1,99 (7)	2,08 (6)	1,17	1,12 (5)	1,19 (5)
Ι	52,7	53,3 (13)	52,2 (12)	84,6	84,6 (6)	84,1 (7)
Th	0,41	0,53 (7)	0,49 (8)	1,15	1,56(20)	1,46 (25)

4.2. TÁBLÁZAT. A 2004-es mérési sorozat vizsgálati eredményei

Elem	Becsült kimutatási határok (tömeg%)
Fe	< 0,4 %
Ca	< 0,5 %
Mg	< 1,8 %
Та	< 0,1 %
Y	< 0,4 %
Н	< 0,01 %
Cl	< 0,01 %

A spektrumok kiértékelésekor a Na, I, Sc Tl és Th komponenseken kívül egyéb összetevőt nem tudtam azonosítani. A megrendelő kérésére azonban néhány, technológiai szempontból fontos összetevőre kimutatási határt számítottam a (2.10) képlet segítségével:

4.3. TÁBLÁZAT. Becsült kimutatási határok

#### 4.2.2. A 2005-ös mérési sorozat

A második mérési sorozatban a minták NaI, ScI<sub>3</sub> és ThI<sub>4</sub> mellett már TII-ot is tartalmaztak. A tallium miatt kb. 3–8 órás PGAA mérés volt szükséges, ezért a bomlási spektrum háttérviszonyai 450 keV környékén kissé romlottak. Egyebekben a korábban kidolgozott mérési eljárást követtem. Eredményül az alábbi értékeket kaptam:

	Névleges		Minta a	zonosító	
	összetétel (atom%)	1	2	3	4
Na	44,5	43,3 (11)	43,6 (11)	43,3 (11)	43,4 (11)
Sc	1,92	1,95 (6)	1,96 (6)	1,92 (6)	1,98 (6)
Tl	0,82	0,81 (11)	0,78 (12)	0,85 (6)	0,82 (7)
Th	0,35	0,39 (7)	0,36 (5)	0,37 (6)	0,34 (6)
Ι	52,4	53,5 (12)	53,3 (12)	53,5 (11)	53,4 (12)
		5	6	7	8
Na	44,5	44,9 (11)	43,1 (12)	44,9 (11)	44,8 (11)
Sc	1,92	1,91 (7)	1,90 (6)	1,94 (6)	2,00 (6)
Tl	0,82	0,84 (6)	0,86 (8)	0,85 (9)	0,74 (9)
Th	0,35	0,39 (6)	0,46 (9)	0,32 (6)	0,31 (5)
Ι	52,4	51,9 (11)	53,6 (12)	52,7 (12)	52,1 (12)
	Névleges				
	összetétel (tömeg%)	1	2	3	4
Na	12,8	12,3 (5)	12,4 (5)	12,2 (5)	12,3 (5)
Sc	1,08	1,08 (4)	1,09 (5)	1,06 (4)	1,10 (5)
Tl	2,10	2,0 (3)	2,0 (3)	2,15 (16)	2,07 (18)
Th	0,97	1,1 (2)	1,02 (14)	1,07 (17)	0,98 (18)
Ι	83,1	83,5 (7)	83,5 (7)	83,5 (6)	83,5 (7)
		5	6	7	8
Na	12,8	12,9 (5)	12,2 (5)	12,6 (5)	12,9 (5)
Sc	1,08	1,07 (4)	1,05 (4)	1,08 (5)	1,13 (5)
Tl	2,10	2,15 (15)	2,16 (21)	2,15 (23)	1,91 (23)
Th	0,97	1,13 (18)	1,29 (25)	0,91 (18)	0,89 (15)
Ι	83,1	82,7 (7)	83,3 (7)	83,2 (7)	83,1 (7)
	4.4. TÁBLÁZAT	. A 2005-ös mér	ési sorozat mintáir	nak vizsgálati ered	ményei

Tehát a PGAA mérést követő bomlási spektrum bizonyos esetekben felhasználható a kimutatási határok csökkentésére. Ezt az alacsonyabb háttér és a NIPS mérőrendszer nagyobb hatásfoka teszi lehetővé.

## 4.3. A listamódú gamma-spektrometria alkalmazásai

A listamóddal kapcsolatos munkámban fontos feladat volt a módszer teljesítőképességének és pontosságának vizsgálata. A következőkben bemutatom az újszerű mérési eljárás alkalmazását radionuklidok mérésére, az illesztés pontosságának javítására és a szelektivitás növelésére.

#### 4.3.1. Felezésiidő-mérés listamódban (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006B)

A listamódú mérés rutinszerű bevezetése előtt számos, perces és néhány órás felezési idejű nuklid lecsengését vizsgáltam meg. A bomlási görbéket különböző módszerekkel kiértékelve felezési időket határoztam meg. Ez azért alkalmas a módszer ellenőrzésére, mert a nem megfelelően korrigált, időben változó holtidő torzítaná a görbék alakját, ezzel szisztematikus hibát okozna a felezési időkben és a csúcsterületekben. A kísérlet részleteit az alábbi táblázatban foglaltam össze:

Nuklid	Minta	Minta tömeg	Besugár- zási idő	Számlá- lási idő	<i>T</i> <sub>1/2</sub>	Összes rögzített beütés*	Adat fájl (MB)	Csúcs energia (keV)	ROI beütés- szám*	Nettó beütés- szám**
<sup>28</sup> Al	Al henger	7,97 g	20 min	16 min	2,24 m	266 692	6,9	1778,85	8 268	9 902
<sup>52</sup> V	$V_2O_5$ por	495 mg	20 min	20 min	3,75 m	373 618	9,7	1434,06	24 323	29 083
<sup>128</sup> I	CHI <sub>3</sub> por	308 mg	18,9 h	4,2 h	24,99 m	2 632 365	68,5	442,90	14 955	12 791
<sup>116m</sup> In	4 µm In	8,26	183 min	176 min	54,41 m	4 258 268	113,7	416,86	160 910	171 939
	fólia	mg						1097,3	126 485	136 850
								1293,5	145 825	167 760
								2112,1	16 354	18 974
<sup>56</sup> Mn	1 mm	115	15,2 h	8,5 h	2,5789 h	13 393 774	357,0	846,754	1 681 104	1 966 978
	Mn	mg						1810,72	234 223	262 568
	lemez							2113,05	98 967	118 333
<sup>24</sup> Na	CH <sub>3</sub> COO	3,23 g	48,2 h	35,2 h	14,959 h	9 877 184	257,0	1368,66	899 520	901 137
	Na por	_						2754,13	486 290	497 353

\* A 7. és 10. oszlop a nyers adatokra vonatkozik és nincs korrigálva a holtidőre

\*\* Holtidő-korrekció és a háttér levonása után

4.5. TÁBLÁZAT. A minták és kísérleti körülmények összefoglaló táblázata.

Példaként az indium egyik csúcsának **lecsengési görbé**jét mutatom be a 4.6. ÁBRÁN. A 3.2.5. pontban leírtak szerint a csúcs környéki háttér korrekciója után a görbére egy exponenciális függvényt illesztettem. Az első három perc adatát nem vettem figyelembe az illesztésnél, hogy a <sup>116</sup>In 14,1 mp felezési idejű komponense időközben lebomoljon. Az illesztett függvény kezdeti amplitúdója 632 (3), a lecsengési állandó  $\lambda = 2,113 (10) \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , amely 54,64 (26) perces felezési időnek felel meg. A normalizált reziduumok átlaga 0,03, szórása pedig 0,967. A tapasztalati eloszlás nem különbözött szignifikánsan a normális eloszlástól (KOLMOGOROV-SZMIRNOV próba, (KEMÉNY ÉS DEÁK 1999, 57. oldal)).



4.6. ÁBRA. Az In 416,9 keV-es bomlási csúcsának lecsengése.

#### 4.3.2. A kiértékelési módszerek pontosságának összehasonlítása

A listamódú adatgyűjtés előnye, hogy a keletkezett fájlt többféleképpen feldolgozhattam. Így kontrollált körülmények között vizsgálhattam meg a különböző kiértékelési módszerek pontosságát.

Az 4.5 TÁBLÁZATban található nyers adatokat háromféle módszerrel értékeltem ki:

- 1. háttérkorrigált időspektrum módszerrel,  $a_0 \cdot e^{-\lambda t}$  görbét illesztve
- 2. háromdimenziós illesztéssel
- 3. a hagyományos MCS spektrumoknál alkalmazott  $a_0 \cdot e^{-\lambda t} + a_1$  görbe illesztésével.

A három módszerből kapott felezési idő és nettó csúcsterület adatokat a 4.6. TÁBLÁZAT mutatja be. Az értékeket összehasonlítva látszik, hogy az 1. és 2. módszer alkalmazásával **2–6-szor pontosabb felezési idő-becslést kaptam**, mint a konvencionális MCS kiértékelést (3.) alkalmazva. Az 1. és 2. módszer közötti különbség nem éri el a 10 %-ot, noha a 3D illesztés legtöbbször kissé pontosabb.

A módszereket úgy is teszteltem, hogy egy jó statisztikájú lecsengési görbe elejéről egyre több pontot hagytam el. Ezzel szimuláltam egyre hosszabb "hűtési időt", azaz romló statisztikai pontosságot. A paraméterek relatív hibáját az 4.7 ÁBRÁN ábrázoltam, az első oszlopban az <sup>116m</sup>In, a másodikban pedig a lassabban bomló <sup>24</sup>Na esetében. Itt is azt tapasztaltam, hogy jó statisztikájú esetben (a görbék kezdeti szakaszán) a háttérkorrigált időspektrum illesztése és a 3D illesztés közel egyformán pontos, de mindkettő jobb a konvencionális módszernél. Közepes és kis statisztika esetén a 3D illesztés adja a legpontosabb paraméterbecslést. A 3D módszer legnagyobb előnye, hogy a görbe végénél olyan szakaszokat is ki lehet vele értékelni, amelyeket a másik két módszerrel már nem (az A és B ábrán t > 8 000 mp, C-D t > 85 000 mp). (Ha a paraméter nem egyezett meg hibahatáron belül a valódi értékkel, az illesztést sikertelennek minősítettem.)

Nuklid	Csúcs energia	Irodalmi $T_{1/2}$	Illesztett T <sub>1/2</sub>	Illesztett T <sub>1/2</sub>	Illesztett T <sub>1/2</sub>	Integrál	Csúcsterület
	(keV)		(MCS idő-	(háttérkorr. MCS idő-	(3D módszer)	(háttérkorr. MCS idő-	(3D módszer)
			spektrum)	spektrum)		spektrum)	
$^{28}$ Al	1778,85	$134,48 \pm 0,03 \ s$	$135,3 \pm 2,9 \text{ s}$	$133,0 \pm 1,6 \text{ s}$	$134,8 \pm 1,5 \text{ s}$	$9\ 483\pm100$	$9 \ 347 \pm 131$
$^{52}V$	1434,06	$224,6 \pm 0,3 \ s$	$225,6 \pm 3,8$ s	$225,6 \pm 1,7 \text{ s}$	$224,8 \pm 1,6 \text{ s}$	$28 \ 847 \pm 190$	$28\ 808\pm 261$
$1^{28}$ I	442,90	$24,99 \pm 0,02 \text{ min}$	$25,11 \pm 1,85 \text{ min}$	$24,97 \pm 0,44 \text{ min}$	$24,98 \pm 0,38 \min$	$10\ 830 \pm 115$	$10\ 783 \pm 171$
$^{116m}$ In	416,86	$54,41 \pm 0,06 \text{ min}$	$54,60 \pm 0,92 \text{ min}$	$54,64 \pm 0,28 \text{ min}$	$54,33 \pm 0,22 \text{ min}$	$168\ 211\pm 491$	$167\ 468\pm 1\ 067$
	1097,3		$54,04 \pm 1,00 \text{ min}$	$54,06 \pm 0,29 \text{ min}$	$54,44 \pm 0,24 \text{ min}$	$136\ 850\pm 570$	$133\ 387 \pm 786$
	1293,5		$54,08 \pm 0,88 \text{ min}$	$54,35 \pm 0,26 \text{ min}$	$54,36 \pm 0,24$ min	$167760\pm609$	$164\ 747\pm960$
	2112,1		$55,86 \pm 2,70 \text{ min}$	$54,59 \pm 0,74 \text{ min}$	$54,42 \pm 0,80 \text{ min}$	$15\ 803\pm 376$	$15\ 889 \pm 392$
$^{56}$ Mn	846,754	$2,5789 \pm 0,0001 \text{ h}$	$2,579 \pm 0,015 \text{ h}$	$2,5828 \pm 0,0041 \text{ h}$	$2,5805 \pm 0,0041 \text{ h}$	$1\ 353\ 730\pm 1\ 163$	$1 \ 360 \ 440 \pm 3 \ 198$
	1810,72		$2,575 \pm 0,044 \text{ h}$	$2,5745 \pm 0,0118 \text{ h}$	$2,5806\pm0,0118~{\rm h}$	$179\ 260\pm 639$	$178552 \pm 918$
	2113,05		$2,559 \pm 0,062 \text{ h}$	$2,5870 \pm 0,0167 \text{ h}$	$2,5784 \pm 0,0140 \ h$	$79\ 269\pm 324$	$78\ 185\pm 629$
$^{24}$ Na	1369,66	$14,959 \pm 0,0012$ h	$15,04\pm0,19~\mathrm{h}$	$15,005 \pm 0,037 \ h$	$14,943 \pm 0,0352 \text{ h}$	$889\ 163\pm 943$	$885\ 374\pm 1\ 743$
	2754,13		$14,92 \pm 0,26 \text{ h}$	$14,985 \pm 0,055 \text{ h}$	$14,983 \pm 0,0480 \text{ h}$	$483\ 866 \pm 1\ 003$	$480\ 639 \pm 987$

oglaló táblázata	)
összef	
4	
ereine	
araméte	
zerek r	
S	
nód	
2	
tési	
lesz	
Ξ	
ŝ	
öZ	
ą	
ö	
ü	
~	
A.	
ΔT	
Ŋ	
BLÁ	
TÁJ	
4.6.	





## 4.3.3. Csúcsinterferenciák feloldása az idődimenzió bevonásával (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2005B)

Az energiában közel eső, de eltérő időfüggésű csúcsok dekomponálását egy In és Mn tartalmú mintán vizsgáltam. A két összetevő 2112,1 keV-es és 2113,0 keV-es csúcsai kizárólag az energiaspektrum alapján nem választhatók szét: a HYPERMET-PC *egyetlen*, 2112,7 keV-es csúcsot illesztett,  $46978 \pm 0.5\%$  területtel. A cél az volt, hogy egy modell mintán megmutassam, az időinformáció kihasználásával az elválasztás ilyen esetekben is elvégezhető.

Mivel mindkét radionuklid rendelkezik nem interferáló csúccsal is, elegendő volt az azokhoz viszonyított arányt meghatározni. Az In és Mn külön mért spektrumaiban, illetve a közös spektrumban mért arányokat az alábbi táblázat mutatja be. A kapott értékek hibahatáron belül megegyeznek, amely alátámasztja a módszer alkalmazhatóságát bizonyos interferenciák feloldására.

	In minta	Mn minta	In+Mn minta
$^{116m}$ In $\frac{\text{Int}(2112,1 \text{ keV})}{\text{Int}(416,86 \text{ keV})}$	9,52 (17) %	_	9,6 (4) %
$^{56}$ Mn $\frac{\text{Int}(2113,05 \text{ keV})}{\text{Int}(846,754 \text{ keV})}$	_	7,18 (5) %	7,4 (7) %

4.6. TÁBLÁZAT. A csúcsszétválasztással és a tiszta minták spektrumaiból kapott relatív csúcsintenzitások összehasonlítása



4.8. ÁBRA. Az In-Mn modellminta spektrumának 3D képe. Az azonos eredetű csúcsok akár a felezési idők alapján is összerendelhetők.

#### 4.3.4. Ciklikus aktiváció neutronnyalábban

A nyalábszaggatós PGAA-val integrális energiaspektrumot kapunk, így elveszítjük az idődimenzióban rejlő többletinformációt. Hosszabb ciklusidőket választva és listamódban mérve azonban lehetőség van az időfelbontás megőrzésére. Ez a módszer közelebb áll a hagyományos ciklikus aktivációs analízishez, azonban a besugárzást kivezetett neutronnyalábban végezzük. A hagyományos CNAA-val ellentétben a prompt eseményeket is rögzítjük, azaz mind az aktiválási, mind a lecsengési szakasz információtartalma kihasználható. Így a prompt és a bomlási események elkülönítése mellett az idődinamikát is követhetni tudjuk.

Az alábbi ábrán mutatom be a nyalábban mért ciklikus aktiváció egy periódusát, egy Al-tartalmú minta 1778,9 keV-es vonalának példáján. (Eddig csak néhány, csekély statisztikájú demonstrációs mérést tudtam elvégezni, mert a nyalábzár nem teszi lehetővé az automatizált vezérlést). Az aktiválás végén a prompt események megszűnnek (pl. a háttér bórcsúcs) és az alapvonal jelentősen lecsökken. A CNAA-ban szokásos hűtési idő itt nincs, mert a mintát nem kell mozgatni, és az adatgyűjtés is folyamatos. Az itt bemutatott adatmátrixra a 3.2.6. pontban levezetett időfüggő képleteket lehet illeszteni.



4.9 ÁBRA. Az Al 1778,9 keV energiájú vonalának időfüggése a ciklikus aktivációs mérés egy periódusa alatt. Az ábrán egy 12 perces aktiválás és 12 perces lecsengés látható, 15 másodperces időfelbontással.

#### 4.3.5. Következtetések és alkalmazási lehetőségek

Az előző pontokban láttuk, hogy a listamódú adatgyűjtés és az ahhoz kapcsolódó adatfeldolgozás elősegíti az adatok teljesebb elemzését. Megmutattam, hogy perces-órás felezési idők viszonylag egyszerűen néhány százalék pontossággal meghatározhatók. Ismert felezési idők esetén pedig az energiaspektrumban átfedő csúcsok választhatók szét. A csúcsok kiértékelésére kidolgozott módszereket összehasonlítottam, és az általam javasolt eljárások

pontossága jobbnak bizonyult a szokásos MCS módszernél. Demonstrációs méréseket végeztem ciklikus aktivációval, ahol az aktiválódás és lecsengés jól követhető volt.

Terveink között szerepel egy besugárzóhely létrehozása a 3. sz. neutronvezető elején (ld. 2.1. ÁBRA), ahol a jelenleginél legalább egy nagyságrenddel nagyobb fluxus áll majd rendelkezésre. Az itt végrehajtott besugárzással továbbra is roncsolásmentes vizsgálatokat végezhetünk, ugyanakkor a kimutatási határt lejjebb szoríthatjuk. A külső háttér csökkentésére egy alacsonyhátterű mérőkamrát állítunk majd üzembe.

