

УНИВЕРЗИТЕТ У БЕОГРАДУ

ФИЗИЧКИ ФАКУЛТЕТ

Јелена Д. Крнета Николић

Примена аналитичког,
експерименталног, полуемпиријског и
Монте Карло метода за калибрацију
ефикасности HPGe детектора у гама
спектрометрији узорака из животне
средине

докторска дисертација

Београд, 2015.

UNIVERSITY OF BELGRADE

FACULTY OF PHYSICS

Jelena D. Krneta Nikolić

Application of analytical, experimental,
semiempirical and Monte Carlo method for
efficiency calibration of HPGe detectors in
environmental samples gamma
spectrometry

Doctoral Dissertation

Belgrade, 2015.

Подаци о ментору и члановима комисије

Ментор:

Име и презиме: др Јован Пузовић

Звање: ванредни професор

Институција: Универзитет у београду, Физички факултет

Научна област: Физика језгара и честица

Чланови комисије:

1. др Јован Пузовић, ванредни професор, Универзитет у београду, Физички факултет
2. др Драгана Тодоровић, виши научни сарадник, Институт за нуклеарне науке Винча
3. др Марија Димитријевић, ванредни професор, Универзитет у београду, Физички факултет

Датум одбране:

Ова дисертација је урађена у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине у Институту за нуклеарне науке "Винча"

Овим путем се захваљујем свом ментору, др Јовану Пузовићу на помоћи и руковођењу израдом ове дисертације.

Такође, велику захвалност дугуем др Драгани Тодоровић, ментору докторских студија, на саветима, помоћи и стрпљењу током година рада и израде ове дисертације.

За све корисне сугестије и помоћ у финализацији рада, захваљујем се др Марији Димитријевић, члану комисије.

Хвала и мојим драгим колегама из лабораторије Заштита на колегијалној атмосфери и помоћи сваке врсте.

Мојој породици – мајци Менки, оцу Драгославу, сестри Невени бескрајно хвала на подршци коју су ми пружали током свих година мог школовања и без којих не бих постигла ово сто јесам до сад.

На крају, хвала мом супругу Горану, који је све ово храбро издржао.

Јелена Крнета Николић

Наслов докторске дисертације:

**ПРИМЕНА АНАЛИТИЧКОГ, ЕКСПЕРИМЕНТАЛНОГ,
ПОЛУЕМПИРИЈСКОГ И МОНТЕ КАРЛО МЕТОДА ЗА КАЛИБРАЦИЈУ
ЕФИКАСНОСТИ HPGe ДЕТЕКТОРА У ГАМА СПЕКТРОМЕТРИЈИ
УЗОРАКА ИЗ ЖИВОТНЕ СРЕДИНЕ**

Резиме

Квалитет гама спектрометријских мерења у општем сучају директно зависи од познавања ефикасности детекције за посебне случајеве геометрије мерења и карактеристика мереног узорка. С обзиром на то да узорци који се мере могу бити веома различити по хемијском саставу и геометрији, калибрација није доступна у свакој ситуацији. Поред тога, код мерења у контактної геометрији, што је најчешћи случај приликом мерења узорка из животне средине, феномен коинцидентног сумирања пертурбује спектар и мења површине испод пикова у спектру што резултује нетачним резултатима мерења. Тада се јавља потреба за развијањем различитих метода за калибрацију и специфичних референтних материјала за сваки појединачни случај. Методе калибрације могу подразумевати мерење сертифицираних извора или секундарних референтних материјала, одређивање параметара потребних за израчунавање ефикасности или симулирање спектралног одговора инструмента.

У овом раду представљено је и примењено неколико различитих приступа калибрацији ефикасности мерног система. То су:

- Експериментални метод, који подразумева мерење секундарних референтних материјала који су по геометрији и хемијском саставу најприближнији узорцима који се мере. Овај метод даје најтачније резултате али истовремено захтева дуго време припреме секундарних референтних материјала и дуго време мерења. Све ово може бити извор низа мерних несигурности које су последица управо те припреме.

- Аналитички метод, који подразумева успостављање аналитичке зависности између ефикасности и геометријских карактеристика мереног узорка и детектора. Овај метод је апроксимативан с обзиром на то да су интегрални који описују зависност за цилиндричне геометрије врло компликовани и њихово

решавање је могуће једино нумеричким путем. Уведене апроксимације доприносе мерној несигурности али у оквирима потреба мерења узорака из животне средине могу бити прихватљиве.

-Полуемиемпиријски метод (представљен у овом раду програмом за трансфер ефикасности, EFFTRAN) користи зависност ефикасности детектора од ефективног просторног угла под којим се узорак налази у односу на детектор и на основу тога рачуна трансфер ефикасности од референтне калибрационе криве до криве за реалну мерну геометрију и корекцију на коинцидентна сумирања.

-Монте-Карло метод (представљен у овом раду програмским пакетима PHOTON и GEANT4) који се користи за симулацију спектралног одговора детектора на основу познавања процеса који доводе до депоновања енергије у медијуму детектора и случајног избора бројева.

Сваки од наведених метода је примењен за калибрацију HPGe детектора који се користе у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке Винча. Као резултат добијене су ефикасности детектора, са придруженим мерним несигурностима. С обзиром на то да се мерење секундарних референтних материјала сматра најтачнијим методом калибрације, ефикасности добијене другим методама су упоређене са експерименталним резултатима да би се утврдило слагање или неслагање у оквиру мерне несигурности. Поређењем је установљено да се ефикасности добијене аналитичком методом разликују у односу на експериментално добијене ефикасности у опсегу од 1 до 14%, при чему су вредности одређиване за 3 геометрије које су најчешће у употреби у мерењу узорака из животне средине. Резултати добијени трансфером ефикасности, коришћењем калибрације за тачкасти извор као референтне калибрације, одступају од експерименталних од мање од 1% до више од 20%. Највећа одступања су уочена код матрикса веће густине и то на крајевима опсега испитиваних енергија. Остали резултати се налазе у оквиру мерне несигурности. Ефикасности су одређиване и Монте Карло симулацијом помоћу два различита програма. Резултати добијени применом програмског пакета GEANT4 показују одступање од експерименталних вредности која су реда величине неколико процената и та одступања су последица дефинисања геометрије детектора. Симулација програмом PHOTON је дала задовољавајуће резултате са одступањима која се крећу од мање од 1% до

приближно 20% у односу на експерименталне резултате, али уз изостављање најнижих енергија, за које су одступања била неприхватљиво велика.

Додатни критеријум за поређење различитих метода калибрације била је тачност која је проверена мерењем узорака из животне средине познате активности. Ови узорци су мерени у оквиру различитих међулабораторијских интеркомпарација или су као секундарни референтни материјал набављени од сертификоване лабораторије.

Након мерења, активности радионуклида у узорцима добијени су коришћењем ефикасности добијених различитим методама. Поређењем овако добијених активности са референтним вредностима датим за те узорке, извршено је објективно поређење свих метода и установљена њихова еквиваленција по резултатима. Такође, утврђене су границе применљивости аналитичког модела и програмског пакета PHOTON. Дате су и препоруке у вези са комбиновањем различитих приступа за будуће калибрације.

У овој дисертацији први пут је примењено више принципијелно различитих метода на калибрацију детектора за мерење узорака из животне средине у цилиндричној геометрији.

Кључне речи: калибрација ефикасности, HPGe детектор, секундарни референтни материјала, трансфер ефикасности, виртуелни тачкасти детектор, Монте Карло симулација.

Научна област: Физика језгара и честица

Ужа научна област: Гамаспектрометрија

Title:**APPLICATION OF ANALYTICAL, EXPERIMENTAL, SEMIEMPIRICAL AND MONTE CARLO METHOD FOR EFFICIENCY CALIBRATION OF HPGE DETECTORS IN ENVIRONMENTAL SAMPLES GAMMA SPECTROMETRY****Abstract**

The quality of the gamma spectrometry measurements is in general directly dependent on determining of the efficiency for the specific measurement geometry and measured sample characteristics. Due to the fact that measured samples can be very versatile in terms of geometry and chemical composition, the efficiency calibration is not readily available. That is when the need for developing different efficiency calibration methods and specific reference materials becomes obvious. Methods of efficiency calibration may consist of measurement of certified sources and secondary reference materials, determination of the parameters needed for efficiency calculation or simulation of the detector system response. Besides, the measurement in contact geometry, such is the case in measurement of environmental samples, implies the perturbation of the spectrum via coincidence summing effect, which leads to incorrect results of the measurement.

Several methods for efficiency calibration of the measurement system are presented and utilized in this thesis. These are:

- Experimental method, which implies the measurement of the secondary reference materials that are similar to the realistic samples in terms of geometry and composition. This method produces high accuracy results but at the same time requires long time for production of the secondary reference materials and long measurement time. All this can be the source of large measurement uncertainty.

- Analytical method, which implies the existence of analytical dependence between the efficiency and geometrical characteristics of the measured sample and detector. This method is approximate, due to the fact that the integrals describing the efficiency dependence for cylindrical geometry are very complex and their solution is only possible by using a numerical integration. The approximations introduced in the calculation contribute to the uncertainty of the results, but can be acceptable in case of environmental samples.

- Semi empirical method (represented in this thesis by EFFTRAN – efficiency transfer software) utilizes the dependence of the efficiency on the solid angle between

the sample and detector and calculates the transfer of the efficiency from the reference calibration curve and coincidence summing corrections, accordingly.

-Monte Carlo method (represented in this thesis by software package GEANT4 and PHOTON) utilizes Monte Carlo simulation of the detector spectral response based on known processes that lead to photon energy deposition in the medium and random number generation.

Each of mentioned methods is applied for efficiency calibration of the HPGe detectors readily used in the Laboratory for Radiation and Environment Protection of the Institute for Nuclear Sciences Vinča. As the result, detector efficiencies and associated uncertainties are obtained. Since the measurement of the secondary reference materials is considered to produce the most accurate results, efficiencies obtained using other methods are compared to the experimental results in order to establish the accordance of the results within the uncertainty limits.

The comparison determined that the efficiencies obtained using analytical method differ from the experimental results within the range of 1 to 14%, for the 3 measurement geometries that were analyzed and that are most frequently in use for environmental samples measurement. Results obtained by the efficiency transfer, using point source calibration as the reference, differ from the experimental results that ranges from less than 1% to more than 20%. The largest discrepancies are for high density matrices and at the edges of the investigated energy span. Other results obtained by this method are within the measurement uncertainty limits. Efficiency calibration by Monte Carlo simulation was performed using two different software. Results obtained by using GEANT4 software package show discrepancies from the experimental results that are of order of magnitude of several percent, which is the consequence of detector geometry definition. Simulation performed by PHOTON software produced satisfactory results with the discrepancies that ranged from less than 1% up to 20%, with the remark that the lowest energies were omitted due to unacceptably large discrepancy.