További felhasználási területként szóba jöhet az urán hasadvány termékeinek analízise. Az urán bonyolult spektrumában számos, rövid felezési idejű hasadványtermék csúcsa is megjelenik, amelyeket időfüggésükkel könnyebben azonosítani lehet. A folyamatban lévő PGAA adatkönyvtár mérésekben is hasznát vesszük majd ennek a módszernek, a bomlási csúcsok azonosításában és elválasztásában.

A technikával bomlások elágazási arányait is meg lehet határozni. Ez szükséges a IV/A típusú nuklidok nyalábaktivációs faktorainak számításához (ld. a 3.3.3. fejezetben). Tervezzük továbbá a <sup>130</sup>I bomlásának vizsgálatát, transzmutációs projekthez kapcsolódva. A <sup>129</sup>I-ből neutronbefogással keletkező <sup>130</sup>I bomlása kétféle felezési idővel (8,8 perc és 12,4 óra) vezet <sup>130</sup>Xe-ba, amelyet mindkét esetben egy 536 keV-es foton kibocsátása követ. Az egyes ágak intenzitásaiból a hatáskeresztmetszetet ki lehet számolni.

A listamód felhasználása reményeink szerint nem korlátozódik a PGAA-ra. Bármilyen, időben változó γ-sugárzás mérésére az itt kidolgozott elvek és technikák használhatók (pl. short-time NAA). Hasonlóan jól alkalmazható lehet objektumok scannelésénél (γ-imaging), ahol a pozíció és az idő között egyértelmű kapcsolat van. Jelen kísérletekben komoly korlátot jelentett az adatátvitel. Ennek gyorsítása elengedhetetlen, hogy a módszer nagyobb beütésszám-tartományban és tágabb idődinamika-tarományban változó folyamatok követésére is alkalmassá váljon.

## 4.4. Nyalábszaggatós prompt-gamma aktivációs analízis

#### 4.4.1. A szelektivitás és a kimutatási határ javítása

Ellentétben a prompt spektrummal, ahol az elemeknek több száz csúcsa jelentkezik, a bomlási spektrumokban nuklidonként csak néhány csúcsot kapunk. Ezek némelyike intenzitásban megközelíti vagy felül is múlja a legintenzívebb prompt csúcsokat, ugyanakkor a jelentősen alacsonyabb háttéren könnyen kimutathatók, és spektrális interferenciák nélkül kiértékelhetők. Így a kimutatási határ és a szelektivitás javítható azokra az elemekre, amelyeknél radioaktív nuklid képződik a besugárzás során.

A nyalábszaggatót sikerült úgy megépíteni, hogy a háttér az aktiválási és a bomlási fázisban is a lehető legalacsonyabb maradt, alig haladja meg a folytonos nyalábnál mérhető kb. 5 cps-t (RÉVAY *ET AL*. 2005B). Ez a mintakamra vákuumozásával további kb. 20%-al csökkenthető. A spektrumaink számlálási sebessége a nyitott fázisban néhány száz, legfeljebb ezer cps, amely a bomlási spektrumban néhányszor tízre, legfeljebb százra csökken.

Az alapvonal csökkenését és a szelektivitás javulását a trijodo-metán példáján mutatom be. A felső görbe a komplikált prompt-spektrum részlete, amely ezen a kis szakaszon is a jód legalább negyven csúcsát tartalmazza. A 24,99 perces felezési idejű <sup>128</sup>I két csúcsa a csaknem két nagyságrenddel alacsonyabb alapvonalon sokkal jobban elkülönül.



4.10. ÁBRA. A trijodo-metán (CHI<sub>3</sub>) nyalábszaggatós PGAA spektrumának részlete.

Egy csúcs a 2.2.4. pont szerint akkor mutatható ki, ha amplitúdója meghaladja az alapvonal szórásának háromszorosát. Ezt a kritériumot alkalmazva kvantitatívan megadható a kimutatási határ változása.

Ehhez képeztem az alábbi hányadost, amelyben egy elem kimutatási határát ((2.10) képlet) hasonlítom össze azonos ideig mért PGAA spektrumban és a nyalábszaggatós bomlási spektrumban:

$$\frac{m_{DL,d}}{m_{DL,p}} = \frac{\sigma_{\gamma,p} \varepsilon_p \sqrt{b_d} W_d}{\sigma_{\gamma,d} \varepsilon_d \sqrt{b_p} W_p B K L} < 1$$
(4.2)

ahol  $\sigma_{\gamma}$  a paricális gamma-keltési hatáskeresztmetszer,  $\varepsilon$  a hatásfok, *b* a háttér magassága a csúcs környezetében, *W* a félértékszélesség, *B* a nyalábaktivációs faktor, *K* és *L* pedig a relatív nyitvatartási idő és számlálási idő.

Ha ez a mennyiség kisebb egynél, a nyalábszaggatós technika alkalmazása kedvezőbb, mint a folytonos PGAA mérés. A legintenzívebb csúcs sokszor megegyezik a prompt és a bomlási spektrumban (pl. F 1633 keV, Al 1778 keV, V 1434 keV). Ilyenkor, ha az alapvonalcsökkenés nagyobb, mint  $(K \cdot L)^{-2} \approx 25$ , a kimutatási határ a nyalábszaggatós módszerrel jobb. Ez esetenként már az elem spektrumában is teljesül, és még jobb a helyzet mátrix jelenlétében.

Más elemek esetén a bomlási vonalak intenzitása kicsi, csupán néhány százaléka a legnagyobb prompt csúcsnak. Ilyenkor csak intenzív mátrix esetén csökkenhet a kimutatási határ. A következő pontban leírtak szerint a csúcsok  $k_0$ -értéke ekkor is meghatározható. Az elemek harmadik csoportjánál nem képződik radionuklid a befogás után, így ezek a nyalábszaggatós mérés bomlási spektrumában nem detektálhatók (4.11. ÁBRA).

1	1																18
1																	2
Н	2											13	14	15	16	17	He
3	4											5	6	7	8	9	10
Li	Be											В	С	Ν	0	F	Ne
11	12											13	14	15	16	17	18
Na	Mg	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Al	Si	Р	S	Cl	Ar
19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Мо	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	Ι	Xe
55	56	57	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86
Cs	Ba	La <sup>a</sup>	Hf	Та	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	TI	Pb	Bi	Ро	At	Rn
87	88	89	104	105	106	107	108	109	110	111	112		114		116		
Fr	Ra	Acb	Rf	Db	Sg	Bk	Hs	Mt	Uun	Uuu	Uub		Uuq		Uuh		
					8												
<sup>a</sup> L	antanid	lák	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71	
			Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dv	Но	Er	Tm	Yb	Lu	
										~	5						1
b j	Aktinid	ák	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103	1
1			Th	Pa	U	Nn	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	
				- "	U	1.P	. u		CIII	24	01	-15		1.14	110		1

Nyalábszaggatós PGAA-val mérhető elemek A nyalábszaggatóval *kedvezőbben* mérhető elemek

Csak hagyományos PGAA-val mérhető elemek





4.12. ÁBRA. Egy folyóüledék standard (NIST) nyalábszaggatós spektruma. Fent a nyitott fázisú, lent a zárt fázisú spektrum látható.

4.4.2. Bomlási k<sub>0</sub>-faktorok meghatározása (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006D)

A  $k_0$ -faktor egy relatív analitikai érzékenység jellegű, összetett nukleáris állandó, amelyet SIMONITS és DE CORTE vezettek be a reaktor NAA-ba 1975-ben (SIMONITS *ET AL*. 1975). Definíciója:

$$k_{0,u}(d) \equiv \frac{M_u \sigma_{0,d} \theta_d P_{\gamma,d}}{M_d \sigma_{0,u} \theta_u P_{\gamma,u}} = \frac{M_p}{M_d} \frac{\sigma_d}{\sigma_p}$$
(4.3)

ahol az u index a komparátort, a d pedig a vizsgált nuklidot jelöli. A  $k_0$ -konvenciót a PGAAban is átvették és a budapesti PGAA laboratóriumban értéküket minden elem több vonalára meghatározták (RÉVAY ÉS MOLNÁR 2003). A méréseket sztöchiometrikus vegyületeken végezték, belső standard módszert használva. Ezekre a tapasztalatokra építve kezdtem meg a standardizációs méréseket a nyalábszaggatós PGAA-val.

A **belső standard módszer** szerint a mérendő csúcs parciális gamma-keltési hatáskeresztmetszetét vagy  $k_0$ -értékét közvetlen összehasonlításból kapjuk egy ismert hatáskeresztmetszetű, ismert mennyiségben jelen lévő **komparátor elem** jó statisztikai pontosságú csúcsával. A leggyakrabban alkalmazott ilyen prompt-csúcsok a hidrogén 2223-keV-es, a klór 1951-keV-es, a nitrogén 1884-keV-es, és a kén 841-keV-es csúcsai. Esetenként a szén 4945-keV-es csúcsát is használhatjuk, ennek érzékenysége azonban sokkal kisebb. A hidrogén 2223-keV-es csúcsának  $\sigma_{\gamma}$  értéke 0,2 % pontossággal ismert.

A 3.3.2 pontban egyenleteket írtunk fel a prompt és a bomlási csúcsok területére. A belső standard módszer szerint itt a (3.10) és a (3.11) egyenletek hányadosával számolhatunk, amelyből a fluxus, az abszolút anyagmennyiség és a mérési idő kiesik. Elegendő továbbá a relatív hatásfokot ismerni, azaz az eredő hibából a hatásfok abszolutizálásának járuléka szintén kiesik. Az egyenletekből *d* bomlási csúcs  $k_0$ -faktora *p* komparátorhoz viszonyítva az alábbi képlettel számítható:

$$k_{0,p}(d) = \frac{M_p}{M_d} \frac{A_d}{A_p} \frac{N_p}{N_d} \frac{\varepsilon(E_p)}{\varepsilon(E_d)} \frac{\eta_p}{\eta_d} \frac{1}{L \cdot B}$$
(4.4)

Az így meghatározott  $k_{0,p}$  érték azután átszámítható tetszőleges u komparátorhoz viszonyított  $k_{0,u}$ -ra, korábban kimért konverziós faktorokkal szorozva. *Ez a végső* komparátor a PGAA-ban a hidrogén, a reaktor NAA-ban pedig az arany:

$$k_{0,u}(d) = k_{0,p}(d) \cdot k_{0,u}(p) = \frac{M_p}{M_d} \frac{\sigma_d}{\sigma_p} \cdot \frac{M_u}{M_p} \frac{\sigma_p}{\sigma_u} \equiv \frac{M_u}{M_d} \frac{\sigma_d}{\sigma_u}$$
(4.5)

Olyan **minták**at választottam a méréshez, amelyek a mérendő elemet és a H, Cl, N, S, C komparátor elemek legalább egyikét ismert arányban tartalmazta. Ez sztöchiometrikus vegyület vagy azokból készült oldat formájában biztosítható. A mérésekhez 1–3 g tömegű por mintákat vagy 1–2 ml-nyi oldatokat használtam. A neutronnyalábot egy 44 mm<sup>2</sup>-es kollimátorral leszűkítettem, hogy a holtidőt alacsonyan tartsam és közelítőleg pontszerű legyen a forrás. Amikor csak lehetett, a mintakamrában vákuumot létesítettem, hogy csökkentsem az Al, N, Cl, H elemektől származó hátteret (N: levegő, H: levegő víztartalma; Cl, Al: szerkezeti anyagok, amelyek a levegő által szórt neutronoktól aktiválódnak). A mérést addig folytattam, amíg a mérendő és a komparátor csúcs területei kellő statisztikai pontosságot el nem értek: a tipikus mérési idő 8-14 óra volt, kivéve a szkandium és a hafnium

esetében, ahol három óra elegendő volt. A mérendő csúcsok területe 1000 – 60 000 volt, míg a komparátor csúcsterület gyakran meghaladta a 200 000 beütést.

A nyalábszaggatós technikával a bomlási csúcsot a zárt fázisban, a komparátor csúcsot pedig az aktiválási fázisban detektáljuk, így szükség volt a két spektrum össze**normálás**ára. Ezt a minta elé tett <sup>207</sup>Bi radioaktív forrással oldottam meg, amelynek jellemző csúcsait mindkét spektrumban kiértékeltem. Az önabszorpció korrigálásához az XMUDAT programot (NOWOTNY 1998) használtam.

#### 4.4.3. Az eredmények értékelése (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2006D)

Az NAA-val mért  $k_0$ -értékeknek gazdag irodalma van, amely évtizedek kísérleti munkájára támaszkodik pl. (DE CORTE ÉS SIMONITS 2003; ROTH *ET AL.* 1993; VAN LIERDE *ET AL.* 1999). A nagyszámú, jól egyező kísérleti eredmény ellenére a legutóbbi időkben kételyek merültek fel néhány  $k_0$ -tényező pontosságát illetően (KENNEDY ÉS ST-PIERRE 2003). Ez a hasonló technikák azonos szisztematikus hibájával (epitermikus aktiváció, gyorsan változó holtidő mérése, koincidencia-korrekció, ...) magyarázható. Hibabecslésként legtöbbször az ismételt mérések szórását (külső hiba) adják meg. A nyalábszaggatós PGAA technika ezért fontos metodológiai kapoccsá válhat a kétféle aktivációs analitikai módszer között, mert ugyanazokat a mennyiségeket más módszerrel határozzuk meg, mint a  $k_0$ -NAA-ban. A különböző mérési technikákkal kapott eredmények segíthetnek az esetleges hibaforrások felderítésében és a közösen használt nukleáris adatok harmonizációjában.

Nagy hangsúlyt fektettem az eredmények bizonytalanságának becslésére, az ún. *uncertainty budget* elkészítésére. Ezt az ISO és az EURACHEM ajánlásai alapján (ISO 1995) és (EURACHEM 2000) végeztem, számba véve minden lehetséges hibaforrást és felbecsülve azok járulékait (4.8 TÁBLÁZAT). Külön jeleztem, hogy a hibát "ismételt megfigyelések statisztikai értékelésével, Type A" vagy "a mennyiség ingadozásának legjobb becslése minden információ figyelembe vételével, Type B" kaptam. Utóbbi csoportba tartozik minden mennyiség, amelyhez irodalmi adatot és annak irodalomból vett hibáját használjuk fel. Fontos kiemelni, hogy egy laboratóriumban nem lehet pontosabb értéket megadni, mint a hiba szisztematikus része, mivel ez nem csökkenthető a mérések idejének vagy számának növelésével.

Az itt leírt kísérletekben a legfontosabb vonalak  $k_0$ -adatait 1,5 – 2 % pontossággal meg tudtam határozni. A gyengébb intenzitású csúcsokra nagyobb bizonytalanság adódott, kb. 3 – 6 %. A közeljövőben további méréseket tervezünk ezen csúcsok hibájának csökkentésére és további elemek bevonására. Az eddigi adatokat a 4.7 TÁBLÁZAT mutatja be. Általánosságban az egyezés jónak mondható, a normalizált eltérések ( $\chi$ ) az irodalmi értéktől néhány kivétellel a ±2 sávba esnek. A könnyű elemekre (F, Na, Al, Mn), amelyek PGAA spektruma viszonylag egyszerű, a mostani és a korábban PGAA-val mért értékek hibán belül megegyeznek. Néhány nehéz elem esetében a korábbi PGAA méréseknél nem lehetett kizárni a prompt és a bomlási vonalak interferenciáját. A mostani mérési sorozat ebben is segített dönteni.

Három érdekes esetet külön is kiemelnék: a <sup>24</sup>Na és az <sup>28</sup>Al esetében az eredmények pontosan megegyeznek korábbi irodalmi adatokkal (0,528 barn és 0,232 barn, ld. pl. IAEA 1974), és kissé nagyobbak, mint a jelenlegi  $k_0$ -adatbázisban szereplő értékek (4,68×10<sup>-2</sup> és 1,75×10<sup>-2</sup>). Ennél még szignifikánsabb elérést figyeltem meg a <sup>128</sup>I esetében: itt a 442,9 keV-es csúcs intenzitását közel 4,5 %-kal nagyobbnak mértem. A miénkkel hibahatáron belül megegyező értéket kaptak kanadai kollégák is (KENNEDY ÉS ST-PIERRE 2003), akik felhívták a figyelmet a  $k_0$  érték és a Q<sub>0</sub> (az epitermikus aktivációs hatáskeresztmetszet) közti korrelációra. Javasolták, hogy jól termalizált besugárzóhelyen végezzenek ellenőrző méréseket: ennek a feltételnek a berendezésünk jól megfelel.