Additional criterion for comparison of different efficiency calibration methods was testing of the accuracy by measurement of the realistic environmental samples. These samples were measured within different interlaboratory intercomparisons, or were acquired from certified laboratory as a secondary reference material. After measurement, the radionuclide activities in the samples were calculated using efficiencies obtained by different methods. By comparing the results with the activity target values provided by the intercomparison organizer, an objective accuracy comparison was performed and the equivalence of the results was determined. Also, the limits of the applicability of analytical method and PHOTON simulation were established. Recommendations regarding future efficiency calibrations are stated.

This thesis applies, for the first time, several principally different approaches to efficiency calibration of the HPGe detectors for environmental samples measurement in cylindrical geometry.

Keywords: efficiency calibration, HPGe detector, secondary reference materials, efficiency transfer, virtual point detector, Monte Carlo Simulation.

Scientific field: Nuclear and particle physics

Special scientific field: Gamma spectrometry

Садржај

Увод	1
1. Теоријске основе	4
1.1 Гамаспектрометрија	4
1.1.1 Гама зрачење и интеракције γ зрачења са материјом	4
1.1.2 Порекло радиоактивности у животној средини	8
1.1.3 Гамаспектрометрија узорака из животне средине	9
1.2 Детектори гама зрачења	11
1.2.1 Полупровиднички детектори	11
1.2.2 <i>HrGe</i> детектор	13
1.2.3 Спектар-мултиканална анализа	16
1.3 Методе калибрације ефикасности детектора	19
1.3.1 Експериментални метод	20
1.3.2 Аналитички метод	21
1.3.3 Полуемпиријски метод	27
1.3.4 Монте Карло метод	32
1.4 Корекције на коинцидентно сумирање	37
2. Методе и материјали	41
2.1 Експериментална калибрација	41
2.1.1 Прављење секундарних референтних материјала	42
2.1.2 Снимање спектра	49
2.1.3 Мерна несигурност експерименталног метода	51
2.2 Калибрација аналитичким методом	57
2.2.1 Мерна несигурност аналитичког метода	63
2.3 Калибрација полуемпиријским методом	65
2.3.1 <i>EFFTRAN</i>	65
2.3.2 Корекције на коинцидентно сумирање у програму <i>EFFTRAN</i>	73
2.3.3 Мерна несигурност резултата добијених <i>EFFTRAN</i> -ом	75
2.4 Калибрација Монте Карло методом	76
2.4.1 <i>GEANT4</i>	76
2.4.2 <i>PHOTON</i>	78

2.4.3	<i>Мерна несигурност у Монте Карло симулацији</i>	81
3.	Резултати и дискусија	83
3.1	Резултати експерименталне калибрације ефикасности	83
3.2	Резултати калибрације ефикасности аналитичким методом	92
3.3	Резултати калибрације ефикасности програмом EFFTRAN	104
3.4	Резултати калибрације ефикасности програмом GEANT4	114
3.5	Резултати калибрације ефикасности програмом PHOTON	121
3.6	Дискусија резултата добијених различитим методама	130
4.	Закључак	138
5.	Литература	142
	Биографија	
	Библиографија	

Увод

Феномен радиоактивности је откривен пре више од 100 година. Око 1880. године, Хенри Бекерел је испитивао луминесценцију уранилсулфата изазвану ултраљубичастим зрачењем, затим Вилхелм Рентген открива рентгентску цев 1895. године, а 1896., Бекерел саопштава на Академији наука у Паризу, да уранијум и његове соли емитују невидљиве зраке који остављају траг на фотографској плочи. Ова појава је названа природном радиоактивношћу и од тада интересовање научника за радиоактивност, радиоактивне елементе и њихову примену непрестано расте [1].

Гама зрачење је открио Пол Вилард, који је испитујући радиоактивну емисију радијума, 1900. године открио да радијум емитује још једну врсту зрачења која је далеко продорнија од до тада детектованог алфа и бета зрачења. Ово зрачење, као фундаментално нови облик, дефинисао је Ернест Радерфорд 1903. Он је 1914. доказао да су гама зраци по природи електромагнетни таласи и измерио њихову таласну дужину.

Након прве детекције гама зрачења помоћу фотографске плоче, наступио је брз напредак инструментације за детекцију гама зрачења, најпре са појавом гасних детектора (Радерфорд и Гајгер 1908.), затим конструкцијом првог NaI(Tl) сцинтилационог детектора (Хефштатер 1948) и коначно кристалних, полупроводничких Ge(Li) детектора 1962. (Пел 1960, Фрек и Вејкфилд 1962., Веб и Вилијамс 1963. и Травендејл и Еван 1963.) [2].

Већ код првих мерења детекторима гама зрачења, поставило се питање ефикасности детекције фотона, па самим тим и калибрације ефикасности детектора. Најранији радови који се тичу израчунавања ефикасности детекције су Zerby and Moran (1961), Miller and Snow (1961), и Waibel and Grosswendt (1975) у којима је коришћена Монте Карло симулација. Irfan and Prasad (1970) су дефинисали аналитички израз који описује ефикасност детектора за тачкасте изворе са изотропним пољем зрачења, позициониране коаксијално у односу на кристал детектора, док Beam et al. (1978), Cesana and Terrani, (1978) и Cesana and Terrani, (1989) обрађују случај тачкастог извора који није коаксијално постављен, такође путем Монте Карло метода. Vidmar et al. (2001) су израчунали тоталну ефикасност за n-тип HPGe детектора за тачкасте изворе на капи детектора

користећи и полуемпиријски и Монте Карло метод. Аутори Селим и Абас директним математичким притупом одређују тоталну ефикасност NaI(Tl) детектора за различите положаје тачкастог извора (Selim and Abbas, 1995; Selim et al., 1998; Selim and Abbas, 1996 ; Selim and Abbas, 2000). У раду Abbas et al., 2001 третира се ефикасност у пиксу тоталне апсорпције HPGe детектора за тачкасти извор на различитим висинама у односу на детектор

Р. Ј. Герке и сарадници су 1977. године објавили прва експериментална мерења интензитета појединих гама линија који се могу користити за калибрацију ефикасности Ge(Li) детектора, а Бјурман и сарадници обрађују начин припремања узорака који су намењени експерименталној калибрацији детектора. Keyser et al. (2000) су радили на експерименталном одређивању ефикасности HPGe детектора различитих димензија користећи исти референтни узорак облика диска, док су 1997. Т. Шаршар и сарадници експерименталним путем одређивали ефикасност HPGe детектора за волуминозне узорке. И. Вуканац са сарадницима 2008. и 2012. даје преглед процедуре припреме секундарних референтних материјала и експерименталне калибрације детектора за цилиндричне узорке из животне средине.

У литератури су углавном обрађиване теоријске методе које су провераване поређењем са вредностима добијеним мерењем калибрационих стандарда матрикса воде или силиконске смоле или комбинације Монте Карло метода са неком аналитичком или полуемпиријском методом. Комбинације и поређење три или више метода нам нису доступне у литератури. Такође, за мерење се углавном користе тачкасти извори, математички су анализирани извори облика диска, док су примери са цилиндричним геометријама узорка ретки. Коначно, одређивање ефикасности за узорке из животне средине у цилиндричној геометрији нису довољно покривени у литератури ни мерењем ни математичком анализом.

У Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, редовно се врше гама спектрометријска мерења узорака из животне средине. Мерења се изводе на полупроводничким HPGe детекторима, радионуклиди који се детектују и чија се активност и концентрација у узорцима мери, спадају и у тзв. природне и у тзв. произведене радионуклиде. Гамаспектрометријска мерења узорака из животне средине подразумевају мерење садржаја радионуклида у

најразличитијим врстама материјала који могу заузимати различите геометрије. С тим у вези, јављају се неки специфични проблеми. Један од најважнијих је калибрација ефикасности детектора за специфичне типове матрикса и геометрија који се јављају при мерењу узорака из животне средине.

Ова дисертација се бави применом различитих метода калибрације HPGe детектора на мерење активности радионуклида у узорцима из животне средине и поређењем резултата добијених различитим методама. Садржај је организован у три целине. Најпре се у поглављу **Теоријске основе** презентују основне теорије које се тичу спектрометрије гама емитера, детектора гама зрачења, посебно HPGe детектора и различитих метода калибрације детектора. У поглављу **Материјали и методе**, појединачно се обрађују сви методи примењени на калибрацију ефикасности детектора као и припрема секундарних референтних материјала потребних за експерименталну калибрацију. Затим су у поглављу **Резултати и дискусија** представљени резултати калибрације детектора применом пет метода калибрације. Резултати су упоређени са резултатима експерименталне калибрације и одступања теоријских од експерименталних вредности су протумачена. Паралелном применом свих метода калибрације на мерења познатих сертификованих узорака извршено је објективно поређење свих метода и резултати овог поређења су приказани и дискутовани. На крају дисертације, у поглављу **Закључак**, дат је преглед постигнутих резултата и закључци који су изведени у погледу тачности, прецизности и применљивости појединих метода.

1. Теоријске основе

1.1. Гамаспектрометрија

1.1.1. Гама зрачење и интеракције γ зрачења са материјом

Гама зрачење настаје услед деексцитације побуђених стања језгра. Ова побуђена стања настају као последица нуклеарних реакција или након алфа, бета или изомерног распада почетног језгра. Овако побуђено језгро се деексцитује преласком у ниже енергетско стање истог елемента, при чему долази или до емисије гама кванта или се енергија ексцитације преноси на електрон у орбити блиској језгру (интерна конверзија). Емитовањем низа гама фотона или низом интерних конверзија, језгро достиже основни енергетски ниво који може бити стабилан или се распадати даље неким радиоактивним распадом. [2].

Гама зрачење покрива опсег енергија од 30 keV до 3MeV. У том опсегу се, путем интеракција зрачења са материјом детектора, може фомирати спектар зрачења, на основу којег се врши идентификација радионуклида од којих зрачење потиче као и њихова концентрација у испитиваном материјалу.

Важна особина емисије гама кванта из језгра је вероватноћа емисије. Вероватноћа емисије зависи од вероватноће прелаза између два (побуђена) стања језгра и од таласних функције тих стања. Како су ове функције непознате, израчунавања су спроведена за неке специфичне сетове таласних функција, које се односе на стања у идеализованим нуклеарним системима. Ипак, због велике комплексности процеса и значајног одступања реалних језгара од идеализованог случаја, вероватноћа емисије се мора измерити мерењем времена живота побуђеног стања.

Гама зрачење интерагује са материјом на три основна начина:

-*Фотоелектрични ефекат* је процес у којем фотон интерагује са везаним електроном при чему се целокупна енергија фотона апсорбује. Из атома апсорбера се избацује електрон енергије E_e дате следећом једнакошћу:

$$E_e = E_\gamma - E_b - E_R \quad (1.1.1)$$

где је E_γ енергија фотона, E_b енергија везе електрона и E_R енергија узмака атома услед избијања електрона из љуске, која је занемарљива.