mlási Sigma, barn* k <sub>0,Au</sub> Irodalmi adat** <i>X</i> :s, keV (Absz. hiba) (Rel. hiba%)	1633,53 0,00932 (22) 0,00102 (2,5%) 9,98E-4 (1,2%) [3] 0,89 1.01E-3 (0.7%) 121 0.44	1368,66  0.527 (11)  0.047646 (2,1%)  4,68E-02 (0,6%) [1]  0.80	2754,13 0,526 (13) 0,047591 (2,5%) 4,62E-02 (0,8%) [1] 1,12	1778,99 0,233 (3) 0,017946 (1,6%) 1,75E-02 (0,8%) [1] 1,38	571,355 0,0135 (7) 0,000791 (5,2%) 7,95E-04 (1,7%) [2] -0,09	1642,5 0,0345 (21) 0,00202 (6,2%) 1,97E-03 (1,4%) [1] 0,42	2166,90 0,0478 (23) 0,00280 (4,9%) 2,66E-03 (1,3%) [1] 0,99	346,754 13,20 (18) 0,499 (1,6%) 4,96E-01 (0,6%) [1] 0,39	1810,72 3,57 (5) 0,1351 (1,6%) 1,35E-01 (0,4%) [1] 0,06	2113,05 1,92 (4) 0,0728 (2,2%) 7,17E-02 (0,2%) [1] 0,70	[42,528 4,88 (11) 0,225 (2,4%) 0,2270 (0,7%) [2] -0,37	$616,3^{a}$ 0,259 (3) 0,00675 (1,5%) 6,92E-03 (0,3%) [3] -1,64	$665,8^{a}$ 0,0469 (11) 0,00122 (2,6%) 1,22E-03 (0,5%) [3] -0,03	554,348 0,890 (18) 0,02315 (2,2%) 2,38E-02 (1,1%) [1] -1,15	519,106 0,533 (11) 0,01387 (2,3%) 1,45E-02 (0,8%) [1] -1,88	698,21 0,352 (8) 0,00917 (2,4%) 9,38E-03 (0,9%) [1] -0,89	776,50 1,059 (16) 0,02756 (1,7%) 2,76E-02 (0,8%) [1] -0,08	827,8 0,290 (9) 0,00753 (3,3%) 7,99E-03 (0,9%) [1] -1,78	1044,0 0,335 (9) 0,00872 (2,9%) 9,14E-03 (0,7%) [1] -1,59	1317,5 0,318 (10) 0,00828 (3,2%) 8,91E-03 (0,4%) [1] -2,38	1474,9 0,206 (7) 0,00536 (3,7%) 5,42E-03 (0,5%) [1] -0,31	442,901 0,712 (9) 0,0117 (1,5%) 1,12E-02 (1,7%) [1] 1,79	526.6 0.0676 (14) 0.0011 (2,3%) 1.07E-03 (1,4%) [1] 1,25	$14,341^{b}$ $15,11$ (25) 0,176 (2,0%) 0,1770 (0,2%) [3] -0,29	134,2 <sup>c</sup> 1,037 (19) 0,0117 (1,9%) 1,13E-02 (0,7%) [1] 1,70	479,55 2,64 (4) 0,0299 (1,8%) 2,97E-02 (1,0%) [1] 0,28	551,5 0,613 (10) 0,00693 (1,8%) 6,91E-03 (0,5%) [1] 0,17	618,3 0,757 (13) 0,00856 (1,8%) 8,65E-03 (0,7%) [1] -0,51	$(625,5 \ 0,133 \ (3) \ 0,00151 \ (2,5\%) \ 1,48E-03^d \ (-) \ [1] - 0$	685,73 3,35 (6) 0,0379 (2,0%) 3,71E-02 (0,5%) [1] 0,99	772,9 0,498 (8) 0,00563 (1,8%) 5,61E-03 (0,7%) [1] 0,15
mlás Komparátor B pus csúcs, keV csv	C 4945	B S 841	B S 841	H 2223	GI 1951	GI 1951	GCI 1951	CI 1951	CI 1951	CI 1951	S 841	A H 2223	A H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	B H 2223	H 2223	H 2223	CI 1951	H 2223	H 2223	H 2223	H 2223	H 2223	H 2223	H 2223
Felezési idő* Bo (Absz. hiba) tí	11,163 (8) s I	14,9590 (12) IV/	" IV/	2,2414 (1) m I	0,715 (3) s IV/	37,24 (5) m IV/	IV/	2,5789 (1) h I	Ι	I	18,75 (4) s I	4,4205 (8) h/ IV/.	17,68 (2) m IV/	6,13 (5)m/ IV/	35,30 (2) h IV/	IV/	IV/	IV/	IV/	IV/	IV/	24,99 (2) m I	Ι	18,67 (4) s I	23,72 (6) h I	I	Ι	Ι	Ι	Ι	Ι
Minta Nuklid	PTFE cylinder, <sup>20</sup> F (CF.).	Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .5H <sub>2</sub> O <sup>24</sup> Na		Al(OH) <sub>3</sub> <sup>28</sup> Al	MnCl <sub>2</sub> .4H <sub>2</sub> O <sup>38m</sup> Cl	38Cl		<sup>56</sup> Mn			$Sc_2(SO_4)_3$ <sup>46</sup> $Sc$	KBr+H <sub>2</sub> O <sup>80</sup> Br		<sup>82</sup> Br								KI+H <sub>2</sub> O <sup>127</sup> I		HfOCl <sub>2</sub> .8H <sub>2</sub> O <sup>179m1</sup> Hf	H <sub>2</sub> WO <sub>4</sub> <sup>187</sup> W						

**Rb       17,78 (11) m       1       H 2223       898,03       0,00469 (23)       0,00011 (6)         AgNO <sub>3</sub> +H <sub>2</sub> O       1*Ag       2,37 (1) min       1       H 2223       1836,0       0,0057 (4)       0,00016 (5)         1*0Ag       24,6(2) s       1       H 2223       613,88       0,0057 (4)       0,0016 (5)         1*0Ag       24,6(2) s       1       H 2223       657,50       1,886       0,0055 (5)       0,00105 (5)         Tripleter illeszterem: 214,3 keV, 71,2       1,432,23       657,50       1,887 (3)       0,00105 (5)         Agamma abszopció jelemós volt       1       H 2223       657,50       1,887 (3)       0,00105 (5)         Az rodalmi adato kiomátuma: A(ferdevé refu)       mago y 5, (döt) bett) érick (relativ hiba %)       1,299,5       1,887 (2)       0,0058 (2)         Az rodalmi adato kiomátuma: A(ferdevé refu) vag 5, (döt) bett) érick (relativ hiba %)       1,205 (2)       0,0058 (2)       0,0058 (2)         Az rodalmi adato kiomátuma: A(ferdevé refu) vag 5, (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), 4 (REVAY <i>ET AL.</i> 2005B)       4.7. T ABL AZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -érték kaz riodalmi éri         Az rodalmi adato kiomátuma: A(ferdevé refu) vag 5, (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), 4 (REVAY <i>ET AL.</i> 2005B)       1,995,4 (6)       0,0058 (5)         A. T. TABL ZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott	<sup>88</sup> Rb 17,78 (11) m I H 2223 898,0 108 Ag 2,37 (1) min I H 2223 1836,0 1 H 2223 618,8 1 H 2223 618,8 1 H 2223 632,9 110 Ag 24,6 (2) s I H 2223 657,5 110 Ag 27, 178 L 1999), $^{3}$ ; (VAN LIERDE <i>ET AL</i> 1999), $^{4}$ ; (RÉVA A 7, TÁBL AZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo 4.7. TÁBL AZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo A.7. TÁBL AZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo A.7. TÁBL AZAT: a nyalábszaggatós A 2 A a nyalábszaggatós A 2 A comparátor parciális gamma-keltési Type A A komparátor parciális gamma-keltési Type A Relativ detektor hatásfok Relativ detektor hatásfok Relativ detektor hatásfok A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonyalansága ( $\sigma_p$ ) Type A Relativ detektor hatásfok Minta sztöchiometriála, tisztasága Type B	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	111 (4,9%) 1,0 117 (5,3%) 1,5 (68 (5,0%) 1,5 (05 (6,8%) 9,3 385 (2,0%) 6,0 385 (1,7%) 1,9 31 értékekhez h	01E-04 (1,5%) [1] 57E-04 (1,1%) [1] 59E-03 (2,0%) [1] 33E-04 (0,8%) [1] 01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.
AgNO <sub>7</sub> +H <sub>2</sub> O <sup>106</sup> Ag         2.37 (1) min         1         H 2223         183.6,00         0.0068 (4)         0.00017 (5)           AgNO <sub>7</sub> +H <sub>2</sub> O         10Ag         24,6 (2) s         1         H 2223         633.9,8         0.303 (6)         0,0068 (2)         0,00016 (6)           Irodalombol vert eligazăti arâny: 0.302 (VAN LIREDE <i>ET AL</i> 1999)         1         H 2223         657.5,0         7.88 (3)         0,00058 (2)           Tripletter illeszettem: 214.3 kvV: 1 <sup>78mil</sup> Hf, <sup>184</sup> Hf, 215,4 keV, <i>T</i> <sub>1,2</sub> = 5,5 h, <sup>178</sup> Hf, 213,4 keV, <i>T</i> <sub>1,2</sub> = 4,0 s         0,00688 (2)         0,00588 (2)         0,00588 (2)           Agmma-abszopció jelenős volt         0,0016 (6)         1         1,2223         657.5,0         7.88 (3)         0,00585 (2)           A gamma-abszopció jelenős volt         0,0068 (7)         0,00588 (2)         0,00588 (2)         0,00588 (2)           A rodalmi adato kömmátums: <i>l</i> <sub>6</sub> (Filkövér betti) vagy (6)         1,223         657.5,0         7.88 (3)         0,00585 (2)           Az rodalmi adato kömmátums: <i>l</i> <sub>6</sub> (Filkövér betti) vagy (7)         1224         1224         0,0058         10,03577 (1)           Az rodalmi adato kömmátums: <i>l</i> <sub>6</sub> (Filkövér betti) vagy (7)         10,0166         1,050 (8)         0,0058           Az rodalmi adato kömmátums: <i>l</i> <sub>6</sub> (Filkövér betti) vagy (7)         1,122         1,	IIH2223183.6.00 $^{108}$ Ag2,37 (1) minIH2223433.9.91IH2223618.8433.91IH2223657.5657.5110Ag24,6 (2) sIH2223657.5110Ag24,6 (2) sIH2223657.5110Ag24,6 (2) sIH2223657.510ba nincs megadva302 (VAN LIERDE <i>ET 4L.</i> 1999)567.5657.510ba nincs megadva1108 vary 6, 100 vary 6, (dölt betű) érték (relatív hiba %)657.5MONTIS 2003), 2: (ROTH <i>ET 4L.</i> 1993), 3: (VAN LIERDE <i>ET 4L.</i> 1999), 4: (RÉVA4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározoA.7. TÁBLÁZAT: a	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	117 (5,3%) 1,5 168 (5,0%) 1,5 105 (6,8%) 9,3 885 (2,0%) 6,0 327 (1,7%) 1,5 11 értékekhez h	57E-04 (1,1%) [1] 59E-03 (2,0%) [1] 33E-04 (0,8%) [1] 01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.
AgNO3+H4O $^{105}$ Ag $^{237}$ (1) min1HH	O $^{108}$ Ag 2,37(1) min I H 2223 433,9 I H 2223 618,8 I H 2223 657,5 telágazási arány: 0,302 (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999) tetem: 214,3 keV. $^{109}$ Hf: 215,4 keV, $^{1}_{1/2}$ = 5,5 h, $^{178}$ Hf: 213,4 keV, $^{1}_{7}$ pció jelenős volt hiba nincs megadva olsó értékes jegy hibája szerepel. NoNITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL.</i> 1993), <sup>3</sup> : (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), <sup>4</sup> : (RÉVA 4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo Hiba nag A.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo A.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo forrással A komparátor esúcsterület statisztikus hibája A komparátor súcsterület statisztikus hibája A komparátor parciális gamma-keltési A komparátor parciális gamma-keltési A nyalábalasága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága A nyalábalasága miatt	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	(68 (5,0%) 1,5 (15 (6,8%) 9,3 585 (2,0%) 6,0 527 (1,7%) 1,9 327 (1,7%) 1,9 sui értékekhez h	59E-03 (2,0%) [1] 33E-04 (0,8%) [1] 01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.
1       H 2223       618,86       0,035 (4)       0,0005 (6)         1       H 2223       637,50       1,88 (3)       0,00585 (2)       0,00585 (2)         1       H 2223       637,50       1,88 (3)       0,00585 (2)       0,00585 (2)         1       Tripleter illesztetem: 214,3 keV; 1 <sup>3m/l</sup> Hf; 215,4 keV, 7 <sub>12</sub> = 5,5, h, <sup>178</sup> Hf; 213,4 keV, 7 <sub>12</sub> = 4,0 s       0,00558 (2)       0,00558 (2)         A gamma-abszopció jelentős volt       aciojelben az ucloś értékes jegy hbíja szerepel.       0,0016 (Giktovár betű) vagy 6, (dölt betű) érték (relativ hiba %)       0,0016 (Giktovár betű) vagy 5, (NAN LIERDE ET AL. 1999), 4; (RÉVAY ET AL. 2005B)         DE CORTE ÉS SIMONTS 2003), 2. (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), 3: (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), 4; (RÉVAY <i>ET AL</i> . 2005B)       4,7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi érl         Az inodalmi adatok formátuma: k <sub>0</sub> (Giktovér betű) vagy 5, (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), 3: (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), 4; (RÉVAY <i>ET AL</i> . 2005B)       4,7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi érl         Az inodalmi adatok formátuma: k <sub>0</sub> (Giktovér betű) vagy 5, (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), 3: (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), 4; (RÉVAY <i>ET AL</i> . 2005B)       4,7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi érlék         DE CORTE ÉS SIMONTTS 2003), 2. (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), 5: (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), 4; (RÉVAY <i>ET AL</i> . 2005B)       4,7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi érlék         DE CORTE É	IHH <th< td=""><td><math display="block">\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc</math></td><td>05 (6,8%) 9,3 885 (2,0%) 6,0 627 (1,7%) 1,5 ni értékekhez h</td><td>33E-04 (0,8%) [1] 01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.</td></th<>	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	05 (6,8%) 9,3 885 (2,0%) 6,0 627 (1,7%) 1,5 ni értékekhez h	33E-04 (0,8%) [1] 01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.
1HH223633,980,303 (6)0,00585 (2)IriolAg24,6 (2) s1H223657,501.88 (3)0,03627 (1)Tripleter Illesctetern: 2143 keV: Time Hr, 215,4 keV, $T_{12}$ = 5,5 h, $^{178}$ Hr; 213,4 keV, $T_{12}$ = 4,0 s0,03627 (1)Tripleter Illesctetern: 2143 keV: Time Hr, 215,4 keV, $T_{12}$ = 5,5 h, $^{178}$ Hr; 213,4 keV, $T_{12}$ = 4,0 s2 atma-abscorptio jelentős voltdériglenes adat, liba mincs megadva2arrojelben az utolsó értékes jegy hibája szerepel.Az irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú) vagy $\sigma_y$ (dőlt betú) érték (relativ hiba %)4.7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi értHiba rugAz irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú) vagy $\sigma_y$ (dőlt betú) érték (relativ hiba %)A.7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi értAz irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú) értékHiba rugAz irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú) értékAz irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú)Az irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fiklovér betú)<td rowspan="</td> <td>IHH<th< td=""><td>(1, 2, 3, 0, 3, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,</td><td>885 (2,0%) 6,0 327 (1,7%) 1,5 1,6 1 értékekhez h</td><td>01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.</td></th<></td>	IHH <th< td=""><td>(1, 2, 3, 0, 3, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,</td><td>885 (2,0%) 6,0 327 (1,7%) 1,5 1,6 1 értékekhez h</td><td>01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.</td></th<>	(1, 2, 3, 0, 3, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,	885 (2,0%) 6,0 327 (1,7%) 1,5 1,6 1 értékekhez h	01E-03 (0,8%) [1] 93 b (2,1%) [4] asonlítva.
1 <sup>10</sup> Ag $24.6(2)$ s1H 2223 $657.50$ $1.88$ (3) $0.03627$ (1)rodalomból vett elágazási arány: 0.302 (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999) $178^{115}$ Hf: 213,4 keV, $T_{1/2} = 4.0$ s $0.03627$ (1)A gamma-abszorpció jelentős voltdeiglenes adat, hiba mics megadva $0.03627$ (1) $0.03627$ (1)A romana-abszorpció jelentős voltadatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív hiba %) $0.03627$ (1)A rodalmi adatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív hiba %) $0.03627$ (1)A rodalmi adatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív hiba %) $0.03626$ )A rodalmi adatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív hiba %) $0.03627$ (1)A rodalmi adatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív hiba %) $0.2-0,3%$ (fatizstrikus)A rodalmi adatok formátuma: $t_{60}$ (fölkövér betű) vagy cs, (dölt betű) érték (relatív fölkök $0.2-0,3%$ (fatizstrikus)A romarátor csúcsterielte statisztikus hibájaType A $0.2-0,3%$ (fatizstrikus)A romarátor csúcsterielte katisztikus hibájaType A $0.2-0,3%$ (fatizstrikus)A romparátor satistrikus hibájaType A $0.2-0,3%$ (fatistrikus)A romp	$^{110}$ Ag $24,6(2)$ sIH $2223$ $657,5$ telágazási arány: 0.302 (VAN LIERDE <i>ET 4L</i> . 1999)ettem: 214,3 keV. 1 <sup>19mi</sup> Hf. <sup>180</sup> Hf: 215,4 keV, $T_{12} = 5,5$ h, <sup>178</sup> Hf: 213,4 keV, $T$ rpció jelentős voltrpció jelentős volthiba nincs megadvaolső értékes jegy hibája szerepel.tok formátuma: $k_0$ (föltkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dölt betű) érték (relativ hiba %)MONITS 2003), 2: (ROTH <i>ET 4L</i> . 1993), 3: (VAN LIERDE <i>ET 4L</i> . 1999), 4: (RÉVA4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározoA.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós for adioaktívType AforrássalA forrássalA forrássalA komparátor szúcsterület statisztikus hibája $R_0$ Au(P) $k_{0, Au}(P)$ $k_{0, Au}($	$P_{12} = 4,0$ s $P_{2} = 4,0$ s ETAL. 2005B) t $k_{0}$ -értékek az irodaln	i értékekhez h	93 b (2,1%) [4] asonlítva.
rodalomból vet elágazási arány: 0,302 (VaN LIERDE <i>ET AL</i> 1999) Triplettet illesztettem: 214,3 keV; $^{17,\mathrm{oni}}$ Hf; 215,4 keV, $^{7}$ $^{1,2}$ = 5,5 h, $^{178}$ Hf; 213,4 keV, $^{7}$ $^{1,2}$ = 4,0 s A gamma-abszorptej eljelnös volt a gamma-abszorptej eljelnös volt dieiglenes adat, hiba nincs megadva aroisbleen az uolsó értékes jegy hibija szerepel. Az irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (döft betű) érték (relatív hiba %) DE CORTE ÉS SIMONITS 2003), <sup>2</sup> . (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), <sup>3</sup> . (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), <sup>4</sup> . (RÉVAN <i>ET AL</i> . 2005B) 4.7. TÁBL ÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért Az irodalmi adatok formátuma: z. (nordalmi ért Híba tag Ar nordálos korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A 0,2–0,3% (statisztikus) forrással A nordálos korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A 0,2–0,3% komparátor parciális gamma-keltési Type A 0,2–0,3% hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_i$ ) $k_{0,AM}$ Relatív detektor hatáske (rákis a H, CI, AL, F scissaihoz $k_{0,AM}$ $k_{0,AM}$ Relatív detektor hatásá ( $\sigma_i$ ) $k_{0,AM}$ k	t elágazási arány: 0,302 (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999) ettem: 214,3 keV: <sup>179m1</sup> Hf. <sup>180</sup> Hf: 215,4 keV, $T_{1/2} = 5,5$ h, <sup>178</sup> Hf: 213,4 keV, $T$ ppció jelentős volt hiba nincs megadva lisó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dőlt betű) érték (relatív hiba %) MONITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), <sup>3</sup> : (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), <sup>4</sup> : (RÉVA 4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo 4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós radioaktív Type A forrással Hiba tag A homlási csúcs területének statisztikus hibája A komparátor parciális gamma-keltési A komparátor szúcsterület statisztikus hibája A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type A Háttér járulék a H, CI, AI, F csúcsaihoz Minta sztöchiometriája, tisztasága	$t_{2} = 4,0$ s ETAL. 2005B) t $k_{0}$ -értékek az irodaln	ıi értékekhez h	asonlítva.
Triplettet illesztettem214,3 keV, T12 = 5,5 h, <sup>178</sup> Hf: 213,4 keV, T12 = 4,0 sA gamma-abszopció jelenös voltA gamma-abszopció jelenös voltafójelben a datok formátuma: k <sub>0</sub> (félkövér beti) vagy o <sub>7</sub> (dölt beti) érték (relativ hiba %)DE CORTE éS SIMONITS 2003). 2: (ROTH <i>ET AL.</i> 1993). 3: (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), 4: (RÉVAY <i>ET AL.</i> 2005B)A. 7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi értA. 7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott k <sub>0</sub> -értékek az irodalmi értHilba tagMoldszerTipikus értékHollidó-korrekció, spektrum normalizáció radioaktivType B1,0% (szisztematikus)A komparátor scies teriletének kataisztikus hibájaA komparátor scies teriletének kataisztikus hibájaA komparátor scies teriletének kisi nype A0,2–0,3%A komparátor sciesterilet statisztikus hibájaA nyalábaktivációs radioaktivType A0,2–0,3%A nyalábaktivációs gamma-ketlésiMitter járulék a H, CI, AI, F csicsaihozA nyalábaktivációs a mittMitter járulék a H, CI, AI, F csicsaihozA nyalábaktivációs a mittMinta szótorinetriája a felezési időMinta szótorinetriája a felezési időMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaA szátitor hibája a felezési időMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriájaMinta szótorinetriája </td <td>ettem: 214,3 keV: <sup>179m1</sup>Hf, <sup>180</sup>Hf: 215,4 keV, <math>T_{1/2} = 5,5</math> h, <sup>178</sup>Hf: 213,4 keV, 7 ppció jelentős volt hiba nincs megadva alsó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: <math>k_0</math> (félkövér betű) vagy <math>\sigma_\gamma</math> (dölt betű) érték (relatív hiba %) MONITS 2003), <sup>2</sup>: (ROTH <i>ET AL</i>. 1993), <sup>3</sup>: (VAN LJERDE <i>ET AL</i>. 1999), <sup>4</sup>: (RÉVA <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>A.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós redioaktív Type A forrással Hiba tag A bomlási csúcs területének statisztikus hibája A komparátor parciális gamma-keltési <math>k_{0, Au}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math> <math>k_{0, A}(p)</math></td> <td><math>a_2 = 4,0</math> s <math>ET_{AL}</math>. 2005B) t <math>k_0</math>-értékek az irodaln</td> <td>ni értékekhez h</td> <td>asonlítva.</td>	ettem: 214,3 keV: <sup>179m1</sup> Hf, <sup>180</sup> Hf: 215,4 keV, $T_{1/2} = 5,5$ h, <sup>178</sup> Hf: 213,4 keV, 7 ppció jelentős volt hiba nincs megadva alsó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dölt betű) érték (relatív hiba %) MONITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), <sup>3</sup> : (VAN LJERDE <i>ET AL</i> . 1999), <sup>4</sup> : (RÉVA <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>A.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós redioaktív Type A forrással Hiba tag A bomlási csúcs területének statisztikus hibája A komparátor parciális gamma-keltési $k_{0, Au}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$ $k_{0, A}(p)$	$a_2 = 4,0$ s $ET_{AL}$ . 2005B) t $k_0$ -értékek az irodaln	ni értékekhez h	asonlítva.
A gamma-abszorpció jelentős volt deiglenes adat, hiba nincs megadva árójelben az utolsó értékes jegy hibája szerepel. Az irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (fičlik vér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dőlt betű) érték (relativ hiba %) DE CORTE ÉS SIMONITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL.</i> 1999), <sup>4</sup> : (RÉVAY <i>ET AL.</i> 2005B) A.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért A.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért filba tag Módszer Tippikus érték Hiba tag Módszer Tippikus érték A bomlási csúcs tertületének statisztikus hibája Type A 0,2–0,5% A komparátor szúcsterűlet statisztikus hibája Type A 0,2–0,5% A komparátor szúcsterűlet statisztikus hibája Type A 0,2–0,5% A komparátor szúcsterűlet statisztikus hibája Type A 0,2–0,5% A romparátor szúcsterűlet statisztikus hibája Type A 0,2–0,5% Hátté fjárulék a H, CI, AI, F esűcsaihoz Type A 0,2–0,3% Hátté fjárulék a H, CI, AI, F esűcsaihoz Type A 0,2–0,3% hizonytalansága miat Type A 0,6% hizonytalansága miat Type B <19%, korrekció után é Minta zűchenterísi a télezési idő Type B <19%, szálítio adatai di	rpció jelentős volt hiba nincs megadva olsó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: $k_0$ (főlkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dőlt betű) érték (relatív hiba %) MONITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), <sup>3</sup> : (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), <sup>4</sup> : (RÉVA 4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo A.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós radioaktív Type A forrással A domlási csúcs terület statisztikus hibája A komparátor szúcsterület statisztikus hibája A komparátor szúcs terület érdek statisztikus hibája A komparátor szúcs terület statisztikus hibája A komparátor bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0, Au}(p)$ Relatív detektor hatásfok Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type A bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	<i>ET AL.</i> 2005B) t <i>k</i> <sub>0</sub> -értékek az irodaln	ıi értékekhez h	asonlítva.
ariojelben az utolsó értékes jegy híbája szerepel. Vz irodalmi adatok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dőit betű) érték (relativ hiba %)DE CORTE ÉS SIMONITS 2003), $\stackrel{?}{\cdot}$ : (ROTH <i>ET AL.</i> 1993), $\stackrel{?}{\cdot}$ : (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), $\stackrel{4}{\cdot}$ : (RÉVAY <i>ET AL.</i> 2005B) $4.7$ . TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért $4.7$ . TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi értHiba tagMódszerTipikus értékHoltidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktívType A0,2–0,3% (statisztikus)forrássalType AA komparátor esúcsterület statisztikus hibájaType A0,2–0,3%A komparátor csúcsterület statisztikus hibája $f_{0,A}(p)$ Relativ detektor hatásfok $f_{0,A}(p)$ Relativ detektor hatásfokMinta Statisztikus hibája a felezési idő $f_{0,A}(p)$ Relativ detektor hatásfokDizonytalansága miattMinta szócs faktor hibája a felezési időMinta szóchinomátiType BContaraction antatMinta szóchinomátiMinta szóchinomátiMinta szóchinomátiMinta szóchinotMinta szóchinot <td>lisó értékes jegy hibája szerepel. lisó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: <math>k_0</math> (félkövér betű) vagy <math>\sigma_{\gamma}</math> (dőlt betű) érték (relatív hiba %) MONITS 2003), <sup>2</sup>: (ROTH <i>ET AL.</i> 1993), <sup>3</sup>: (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), <sup>4</sup>: (RÉVA <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós radioaktiv Type A fortásal Hiba tag Módszer Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A forrással A bomlási csúcs területének statisztikus hibája A komparátor csúcsterület statisztikus hibája A komparátor csúcsterület statisztikus hibája A komparátor sucsterület statisztikus hibája A komparátor barciális gamma-keltési A komparátor barciális gamma-keltési A komparátor barciális gamma-keltési A komparátor barciális gamma-keltési A komparátor hibája a felezési idő Type A B hizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B</br></td> <td><i>ET AL.</i> 2005B) t <i>k</i><sub>0</sub>-értékek az irodaln</td> <td>ni értékekhez h</td> <td>asonlítva.</td>	lisó értékes jegy hibája szerepel. lisó értékes jegy hibája szerepel. tok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_{\gamma}$ (dőlt betű) érték (relatív hiba %) 	<i>ET AL.</i> 2005B) t <i>k</i> <sub>0</sub> -értékek az irodaln	ni értékekhez h	asonlítva.
DE CORTE ÉS SIMONUTS 2003), <sup>2</sup> ; (ROTH <i>ET AL.</i> 1993), <sup>3</sup> ; (VAN LIERDE <i>ET AL.</i> 1999), <sup>4</sup> ; (RÉVAY <i>ET AL.</i> 2005B) <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért <b>A.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi ért HÍba tag Moldszer Tipikus érték Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A 0,2–0,3% (statisztikus) forrással A komparátor seústerület statisztikus hibája Type A 0,2–0,3% A nyalábaktívációs faktor hibája a felezési idő Type A 0,2–0,3% bío. Au( <i>p</i> ) A nyalábaktívációs faktor hibája a felezési idő Type A 0,4% korrekció után el Dizonytalansága miatt Mint sztohometriát i isztasága Type B <1%, azdílitó adatai al:	tok formátuma: $k_0$ (félkövér betű) vagy $\sigma_\gamma$ (dőlt betű) érték (relatív hiba %) iMONITS 2003), <sup>2</sup> : (ROTH <i>ET AL</i> . 1993), <sup>3</sup> : (VAN LIERDE <i>ET AL</i> . 1999), <sup>4</sup> : (RÉVA <b>4.7.</b> TÁBLÁZAT: a nyalábSzaggatós PGAA-val meghatározo <b>Hiba tag</b> $Módszer$ Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A forrással Type B A bomlási csúcs területének statisztikus hibája Type A A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0,Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	<i>ET AL.</i> 2005B) t <i>k</i> <sub>0</sub> -értékek az irodaln	ni értékekhez h <sup>kus)</sup>	asonlítva.
4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározott $k_0$ -értékek az irodalmi értHiba tagMódszerTipikus értékHoltidó-korrekció, spektrum normalizáció radioaktivType A0,2–0,3% (statisztikus)forrássalMódszerTipikus értékHoltidó-korrekció, spektrum normalizáció radioaktivType A0,2–0,3% (statisztikus)forrássalA bomlási csúcs területének statisztikus hibájaType A0,2–0,3%A komparátor seúcsterület statisztikus hibájaType A0,2–0,3%A komparátor parciális gamma-keltésiType A0,2–0,3%hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ )Type A0,2–0,3% $k_{0, Au}(p)$ Type A0,2–0,3%k <sub>0, Au</sub> (p)Type A0,2–0,3%k <sub>0, Au</sub> (p)Type A0,5–0,3%hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ )Type A, B0,5–0,3%hattér járulék a H, Cl, Al, F scücsaihozType A, B0,5–0,3%hattér járulék a ztolometiájaType A0,5–0,3%hattér járulék a ztolometiájaType BÁn nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType BMina zötönmetrájaType BMina zötönmetrájaTobbMina zötönm	4.7. TÁBLÁZAT: a nyalábszaggatós PGAA-val meghatározo <i>Hiba tag Módszer</i> Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A forrással Type B A bomlási csúcs területének statisztikus hibája Type A A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A A komparátor sucsterület statisztikus hibája Type A A komparátor barciális gamma-keltési Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0,Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Háttér járulék a H, CI, AI, F csúcsaihoz A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	t k <sub>0</sub> -értékek az irodaln	ni értékekhez h <sup>kus)</sup>	asonlítva.
Hiba tagMódszerTipikus értékHoltidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktívType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)forrássalType B $1,0\%$ (szisztematikus)A bomlási csúcs terület érek statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)A komparátor csúcsterület statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)A komparátor súcs terület érek statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)A komparátor súcsterület statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ )Type A $0,2-0,3\%$ $k_{0,Au}(p)$ Relatív detektor hatásfokType A $0,2-0,3\%$ $k_{0,Au}(p)$ Relatív detektor hatásfokType A, B $0,5-0,8\%$ háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihozType A, B $0,5-0,8\%$ A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType A $0,1\%$ , korrekció után elMinta sztöchiometriája, tisztaságaType B $<1\%$ , a szállító adatai al:	Hiba tagMódszerHoltidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktívType AforrássalType BA bomlási csúcs területének statisztikus hibájaType AA komparátor csúcsterület statisztikus hibájaType AA komparátor sucsterület statisztikus hibájaType AA komparátor súcsterület statisztikus hibájaType AA komparátor parciális gamma-keltésiType Ahatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ )Type A $k_{0, Au}(p)$ Type ARelatív detektor hatásfokType AHáttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihozType AA nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType Bbizonytalansága miattType BMinta sztöchiometriája, tisztaságaType B		kus)	
Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktívType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)forrássalType B $1,0\%$ (szisztematikus)forrássalA bomlási csúcs területének statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)A bomlási csúcs területének statisztikus hibájaType A $0,2-0,3\%$ (statisztikus)A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ $k_{0,Au}(p)$ K $_{0,Au}(p)$ Type A $0,2-0,3\%$ $k_{0,Au}(p)$ Relatív detektor hatásfokType A $0,6\%$ A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType B $<0,1\%$ , korrekció után elDizonytalansága miattType B $<1\%$ , a szállító adatai al:Minta sztöchiometriája, tisztaságaType B $<1\%$ , a szállító adatai al:	Holtidő-korrekció, spektrum normalizáció radioaktív Type A forrással Type B A bomlási csúcs területének statisztikus hibája Type A A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0, Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Type A Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Type B	I tpikus ertek	kus)	
forrássalType B1,0% (szisztematikus)A bomlási csúcs területének statisztikus hibájaType A $0,3-5\%$ A komparátor csúcsterület statisztikus hibájaType A $0,2-0,6\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,6\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ $k_{0,Au}(p)$ K $_{0,Au}(p)$ Type A $0,6\%$ $k_{0,Au}(p)$ Relatív detektor hatásfokType A, B $0,5-0,8\%$ Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihozType A, B $0,5-0,8\%$ A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType B $<0,1\%$ , korrekció után elDizonytalansága miattType B $<1\%$ , a szállító adatai al:Dizonytalansága miattType B $<1\%$ , a szállító adatai al:	forrással forrással A bomlási csúcs területének statisztikus hibája A komparátor csúcsterület statisztikus hibája A komparátor parciális gamma-keltési Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0, Au}(p)$ $k_{0, Au}(p)$ Relativ detektor hatásfok Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	0,2-0,3% (statisztil		
A bomlási csúcs területének statisztikus hibája Type A $0,3-5\%$ A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A $0,2-0,6\%$ A komparátor parciális gamma-keltési Type A $0,2-0,3\%$ hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0, Au}(p)$ Type A $0,6\%$ Relatív detektor hatásfok Type A, B $0,5-0,8\%$ Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A, B $0,5-0,8\%$ háttér járulék a myalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B $<1\%$ , korrekció után el bizonytalansága miatt Type B $<1\%$ , a szállító adatai al:	A bomlási csúcs területének statisztikus hibája Type A A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A A komparátor parciális gamma-keltési Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0, \text{ au}}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	1,0% (szisztematik	(sn	
A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A $0,2-0,6\%$ A komparátor parciális gamma-keltési Type A $0,2-0,3\%$ hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) $k_{0,\Lambda u}(p)$ Type A $0,6\%$ Relatív detektor hatásfok Type A, B $0,5-0,8\%$ Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A, B $0,5-0,8\%$ háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A $<0,1\%$ , korrekció után el háttér járulék a mozdástor hibája a felezési idő Type B $<1\%$ , a szállító adatai al:	A komparátor csúcsterület statisztikus hibája Type A A komparátor parciális gamma-keltési Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) Type A $k_{0,Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Type A Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Type B	0,3–5%		
A komparátor parciális gamma-keltésiType A $0,2-0,3\%$ hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ )Type A $0,6\%$ $k_{0,Au}(p)$ Type A $0,6\%$ $k_{0,Au}(p)$ Type A $0,5-0,8\%$ Relatív detektor hatásfokType A $0,5-0,8\%$ Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihozType A $0,5-0,8\%$ A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType B $<0,1\%$ , korrekció után elbizonytalansága miattType B $<1\%$ , a szállító adatai al:Anta sztöchiometriája, tisztaságaType B $<1\%$ , a szállító adatai al:	A komparátor parciális gamma-keltési Type A hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_p$ ) Type A $k_{0, Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Type A Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Type B	0,2-0,6%		
hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_{\rm p}$ ) $k_{0, Au}(p)$ Type A 0,6% Relatív detektor hatásfok Type A 0,5-0,8% Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A <0,1%, korrekció után el A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B <0,5-0,8% Elhanyagolható (~10 <sup>-3</sup> % bizonytalansága miatt Type B <1%, a szállító adatai al:	hatáskeresztmetszetének bizonytalansága ( $\sigma_{\rm p}$ ) $k_{0, \rm Au}(p)$ Type A Relatív detektor hatásfok Type A, P Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Type B	0,2-0,3%		
$k_{0, Au}(p)$ Type A $0,6\%$ Relativ detektor hatásfokType A, B $0,5-0,8\%$ Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihozType A, B $0,5-0,8\%$ A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési időType B $<0,1\%$ , korrekció után elbizonytalansága miattType B $<1\%$ , a szállító adatai al:Minta sztöchiometriája, tisztaságaType B $<1\%$ , a szállító adatai al:	<ul> <li>k<sub>0, Au</sub>(p)</li> <li>Type A</li> <li>Relatív detektor hatásfok</li> <li>Type A, E</li> <li>Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz</li> <li>Type A</li> <li>A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő</li> <li>Type B</li> <li>bizonytalansága miatt</li> <li>Type B</li> <li>Minta sztöchiometriája, tisztasága</li> <li>Type B</li> </ul>			
Relatív detektor hatásfók Type A, B 0,5–0,8% Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A <0,1%, korrekció után el A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B <0,1%, korrekció után el bizonytalansága miatt Type B <1%, a szállító adatai al:	Relatív detektor hatásfok Type A, E Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Type B Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	0,6%		
Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A <0,1%, korrekció után el A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B Elhanyagolható (~10 <sup>-3</sup> % bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B <1%, a szállító adatai als Özebezeseti étő számutta 14.	Háttér járulék a H, Cl, Al, F csúcsaihoz Type A A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	0,5-0,8%		
A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B Elhanyagolható (~10 <sup>-3</sup> % bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B <1%, a szállító adatai al:	A nyalábaktivációs faktor hibája a felezési idő Type B bizonytalansága miatt Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	<0,1%, korrekció u	اtán elhanyagolhat	tó
Minta sztöchiometriája, tisztaságaType B $<1\%$ , a szállító adatai alÖzeberezeti si $5,5,5,5,5,1,21,21,5,1,22,20,20,100$	Minta sztöchiometriája, tisztasága Type B	Elhanyagolható (~]	$(\%_{c-}0]$	
Änchensendig ås ändensidhelda – Theodol Vernelisid state 20 20/		<1%, a szállító ada	tai alapján	
Unauszorpcio es onarrijekolas 1 ype B Nonekcio utari $\langle 0, 0 \rangle_0$	Önabszorpció és önárnyékolás Type B	Korrekció után <0,	5%	
Kombinált standard bizonytalanság $(k=1,\pm1\sigma)$ 1,0–6,7%	Kombinált standard bizonytalanság (k=1, ±1σ)	1.0-6.7%		

5 Ş 1,0,1 nGhnn Idour n n IDU ES EUK uzer) az 5 171 inauconcology (unice ICINCIA 5-02 ė
### 4.5. A bórcsúcs illesztése

#### 4.5.1. A modell validálása (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006C)

A módszert hat különböző rendszeren felvett spektrumokkal vizsgáltam. Ezekben a csúcsalak-függvény paraméterei – elsősorban a félértékszélesség – jelentősen különböztek egymástól (4.9. TÁBLÁZAT).