Ако се интеракција не одиграва у вакууму, избачени електрон ће бити успорен и предаће своју енергију средини кроз коју се креће. Пошто избачени електрон оставља шупљину у електронском омотачу атома, атом ће се деекситовати емисијом X зрака или Ожеових електрона. X зраци ће такође бити апсорбовани у околној средини као и енергија Ожеових електрона. Зато, фотоелектрични ефекат подразумева потпуну предају енергије почетног фотона средини са којом интерагује. Као последица ове интеракције, у спектру зрачења се јавља линија која представља пуну енергију фотона тзв. full energy peak или **пик тоталне апсорпције**.

Иако се ефективни пресек за ову интеракцију не може изразити једним аналитичким изразом, његова зависност од атомског броја апсорбера Z и енергије фотона E_γ може бити приближно представљена изразом [2]:

$$\tau = const \cdot Z^n \cdot E_\gamma^{-3} \quad (1.1.2)$$

где је степен n једнак 4 или 5.

Јака зависност од Z указује на то да су елементи великог атомског броја добри апсорбери гама зрачења. То је и један од разлога због којег се за детекторе гама зрачења бирају материјали управо великог Z , попут германијума, силицијума итд. Такође, изражена зависност од енергије фотона указује на то да је фотоелектрични ефекат доминантни начин интеракције на нижим енергијама, док на вишим енергијама постаје занемарљив.

-*Комптоново расејање* је процес у којем само део енергије фотона бива пренет слабо везаном или слободном електрону док се остатак појављује као расејани фотон. Енергије расејаног фотона и електрона повезане су преко угла под којим се фотон расејава, следећом једнакошћу:

$$E_c = E_\gamma [1 + E_e (1 - \cos \theta)] \quad (1.1.3)$$

где је E_c енергија комптоновски расејаног фотона, E_γ је енергија упадног фотона, E_e је енергија мировања електрона (511 keV) и θ је угао који заклапа правац упадног са правцем расејаног фотона. Пошто овај процес подразумева емисију расејаног фотона, укупна енергија упадног фотона се не депонује на месту прве интеракције. Да би се пратила укупна енергија фотона, мора се пратити расејани фотон који, са своје стране може доживети још низ Комптонових расејања све док не дође до фотоелектричне апсорпције.

Уколико имамо сноп фотона дате енергије који интерагује са материјом, потребно је да познајемо и вероватноћу за расејање фотона под произвољним углом θ . Аналитички израз за ову вероватноћу је познат под именом формула Клајн-Нишине. Из ње се закључује да са порастом енергије фотона, угао расејања постаје све мањи и на великим енергијама се приближава 0, односно фотон губи све мање енергије у расејању.

Ефикасни пресек за комптоново расејање у зависности од Z и E_γ је дат следећим изразом [2]:

$$\sigma = const \cdot Z \cdot E^{-1} . \quad (1.1.4)$$

Из овог израза закључујемо да ефикасни пресека за Комптоново расејање постаје поредив са пресеком за фотоелектрични ефекат на енергијама око 150 keV, док на вишим енергијама овај процес постаје доминантан.

-*Креација парова* је за фотоне високих енергија главни механизам интеракције са материјом. У овом процесу се енергија фотона у Кулоновом пољу језгра претвара у пар електрон - позитрон. Да би ово било могуће, енергија упадног фотона мора бити већа од двоструке енергије мировања електрона, тј. већа од 1022 keV. Вишак енергије се расподељује између две креиране честице у виду кинетичке енергије. Као и у претходном случају, ни у процесу креације парова се енергија упадног фотона не депонује на месту прве интеракције. Кинетичка енергија пара електрон - позитрон бива апсорбована али сваки од два фотона која настају анихилацијом позитрона, носи своју енергију од 511 keV даље до места где ће интераговати Комптоновим расејањем или фотоелектричном апсорпцијом.

Израчунавање ефикасног пресека за креацију парова показује квадратну зависност од Z [2]. Код лакших елемената, овај процес доминира на енергијама реда величине 10 MeV, док је код тежих елемената, креација парова доминантни процес и на нижим енергијама.

Постоје и други процеси интеракције (Рејлијево и Томпсоново расејање, резонантно нуклеарно расејање идр.) али су они мање вероватни и мање важни у енергијском опсегу који се мери.

-*Атенуација фотона* је од интереса када разматрамо моноенергетски сноп фотона. Ако сноп фотона пролази кроз танак слој материјала, поједини фотони ће доживети неки од претходно споменутих процеса у самом слоју материјала. Свака интеракција уклања фотон из снопа са путање ка детектору и то се може описати као константна вероватноћа догађаја по јединици дужине пута фотона [3]. Сума вероватноћа за поједине процесе се назива линеарни атенуациони коефицијент:

$$\mu = \mu_{\tau} + \mu_{\sigma} + \mu_{\kappa} \quad (1.1.5)$$

где је μ_{τ} вероватноћа, по јединици дужине пута фотона, за фотоелектрични ефекат у самом материјалу (не у детектору), μ_{σ} вероватноћа по јединици дужине пута фотона за Комптоново расејање у материјалу и μ_{κ} вероватноћа, по јединици дужине пута фотона, креације парова у материјалу. Све парцијалне вероватноће су директно пропорционалне ефикасном пресеку за одговарајуће интеракције.

Ако сноп фотона наилази на слој материјала дебљине t нормалан на правац снопа, број трансмитованих фотона N у зависности од броја упадних фотона N_0 дат је једнакошћу [3]:

$$N = N_0 e^{-\mu t} \quad (1.1.6)$$

Управо је N број фотона који улазе у активну запремину детектора и доприносе спектру.

Употреба линеарног атенуационог коефицијента је непрактична јер коефицијент зависи од густине материјала који апсорбује. Зато се користи масени атенуациони коефицијент, дефинисан као однос μ/ρ , где је ρ густина материјала.

За дату енергију гама фотона, масени атенуациони коефицијент се не мења у зависности од физичког стања апсорбера [3].

Као коначан резултат интеракције гама зрачења са материјом било апсорбера било детектора, добија се спектар зрачења. Спектар представља суму дискретних линија насталих интеракцијом трансмитованих фотона са активном запремином детектора. Идентификацијом енергије фотона у спектру долазимо до идентификације радионуклида који емитују те фотоне, а укупан број детектованих фотона дате енергије је директно пропорционалан активности, односно концентрацији радионуклида у укупној маси испитиваног узорка.

1.1.2 Порекло радиоактивности у животној средини

Као што је познато, у природи постоје радионуклиди који датирају још из времена формирања Земље као планете. У природи постоје четири серије природних радионуклида. То су ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U и ^{241}Pu серија које су добиле назив по најтежем елементу у низу који је истовремено и "родоначелник" низа. Плутонијумова серија (^{241}Pu) садржи радионуклиде чија су времена полураспада веома кратка, па је стога мало заступљен у природи. Порекло свих природних радионуклида се може наћи у некој од ове четири серије и њихово присуство се може опазити у свим стенама, земљишту и у живом свету. При гамаспектрометрији узорака из животне средине, основни задатак је идентификација природних радионуклида и одређивање њихове концентрације, с обзиром на то да ови елементи директно утичу на основно зрачење у животној средини, па посредством тога и утичу на индивидуалну дозу зрачења коју прима живи свет и човек.

Као посебан извор помињу се изотопи радона, потомци у сва три радиоактивна низа. Радон је племенити гас без боје и мириса који доспева у међучестичне просторе у супстанци, захваљујући узмаку при радиоактивном распаду језгара предака везаних у честицама матрикса. Пошто је гасовит, радон се може пренети далеко од места настанка, чиме доприноси природном зрачењу у околини [4].

Још један извор природне радиоактивности су космички зраци. Захваљујући атмосфери и магнетном пољу Земље, само мали део овог зрачења

доспева до површине Земље и до животне средине. Ипак интеракције овог зрачења са горњим слојевима атмосфере доводе до појаве радиоактивног изотопа берилијума – ^7Be који се може детектовати у аеросолима у приземном слоју атмосфере и због тога је од значаја за мерење.

Калијум 40 је још један природни радионуклид који се може наћи и у живом свету. Удео изотопа ^{40}K у укупном калијуму у природи је 0.012% а у организмима је у хомеостатској равнотежи са другим изотопима калијума.

Последица коришћења нових технологија и рада нових индустријских постројења је повећано присуство природне радиоактивности у животној средини и то је дефинисано као технолошки повишена природна радиоактивност (ТЕНОРМ) [5].

Осим природних радионуклида, у животној средини се могу детектовати и одређени произведени радионуклиди, конкретно изотопи цезијума, јода, трицијум, технецијума итд.

Цезијум настаје као фисиони продукт у нуклеарним реакторима и приликом нуклеарних проба, и његово присуство у природи је последица акцидената у нуклеарним постројењима и таложења радиоактивних честица након нуклеарних проба извођених током шездесетих година 20. века.

Трицијум (^3H) настаје у природи превасходно интеракцијом са космичким зрацима, док је већа количина трицијума присутна у атмосфери и целом хидролошком циклусу, настао из нуклеарних експлозија 1945 -1963.

Јод се такође може наћи у природи као последица рада нуклеарних постројења, али се, као и технецијум, користи и у медицини за разне терапијске намене па се и тако може проширити по околини [4, 6].

1.1.3. Гамаспектрометрија узорака из животне средине

С обзиром на то да се природни и произведени радионуклиди налазе у нашем окружењу, логична је потреба да се контролише изложеност јонизујућем зрачењу из окружења. Зато је гамаспектрометријско мерење узорака из животне средине један од вашних праваца и физике и екологије.

При мерењу радиоактивности узорака из животне средине, срећемо се са читавим низом специфичности. Као прво, ради се углавном о ниским

активностима. Пошто се мерења врше у лабораторији која се такође налази у пољу природног радиоактивног зрачења, одвајање сигнала, тј. активности која потиче од мереног узорка и фона, тј. зрачења из околине, представља прави изазов. Основни извори фона код детекције гама зрачења су екстерна радиоактивност која потиче од грађевинског материјала просторије и земљишта, дифундовање радона из околине у детектор, секундарни фотони настали у материјалу штита детектора, евентуална контаминација гама емитерима, космички зраци и електричне сметње [4].

Већина узрока појаве фона се може у извесној мери смањити односно држати под контролом путем коришћења оловне заштите за детекторе, која би требало да буде непропустљива за екстерне изворе зрачења и космичко зрачење. Такође, правилним руковањем се контаминација детектора може потпуно елиминисати, али дифундовање радона, електричне сметње и природна радиоактивност материјала просторије и земљишта се не могу потпуно елиминисати [4]. То је разлог због којег је приликом сваког мерења узорка из животне средине, потребно извршити и мерење фона у истим условима и најзад, два добијена спектра одузети да би нам у крајњем спектру остале забележене само гама енергије које потичу од самог узорка.