Berendezés	Detektor	Jelfeldolgozás	FWHM (472 keV)
1	n-HPGe 23%, Canberra,	Canberra 2025 sp. erősítő	1,8 keV
	Compton-elnyomással	Canberra ADC 8173	
		Canberra S100 MCA kártya	
2	Kis energiás n-HPGe	Canberra DSP-2060	1,0 keV
	15 cm <sup>3</sup> , Canberra	Multiplexer DAQ	
3		XIA Polaris DGF	1,8 keV
	n-HPGe 13%. Canberra		
4	,	Canberra DSP-2060	1,9 keV
_		Multiplexer DAQ	
5		XIA Polaris DGF	2,0 keV
6	n-HPGe 30%, Tennelec	EMG NU 8210 sp. erősítő	2,2 keV
		Canberra ADC 8077	
		Multiplexer DAQ	

4.9. TÁBLÁZAT. A berendezések főbb jellemzői

Először ellenőriztem a készülékre és a mintákra jellemző (lassulási állandó) paraméterek reprodukálhatóságát különböző kísérleti körülmények között. A tesztminták jól reprezentálták a gyakorlatban előforduló eseteket: egy-egy "szögletes" (bórsav) és "gömbölyű" (bór-karbid) csúcsalak, illetve az interferencia a Na 472-keV-es csúcsával. Minden detektor-spektrométer kombináción, minden mintával különböző hosszúságú méréseket végeztem, hogy a paramétereket a mérési statisztika függvényében vizsgálhassam. A neutronnyaláb különböző mértékű kollimálásával a számlálási sebesség okozta csúcstorzulást is szimuláltam.

Az azonos mintával, de különböző rendszereken mért spektrumokból a *D* lassulási állandóra jól egyező értékeket kaptam (4.10. TÁBLÁZAT). Az új modell az olyan nagy bal oldali lecsengés (*Left Skew*) tag ellenére is képes volt a csúcsalak kezelésére, mint amilyet a 4. és 6. összeállítású berendezéssel tapasztaltam. A  $\chi^2$  értékek itt csökkentek a leginkább az eredeti KUBO-SAKAI modellhez képest. A 2. számú detektornak pedig olyan szabályos volt a csúcsalakja, hogy a *Skew* tagok amplitúdója nem volt szignifikáns. Ekkor a két modell csaknem egyformán jónak bizonyult és a  $\chi^2$  csak a hatásfok figyelembevétele miatt csökkent kissé.

Berendezés	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> por	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> vizes oldatban	B <sub>4</sub> C por	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> és Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> vizes oldatban
1	1,28 (1)	1,01 (1)	2,50 (3)	1,29 (4)
2	1,28 (1)	1,01 (1)	2,48(1)	1,24 (4)
3	1,27 (1)	1,00(1)	2,50 (2)	1,21 (4)
4	1,31 (1)	1,06(1)	2,51 (2)	1,20 (6)
5	1,28 (1)	1,03 (1)	2,47 (1)	1,27 (5)
6	1,31 (1)	1,03 (1)	2,52 (3)	1,30 (7)

4.10. TÁBLÁZAT. A spektrumok illesztéséből kapott lassulási állandók, ps<sup>-1</sup> egységekben

Hasonlóan jól egyezett a félértékszélesség és a többi csúcsalak paraméter, habár az utóbbiak becsült hibája gyakran elérte a 10–40 %-ot. Az alábbi ábra az 1. berendezésen mért, bórsavat és nátrium-karbonátot tartalmazó oldat spektrumát mutatja be. Az inzerten kinagyítva a háttérfüggvény látható, amelynek középső szakasza  $D \approx 1,2$  esetén még közel lineáris. A csúcsterületekből számított (1,27 (5)×10<sup>-3</sup>) és a bemért (1,23×10<sup>-3</sup>) bór/nátrium tömegarány kitűnően egyezett.



4.13. ÁBRA. A) a bórsav és nátrium karbonát tartalmú vizes oldat spektruma, B) az illesztés reziduumai, C) a háttérfüggvény kinagyítva

Ugyanazon a berendezésen azonos mintáról készült, de javuló statisztikájú spektrumokban az illesztett paraméterek egyre csökkenő hibahatár mellett megegyeztek, azaz a paraméterbecslés statisztikai értelemben konzisztens. Ezt mutatja be a 4.14. ÁBRA, ahol a csúcsszélességet ( $\delta$ ), a lassulási állandót (D) és a két komponens (B, Na) számlálási sebességét ábrázoltam.



4.14. ÁBRA. Az illesztési paraméterek a mérési idő függvényében. A nagyobb statisztikájú pontok egyre kisebb bizonytalansággal ugyanazt az értéket eredményezték

#### 4.5.2. A bórcsúcs alakjának mátrixfüggése

A közeg fékezőerejét, így a bórcsúcs alakját leginkább az átlagrendszám és az anyag sűrűsége befolyásolja (ld. 2. FÜGGELÉK). Az alábbi ábrán bórcsúcs alakokat mutatok be különféle mátrixokban. Az illesztések megerősítették, hogy a továbbfejlesztett modell különböző mátrixok esetén is képes a csúcsalakot helyesen leírni. Ezt az eddigi modellekkel nem tudtuk elérni.



Az új módszerrel sikerült jelentősen kibővíteni a csúcsillesztésen alapuló kiértékelés alkalmazhatóságát. Így milliós beütésszámú bórcsúcsok már nemcsak a referencia csúcs módszerrel, hanem illesztéssel is sikeresen kiértékelhetők.

#### 4.5.3. Összehasonlítás a referencia csúcs módszerrel (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2006C)

Az illesztésből kapott területeket összehasonlítottam a referenciacsúcs módszer eredményeivel, mintegy 50 geológiai minta esetében. Ezekben a bór koncentrációja 10–400 µg/g, míg a Na mennyisége 2–6 tömeg% között változott. Néhány kiragadott esetet, amelyek között az utolsó három geológiai standard, a 4.16. ÁBRA mutat be. Az értéktengelyen az illesztésből kapott és a referencia-csúcs módszerből számolt nátrium csúcsterületek aránya szerepel:  $TA = \frac{A_{ill}}{A_{ref}}$ . A két módszer statisztikailag azonos eredményre vezetett, hiszen – a normális eloszlásnak megfelelően – az adatok kb. 2/3 része ± 1  $\sigma$  tartományban volt, míg a többi is belül esett a ± 2  $\sigma$  határon.



4.16. ÁBRA. Az illesztésből és a referencia csúcs módszerből kapott Na csúcsterületek hányadosa

4.5.4. Alkalmazás: geológiai és dozimetriai minták analízise (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006C ÉS SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006A)

A kidolgozott modellt felhasználtam néhány komplikált interferencia feloldására, amelyekből kettőt mutatok be részletesen. Az egyik példa a DHRUMSALA meteorit spektruma, melyet PETRA KUDĚJOVÁval (IKP Uni. Köln) együttműködésben vizsgáltunk. A meteoritot 1860-ban találták egy Himchal Pradesh nevű helyen, Indiában, és az ún. LL6 típusba sorolták (KUDĚJOVÁ 2005). Ezek jellegzetessége a magas vas (mintegy 19-22%), Co, Ni, Mn, Si és Na tartalom.

A komplikált bórcsúcs-régió illesztéséhez a spektrum többi részét és a rendelkezésre álló spektrumadatbázisunkat is fel kellett használni (*"library-driven fit"*). A viszonylag széles, 450–490 keV-es régiót egyben kellett illeszteni, hogy az alapvonal jól meghatározott legyen. Először meghatároztam a főkomponenseket a spektrum többi részéből, majd a minta és az elemek spektrumát egymásra fektetve azonosítottam a régióban lévő csúcsokat. Ekkor bizonyosodott be, hogy a 460 keV-nél látható csúcs valójában triplett, noha a Hypermet csak szinglettnek illesztette. Az ilyen közeli csúcsok felbontásához a pozíciót az adatbázisból vett energiára állítottam és csak kissé engedtem változni. A Si 477,13 keV-es csúcsát csak a minta szilícium tartalmának ismeretében lehetett a modellbe bevenni. A 483–485 keV-nél látható kis csúcsok fontosak, mert nélkülük a bórcsúcs pozíciója a felfelé tolódna el, és túlbecsülnénk a nátrium csúcsterületét. A referencia csúcs módszert használva a 483–485 keV-es csúcsok egybeolvadtak volna a bórcsúccsal, szintén felülbecslést okozva. Az illesztésből kapott csúcsarányok nemcsak a régión belül, hanem a teljes spektrumban megfeleltek az elemi spektrumból számítottnak.



4.17 ÁBRA: a DHRUMSALA meteorit spektrumának részlete (SZENTMIKLÓSI ET AL. 2006C)

Az analitikai adatbázisból (IAEA 2004) kigyűjtöttem azokat az elemeket, amelyek csúcsai interferenciát okozhatnak a bórral. Ezeket tartalmazza a következő táblázat:

Elem	Energia (keV)	Elem	Energia (keV)	
Mn	454,38; 459,75; 486,47	Na	472,20	
Co	461,06; 484,28	Th	472,30	
Fe	460,28	Nd	474,43; 476,83	
Eu	461,61	Yb	477.39	
Cu	465,14; 467,74	Si	477,13	
Ni	464,98; 483,35	Li	477,59	
Dy	465,46; 477,06	Cd	477,56	
Br	468,98	Os	478,05	
Rh	470,40	W	479,55	
As	471,00; 473,15	Gd	479,59; 484,81	
In	471,92	Sm	485,95	

4.11 TÁBLÁZAT. A legfontosabb csúcsok a 450-500 keV-es spektrumrégióban

A másik alkalmazási példában doziméter alapanyagok elemzésében használtam a módszert. Intézetünk Sugárbiztonsági Osztályán termolumineszcens dozimétereket fejlesztenek. Ehhez kapcsolódva végeztük egy CaSO<sub>4</sub>-alapú doziméter mintasorozat (24 minta) PGAA elemzését, CHOBOLA RÓBERTtel együttműködve. A doziméteranyag előállításához "pro anal" tisztaságú kálcium szulfátot oldottak fel tömény kénsavban, amelyhez Dy, Tm és Cu aktivátor törzsoldatait adták. Az oldatot beszárították és szitálással részecskeméret szerint nyolc frakcióra bontották. A feladat az aktivátor-koncentrációk részecskeméret függésének meghatározása volt. Az egyik elmélet szerint a kisebb részecskék később, azaz hígabb oldatból kristályosodnak, így az aktivátor tartalmuk kisebb.

A spektrumokban sikerült a diszprózium öt csúcsát elválasztani a bórétól. A 4.18. ÁBRA A) paneljén a mért spektrumot és az arra illesztett függvényt ábrázoltam, alatta a reziduumokat. A felső, C) panelen pedig egy diszprózium-oxid spektruma látható, amelyhez az illesztésből kapott Dy csúcsokat egy szorzófaktorral normalizáltam. Az A) illesztésből kapott Dy csúcsarányok és az oxidmintával mért pontok kitűnően fedésbe hozhatók.





Az így kapott Dy csúcsterületből tömegeket számoltam, amelyek hibahatáron belül megegyeztek a Dy egyéb csúcsaiból kapott tömegekkel. Ezt mutatja be a 4.19. ÁBRA, ahol ellipszissel jelöltem a bórral interferáló vonalakat. A Dy mennyiségét a tömegek súlyozott átlagából számítottam, amely így jóval kisebb bizonytalanságú, mint az egyedi csúcsokhoz tartozó tömegek. A mintákban kb. 210 atom ppm Dy-t és 250 atom ppm Tm-ot mértünk és a koncentráció részecskeméret-függése nem bizonyult szignifikánsnak.



4.19 ÁBRA: a Dy különböző csúcsaiból számított tömegek a CHDY5 mintában (400–500 μm frakció). Vízszintes vonal jelzi a tömegek súlyozott átlagát, míg ellipszis a bórcsúcs-régióba eső csúcsokat. A 108 keV-nél látható kiugró érték oka interferencia (W, a detektorrendszer része). A 184–185-keV-es csúcsok közeli dublettet alkotnak, így a hibáik nagyobbak. (SZENTMIKLÓSI *ET AL*. 2006A)

Az itt bemutatott módszer tehát jól leírja a bór csúcs alakját különböző mátrixokban. Több különböző detektoron végeztem méréseket és demonstráltam, hogy a modell a csúcsokat az eddig ismert módszereknél jobban írja le. Az illesztésből kapott csúcsarányok összhangban vannak a referenciacsúcs-módszer eredményeivel. Végül két példán mutattam be, hogy az eljárást miként alkalmaztam analitikai feladatokban.

# Irodalomjegyzék

- Aghara, S.K., Venkatraman, S., Manthiram, A., Alvarez, I. E., 2005, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **265**, 321.
- Alfassi, Z.B., Chung, C., 1995, *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis*, (Boca Raton: CRC Press).
- Amaldi, E., D'Agostino, O., Fermi, E., Pontecorvo, B., Rasetti, F., Segrč, E., 1934, *Ricerca Scientifica*, **2**, 467.
- Anderson, D.L., Failey, M.P., Gordon, G.E., Zoller, W.H., 1980, *Instrumental Prompt Gamma Activation Analysis of Energy-Related Samples and Standards*, Proc. 4<sup>th</sup> Intl. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Columbia, MO, Ed. Vogt, J. R. pp. 597.
- Anderson, D.L., Sun, Y., Failey, M.P., Zoller, W.H., 1985, *Geostandards Newsletter*, 9, 219.
- Anderson, D.L., Cunningham, W.C., Mackey, E.A., 1989, *1989 International Conference* on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences, edited by Guinn, R. Z. a. V. P. (NIST, Gaithersburg, MD: The Humana Press), Chapter Neutron Capture Prompt-γ Activation Analysis of Foods, pp. 613.
- Anderson, D.L., Cunningham, W.C., Mackey, E.A., 1990, *Fresenius' J. Anal. Chem.* 338, 554.
- Anderson, D.L., Kasztovszky, Zs., 2004, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams*, Ed. Molnár G. L. (Dortrecht: Kluwer Academic Publisher), Chapter *Applications of PGAA with Neutron Beams*, pp. 137.
- Audi, G., Wapstra, A. H., Thibault, C., 2003, Nuclear Physics A, 729, 337.
- Baechler, S., Kudejova, P., Jolie, J., Schenker, J. L., Stritt, N., 2002, Nucl. Instr. Meth. A 488, 410.
- Bateman, H., 1910, Proc. Cambridge Phil. Soc., 15, 423.
- Belgya, T., Révay, Zs., Fazekas, B., Héjja, I., Dabolczi, L., Molnár, G.L., Kis, Z., Östör, J., Kaszás, Gy., 1997, *The New Budapest Capture Gamma-Ray Facility*, Proc. 9<sup>th</sup> International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, Budapest, 1997, Vol. II, Ed. Révay Zs. (Springer Verlag Budapest, Berlin, Heidelberg) p. 826.
- Belgya, T., 2005, J. Radioanal. Nucl. Chem., 265, 175.
- Blaauw, M., Osorio Fernandez, V., Van Espen, P., Bernasconi, G., Capore Noy, R., Manh Dung, H., Molla, N. I., 1997, *Nucl. Instr. Meth. A*, **387**, 416.
- BNC, 2002, *Budapest Research Reactor Progress Report 2000-2001*, (Budapest Neutron Center).
- Briesmeister, J.F., Ed., 2000, *MCNP A General Monte Carlo N-Particle Transport Code*, Version 4C, LA-13709-M
- Byun, S.H., Sun, G.M., Choi, H.D., 2004, Nucl. Instr. Meth. B, 213, 535.
- Chadwick, J., 1932, *Nature*, **129**, 312.
- Chen, H., Sharov, V.A., Mildner, D.F.R., Downing, R.G., Paul, R.L., Lindstrom, R.M., Zeissler, C.J., Xiao, Q.F., 1995, *Nucl. Instr. Meth. B*, **95**, 107.
- Chen-Mayer, H.H., Mackey, E.A., Paul, R.L., Mildner, D.F.R., 2000, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **244**, 391.