Такође, ма какав узорак да је у питању, потребно је спровести припрему узорка за мерење. Припрему узорка треба посматрати као извор могуће грешке, која касније не може бити елиминисана ни најпажљивијим мерењима на најпоузданијим детекторима [4]. Појава као што је коинцидентно сумирање, тј. сабирање импулса који потичу од два узастопна распада чији је временски размак мањи од временске резолуције детектора, додатно компликује мерење и тумачење спектра. Најзад, узимајући у обзир да су узорци из животне средине углавном једињења и смеше прилично компликованог састава, па самим тим и различито интерагују са зрачењем које настаје у њима самима, калибрација ефикасности детектора треба да буде прилагођена конкретним потребама мерења.

1.2. Детектори гама зрачења

Детекција гама зрачења се заснива на ефектима јонизације или екситације атома, које зрачење производи при проласку кроз ефикасну запремину детектора. При томе, показатељи присуства зрачења су физички мерљиви параметри као што су топлота, наелектрисање, облик и дебљина трага који честица оставља при проласку кроз медијум, промена густине, хемијска или биолошка промена [6].

Интеракција фотона гама зрачења са материјом одвија се, као што је наведено, посредством три доминантна ефекта: фотоелектричног ефекта, Комптоновог расејања и ефекта стварања парова. При интеракцији гама зрачења са детекторским материјалом, енергија фотона се губи кроз ова три доминантна процеса и као резултат настају фотоелектрон, Комптонов електрон и електрон из створеног пара који имају довољно енергије да јонизују средину кроз коју пролазе стварајући електрон-јонске парове. Под утицајем електричног поља на излазу детектора ствара се струјни импулс чија је амплитуда пропорционална енергији детектованог фотона апсорбованог у активној запремини детектора [2, 3, 7]. На крају, врши се сакупљање и мерење носилаца наелектрисања или фотона светлости емитованих при деексцитацији молекула.

Основни делови детекторских система у спектрометрији γ зрачења су детектор и одговарајућа електроника. Сваки детектор карактерише густина, запремина и атомски број материјала од кога је израђен. Ове величине су повезане са вероватноћом за интеракцију γ - зрачења са детекторским материјалом и вероватноћом да целокупна енергија фотона гама зрачења буде депонована у детекторској запремини.

Типови детектора γ – зрачења који су у употреби су сцинтилациони и полупроводнички детектори.

1.2.1. Полупроводнички детектори

Због својих повољних особина, полупроводнички детектори су нашли примену у мерењу многих радијационих појава. Енергетска резолуција полупроводничких детектора је значајно већа у односу на друге типове детектора, а добра временска резолуција и прилагодљива ефективна густина медијума који

се користи, такође доприносе широкој примени овог типа детектора. Мана је потреба за константним хлађењем и склоност ка пропадању услед изложености јонизујућем зрачењу [2].

Принцип рада полупроводничких детектора се заснива на карактеристикама полупроводника и њихове кристалне структуре. Код полупроводника, релативно мала ширина забрањене зоне између валентне и проводне зоне у кристалној решетки, омогућава релативно лаку јонизацију материјала тј. продукцију парова електрон – шупљина приликом интеракције фотона са кристалом (јонизациона енергија је реда величине 3 eV). Овако настали носиоци наелектрисања се у крећу у спољашњем електричном пољу и тиме стварају електрични импулс чији интензитет је пропорционалан интензитету упадног зрачења. Тиме се остварује детекција упадних фотона као и мерење њихове енергије и интензитета.

Да би се ширина забрањене зоне још смањила, у чисти полупроводнички кристал могу бити додате примесе у виду атома елемената чији електрони заузимају нивое унутар енергетског процепа. Атоми нечистоће се могу понашати као донори или као акцептори електрона и у зависности од тога имамо полупроводнике *n* (донорског) и *p* (акцепторског) типа. Такође, могуће је спојити оба типа полупроводника, тј. полупроводних са донорским и полупроводник са акцепторским примесима и тиме добијамо детекторе са *pn* или *np* спојем [2].

Полупроводници са оваквим спојевима имају низ повољних карактеристика које се тичу надомештања носилаца наелектрисања који су одведени путем спољашњег електричног поља. У случају полупроводника са *pn* или *np* спојем, носиоци наелектрисања могу да мигрирају дуж споја и да тиме доспеју у динамичку равнотежу у којој одведено наелектрисање бива надокнађено наелектрисањем из супротног дела споја. Део простора у којем није успостављена равнотежа назива се област осиромашења (depletion region). Ова област показује неке врло интересантне карактеристике са аспекта детекције фотона.

Електрично поље које настаје услед неравнотеже међу наелектрисањима доводи до појаве да сви електрони који се нађу унутар или у близини споја, мигрирају у *n* слој, док шупљине мигрирају у *p* слој, тиме смањујући концентрацију носилаца наелектрисања у области осиромашења. Ова област ће се зато понашати као изолатор и сваки пар електрон-шупљина који у тој области

настане услед интеракције са јонизујућим зрачењем, ће бити одведен спољашњим електричним пољем тиме чинећи основни електрични сигнал у детекцији.

Ако се спољашње поље оријентише у истом смеру као што је поље унутар области осиромашења (од p ка n слоју) проводност дуж споја ће се значајно повећати и мала јачина поља ће бити довољна за провођење велике јачине струје. Ако је ситуација обрнута и спољашње поље се оријентише супротно од поља унутар области осиромашења, повећаће се отпорност дуж споја. То доводи до повећања разлике потенцијала између слојева, услед чега се дебелина области осиромашења повећава, захватајући и дубље делове p и n слојева. Тиме се повећава област унутар које се могу стварати и сакупљати наелектрисања произведена интеракцијом са јонизујућим зрачењем. Оваква конфигурација са обрнутим смером спољашњег напона је најчешћа код полупроводничких детектора [2].

Полупроводничке детекторе разликујемо по елементу од којег је направљен кристал. Детектори могу бити силицијумски и германијумски, а на основу примеса које се додају ради побољшања карактеристика кристала, разликујемо Si(Li), Ge(Li) и чисте Ge детекторе. За дати спољашњи напон већа дебелина осиромашене области (реда центиметра) се може постићи само ако је концентрација нечистоћа (пре допирања примесама) веома мала. То се може постићи компензацијом помоћу наношења Li јона на Ge кристал при чему се формирају Ge(Li)-детектори. Смањењем концентрације нечистоћа зонским рафинирањем добија се и тзв. ултра-чисти (*high purity*) германијум. Од оваквог германијума се формирају HPGe (**H**igh **P**urity **G**ermanium) детектори.

1.2.2. HPGe детектор

Неколико конфигурација HPGe детектора је развијано током година а модерни детектори су најчешће произведени у коаксијалној геометрији која обезбеђује већу активну запремину. То подразумева да је кристал германијума цилиндричног облика и да су p и n слојеви постављени коаксијално, при чему, у зависности од тога који од два слоја је ближи центру, имамо p и n тип детектора. Такође, на основу геометрије, имамо детекторе отвореног и затвореног типа (у

зависности од тога да ли је цилиндар отворен или затворен у правцу кретања фотона) и тип јаме [2].

На Слици 1.2.1 је дат шематски приказ једног детектора. Детектор је постављен на један крај металне (бакарне) шипке док се други њен део потапа у криостат напуњен течним азотом чиме се обезбеђује ефикасно хлађење детектора. Претпојачавач се директно монтира на криостат јер је важно да буде што ближе детектору да би се хладио заједно са њим и да би се тако смањили електронски шум и капацитивно оптерећење на улазу [2, 3].

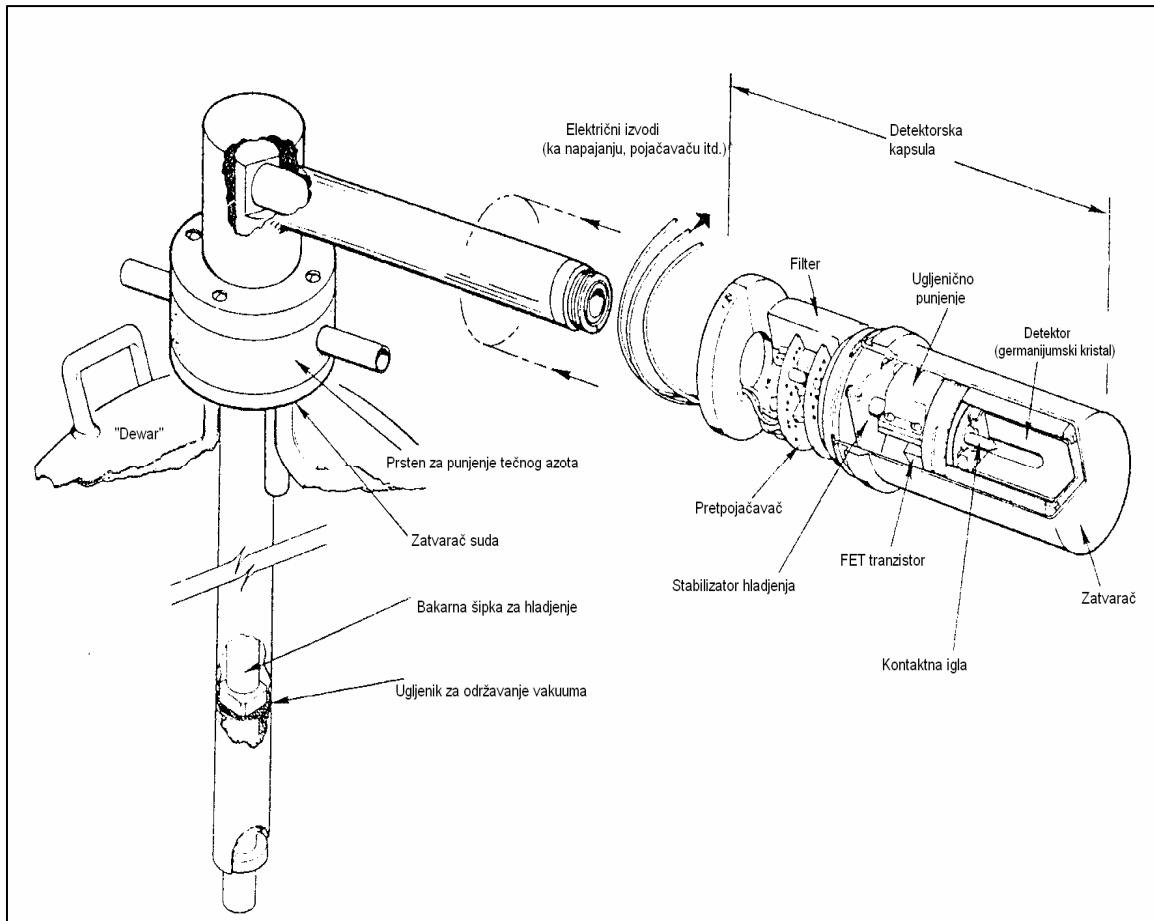
Основне карактеристике детектора су:

-Осетљивост детектора - способност детектора да произведе користан сигнал за дато зрачење и енергију. Осетљивост детектора за дати тип зрачења одређене енергије зависи од неколико фактора као што су:

1. пресек за јонизујуће интеракције у детектору,
2. маса кристала,
3. сопствени шум детектора,
4. заштитни материјал који опкољава активну запремину детектора.