- De Corte, F., Simonits, A., 1989, J. Radioanal. Nucl. Chem. 133, 43.
- De Corte, F., Simonits, A., 2003, Atomic Data and Nuclear Data Tables, 85, 47.
- Ebihara, M., Oura, Y., 2001, Earth Planets and Space, 53, 1039.
- Ember, P.P., Belgya, T., Weil, J.L., Molnár, G.L., 2002, Appl. Radiat. Isotopes, 57, 573.
- EURACHEM, 2000, *Quantifying Uncertainty in Analytical Measurement*, 2<sup>nd</sup> Ed., (EURACHEM/CITAC). <u>http://www.eurachem.ul.pt</u>
- Fazekas, B., Molnár, G.L., Belgya, T., Dabolczi, L., Simonits, A., 1997, J. Radioanal. Nucl. Chem., 215, 271.
- Fazekas, B., Östör, J., Kis, Z., Simonits, A., Molnár, G.L., 1998, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **233**, 101.
- Fazekas, B., Révay, Zs., Östör, J., Belgya, T., Molnár, G.L., Simonits, A., 1999, Nucl. Instr. Meth. A, 422, 469.
- Givens, W. W., Mills, W. R., Caldwell, R. L., 1970, Nucl. Instr. Meth., 80, 95.
- Gméling, K, Kasztovszky, Zs., Harangi, Sz., Szentmiklósi, L., Révay, Zs., 2006, J. *Radioanal. Nucl. Chem.* **270** (2), in press
- Greenwood, R.C., 1979, *Proceedings of the Third International Symposium on Neutron-Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics*, Ed: Kane, W. R. (New York: Plenum), Chapter Practical Applications of Neutron Capture Gamma Rays, pp. 441.
- Hahn, O., Strassmann, F., 1939, Die Naturwissenschaften, 27, 11.
- Hauser, U., Neuwirth, W., Pietsch, W., Richter, K., 1974, Z. Physik, 269, 181.
- Henkelmann, R., Born, H. J., 1973, J. Radioanal. Nucl. Chem., 16, 473.
- Hevesy, G., Levi, H., 1936, Danske Videnskap. Selskab. Matematisk Fysiske Medd., 14, 5.
- Hofmeyr, C., 1988, Nucl. Instr. Meth. B, 35, 435.
- Hou, X., 2000, *Encyclopedia of Analytical Chemistry*, Ed: Meyers, R. A. (Chichester: John Wiley & Sons Ltd.), Chapter *Cyclic Activation Analysis*, pp. 12447.
- Hyun-Je Cho, Yong-Sam Chung, Kim, Y.-J., 2005, J. Radioanal. Nucl. Chem., 264, 701.
- IAEA, 1974, *Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections*, IAEA Technical Report Series 156, (Vienna: International Atomic Energy Agency).
- IAEA, 2004, *Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis*, IAEA-TECDOC (Vienna: International Atomic Energy Agency).
- Isenhour, T.L., Morrison, G.H., 1966A, Anal. Chem., 38, 162.
- Isenhour, T.L., Morrison, G.H., 1966B, Anal. Chem., 38, 167.
- ISO, 1995, *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurements (GUM)*, 1995 (reprinted) (Geneva, Switzerland: International Organization for Standardization).
- James, W.D., Raulerson, M.R., 2001, J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, 283.
- Jurney, E.T., 1979, Proceedings of the Third International Symposium on Neutron-Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, Ed: Kane, W. F. (New York: Plenum), Chapter Application of the Thermal (n, γ) Reaction to Elemental Analysis, pp. 461.
- Kasztovszky, Zs., Révay, Zs., Belgya, T., Fazekas, B., Östör, J., Molnár, G.L., Vaday, A., 1998, Proc. 31<sup>th</sup> Intl. Symposium on Archeometry, Budapest, Vol. 1043/II., Ed: Bíró, K. T. pp. 399.
- Kasztovszky, Zs., Révay, Zs., Belgya, T., Fazekas, B., Östör, J., Molnár, G.L., Molnár, G., Borossay, J., 1999, J. Anal. Atomic Spectr., 14, 593.
- Kasztovszky, Zs., Révay, Zs., Belgya, T., Molnár, G.L., 2000, J. Radioanal. Nucl. Chem., 244, 379.
- Kemény, S., Deák, A., 1999, *Kísérletek tervezése és értékelése* (Budapest: Műegyetemi Kiadó).

- Kennedy, G., St-Pierre, J., 2003, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, 475.
- Knoll, G.F., 2000, *Radiation Detection and Measurement*, 3<sup>rd</sup> Ed. (New York: Wiley).
- Kubo, M.K., Sakai, Y., 2000, J. Nucl. Radiochem. Sci., 1, 83.
- Kudějová, P., Kasztovszky, Zs., Révay, Zs., Belgya, T., Materna, T., Jolie, J., 2004, *Prompt-Gamma-Ray Activation Analysis: Multielemental Non-Destructive Analytical Method for Geochemistry and Cosmochemistry*, Proc. 6<sup>th</sup> Intl. Conference on Nuclear and Radiochemistry, Aachen, Germany
- Kudějová, P., 2005, *Two new installations for non-destructive sample analysis: PIXE and PGAA*, Ph.D. dolgozat, Universität zu Köln.
- Latif, S.A., Oura, Y., Ebihara, M., Kallemeyn, G.W., Nakahara, H., Yonezawa, C., Matsue, T., Sawahata, H., 1999, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 577.
- Lea, D.E., 1934, *Nature*, **133**, 24.
- Lindhard, J., Scharff, M., 1961, Phys. Rev., 124, 128.
- Lindhard, J., Scharff, M., Schiott, H.E., 1963, Danske Videnskap. Selskab. Matematisk Fysiske Medd., 33, 1.
- Lindstrom, R.M., 1997, *Harmonization of Health Related Environmental Measurements Using Nuclear and Isotopic Techniques* (Vienna: IAEA), Chapter *Neutron Beam Methods in the Analysis of Reference Materials*, pp. 241.
- Lindstrom, R.M., 1998, Fresenius' J. Anal. Chem., 360, 322.
- Magara, M., Yonezawa, C., 1998, Nucl. Instr. Meth. A, 411, 130.
- Minai, Y., Yonezawa, C., Hoshi, M., Ito, Y., Tominaga, T., 1993, *Reactor Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis and Instrumental Neutron Activation Analysis of Deep Sea Sediments in the Pacific and the Japan Sea*, Proc. 5<sup>th</sup> Internat. Symp. Advanced Nucl. Energy Res., Mito, Japan (JAERI) pp. 818.
- Moens, L., De Donder, J., Lin, Xi-Lei, De Corte, F., De Wispelaere, A., Simonits, A., Hoste, J., 1981, *Nucl. Instr. Meth.*, **187**, 451.
- Molnár, G.L., Lindstrom, R. M., 1998, *Nuclear Methods in Mineralogy and Geology*, Ed: Süvegh, K. (New York: Plenum), Chapter *Nuclear Reaction Prompt Gamma-Ray Analysis: Techniques and Applications*, pp. 145.
- Molnár, G.L., Belgya, T., Révay, Zs., Qaim, S. M., 2002A, Radiochimica Acta, 90, 479.
- Molnár, G.L., Révay, Zs., Belgya, T., 2002B, Nucl. Instr. Meth. A, 489, 140.
- Molnár, G.L., Firestone, R. B., 2003, *Handbook of Nuclear Chemistry*, Vol. 1, Ed: Klencsár, Z. (Dortrecht: Kluwer Academic Publishers), *Appendix Reference Data*, p. 411.
- Molnár, G.L., 2004, Ed., *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis* (Dordrecht: Kluwer Academic Publishers).
- Molnár, G.L., Révay, Zs., Szentmiklósi, L., 2004, J. Radioanal. Nucl. Chem., 262, 157
- Neuwirth, W., Hauser, U., Kühn, E., 1969, Z. Physik, 220, 241.
- Neuwirth, W., Pietsch, W., Richter, K., Hauser, U., 1975, Z. Physik, 275, 209.
- Nowotny, R., 1998, *Photon Attenuation Data on PC Program XMuDat (Version 1.0.1 of August 1998)*, Report IAEA-NDS-195 (Vienna: International Atomic Energy Agency).
- Orphan, V. J., Rasmussen, N. C., 1967, Nucl. Instr. Meth., 48, 282.
- Oura, Y., Enomoto, S., Nakahara, H., Matsue, H., Yonezawa, C., 2000, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **244**, 311.
- Owens, A., 1985, Nucl. Instr. Meth. A, 238, 473.
- Paul, R. L., Lindstrom, R. M., 1998, *Hydrogen in Semiconductors and Metals (Mrs Symp. Proc. 513)*, Ed: Leisure, R. G. (Warrendale, PA: Materials Research Society), Chapter Determination of Hydrogen in Metals, Semiconductors, and Other Materials by Cold Neutron Prompt Gamma-Ray Activation Analysis, p. 185.

- Paul, R.L., Lindstrom, R. M., 2000, J. Radioanal. Nucl. Chem., 243, 181.
- Paul, R.L., 2005, Analyst, 130, 99.
- Pecequilo, B.R.S., Suarez, A.A., 1978, Proceedings of the Third International Symposium on Neutron-Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics., edited by Kane, W. R. (New York: Plenum), Chapter Fuel Material Analysis Using Radioactive Thermal Neutron Capture, pp. 710.
- Perry, D. L., Gatti, R., Firestone, R.B., Wilde, P., Molnár, G.L., Révay, Zs., Kasztovszky, Zs., 2000, *Abstracts of Papers of the American Chemical Society*, **219**, 83.
- Phillips, G. W., Marlow, K. W., 1976, Nucl. Instr. Meth., 137, 525.
- Pommé, S.G., Hardeman, F., Robouch, P. B., Etxebarria, N., De Corte, F. A., De Wispelaere, A., van Sluijs, R., Simonits, A., 1996, *Anal. Chem.*, **68**, 4326.
- Popper, G., Csizmás, F., 1993, *Numerikus módszerek mérnököknek* (Budapest: Akadémiai Kiadó TypoTex).
- H. Potsma, M. Blaauw, P. Bode, P. Mutti, F. Corvi, P. Siegler, 2001, J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, 115.
- Reguigui, N., Morel, J., Ben Kraiem, H., Mahjoub, A., 2002, *Appl. Radiat. Isotopes*, 56, 93.
- Reijönen, J., Leung, K.N., Firestone, R.B., English, J.A., Perry, D.L., Smith, A., Gicquel, F., Sun, M., Koivunoro, H., Lou, T. P., Bandong, B., Garabedian, G., Révay, Zs., Szentmiklósi, L., Molnár, G.L., 2004, *Nucl. Instr. Meth. A*, **522**, 598.
- Révay, Zs., 2000, A prompt-γ aktivációs analízis továbbfejlesztése, Ph.D. dolgozat, Veszprémi Egyetem.
- Révay, Zs., Belgya, T., Ember, P.P., Molnár, G.L., 2001, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 401.
- Révay, Zs., Molnár, G.L., Belgya, T., Kasztovszky, Zs., 2003, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, 561.
- Révay, Zs., Belgya, T., Kasztovszky, Zs., Weil, J. L., Molnár, G.L., 2004, Nucl. Instr. Meth. B, 213, 385.
- Révay, Zs., Molnár, G.L., 2003, Radiochimica Acta, 91, 361.
- Révay, Zs., 2004, *Analytical Application of Nuclear Techniques*, edited by (Vienna: International Atomic Energy Agency), Chapter *Inactive Tracing Using PGNAA*, pp. 187.
- Révay, Zs., Belgya, T., 2004, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams*, Ed: Molnár, G. L. (Dortrecht: Kluwer Academic Publisher), Chapter *Principles of the PGAA Method*, p. 1.
- Révay, Zs., Belgya, T., Molnár, G.L., 2005A, J. Radioanal. Nucl. Chem., 265, 261.
- Révay, Zs., Belgya, T., Szentmiklósi, L., Molnár, G.L., 2005B, J. Radioanal. Nucl. Chem. 264 (2) 277
- Riley, J. E., Lindstrom, R. M., 1987, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Articles, 109, 109.
- Rossbach, M., 1991, Anal. Chem., 63, 2156.
- Roth, S., Grass, F., De Corte, F., Moens, L., Buchtela, K., 1993, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Articles, 169, 159.
- Rubinson, W., 1949, J. Chem. Phys., 17, 542.
- Sah, R. N., Brown, P. H., 1997, Microchemical Journal, 56, 285.
- Sakai, Y., Yonezawa, C., Magara, M., Sawahata, H., Ito, Y., 1994, *Nucl. Instr. Meth. A*, **353**, 699.
- Sakai, Y., Kubo, M. K., Matsue, H., Yonezawa, C., 2005, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **265**, 287.
- Salma, I., 2006, *Az elemanalitika korszerű módszerei*, Szerkesztő: Záray, Gy. Akadémiai Kiadó), 10. fejezet: *Műszeres Neutronaktivációs Analízis*, p. 417.

- Sárkány, A., Beck, A., Horváth, A., Révay, Zs., Guczi, L., 2003, *Applied Catalysis A*, **253**, 283.
- Sárkány, A., Révay, Zs., 2003, Applied Catalysis A, 243, 347.
- Simonits, A., De Corte, F., Hoste, J., 1975, J. Radioanal. Nucl. Chem., 24, 31.
- Simonits, A., Östör, J., Kálvin, S., Fazekas, B., 2003, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, 589.
- Skulski, W., Momayezi, M., 2001, Nucl. Instr. Meth. A, 458, 759.
- Spyrou, N. M., 1981, J. Radioanal. Nucl. Chem., 61, 211.
- Sudár, S., 1998, Computer Program TRUECOINC, distributed by the IAEA
- Szakmány, Gy., Kasztovszky, Zs., 2004, European Journal of Mineralogy, 16, 285.
- Van Lierde, S., De Corte, F., Bossus, D., van Sluijs, R., Pommé, S., 1999, *Nucl. Instr. Meth. A*, **422**, 874.
- Szentmiklósi, L., Belgya, T., Révay, Zs., Molnár, G.L., 2005A, J. Radioanal. Nucl. Chem., 264, 229
- Szentmiklósi, L., Révay, Zs., Molnár, G.L., 2005B, J. Radioanal. Nucl. Chem. 265 213.
- Szentmiklósi, L., Révay, Zs., Chobola, R., Mell, P., Szakács, S., Kása, I., 2006A, J. Radioanal. Nucl. Chem., 267, 415
- Szentmiklósi, L., Belgya, T., Molnár, G.L., Révay, Zs., 2006B, J. Radioanal. Nucl. Chem. 270 (2), in press
- Szentmiklósi, L., Gméling, K., Révay, Zs., 2006C, J. Radioanal. Nucl. Chem. 270 (2), in press
- Szentmiklósi, L., Révay, Zs., Belgya, T., 2006D in press, Nucl. Instr. Meth. A 4<sup>th</sup> k0-Users Workshop Proceedings
- Szentmiklósi, L., Révay, Zs., Belgya, T., 2007, *Nucl. Instr. Meth. B* IRRMA-6 conference proceedings
- Wescott, C. H., 1955, J. Nucl. Energy, 2, 59.
- XIA, *Xia Polaris User's Guide*, (8450 Central Ave, Newark, CA 94560, Phone: (510) 494-9020, Fax: (510) 494-9040, Web: <u>http://www.xia.com</u>).
- Yonezawa, C., Haji Wood, A. K., 1995, Anal. Chem., 67, 4466.
- Yonezawa, C., Magara, M., Sawahata, H., Hoshi, M., Ito, Y., Tachikawa, E., 1995, J. Radioanal. Nucl. Chem., 193, 171.
- Yonezawa, C., 1996, Analytical Sciences, 12, 605.
- Yonezawa, C., Ruska, P. P., Matsue, H., Magara, M., Adachi, T., 1999, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 571.
- Yonezawa, C., 2001, *Non-Destructive Elemental Analysis*, Ed: Alfassi, Z. B. (Oxford: Blackwell Science, Ltd.), Chapter *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis with Reactor Neutrons*, p. 58.
- Yonezawa, C., Matsue, H., McKay, K., Povinec, P., 2001, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **248**, 719.
- Zeisler, R., Lamaze, G.P., Chen-Mayer, H.H., 2001, J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, 35.

# Összefoglalás

A prompt-gamma aktivációs analízis (PGAA, PGNAA) egy nukleáris analitikai módszer, amely elemi és izotóp-összetétel roncsolásmentes meghatározására alkalmas. Ph. D. munkámban a PGAA időfüggő folyamatait és ezek spektroszkópiai alkalmazásait tanulmányoztam. A jelenségek széles időtartományt fogtak át, karakterisztikus idejük pikoszekundumtól a néhány napig változott. Ennek megfelelően az alkalmazott módszerek igen eltérőek voltak.

Munkám első szakaszában három digitális gamma-spektrométer teljesítőképességét hasonlítottam össze a PGAA körülményei között: teszteltem az energiafelbontásukat, a stabilitásukat és a zajérzékenységüket. A rendelkezésre álló spektrométerek felbontása nem érte el az analóg rendszerünkét és bizonyos inkompatibilitásokra is fényt derítettem.

Igyekeztem hasznosítani a digitális spektrometria új lehetőségeit. A XIA (X-RAY INSTRUMENTATION ASSOCIATES) gyártmányú Polaris spektrométer listamódját az igényeinknek megfelelően átalakítottam és kidolgoztam egy új mérési eljárást rövid és közepes felezési idejű nuklidok vizsgálatára. Kiértékelő programot írtam, amellyel energiaspektrumokat, lecsengési görbéket és 3D régiókat készíthettem a nyers adatokból. Módszereket dolgoztam ki a holtidő korrigálására, az időfüggő háttér figyelembe vételére lecsengési görbéknél és 3D régiók illesztésére időfüggő függvényekkel, és ezeket mért spektrumokon ellenőriztem. Több kiértékelési eljárást összehasonlítva kimutattam, hogy a listamódú módszerek pontosabbak, mint az eddig használtak. Megmutattam, hogy az időfelbontás segítségével az energiaspektrumban átlapoló, de eltérő időfüggésű csúcsok kvantitatívan szétválaszthatók.

Ipari megbízásra végzett analízisben sikeresen használtam a besugárzás utáni számlálás módszerét a Th kimutatási határának csökkentésére.

Üzembe helyeztünk egy nyalábszaggatót a PGAA mérőhelyen, amellyel a prompt és az időfüggő bomlási jelek elkülöníthetők. Összeállítottam egy analóg és egy digitális mérőláncot a spektrumok párhuzamos gyűjtéséhez. Képleteket vezettem le a csúcsterülettömeg–összefüggés számítására és a komplex aktiválás-elágazó bomlás korrekciójához. Meghatároztam 16 radionuklid parciális gamma-keltési hatáskeresztmetszetét,  $k_0$ -értékét és hibaanalízist is végeztem. Igazoltam, hogy bomlási spektrumokat használva esetenként kedvezőbb szelektivitás és kimutatási határ érhető el. Meghatároztam azon elemek körét, ahol a kimutatási határ a rutin analízisben ténylegesen csökkenthető.

A dolgozat utolsó részében módszert mutatok be a Doppler-kiszélesedett bórcsúcs illesztésére. Pontosabb csúcsalak függvényt, módosított háttéralakot vezettem be a 450-500 keV-es spektrumrégió leírására. Modell mintákon, különböző csúcsalakú mérőrendszereken ellenőriztem az eljárást. Az illesztési eredményeket a bór-nátrium interferencia példáján összehasonlítottam az eddig használt referencia-csúcs módszerrel. Tanulmányoztam a csúcsalak mátrixfüggését. Végül a módszert sikeresen alkalmaztam geológiai minták és doziméter alapanyagok elemzésénél.

## Summary

Prompt-gamma activation analysis (PGAA, or PGNAA) is a nuclear analytical technique for non-destructive determination of elemental and isotopic compositions. In the present work the time-dependent processes of PGAA were investigated and utilized to attain better precision and more reliable analysis. The characteristic times of these vary between picoseconds and several hours; hence different methods have to be involved.

My first task was to test the capabilities of three digital signal processors when used for PGAA, and to compare their performance to our existing analog electronics. The energy resolution at different gains, as well as the time stability and noise sensitivity were examined. It was concluded that the digital spectrometers have worse resolution than the analog system, and seem to be incompatible with detectors having non-ideal preamplifiers.

However, I managed to utilize many existing advantages of the digital spectrometry. The principle of the list-mode data acquisition, as implemented in a digital spectrometer of XIA (X-RAY INSTRUMENTATION ASSOCIATES), was used with success in investigation of radioactive decays. It was shown that this kind of acquisition preserves very detailed time and energy information which can be utilized with great flexibility at the evaluation stage. A computer program was prepared to process the raw data, by sorting the events into energy-spectra, time spectra or two-dimensional histograms. A dead-time correction model was worked out, and was validated with measurements. Methods for background correction of decay spectra and a fitting procedure for 3D regions were invented. I proved that the method gives correct half-life data for various medium-lived radionuclides. I compared the precision of the off-line processing techniques and demonstrated that they give more accurate results than the conventional multichannel scaler (MCS) technique on the same dataset. I demonstrated that by simultaneous use of energy and time information, peaks overlapping in the energy spectrum can be decomposed.

The elemental compositions of halogenide samples were determined with combined use of PGAA and post-irradiation counting. The latter method was able to reduce the limit of detection for Th.

A new beam-chopper was also installed at the PGAA facility. This is an effective tool to investigate short-lived nuclides, to reduce the limits of detection and improve the selectivity for a group of elements. I set up new controller and data acquisition electronics, to acquire the beam-on and beam-off spectra concurrently. I derived simplified formulas for use in chopped-beam PGAA and calculated the in-beam saturation factor for the case of branching activation. Partial gamma-ray production cross-sections ( $\sigma_{\gamma}$ ) and  $k_0$ -factors of 16 short-lived nuclides were determined with this technique. The experimental results were compared to the  $k_0$ -NAA literature. A thorough estimation of uncertainties was also done, following the guidelines of ISO. I proved that the technique can offer better selectivity and lower detection limits for many elements than conventional PGAA.

Finally, a new fitting procedure for the Doppler-broadened peak of Boron was worked out and validated. I used a more sophisticated peak-shape function and a modified background-shape in the model function. I also paid attention to the energy-dependent efficiency. The sample method was extensively checked on model samples, representing typical peak shapes. The effect of the matrix on the peak shape was also studied. Peaks of Boron and interfering elements were successfully decomposed in geological and dosimetrical samples.

## Zusammenfassung

Prompt Gamma-Strahl Aktivierungsanalyse (PGAA, oder PGNAA) ist eine nukleare Methode zur zerstörungsfreien Bestimmung von Elementkonzentrationen. In dieser Arbeit Experimente wurden durchgeführt um die zeitabhängigen Prozesse in der PGAA zu untersuchen, und dadurch die Genauigkeit und Richtigkeit der Analyse zu erhöhen. Wegen der charakteristischen Zeitdauer der zeitabhängigen Prozesse ist zwischen Pikosekunden und Tagen, verschiedene Methoden wurden verwendet.

Am ersten Teil meiner Arbeit wurden die Leistungen von drei digitalen Messapparaturen unter die Bedingungen von PGAA miteinander und mit unserem Analogmessinstrument vergleicht. Die Energie-Auflösung, die Zeit- und Temperaturstabilität wurden mit verschiedenen Einstellungen getestet. Nach unserer Erfahrungen, die digitalen Messapparaturen bieten schlechtere Auflösung als das analoge Referenzsystem, und waren unkompatibel mit einem unserer Detektoren.

Jedoch mehrere Vorteile der neuen Signalverarbeitungstechnologie konnten ausgenutzt werden. Der Grundsatz von Listendatensammlung mittels einer digitalen Messapparatur von XIA (X-RAY INSTRUMENTATION ASSOCIATES) wurde in Zerfall-Studien von Radionukliden benutzt. Es war demonstriert, dass die Datensammlung auf diese Art bietet viel mehr Information über die Zeit und Energie der detektierten Photonen, die lässt sich flexibel kombinieren. Ein Computerprogramm für die Datenverarbeitung wurde entwickelt, das die Amplitudenspektren, Zeitspektren und drei dimensionell Histogrammen (Intensität als die Funktion von Energie und Zeit) aus den Urdaten erzeugen kann. Fitting-Methoden für die Auswertung dieser Datei wurden herausgefunden. Eine Totzeitkorrektionsfunktion war aufgebaut und mit Experimenten überprüft. Es war demonstriert, dass die Technik von Listendatensammlung, in Kombination mit den neuen Auswertungsmethoden, liefert mehr präzise Halbwertzeitdateien als die konventionelle Methode, und bestimmte Interferenzen im Energiespektrum können mengenmäßig aufgelöst werden.

Die Zusammensetzung verschiedener anorganischen Jodverbindungen wurde mittels PGAA und nachfolgende Berechnung der Zerfallgammastrahlung festgestellt. Die Nachweisgrenze für Thorium konnte auf dieser Weise verbessert werden.

Die Bestimmung von Partielle Aktivierungsquerschnitten ( $\sigma_{\gamma}$ ) und  $k_0$ -Faktoren von 16 kurzlebigen Radionukliden wurde mit Hilfe eines Neutronen-choppers und Strahl von kalten Neutronen durchgeführt. Spektren in den geöffneten und geschlossenen Phasen wurden mit zwei Signalverarbeitungskanälen parallel registriert. Formeln für die Peakflächen wurden aus dem Zusammenhang von zyklischer Neutronaktivierungsanalyse abgeleitet. Die  $\sigma_{\gamma}$  und  $k_0$ -Ergebnisse wurden mit den Literaturwerten vergleicht. Die Berechnungen wurden laut der ISO-Empfehlungen einer ausführlichen Fehleranalyse unterzogen. Die Gruppe der Elemente war identifiziert für die die Nachweisgrenze mit Neutronen-chopper PGAA verbessern kann.

Am Ende der Dissertation ein neues Modell wurde für die Analyse der verbreiterten Peakform von Bor präsentiert. Bessere Peak- und Hintergrundfunktionen, Energie-abhängige Ausbeute waren benutzt. Die Methode war mit mehreren Testproben validiert. Die Nettopeakflächen von Bor und interferierende Elementen konnten in geologischen und dosimetrischen Proben erfolgreich bestimmt werden.

# Tézispontok

- 1. Nyalábszaggatós PGAA módszerrel megmértem 16 rövid felezési idejű radionuklid bomlási  $\sigma_{\gamma}$  és  $k_0$ -értékeit. (C9) Meghatároztam azon elemek körét, ahol a nyalábszaggatós technikával a kimutatási határok a PGAA-hoz képest csökkenthetők.
- Összefüggéseket vezettem le a nyalábszaggatós PGAA-val mért csúcsterületekre. Kiszámítottam a nyalábaktivációs faktort a komplex aktiválás-elágazó bomlás esetére. (C8, C9)
- Kidolgoztam és kísérletekkel ellenőriztem egy módszert a Doppler-kiszélesedett bórcsúcs és az azzal interferáló csúcsok illesztésére. Az eljárást sikerrel alkalmaztam geológiai és dozimetriai minták vizsgálatában (C5, C7).
- 4. Három digitális spektrométer teljesítményét a PGAA körülményei között összehasonlítva megállapítottam, hogy energiafelbontásuk nem éri el az analóg rendszerekét. A felbontás az erősítés csökkenésével készülékenként különböző mértékben, lineárisan romlik. (C1)
- 5. Bevezettem a listamódú adatgyűjtésen alapuló időfelbontásos gamma-spektrometriát. Holtidő-korrekciós modellt állítottam fel, amelyet mérésekkel ellenőriztem (C3, C4). Megmutattam, hogy a listamód az adatok teljesebb körű feldolgozását teszi lehetővé. Háromdimenziós illesztéssel és a háttérkorrigált lecsengési görbékkel az analitikai paraméterekre a korábbiaknál előnyösebb becslést, illetve az időfelbontás bevonásával jobb szelektivitást értem el (C4, C6).

# Publikációk jegyzéke

### A dolgozat alapját képező publikációk:

- C1. L. Szentmiklósi, T. Belgya, Zs. Révay, G.L. Molnár: Digital signal processing in promptgamma activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 264 (1) (2005) 229-234
- C2. Zs. Révay, T. Belgya, L. Szentmiklósi, G.L. Molnár: Prompt gamma activation analysis using a chopped neutron beam, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 264 (2) (2005) 277-281
- C3. G. L. Molnár, Zs. Révay, L. Szentmiklósi: New perspectives for very short-lived neutron activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 262 (1) (2004) 157-163
- C4. L. Szentmiklósi, T. Belgya, G.L. Molnár, Zs. Révay: Time resolved gamma-ray spectrometry. (*J. Radioanal. Nucl. Chem.* 270 (2), in press)
- C5. L. Szentmiklósi, K. Gméling, Zs. Révay: Fitting the boron peak and resolving interferences in the 450-490 keV region of PGAA spectra. (*J. Radioanal. Nucl. Chem.* 270 (2), in press)
- C6. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, G.L. Molnár: Three-dimensional data processing for the time resolved gamma-ray spectrometry, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 265 (2) (2005) 213-219.
- C7. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, R. Chobola, P. Mell, S. Szakács, I. Kása: Characterization of CaSO<sub>4</sub>-based dosimeter materials with PGAA and thermoluminescent methods, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 267 (2) (2006) 415-420
- C8. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, T. Belgya: An improved beam chopper setup at the Budapest PGAA facility (beküldve, *Nucl. Instr. Meth. B* IRRMA-6 conference proceedings)
- C9. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, T. Belgya: Measurement of partial gamma-ray production crosssections and  $k_0$ -factors for short-lived nuclides with chopped-beam PGAA, (in press, *Nucl. Instr. Meth.*  $A - 4^{th} k_0$ -Users Workshop Proceedings)

### Saját előadások:

- E1. Digitális méréstechnika a prompt-γ aktivációs analízisben: Őszi Radiokémiai Napok (Gyula, 2002. október 16–18.)
- E2. Prompt-γ aktivációs analízis hideg neutronokkal: Magyar Kémikusok Egyesülete Kémiai Előadói Napok (Szeged, 2002. október 28 november 1.)
- E3. First experiences with digital signal processing in Prompt-gamma activation analysis: IAEA Meeting on applications of PGAA (Budapest, 2002. december 5.)
- E4. Digital signal processing in Prompt-gamma activation analysis, Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry (MARC) 6, Kailua-Kona, USA, 2003. április 7-11.
- E5. Digitális méréstechnika a prompt-γ aktivációs analízisben, MTA KK Tudományos Napok, 2003. május 28–29.
- E6. Időfelbontásos gamma-spektrometria az aktivációs analízisben: Őszi Radiokémiai Napok (Balatonföldvár, 2003. október 8–11.)
- E7. Időfelbontásos gamma-spektrometria, BME Vegyészmérnöki Kar, 1. Doktoráns konferencia, 2003. november 26.
- E8. The time resolved gamma-ray spectrometry in the activation analysis, Modern Trends in Activation Analysis (MTAA) 11, Guildford, UK, 2004. június 20–25.
- E9. A bór csúcsalak vizsgálata és csúcsinterferenciák feloldása a PGAA spektrumok 450–490 keVes tartományában, Őszi Radiokémiai Napok (Eger, 2004. október 13–15.)
- E10. A bór csúcsalak vizsgálata és csúcsinterferenciák feloldása a PGAA spektrumok 450–490 keVes tartományában, BME Vegyészmérnöki Kar, 2. Doktoráns konferencia, 2004. november 24.

- E11. Investigation of short-lived nuclides with chopped-beam PGAA, 4<sup>th</sup> International k<sub>0</sub>-Users Workshop, Madeira, Portugália, 2005. szeptember 11–14.
- E12. A besugárzás során keletkező radionuklidok vizsgálata nyalábszaggatós PGAA módszerrel, Őszi Radiokémiai Napok, 2005. október 12–14, Mátraháza

#### Poszterek:

- P1. T. Belgya, Zs. Révay, L. Szentmiklósi, M. Lakatos: The application of a digital spectrometer in PGAA (International Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications (IRRMA) 5, 2002. június 9–14., Bologna, Olaszország)
- P2. L. Szentmiklósi, K. Gméling, Zs. Révay: Fitting the boron peak and resolving interferences in the 450-490 keV region of PGAA spectra. (Modern Trends in Activation Analysis (MTAA) 11, Guildford, UK, 2004. június 20–25.)
- P3. K. Gméling, Zs. Kasztovszky, L. Szentmiklósi, Zs. Révay, Sz. Harangi: Geological use of prompt-gamma activation analysis: importance of the boron concentration in volcanic rocks from the Eastern- and Western-Pannonian volcanic fields. (Modern Trends in Activation Analysis (MTAA) 11, Guildford, UK, 2004. június 20–25.)

### További publikációk:

- C10. I. Tomandl, J. Honzátko, T. Von Egidy, H.-F. Wirth, T. Belgya, M. Lakatos, L. Szentmiklósi, Zs. Révay, G.L. Molnár, R.B. Firestone, V. Bondarenko: Thermal Neutron Capture Cross Section of Tellurium Isotopes, *Phys. Rev. C.* 68 (2003) 067602
- C11. J. Reijönen, K.-N. Leung, R.B. Firestone, J.A. English, D.L. Perry, A. Smith, F. Gicquel, M. Sun, H. Koivunoro, T.-P. Lou, B. Bandong, G. Garabedian, Zs. Révay, L. Szentmiklósi, G.L. Molnár: PGAA/NAA Analysis with the Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) D+D Neutron Generator, *Nucl. Instr. Meth A* 522 (2004) 598-602
- C12. K. Gméling, Zs. Kasztovszky, Sz. Harangi, L. Szentmiklósi, Zs. Révay: Boron concentration measurements by prompt gamma activation analysis: application on miocene-quaternary volcanics of the Carpathian-Pannonian region. (*J. Radioanal. Nucl. Chem.* 270 (2), in press)
- C13. A. Borella, A. Moens, P. Schillebeeckx, R. van Bijlen, G. L. Molnár, T. Belgya, Zs. Révay, L. Szentmiklósi: Determination of the <sup>209</sup>Bi(n,γ) capture cross sections at a cold neutron beam, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 265 (2) (2005) 267-271.
- C14. A. Borella, P. Schillebeeckx, G.L. Molnár, T. Belgya, Zs. Révay, L. Szentmiklósi, E. Berthoumieux, F. Gunsing, A. Letourneau, and F. Marie: The <sup>209</sup>Bi( $n_{th},\gamma$ )<sup>210</sup>Bi and <sup>209</sup>Bi( $n_{th},\gamma$ )<sup>210m,g</sup>Bi Cross Sections Determined at the Budapest Neutron Centre, in Proc. of *"International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*" conference, Santa Fe, New Mexico, 26 Sep 1 Oct 2004, (AIP Conference proceedings 769), Ed: R.C. Haight, M.B. Chadwick, T. Kawano, P. Talou, 648-651.
- C15. T. Belgya, Zs. Révay, L. Szentmiklósi: Determination of thermal neutron capture cross sections using cold neutron beams at the Budapest PGAA-NIPS facilities, in Proc. of "12<sup>nd</sup> International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics", September 4–9 2005 University of Notre Dame, Indiana, USA (AIP Conf. Proc. 812), Eds: A. Woehr, A. Aprahamian, 300-306
- C16. L. Szentmiklósi, T. Belgya, G.L. Molnár, Zs. Révay: Time-resolved gamma-ray spectrometry, In FIRST CONFERENCE OF PHD STUDENTS AT FACULTY OF CHEMICAL ENGINEERING, *Periodica Polytechnica: Chemical Engineering* **47** (1), 90-91(2003)
- C17. L. Szentmiklósi, K. Gméling, Zs. Révay: Fitting the boron peak and resolving interferences in the 450–490 keV region of PGAA spectra, In SECOND CONFERENCE OF PHD STUDENTS AT FACULTY OF CHEMICAL ENGINEERING, *Periodica Polytechnica: Chemical Engineering* **49** (1), 80-81 (2005)

## Függelék

### 1. Függelék: A Doppler-kiszélesedett bórcsúcs alakjának levezetése

Tökéletes felbontású detektorral a jelek energia szerinti sűrűségfüggvényét mérhetnénk. Az alábbiakban levezetjük a bórcsúcs Doppler-eltolódást is figyelembe vevő sűrűségfüggvényét. Jelölje  $\frac{d^2N_p}{dE dt}$  az időegység alatt kibocsátott, adott energiájú fotonok számát. A láncszabályt alkalmazva ezt az alábbi tagokra bontjuk fel:

$$\frac{d^2 N_P}{dE \, dt} = \left[\frac{d^2 N_P}{d\Omega \, dt}\right] \left[\frac{d\Omega}{dv_z}\right] \left[\frac{dv_z}{dE}\right]$$
(F.1)

A <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> magfizikai okok miatt a  $4\pi$  térszög minden irányában egyforma valószínűséggel bocsátja ki a 477,6 keV-es fotont. Az aktivitás pedig  $-\frac{dN^*}{dt} = \frac{dN}{dt} = \lambda N^*(t)$ , ahol  $N^*(t)$  a *t* időben jelen lévő <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> mennyisége, *N* pedig a <sup>7</sup>Li atomok száma. Ezekből az infinitezimális térszögben, időegységenként kibocsátott fotonok száma:

$$\frac{d^2 N_P}{d\Omega dt} = \frac{1}{4\pi} \lambda N^*(t) \tag{F.2}$$



F.1. ÁBRA. A mozgó <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> és a detektor felé tartó foton által bezárt szög  $\theta$ . Az energia-eltolódást a sebesség merőleges vetülete,  $v_z$  szabja meg.