Пресек и детекторска маса одређују вероватноћу да се енергија или део енергије упадног зрачења претвори у енергију јонизације унутар детектора. Јонизујући сигнал мора бити јачи од средњег шума детектора како би био идентификован као сигнал. Материјал који опкољава детектор одређује доњу границу енергије која може бити детектована [8].

-Одзив детектора - веза између енергије зрачења и висине излазног сигнала. У идеалном случају, ова веза је линеарна. За многе детекторе одзив детектора јесте линеаран заиста или бар апроксимативно у одређеном интервалу енергија [8].



Слика 1.2.1. Општа конфигурација HPGe детектора [3].

-Енергетска резолуција - функција енергије депоноване унутар осетљиве запремине детектора. Испитивањем је утврђено да је средња енергија јонизације константан број w , који зависи само од врсте материјала детектора. За депоновану енергију E , средњи број јонизација је $J=E/w$. Како енергија расте, расте и број јонизација, а релативне флукуације се смањују. Резолуција је обично дата у виду тоталне ширине на половини висине врха (FWHM - Full Width at Half Maximum). Сигнали који потичу од два фотона блиских енергија (разлика енергија мања од FWHM) се не могу раздвојити. Ако ширину линије у спектру изразимо као ΔE , онда је релативна резолуција на енергији E дата са $\Delta E/E$.

Фактори који утичу на енергетску резолуцију су статистика продукције носилаца наелектрисања, комплетност процеса сакупљања наелектрисања и електронски шум [2].

-*Ефикасност детектора* – однос брзине бројања и брзине емитовања фотона. Ефикасност детектора ће детаљно бити обрађена у поглављу 1.3.

-*Временска резолуција* - време потребно да се генерише сигнал након интеракције зрачења са детектором. У току овог периода, други догађај не може бити регистрован јер детектор није осетљив на упадно зрачење, или ће се други догађај сумирати са првим. Ефекат се зове насумично сумирање. Ова појава ограничава могућност да стваран број упадних фотона буде регистрован [8].

-*Мртво време детектора* - коначан интервал времена потребан да детектор обради догађај и обично је једнак времену трајања сигнала. У зависности од типа детектора, детектор може али и не мора бити осетљив у интервалу мртвог времена. Германијумски детектори нису осетљиви у интервалу мртвог времена, тј. свака информација о фотону који упадне у детектор у току мртвог времена је изгубљена [8].

-*Однос фото пика и Комптонове ивице (Peak-to-Compton)* је дефинисан као однос максималне амплитуде сигнала у пику тоталне апсорпције на 1332 keV и средње амплитуде сигнала у области Комптоновог расејања за извор ^{60}Co , између 1040 и 1096 keV. Овај однос расте са повећањем димензија детектора и са побољшањем енергетске резолуције.

1.2.3. Спектар-мултиканална анализа

Спектрална функција детектора зависи од биланса енергије сваке појединачне интеракције гама зрака са детекторским материјалом. Ако је укупна енергија примарних фотона и секундарних фотона (насталих услед расејања у активној запремини детектора), апсорбована, онда је биланс депоноване енергије једнак енергији упадног фотона. З том случају се као спектрална функција детектора добија пик тоталне апсорпције (“full-energy peak”).

У активној запремини детектора, расејани фотони који су стекли енергију између неке максималне енергије E^{max} и почетне енергије фотона E_{γ} могу поново да интерагују са материјалом детектора и да допринесу пику тоталне апсорпције

уколико интерагују фотоефектом. Уколико интерагују Комптоновим ефектом, тако да расејани фотони „побегну“ из активне запремине детектора, у спектру се јавља континуум између тзв. Комптонове ивице и пика тоталне апсорпције.

При креацији парова, оба анихилациона фотона могу бити апсорбована у ефикасној запремини па догађај доприноси пику тоталне апсорпције. Може се догодити да један од анихилационих фотона напусти детектор па се у спектру јавља врх на енергији $E_\gamma - m_0c^2$ (“single-escape peak”) а ако су оба анихилациона фотона напустила детектор врх се формира и на енергији $E_\gamma - 2m_0c^2$ (“double-escape peak”) [2, 3, 7].

HPGe детектори функционишу у такозваном пулсном моду, што значи да амплитуда сваког струјног импулса носи информацију о наелектрисању које се генерише приликом интеракције посматраног зрачења са материјом унутар детектора. Дистрибуција амплитуда пулсева је фундаментална информација која се користи за изучавање особина упадног зрачења као и особина самог детектора. При посматрању спектра, уочавају се пикови који представљају амплитуде које су најзаступљеније, а пошто је амплитуда пулса директно пропорционална енергији упадног фотона, то нам говори о природи упадног зрачења и може се повезати са елементом који је извор зрачења као и са његовом концентрацијом и активношћу.

Да би се спектар правилно растумачио, потребно је направити везу између амплитуде пулса и енергије упадног фотона, односно дефинисати број канала по којима ће мултиканални анализатор (МКА) као део мерног система, разврставати струјне импулсе који се сакупљају на диодама детектора. Налажење функције која повезује висину пулса односно енергију упадног фотона са бројем канала у спектру се врши енергетском калибрацијом.

Следећи корак у анализи спектра је проналажење центроиде и одређивање површине испод пика тоталне апсорпције, која је директно сразмерна броју фотона дате енергије који су детектовани. За налажење центроиде односно положаја пика тоталне апсорпције многи аутоматски програми траже други извод у тачки који на највишој тачки пика тоталне апсорпције постаје негативан. Такође, да би се избегло погрешно препознавање шума као сигнала, околина центроиде се фитује Гаусовом функцијом (чија ширина одговара FWHM) и тек када су оба критеријума задовољена, положај пика тоталне апсорпције може бити идентификован. За одређивање површине испод пика тоталне апсорпције,

односно броја пулсева, постоји такође низ процедура које се могу поделити у две групе. Прва група примењује фитовање пика тоталне апсорпције одређеном функцијом и затим интегралне у одређеним границама, док друга врши директно сумирање импулса који су детектовани у одређеној области идентификованој као пик тоталне апсорпције. У оба случаја мора се одузети допринос континуума односно шума. Подаци са обе стране пика тоталне апсорпције се користе за дефинисање континуума на који је сигнал суперпониран.

Веза између броја пулсева односно броја детектованих фотона и активности извора, односно броја емитованих фотона дефинише се као ефикасност детектора. Да би смо информације из спектра правилно превели на информације које се тичу извора (као што је концентрација радионуклида и њихова активност) потребно је извршити калибрацију ефикасности.

На основу свих наведених карактеристика спектра (енергетска и калибрација ефикасности) и након идентификације пикова тоталне апсорпције, можемо идентификовати радионуклиде присутне у мереном узорку и одредити њихову активност.

1.3 Методе калибрације ефикасности детектора

Анализа спектра, како је описано о претходном поглављу, даје положај пика тоталне апсорпције у спектру који говори о енергији детектованог фотона и на основу којег се може извршити идентификација радионуклида у посматраном узорку. Следећи корак у анализи би био да, на основу површине испод пика тоталне апсорпције, одредимо број фотона емитованих из извора. Овај корак захтева одређивање ефикасности, односно, калибрацију ефикасности детектора.

Појам ефикасност је у употреби у многим контекстима. У експерименталној физици је дефинисан као однос одговора инструмента и вредности величине које се тим инструментом мери.

У гама спектрометрији дефинишу се следећи појмови везани за ефикасност [2]:

-**релативна ефикасност** је номинална перформанса детектора представљена односом ефикасности детекције γ фотона енергија 1332 keV према ефикасности стандардног сцинтилационог детектора са кристалом NaI(Tl) величине 3x3 инча. Ова ефикасност је директно везана за геометријске карактеристике кристала у детектору и описује активну запремину детектора.

- **сопствена (intrinsic) ефикасност**, је дефинисана као однос детектованих фотона према броју фотона који падају на површину детектора. Ова ефикасност је унутрашња карактеристика детектора, која зависи од димензија и материјала од којег је кристал направљен и енергије упадног зрачења. Дефинише се као:

$$\varepsilon_{in} = 1 - e^{-\mu t} \quad (1.3.1)$$

где је μ линеарни атенуациони коефицијент за материјал детектора и t је дебљина материјала детектора.

- **тотална ефикасност** је однос свих забележених пулсева, било да потичу од расејаних фотона или фотона који су предали сву енергију кристалу детектора и укупног броја емитованих фотона

- **ефикасност у пику тоталне апсорпције** (у даљем тексту **ефикасност**) је однос детектованих фотона у пику тоталне апсорпције према броју емитованих фотона дате енергије из извора.

Ефикасност детектора у пику тоталне апсорпције зависи од више параметара:

- 1) енергије гама зрачења, димензија и конструкције детектора,
- 2) геометрије мерења односно просторног односа извор-детектор као и од
- 3) физичко-хемијских особина узорка (густина, агрегатно стање).

Обично се дефинише као производ тзв. сопствене ефикасности и ефективног просторног угла под којим детектор "види" извор [3]:

$$\varepsilon = \varepsilon_{in} \cdot \Omega_{eff} \quad (1.3.2)$$

где је ε ефикасност у пику тоталне апсорпције, ε_{in} је сопствена ефикасност, Ω_{eff} је ефективни просторни угао.

Однос тоталне и ефикасности у пику тоталне апсорпције се често наводи као карактеристика детектора $r = \varepsilon / \varepsilon_{total}$ (peak-to-total ratio).

Како се може закључити на основу једнакости (1.3.2), ефикасност детектора се може израчунати ако се познају све неопходне карактеристике детектора и мереног узорка. Ипак овај задатак је практично неизводљив у општем случају.

1.3.1 Експериментални метод

Многи проблеми који се тичу одређивања ефикасности рачунским путем (дефинисање променљивих као што су димензије кристала, густина матрикса геометрија извор-детектор) могу се превазићи тако што се ефикасност одређује експериментално. То подразумева бројање детектованих фотона емитованих из извора познатог састава и активности и рачунање односа:

$$\varepsilon_t = \frac{N}{A \cdot P_\gamma \cdot t} \quad (1.3.3)$$

где је N укупан број детектованих фотона, A је активност извора фотона у тренутку мерења, P_γ је вероватноћа емисије фотона и t је време трајања мерења.