Az (F.1) egyenlet második tényezője az adott térszögbe eső események  $v_z$  szerinti sűrűségfüggvénye. A F.1 ÁBRA jelöléseivel  $v_z = v_0 \cos(\theta)$ , amelyből  $\frac{d\theta}{dv_z} = -\frac{1}{v_0 \sin(\theta)}$ , a

differenciális térszög pedig  $\frac{d\Omega}{d\theta} = -2\pi \sin(\theta)$ . Ezekből láncszabállyal kapjuk, hogy:

$$\frac{d\Omega}{dv_z} = \left[\frac{d\Omega}{d\theta}\right] \left[\frac{d\theta}{dv_z}\right] = \frac{-2\pi\sin(\theta)d\theta}{-v_0\sin(\theta)d\theta} = \frac{2\pi}{v_0}$$
(F.3)

Az (F.1) egyenlet harmadik tényezője a mozgás sebességét és a spektrumban mért energia-eltolódást kapcsolja össze. A  $v_0$  sebességű mozgáshoz tartozó foton-energia eltolódás  $E = E_0 \left(1 \pm \frac{v_z}{c}\right)$ , amelyet átrendezve és differenciálva:

$$\frac{dv_z}{dE} = \frac{c}{E_0} \tag{F.4}$$

Az (F.2) – (F.4) egyenleteket visszahelyettesítve (F.1)-be és felhasználva az  $N^*(t) = N_0^* e^{-\lambda t}$  időfüggést írhatjuk, hogy:

$$\frac{d^2 N_P}{dE \, dt} = \left[\frac{1}{4\pi} \lambda N^*\right] \left[\frac{2\pi}{v_0}\right] \left[\frac{c}{E_0}\right] = \frac{\lambda N^* c}{2v_0 E_0} = \frac{\lambda c N_0^* e^{-\lambda t}}{2v_0 E_0}$$
(F.5)

Ha eltekintünk a <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> lassulásától, azaz  $v_0 = \text{konst}$ , az (F.5) egyenletet idő szerinti integrálja:

$$\frac{dN_P}{dE} = \int_{t=0}^{\infty} \frac{\lambda c N_0^* e^{-\lambda t}}{2v_0 E_0} dt = \frac{c N_0^*}{2v_0 E_0}, \qquad (F.6)$$

amely az 1.4 ÁBRÁN látható téglalap az  $E_0 \pm \Delta E_{\text{max}}$  tartományon. Ezt egy Gauss görbével konvolválva visszakapjuk a 16. oldalon található (1.14)–(1.15) képleteket, a MAGARA-YONEZAWA csúcsalakot.

Ha pedig a  $v = v_0 e^{-Dt}$  sebességprofilt használjuk, amelyet az LSS-elmélet jósol:

$$\frac{dN_P}{dE} = \int_{t=0}^{\infty} \frac{\lambda c N_0^* e^{-\lambda t}}{2E_0 v_0 e^{-D t}} dt \longrightarrow \int_{t=0}^{t_E} \frac{\lambda c N_0^* e^{-\lambda t}}{2E_0 v_0 e^{-D t}} dt$$
(F.7)

Az integrálást elegendő végtelen helyett  $t_E = \frac{1}{D} \ln \left( \frac{E_0 v_0}{c |\Delta E|} \right)$ -ig végezni (KUBO ÉS

SAKAI 2000), mert a nagy energia-eltolódású események csak a lassulási folyamat elején keletkeznek. Az integrálás végeredménye az (1.16) KUBO-SAKAI összefüggés:

$$g(E) = \frac{dN_P}{dE} = \frac{c N_0^*}{2E_0 v_0} \frac{\lambda}{\lambda - D} \left[ 1 - \left(\frac{c \left|E - E_0\right|}{E_0 v_0}\right)^{\frac{\lambda - D}{D}} \right], \quad \text{ha } \left|E - E_0\right| \le \Delta E_{\text{max}}$$
$$\frac{dN_P}{dE} = 0 \qquad \text{egyébként.}$$

#### 2. Függelék: A lassulási állandó becslése az LSS-módszerrel

A *D* lassulási állandó a LINDHARD-SCHARFF-SCHIOTT elmélet alapján az alábbi formalizmussal számítható. Az elmélet feltételezi, hogy a mátrixot felépítő elemek izotópjai additívan járulnak hozzá a közeg fékezőerejéhez. (Ettől a szabálytól néhány esetben a kémiai kötések hatásának tulajdonítható eltérést találtak (NEUWIRTH *ET AL*. 1975)). LINDHARD és szerzőtársai definiáltak egy izotóponkénti fékezési tényezőt  $\delta_i$ , amely a térfogategységben lévő atomok számára van normalizálva és az alábbi értelemben additív:

$$D_{LSS} = \sum_{i} (\delta_i N_i), \qquad (F.8)$$

ahol  $\delta_i$ , az *i*-dik típusú izotóp fékezési tényezője atomonként és térfogategységre normálva, míg  $N_i$  az *i*-dik típusú izotóp atomjainak száma térfogat egységenként.

Az *i*-dik izotóp atomjainak térfogat egységre eső száma sztöchiometrikus vegyület esetén a sűrűségből (por esetén a halmazsűrűségből), az összegképletből, a sztöchiometriai együtthatóból (k), a relatív molekulatömegből ( $M_c$ ), az izotóp-gyakoriságból ( $\theta$ ) és az Avogadro-számból ( $N_{Av}$ ) számítható:

$$N_i = N_{\rm Av} \frac{\rho}{M_c} k\theta \tag{F.9}$$

Az izotóponkénti fékező erő ( $\delta_i$ ) pedig az alábbi képletekkel számítható (SAKAI *ET AL*. 1994):

$$\delta_i = \frac{k_i B_i}{\sqrt{2C_i M_i}},\tag{F.10}$$

ahol

$$B_{i} = \frac{4\pi a_{i}^{2} M M_{i}}{(M+M_{i})^{2}}$$
(F.11)

$$C_i = \frac{a_i M}{ZZ_i e^2 (M + M_i)} \tag{F.12}$$

$$k_{i} = \frac{0,0793 Z^{1/2} Z_{i}^{1/2} (A + A_{i})^{3/2}}{(Z^{2/3} + Z_{i}^{2/3})^{3/4} A_{i}^{3/2} A^{1/2}} Z^{1/6}$$
(F.13)

$$a_i = \frac{0,8853 a_0}{\sqrt{Z^{2/3} + Z_i^{2/3}}}$$
(F.14)

A fenti képletekben  $a_0$  a Bohr-rádiusz;  $Z_i$ ,  $A_i$ ,  $M_i$  a közeget alkotó *i*-dik izotóp rendszáma, tömegszáma és atomtömege; Z = 3, A = 7 és M a fékeződő <sup>7</sup>Li<sup>\*</sup> rendszáma, tömegszáma és egy atomjának tömege; míg *e* az elemi töltésegység. Az izotóponkénti fékezési tényezők a rendszám függvényében telítésbe hajló görbe szerint változnak.

Az analízis során rendszerint nem tudjuk *a priori* a mátrix pontos összetételét, ezért legtöbbször elegendő, ha *D*-t egy empirikus modellparaméternek tekintjük, és ezt a becslést csak a kezdeti érték megállapítására vagy az illesztett érték hihetőség-vizsgálatára használjuk.

### 3. Függelék: A hatásfok meghatározása közeli geometria és kiterjedt minta esetén

Kis detektor-minta távolság esetében a teljesenergiacsúcs-hatásfok függ a detektor geometriától, a minta pozíciójától, kiterjedésétől, a γ-abszorpciótól és a valódi koincidenciaveszteségtől. Ilyen eset fordult elő munkám során, amikor a 4.2 fejezetben bemutatott analízisben fémhalogenid alapanyagokat vizsgáltunk. Ezen a példán mutatom be az ún. összetett hatásfok számításának egy lehetséges módját, amely magában foglalja mindezen korrekciókat. Egyszerű geometriájú minták analitikus számítására az NAA-ban a SOLCOI programot használják (MOENS *ET AL*. 1981), ez azonban nem állt rendelkezésünkre. Ezért a feladatot számítógépes szimulációval oldottam meg.

A kalibráció első lépésében pontforrásokkal felveszünk egy referencia-hatásfokot, majd azt számítással transzformáljuk a valódi minta esetére. Ha a mintát a NIPS detektorának sapkájára helyeztük, a térszög a PGAA rendszerhez képest kb. 150× nagyobb volt. Ekkor csak az adott körülmények között koincidencia-mentes, ún. "egyvonalas" forrásokat használhatjuk hatásfokmérésre. A sugárforrások néhány adatát az alábbi táblázatban foglaltam össze:

Forrás	Energia (keV)	$T_{1/2}$ (d)	Ργ	Aktivitás (kBq)
<sup>109</sup> Cd	88,034	462,6 (7)	0,0363 (2)	$100,4 \pm 1,0\%$
57Co	122,061	271.80 (5)	0,8551 (6)	$22.62 \pm 1.00/$
0	136,471	271,80 (3)	0,1071 (15)	$52,05 \pm 1,070$
<sup>51</sup> Cr	320,089	27,703 (3)	0,0987 (5)	$101,5 \pm 0,8\%$
<sup>198</sup> Au	411,812	2,6948 (4)	0,9554 (7)	$0,42 \pm 1,2\%$
<sup>137</sup> Cs	661,657	10964 (9)	0,8499 (2)	$20,75 \pm 1,0\%$
<sup>54</sup> Mn	834,834	312,13 (3)	0,999746 (11)	$18,98 \pm 1,0\%$
<sup>65</sup> Zn	1115,539	244,06 (10)	0,5060 (22)	$47,91 \pm 0,8\%$

F.1 TÁBLÁZAT. A kalibrációhoz használt γ-források néhány adata

A kiterjedt mintára érvényes, összetett hatásfokot Monte-Carlo szimulációval kaptam. Ehhez az MCNP-4C (BRIESMEISTER 2000) programot használtam. Először definiáltam a mérési geometriát, amely a következő volt:





A minták d = 16 mm átmérőjű kvarcüveg ampullába voltak csomagolva, de csak kb. félig töltötték ki az edényt. A prompt-mérés alatt 44 mm<sup>2</sup>-es kollimátort használtunk, ezért a mintának csak az F.2. ÁBRÁN pontvonallal jelölt része aktiválódott a besugárzás során.

A programmal kiszámítottam a pont- és a kiterjedt forrásra érvényes hatásfokok arányát, amellyel tehát az üveg és a minta önabszorpcióját is automatikusan figyelembe vettem. Ezzel a mért pontforrás-hatásfokot korrigáltam és az alábbi eredményt kaptam:



F.3 ábra. A pontforrás-hatásfok és a kiterjedt mintára számított egyesített hatásfok a NIPS detektorra, *d*=5 mm mintapozíció esetén

A számítások szerint a 442,9-keV energiájú jód- és a 458,3-keV-es tórium csúcsra vonatkozó hatásfokok arányát a kiterjedt minta nem nagyon befolyásolta. Az önabszorpció különösen a 200 keV alatti régióban volt jelentős. Kb. 300 keV fölött a két görbe csaknem párhuzamos és a csökkenés a térszög változásának tulajdonítható.

Végül a Csúcs/Összes viszonyt meghatározva koincidencia-korrekciót végeztem a TRUECOINC programmal (SUDÁR 1998) és a kapott adatokat behelyettesítve a (4.1) egyenletbe kiszámítottam a tórium-jód arányt.

### 4. Függelék: A γ-csúcsok illesztése félempirikus függvényekkel

A HYPERMET/HYPERMET–PC/HYPERLAB programcsalád csúcs- és háttérfüggvényei az alábbi tagokból állnak (PHILLIPS ÉS MARLOW 1976):





Az első két komponens, a Gauss-görbe és a *Skew* a csúcs része; a *Tail*, a *Step* és a polinom pedig a hátteret írja le. Saját csúcsillesztési feladataimban a *Skew* mintájára bevezettem egy jobb oldali lecsengés (*Right Skew*) tagot is, amelyet az eredeti HYPERMET/HYPERMET-PC kód nem tartalmaz, a HYPERLAB azonban igen. Ezzel a nagy számlálási sebesség esetén fellépő csúcstorzulást vettem figyelembe.

A illesztés végrehajtásakor a *Skew*, a *Tail*, a *Step* és az esetenként használt *Right Skew* amplitúdóját célszerű a Gauss-görbe magasságához viszonyítani és relatív amplitúdókat bevezetni. A három program szerzői azonban ezeket eltérően definiálták.

- 1. A HYPERLAB-ben az  $A_{HL} = \frac{\alpha}{\Gamma}, T_{HL} = \frac{\tau}{\Gamma}, S_{HL} = \frac{\Sigma}{\Gamma}$  és  $R_{HL} = \frac{\Psi}{\Gamma}$  mennyiségek közvetlenül jelölik az egyes tagok relatív amplitúdóját.
- 2. Az eredeti HyperMET-ben az akkori számítástechnika korlátai miatt több tagot belefoglaltak a normalizáló faktorokba. Ennek megfelelően:

$$A_{HM} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \alpha \cdot \delta \cdot e^{\left(-\left[\frac{\delta}{2\cdot\beta}\right]^2\right)}, \ T_{HM} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \tau \cdot \delta \cdot e^{\left(-\left[\frac{\delta}{2\cdot\nu}\right]^2\right)}, \ S_{HM} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Sigma \cdot \delta.$$

A közelítés azonban hosszú évek tapasztalatai szerint a hibabecslést nem érinti észrevehetően. (A HYPERMET az egyik legjobb eredményt érte el az IAEA 1995. évi összevetésében (BLAAUW *ET AL*. 1997)). Ezt a jelölésmódot tükrözik a 2.2.2 pontban felírt (2.5)–(2.8) egyenletek.

3. A HYPERMET-PC 1999-ben megjelent 5.12 verziójába bekerült egy új opció, az ún. súlyvonalas illesztés. Ezt engedélyezve a program a *Skew*-t már nem a Gauss-amplitúdóhoz normálja, hanem a görbe területéhez  $(\Gamma \delta \sqrt{\pi})$ , a  $\beta$ -t pedig fixen tartja

(RÉVAY *ET AL*. 2001). Így kapjuk, hogy  $A_{HYPC} = \alpha \cdot e^{\left(-\left[\frac{\delta}{2 \cdot \beta}\right]^2\right)}$ . A másik két tag amplitúdó-definíciója az eredeti HYPERMET-hez képest változatlan maradt.

Az osztályunk analitikai gyakorlatához alkalmazkodva a dolgozatomban mindvégig az eredeti HYPERMET jelölésrendszert (2.) követtem.

### Köszönetnyilvánítás

Első helyen szeretnék köszönetet mondani témavezetőmnek, **Révay Zsolt**nak a sok segítségért és tanácsért, amellyel munkámat segítette.

**Belgya Tamás** osztályvezető elektronikai és méréstechnikai, továbbá a bórcsúcs keletkezésével kapcsolatos feladatok megoldásában nyújtott pótolhatatlan segítséget. Köszönet érte.

**Molnár L. Gábor** 2004 januárjában bekövetkezett haláláig adott számos értékes tanácsot a munkámhoz. Lelkesen támogatta a listamódú méréseimet.

Köszönet illeti Lakatos Miklóst, aki sokat segített a digitális spektrométerek bemérésében, valamint Gméling Katalint és Kasztovszky Zsoltot, amiért a bórcsúcsillesztéshez rendelkezésemre bocsátották spektrumaikat és megosztották velem geológiai és analitikai tapasztalataikat.

Hálás vagyok Jesse L. Weilnek angol nyelvű kézirataim lektorálásáért.

Köszönöm **Dabolczi Lajos**nak a nyalábszaggató elektronika elkészítését és a beüzemelésben nyújtott segítségét.

Köszönöm **Nagyné László Krisztina** tanárnőnek, a BME Fizikai Kémia Tanszék docensének, hogy egyetemi konzulensem volt a Doktori Iskolában.

Külön köszönöm **Simonits András**nak (AEKI), amiért házi bírálóként számos értékes észrevételt tett dolgozatommal kapcsolatban, továbbá rendelkezésemre bocsátotta a kalibráló sugárforrásait. Másik bírálómnak **Salma Imrének**, az ELTE Kémiai Intézet docensének is hálával tartozom építő megjegyzéseiért.

Lázár Károly osztályvezető is segítségemre volt (IKI Katalízis és Nyomjelzéstechnikai Osztály), amikor rendelkezésemre bocsátotta detektorát a méréseimhez. Michael Momayezi (XIA) segített a Polaris spektrométerrel kapcsolatban felmerült kérdések megoldásában.

Hasznos volt külföldi kollégákkal találkozni, problémákat megvitatni. Itt említeném meg Greg Kennedyt (École Polytechnique, Montreal), Petra Kudějovát (IKP Univ. Köln), Richard Lindstromot (NIST), Matthias Rossbachot (IAEA), Peter Schillebeeckxet (IRMM). Valamennyiüknek ezúton is köszönöm támogatásukat.

Köszönöm **Richard B. Firestone**nak, hogy 2003-ban két héten át vendégül látott a Berkeley National Laboratoryban.

# Nyilatkozat

Alulírott SZENTMIKLÓSI LÁSZLÓ kijelentem, hogy ezt a doktori értekezést magam készítettem és abban csak a megadott forrásokat használtam fel. Minden olyan részt, amelyet szó szerint, vagy azonos tartalomban, de átfogalmazva más forrásból átvettem, egyértelműen, a forrás megadásával megjelöltem.

Budapest, 2006. május 28.

Szentmiklósi László

## Melléklet: A dolgozat alapját képező publikációk

- 1. L. Szentmiklósi, T. Belgya , Zs. Révay, G.L. Molnár: Digital signal processing in promptgamma activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **264** (1) (2005) 229-234
- 2. Zs. Révay, T. Belgya, L. Szentmiklósi, G.L. Molnár: Prompt gamma activation analysis using a chopped neutron beam, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **264** (2) (2005) 277-281
- 3. G. L. Molnár, Zs. Révay, L. Szentmiklósi: New perspectives for very short-lived neutron activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **262** (1) (2004) 157-163
- 4. L. Szentmiklósi, T. Belgya, G.L. Molnár, Zs. Révay: Time resolved gamma-ray spectrometry. (*J. Radioanal. Nucl. Chem.* 270 (2), in press)
- 5. L. Szentmiklósi, K. Gméling, Zs. Révay: Fitting the boron peak and resolving interferences in the 450-490 keV region of PGAA spectra. (*J. Radioanal. Nucl. Chem.* **270** (2), in press)
- 6. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, G.L. Molnár: Three-dimensional data processing for the time resolved gamma-ray spectrometry, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **265** (2) (2005) 213-219.
- L. Szentmiklósi, Zs. Révay, R. Chobola, P. Mell, S. Szakács, I. Kása: Characterization of CaSO<sub>4</sub>-based dosimeter materials with PGAA and thermoluminescent methods, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 267 (2) (2006) 415-420
- 8. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, T. Belgya: An improved beam chopper setup at the Budapest PGAA facility (beküldve, *Nucl. Instr. Meth. B* IRRMA-6 conference proceedings)
- 9. L. Szentmiklósi, Zs. Révay, T. Belgya: Measurement of partial gamma-ray production crosssections and  $k_0$ -factors for short-lived nuclides with chopped-beam PGAA, (in press, *Nucl. Instr. Meth.*  $A - 4^{th} k_0$ -Users Workshop Proceedings)