Ако извор фотона садржи већи број различитих радионуклида који емитују фотоне различитих енергија, можемо установити функционалну зависност ефикасности од енергије и на основу те зависности рачунати ефикасност за све друге енергије према потреби.

Експериментални метод калибрације ефикасности детектора подразумева коришћење стандардних радиоактивних материјала, који су по хемијском саставу, густини и геометрији у највећој мери слични узорцима који се мере у пракси. Директно мерење различитих стандардних радиоактивних материјала који садрже изоловане емитере γ фотона, чија енергија покрива распон енергија које су од интереса за мерење и даље фитовање добијених појединачних ефикасности параметарском функцијом, даје најбоље резултате.

Треба напоменути да ефикасност зависи и од матрикса и геометрије мереног узорка. Матрикс утиче (сем у идеализованом случају тачкастог извора) на масени атенуациони коефицијент, пошто интеракције фотона са материјом унутар самог узорка доводе до смањења броја фотона који доспевају у активну запремину детектора. Геометрија извора, као и положај извора у односу на детектор, утиче на просторни угао под којим детектор види извор. Такође, уколико радионуклиди у извору доживљавају каскадни распад, тј. емитују више фотона различитих енергија, могућа је појава коинцидентног сумирања. Сви ови и други аспекти у мерењу ефикасности ће бити детаљно обрађени у наредним поглављима.

1.3.2 Аналитички метод

Идеја аналитичког метода калибрације ефикасности је да представи ефикасност детектора ε за различите геометрије, као функцију запремине и положаја узорка у односу на детектор, односно геометрије мерења. Самоапсорпција у матриксу се такође везује за димензије узорка, а зависност коефицијента самоапсорпције од материјала се представља константом која се може одредити фитовањем.

За неке идеализоване геометрије мерења где нема расејања фотона унутар извора (тачкасти извор) или детектора, ефикасност се може директно израчунати. Фотони емитовани у елементарни просторни угао $d\Omega$, кроз детектор прелазе пут x

који зависи од угла емисије. Вероватноћа интеракције дуж тог пута је $1 - e^{-\mu x}$ где је μ атенуациони коефицијент, зависан од енергије упадног фотона. Према томе, ефикасност можемо дефинисати као [2, 3]:

$$\varepsilon = \frac{1}{4\pi} \int (1 - e^{-\mu x}) d\Omega . \quad (1.3.4)$$

Интеграција се врши по просторном углу између детектора и извора.

За цилиндрични детектор радијуса R и дебљине t , и тачкасти извор који се налази на растојању d дуж осе симетрије детектора, имамо [9]:

$$\varepsilon = \frac{1}{2} \int_0^{\theta_1} \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu t}{\cos \theta}\right) \right] \sin \theta d\theta + \frac{1}{2} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu R}{\sin \theta} + \frac{\mu d}{\cos \theta}\right) \right] \sin \theta d\theta \quad (1.3.5)$$

$$\theta_1 = \tan^{-1} \frac{R}{d+t}; \theta_2 = \tan^{-1} \frac{R}{t}$$

где је θ_1 максимални угао под којим нерасејани фотон пролази кроз задњи део детектора, док за углове између θ_1 и θ_2 фотон пролази кроз стране детектора. Овај интеграл се решава нумеричким путем.

Претпоставимо да мењамо удаљеност тачкастог извора од детектора дуж осе симетрије детектора. Однос ефикасности на две различите удаљености d_0 и d , биће једнак односу просторних углова на тим удаљеностима:

$$\frac{\varepsilon(d_0)}{\varepsilon(d)} = \frac{\Omega(d_0)}{\Omega(d)} . \quad (1.3.6)$$

За детектор облика кружног диска занемарљиве дебљине, просторни угао на удаљености d је дат следећом једнакошћу [2, 3]:

$$\Omega(d) = 2\pi \left[1 - \left(1 + \frac{R_D^2}{d^2}\right)^{-\frac{1}{2}} \right] . \quad (1.3.7)$$

У овој формули (1.3.6) важи претпоставка да сопствена ефикасност детектора не

зависи од његове геометрије. Док год су удаљености извора значајно веће од радијуса детектора, оваква апроксимација може бити прихватљива.

Међутим, ако су удаљености извора поредиве са димензијама детектора, морамо увести неке измене да би апроксимација и даље била прихватљива. То можемо учинити тако што другачије дефинишемо удаљеност d . За детекторе чија дебљина није занемарљива, почетна претпоставка је да се кристал детектора може представити једном тачком – виртуелни тачкасти детектор, у којој се дешава интеракција на тзв. ефективној дубини интеракције (effective interaction depth - EID). У том случају, удаљеност d можемо представити као збир удаљености извора од капе детектора и ефективне дубине интеракције.

Да бисмо одредили ефективну дубину интеракције, означимо растојање између виртуелног тачкастог детектора и капе детектора са h_0 а удаљеност тачкастог извора од капе детектора, дуж осе симетрије детектора, са h . У том случају, $d = h + h_0$. Претпоставка да се запремина детектора може апроксимирати виртуелним тачкастим детектором смештеним на ефективној дубини интеракције, имплицира да је ефикасност за тачкасти извор на различитим висинама у односу на капу детектора, обрнуто сразмерна квадрату удаљености од те тачке. Ово је последица промене просторног угла под којим тачкасти детектор "види" извор. У неапсорбујућој средини имамо следећу зависност [10]:

$$\frac{N(h_1)}{N(h_2)} = \frac{\Omega(h_1)}{\Omega(h_2)} = \frac{(h_2 + h_0)^2}{(h_1 + h_0)^2} \Rightarrow$$

$$\sqrt{\frac{N(h_1)}{N(h_2)}} - 1 = \frac{h_2 - h_1}{h_1 + h_0} \quad (1.3.8)$$

где су $N(h_1)$ и $N(h_2)$ бројеви детектованих фотона на висинама h_1 и h_2 респективно.

Ако имамо тачкасте изворе релативно ниске активности, за једно мерење можемо одабрати да извори стоје на површини (капи) детектора, чиме се рачунање додатно поједностављује.

Ефективна дубина интеракције зависи такође и од енергије фотона, а зависност се може описти следећом једнакошћу:

$$h_0 = f(e^{E_\gamma}), \quad (1.3.9)$$

где је E_γ енергија гама фотона.

Ако имамо извор облика диска, можемо у првој апроксимацији претпоставити следећу везу између ефикасности тачкастог извора и извора облика диска [2]:

$$\frac{\varepsilon_{disk}}{\varepsilon_{point}} \approx \frac{\Omega_{disk}(d)}{\Omega_{point}(d)}, \quad (1.3.10)$$

где индекси *disk* и *point* означавају величине које се односе на извор облика диска и тачкасти извор, респективно. Да би ова апроксимација била исправна, морамо се ограничити на случај кружног и хомогеног диска занемарљиве дебљине, постављеног коаксијално у односу на детектор. Тада је просторни угао под којим се из виртуелног тачкастог детектора види извор, једнак интегралу елементарних просторних углова под којим детектор види произвољну тачку на диску [2]:

$$\Omega_{disk}(d) = \frac{2}{R_S^2} \int_0^{R_S} \Omega_{point}(r, d) r dr, \quad (1.3.11)$$

где је R_S радијус диска. За диск са униформно распоређеном активношћу, ефикасност се може представити интегралом:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{disk}(d) &= \frac{2}{R_S^2} \int_0^{R_S} \varepsilon_{point}(r, d) r dr \Rightarrow \\ \varepsilon_{disk}(d) &= \varepsilon_{point}(0, d) \frac{1 - \exp(-c(d)R_S^2)}{c(d)R_S^2}, \end{aligned} \quad (1.3.12)$$

где је $\varepsilon_{point}(0, d)$ ефикасност тачкастог извора постављеног на саму осу симетрије детектора на удаљености d и $c(d)$ је параметар који зависи од енергије фотона и удаљености.

Зависност $\varepsilon_{point}(r, d)$ од радијалне удаљености r је дефинисана као [11]:

$$\varepsilon_{point}(r, d) = \varepsilon_{point}(0, d)e^{-c(d)r^2}. \quad (1.3.13)$$

На основу ове две једнакости, долазимо до ефикасности за изворе облика диска, на основу познате ефикасности за тачкасти извор [2]:

$$\varepsilon_{disk}(d) = \varepsilon_{point}(0, d) \frac{d^2}{R_S^2} \log\left(1 + \frac{R_S^2}{d^2}\right). \quad (1.3.14)$$

Ова формула је проверавана на неколико експерименталних примера [12, 13] и нађено је слагање од 2-5%. Ипак, ове релативно једноставне процедуре по којима се ефикасност за тачкасти извор трансформише у ефикасност за изворе облика диска су апроксимације и треба очекивати извесна неслагања са експерименталним резултатима. Ово нарочито важи за ниже енергије код којих атенуација у мртвом слоју кристала као и у кућишту детектора не може бити занемарена.

У случају волуминозних извора, у принципу можемо да наставимо са сличним резонувањем као у случају извора облика диска, уз обраћање пажње на самоапсорпцију у самом извору која игра значајну улогу.

Занемаримо самоапсорпцију у следећем разматрању и претпоставимо да имамо цилиндрични извор постављен дуж осе симетрије детектора. Тада цилиндар можемо представити низом елементарних дискова занемарљиве дебљине и радијуса једнаког радијусу базе цилиндра, на раздаљинама x од детектора [2]:

$$\varepsilon_{cil} = \frac{1}{h} \int_d^{d+h} \varepsilon_{disk}(x) dx = \frac{2}{R_S^2} \frac{1}{h} \int_d^{d+h} \int_0^{R_S} \varepsilon_{point}(r, x) r dr dx, \quad (1.3.15)$$

где је

- d удаљеност дна цилиндричног извора од детектора,
- h висина извора и
- R_S полупречник основе цилиндра.

Овај интеграл се може решити нумерички, а резултат је примењив на материјале са ниском самоапсорпцијом као што су радиоактивни гасови.

Ако самоапсорпција не може бити занемарена, интегранд у двоструком интегралу треба помножити фактором $e^{-\mu s(x,r)}$, где је μ линеарни апсорпциони коефицијент матрикса извора, а $s(x,r)$ је дебљина слоја извора.

Постоји неколико поједностављења овог метода, где се на основу апроксимација и низа мерења може доћи до аналитичке формуле за рачунање ефикасности детектора за цилиндричне изворе. Сви ови методи представљају приближна решења и резултати морају бити верификовани независним мерењем узорка познате активности. У наредним редовима биће представљено неколико примера ових поједностављења.

Допринос детектованих фотона који потичу од диска дебљине dh на удаљености h од дна цилиндричног узорка постављеног на капу детектора, дат је са [14]:

$$N(h)dh = A\left(\frac{h_0}{h+h_0}\right)^2 e^{-\mu h} dh \quad (1.3.16)$$

где је A константа која зависи од концентрације радиоактивног материјала, радијуса основе цилиндра и карактеристика детектора. Интеграљењем овог израза долази се до аналитичког решења у виду бесконачног реда.

За довољно високе енергије ($>250\text{keV}$) коефицијент апсорпције може бити занемарен и израз се поједностављује. У том случају важи следећа једнакост [14]:

$$N(h)dh = \left(\frac{h_0}{h+h_0}\right)dh \Rightarrow$$

$$N(H) = \frac{Ah_0H}{h_0+H} \quad (1.3.17)$$

где је H висина целог цилиндра.

Како је већ речено, константа A зависи од радијуса цилиндра и то као [14]:

$$A(r, r+dr) = \frac{\alpha 2\pi r dr}{r^2 + h_0^2} \quad (1.3.18)$$

где је α константа пропорционална површинској концентрацији активности у узорку. Интеграцијом једнакости (1.3.18) по r од 0 до R и враћањем резултата у (3.1.17) добијамо коначно:

$$N(H) = 2\pi\alpha \frac{h_0 H}{h_0 + H} \log\left(1 + \frac{R^2}{h_0^2}\right) \quad (1.3.19)$$

Ефикасност на датој енергији се рачуна на основу израза:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{N}{tP_\gamma Ae^{-T \ln 2 / T_{1/2}}} \quad (1.3.20)$$

где је

- $\varepsilon(E_\gamma)$ ефикасност на енергији E_γ ,
- N укупан број детектованих фотона на тој енергији,
- t време мерења,
- P_γ вероватноћа емисије фотона,
- $T_{1/2}$ време полураспада радионуклида,
- T време од референтног датума до почетка мерења и
- $Ae^{-T \ln 2 / T_{1/2}}$ позната активност извора коригована на време распадања,

На основу ових података можемо направити и однос између познате ефикасности детектора за тачкасти извор и ефикасности за цилиндричну геометрију.

1.3.3. Полуемпиријски метод

Израчунавање ефикасности на основу директног математичког приступа, као што је објашњено у претходном поглављу, подразумева и нумеричко решавање одређеног броја интеграла. Ситуација се значајно компликује у ситуацији када имамо нетачкасти извор за који треба израчунати ефикасност. Сви предложени математички модели прибегавају некој врсти апроксимације, било да се детектор или извор представљају једном тачком, било да се занемарују неки

ефекти матрикса, као што је самоапсорпција. У случајевима када желимо да избегнемо ове апроксимације, постоји потреба за другачијим приступом по којем се може израчунати ефикасност за непознату геометрију.

Један од најчешће коришћених приступа је трансфер ефикасности, који је први пут предложен у радовима Моенса и других чланова Де Кортеове групе [15]. С обзиром на то да је рачунање ефикасности у пику тоталне апсорпције доста компликовано, можемо почети израчунавање од тоталне ефикасности, која се лакше добија. Претпоставка је да се тотална ефикасност може представити као:

$$\varepsilon_t = \frac{1}{4\pi} \bar{\Omega} \quad (1.3.21)$$

где $\bar{\Omega}$ - ефективни просторни угао. Ефективни просторни угао је мера вероватноће да фотон емитован из извора интерагује са активном запремином детектора и да у интеракцијама пренесе целу своју енергију материјалу детектора. Са друге стране, ефикасност у пику тоталне апсорпције можемо представити као:

$$\varepsilon = \varepsilon_f + \varepsilon_c + \varepsilon_p, \quad (1.3.22)$$

где се парцијалне ефикасности $\varepsilon_f, \varepsilon_c$ и ε_p односе на фотоефекат, Комптоново расејање и креацију парова, респективно. Аналогно дефиницији тоталне ефикасности, код ефикасности у пику тоталне апсорпције можемо такође дефинисати парцијалне ефективне просторне углове $\bar{\Omega}_f, \bar{\Omega}_c$ и $\bar{\Omega}_p$, који описују вероватноћу да фотон интерагује са кристалом детектора путем неког од ова три процеса. На основу тога имамо [15, 16]:

$$\varepsilon = \frac{1}{4\pi} (\bar{\Omega}_f + \bar{\Omega}_c k + \bar{\Omega}_p \nu), \quad (1.3.23)$$

где k и ν представљају удео у укупном броју фотона који путем узастопних Комптонових ефеката и креације парова депонују сву енергију у активној запремини детектора. Може се доказати да важи:

$$\frac{\bar{\Omega}}{\mu_t} = \frac{\bar{\Omega}_f}{\mu_f} = \frac{\bar{\Omega}_c}{\mu_c} = \frac{\bar{\Omega}_p}{\mu_p}, \quad (1.3.24)$$

где μ_t представља тотални линеарни атенуациони коефицијент док су μ_i атенуациони коефицијенти за i -ти процес. Одатле следи:

$$\varepsilon = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\mu_f + \mu_c k + \mu_p v}{\mu_t} \right) \bar{\Omega} = \frac{1}{4\pi} \frac{P}{T} \bar{\Omega} = \frac{P}{T} \varepsilon_t \quad (1.3.25)$$

где $\frac{P}{T}$ представља "виртуелни" однос пик тоталне апсорпције/Комптон, који се односи на огољени детектор, дакле без кућишта, мртвог слоја итд. С обзиром на то да се овај однос не може добити експерименталним путем, али да је са друге стране дефинисан искључиво као карактеристика детектора, претпоставља се да он остаје непромењен у различитим конфигурацијама детектор – извор.

На основу свега претходног, полуемпиријско одређивање ефикасности (у пику тоталне апсорпције) за произвољну геометрију се изводи на следећи начин:

1) За тачкасте изворе на одређеној удаљености од детектора (референтна конфигурација) се експериментално утврди ефикасност ε_{ref} на више енергија и одреди се калибрациона крива. Овај поступак је стандардан и биће објашњен у поглављу 2.1 Експериментална калибрација.

2) Израчуна се $\bar{\Omega}$ за ову референтну конфигурацију, и затим за другу конфигурацију за коју желимо да извршимо калибрацију ефикасности.

3) Ефикасност ε_x за произвољну конфигурацију и произвољну енергију се рачуна као:

$$\varepsilon_x = \varepsilon_{ref} \frac{\bar{\Omega}_x}{\bar{\Omega}_{ref}} \quad (1.3.26)$$

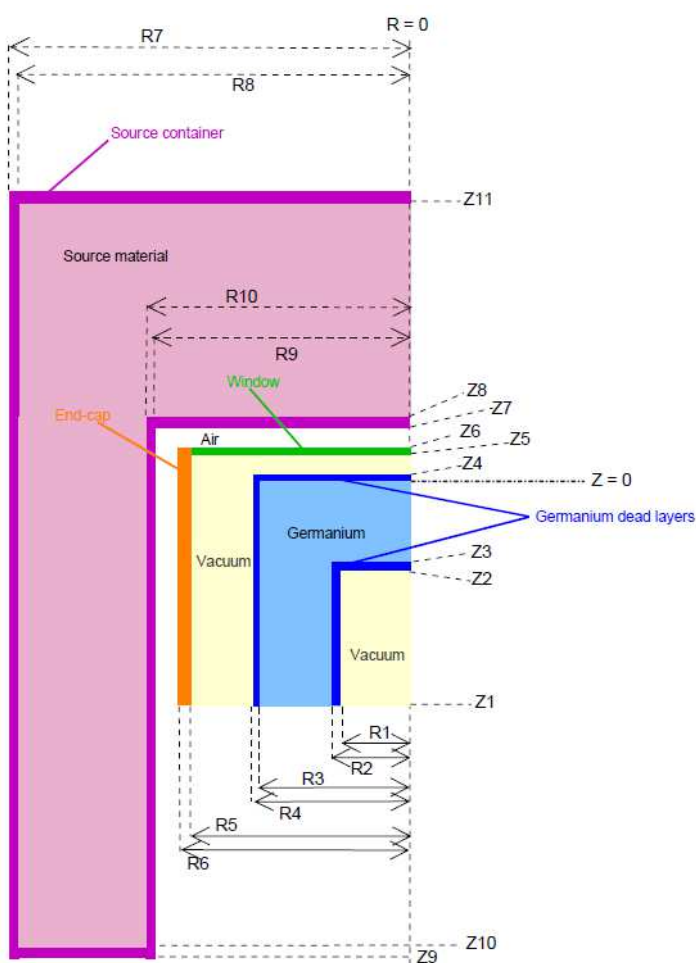
што у основи представља трансфер ефикасности од познате (референтне) до произвољне конфигурације.

Основни задатак је одредити ефективни просторни угао. Како је речено у претходном поглављу, просторни угао под којим се из детектора види цилиндрични извор се може, у поларним координатама написати као:

$$\Omega = \frac{4}{r_0^2 H} \int_0^H (d+h) dh \int_0^{r_0} r dr \int_0^\pi d\varphi \cdot \int_0^{R_0} \frac{R dR}{(R^2 - 2Rr \cos \varphi + r^2 + (d+h)^2)^{3/2}}, \quad (1.3.27)$$

где су

- r , h и φ поларне координате,
- H - висина извора,
- d - удаљеност дна извора од капе детектора,
- r_0 - полупречник извора и
- R_0 - полупречник детектора.



Да бисмо добили ефективни просторни угао, морамо геометријски просторни угао кориговати одређеним факторима. Први од њих је фактор атенуације фотона у свим слојевима кроз које он пролази [16]:

$$F_{att} = \exp\left(-\sum_{i=1}^m \mu_i \delta_i\right) \quad (1.3.28)$$

где су μ_i линеарни атенуациони коефицијенти за поједине средине и δ_i је средњи слободни пут фотона кроз i -ту средину.

Други фактор дефинише вероватноћу да емитовани фотон падне на активну запремину детектора и да интерагује са материјом пре него што је напусти и дат је изразом [16]:

$$F_{eff} = (1 - e^{-\mu_d \Delta_1}) + (1 - e^{-\mu_d \Delta_2}) e^{-\mu(\eta + \Delta_1)}, \quad (1.3.29)$$

где је μ_d линеарни атенуациони коефицијент за материјал детектора,
- Δ_1 и Δ_2 средњи слободни пут фотона пре и после проласка кроз језгро кристала и
- η средњи слободни пут фотона кроз језгро кристала.

На основу тога, израз за ефективни просторни угао гласи:

$$\bar{\Omega} = \frac{4}{r_0^2 H} \int_0^H (d+h) dh \int_0^{r_0} r dr \int_0^\pi d\varphi \cdot \int_0^{R_0} \frac{F_{att} F_{eff} R dR}{(R^2 - 2Rr \cos\varphi + r^2 + (d+h)^2)^{3/2}}. \quad (1.3.30)$$

На слици 1.3.1 приказан је попречни пресек детектора са означеним слојевима кроз које фотон пролази.

Основни проблем у овом интегралу је израчунавање средњих слободних путева и овај рачун је основни део свих полуемпиријских програма који врше трансфер ефикасности. За случај тачкасто гизвора или извора облика диска, рачуна се 12 таквих трајекторија, док се за случај цилиндричног извора, рачуна 14 трајекторија. Пошто се ефективни просторни угао не може израчунати нумерички, користи се Gauss-Legendre интеграција, где се решење интеграла представља сумом полинома, како је дефинисано у изразу:

$$\int_a^b f(x)dx = \frac{b-a}{2} \sum_{i=1}^n w_i f(x_i) \quad (1.3.31)$$

$$f(x_i) = \frac{b-a}{2} x_i + \frac{b+a}{2}$$

где су x_i и w_i редом коренови Лежандрових полинома и тежински фактор, који зависе од корака интеграције. У општем случају, довољно је 32 итерације за постизање резултата [16].

1.3.4 Монте Карло метод

Монте Карло (МК) методе чине ону грану експерименталне математике која се бави експериментима са случајним бројевима. У последњим деценијама ове методе су нашле широку примену у различитим наукама и областима истраживања, међу којима је све истакнутија нуклеарна физика. Име и систематска употреба МК метода датира још од 1944. године, када је овај приступ нашао примену у истраживањима везаним за конструкцију атомске бомбе [17].

Ово истраживање је било засновано на директној симулацији пробабилистичког понашања неутрона у фисионој средини. Могућност примене МК метода на детерминистичке процесе су први уочили Ферми, фон Нојман и Улам и искористили је приликом тражења својствених функција као решења Шредингерове једначине. Процеси који се изучавају у оквиру нуклеарне физике спадају у пробабилистичке, јер су закони по којима се понашају честице у језгру по природи пробабилстички. Са друге стране, интеракције зрачења са материјом су описане детерминистичким законима, али прибегавање МК методи олакшава решавање комплексних математичких проблема.

Идеја МК метода је да сваки рачун који води до квантитативног резултата можемо схватити као процену вредности неког вишеструког интеграла. Дакле резултат, који можемо приказати као векторску функцију $\mathbf{R}(\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_N)$ N случајних бројева ξ_i , у ствари можемо посматрати и као процењену вредност – естиматор θ , интеграла $\int_0^1 \dots \int_0^1 f(x_1, x_2, \dots, x_N) dx_1 dx_2 \dots dx_N$ [18].

Ако су $\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_N$ независни случајни бројеви са правоугаоном расподелом у интервалу од 0 до 1, онда се вредности $f_i = f(\xi_i)$ могу сматрати независним

варијацијама вредности функције са очекиваном вредношћу θ . Тада је $f = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n f_i$

и варијанса је $\frac{1}{n} \int_0^1 (f(x) - \theta)^2 dx = \frac{\sigma^2}{n}$.

Другим речима, узимамо n случајних тачака и проверавамо колико њих се налази испод криве $f(x)$. По закону великих бројева, средња вредност ће се све више приближавати тачној вредности како повећавамо број n [18].

Такође, у било ком тренутку, уколико нам је позната, можемо функцију случајног броја заменити тачном вредношћу, чиме смањујемо одступање од коначног тачног резултата и смањујемо број n потребан да се довољно приближимо тачном резултату. Варијанса, односно одступање процењене од тачне вредности је независно од функције $f(x)$ и за довољно велики број n , тежи нормалној дистрибуцији са средњом вредношћу 0 и једничном стандардном девијацијом.

Постоје различите варијанте и примене МК метода, али све у принципу прате следеће кораке:

- дефинише се домен улазних величина,
- дефинише се дистрибуција вероватноће у домену. На основу те дистрибуције се генеришу случајни бројеви.
- изводи се детерминистичко рачунање, тј. $f_i = f(\xi_i)$
- резултати се сакупљају и врши се процена тачне вредности и варијансе.

МК метод не захтева увек праве случајне бројеве. Многе од често употребљаваних техника користе псеудо случајне бројеве, који се заправо генеришу на основу детерминистичке расподеле. То олакшава тестирање и понављање симулација. Једино је потребно да тако генерисани бројеви буду "довољно случајни" тј. да задовоље одређени статистичке тестове, као што је униформна расподела или нека друга расподела задата по интервалу, слаба корелација између узастопних тачака или секвенци итд [18].

Са друге стране, велики број проблема који се решавају применом МК метода, не подразумева интеграљење функције. Много чешће се овај метод користи за симулацију физичких феномена. У овом смислу, МК можемо дефинисати као "експеримент" који се изводи дигитално, на компјутеру, а који опонаша неки физички процес [18].

У многим апликацијама, физички процес се директно симулира и није потребно чак ни написати диференцијалне једначине које описују стање и понашање физичког система. Једино је потребно описати систем функцијом густине вероватноће. На основу те функције се затим изводи велики број симулација догађаја (покушаји, историје честица) и жељени резултат се добија као средња вредност великог броја опсервација. У неким ситуацијама је могуће предвидети варијансу овакве средње вредности и самим тим предвидети број симулација неопходан за постизање резултата жељене тачности.

Компоненте МК симулације су :

- дистрибуција вероватноће путем које се дефинише стање физичког система
- генератор случајних бројева који морају бити униформно расподељени по задатом интервалу
- правило избора по којем се случајни бројеви из интервала бирају по задатој дистрибуцији вероватноће
- евидентирање резултата симулација појединачних догађаја
- процена статистичке грешке – варијансе као функције броја симулираних догађаја
- редукција варијансе на основу различитих техника и
- векторизација – алгоритам који омогућава примену компјутера у обављању МК симулације [18].

Дифузија или транспорт честица емитованих из извора зрачења кроз дату средину, описује се линеаризованом транспортном једначином, коју је први увео Болцман око 1870. године. Ова једначина је општег карактера и тешко се решава.

Аналитичка решења су позната само у апроксимацији хомогеног моноенергетског извора бесконачних димензија и апсолутно апсорбујуће средине. У већини практичних ситуација, просторна дистрибуција, енергија и правац зрачења не могу се израчунати аналитичким путем. Понекад се нумеричке апроксимације користе у сврху одређивања поља зрачења или одзива детектора, али такве детерминистичке методе су применљиве само у случају релативно једноставне геометрије система. МК метод пружа веома практичан начин за одређивање одзива детектора за произвољну геометрију и за компликована поља зрачења. Уз чињеницу да је компјутерска технологија у данашње време веома

напредна, то ставља МК метод у ред најчешће коришћених метода за одређивање функције одзива детектора и транспорта зрачења кроз материју.

Спектрална функција одзива детектора се може представити следећом стандардном једначином [18]:

$$R(E) = S_0 \int_0^{\infty} \chi(E_0) K(E_0 \rightarrow E) dE_0, \quad (1.3.32)$$

где је

- S_0 број честица емитованих из извора које падају на детектор у току времена бројања,
- $\chi(E_0)$ функција густине вероватноће која дефинише дистрибуцију честица по енергијама,
- $K(E_0 \rightarrow E)$ функција одзива детектора на енергији E услед интеракције са зрачењем енергије E_0 из јединичног извора и
- $R(E)$ одзив детектора на енергији E по јединици енергије.

За податке који се добијају преко мултиканалног анализатора, ова једнакост се обично преписује у дискретној форми:

$$c_i = S_0 \sum_{j=1}^J \chi_j K_{j \rightarrow i}, 1 = 1, 2, \dots, N, \quad (1.3.33)$$

где је c_i број пулсева у каналу i за време бројања, N је број канала, χ_j је дискретна функција густине вероватноће која даје број упадних честица у j -том интервалу енергија, J је број интервала енергије који разматрамо, и $K_{j \rightarrow i}$ је матрица одзива детектора која описује вероватноћу да честица a енергије у интервалу j произведе пулс у i - том каналу.

Овакав запис предвиђа и ситуацију да нпр. упадни фотон енергије 1 MeV може произвести струјни импулс у било ком каналу испод оног који се односи на 1 MeV и, због коначне енергетске резолуције детектора, у неколико канала изнад те енергије.

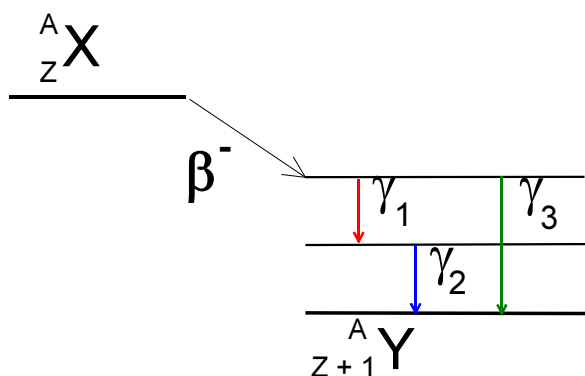
Анализа спектра се углавном заснива на одређивању броја пулсева односно фотона у пику тоталне апсорпције и повезивању тог броја са активношћу

извора. Међутим, овим бива изостављен читав низ корисних информација садржаних у остатку спектра. У последњој деценији [19], употреба МК симулација за одређивање одзива детектора је револуционализовала анализу спектра и проширило наше могућности у том пољу.

1.4. Корекције на коинцидентно сумирање

Емисија гама зрачења је последица распада који језгро доводи у различита побуђена стања. У већини случајева, деекситација побуђених нивоа језгра се дешава каскадно, тј. из једног језгра бива емитовано више фотона различитих енергија. Средње време живота побуђених стања варира од неколико дана до пикосекунде (у већини случајева), што је знатно краће од временске резолуције детектора.

У случају детекције радионуклида са комплексном шемом распада и када је време живота побуђених нивоа знатно краће од временске резолуције детектора, резултат је симултана детекција импулса из каскадних прелаза. Овај феномен се назива право коинцидентно сумирање. Слична ситуација се јавља када фотони емитовани из два различита језгра доспевају до детектора у временском размаку краћем од временске резолуције детектора. Ова појава се назива случајно коинцидентно сумирање и врло ретко се јавља код детекције гама зрачења ниских активности какав је случај код узорака из животне средине.



Слика 1.4.1. Пример шеме распада радионуклида са два побуђена нивоа.

Право коинцидентно сумирање (у даљем тексту коинцидентно сумирање) има два типа ефеката на спектар зрачења: губитак импулса у одговарајућим пиковима тоталне апсорпције и појава додатних пикова тоталне апсорпције у спектру, на енергији која одговара збиру енергија фотона који коинцидирају.

У основном случају радионуклида са два побуђена нивоа (пример дат на Слици 1.4.1.), број детектованих фотона се дефинише изразом [20]:

$$N_{10} = A \cdot \frac{P_{10}}{1 + \alpha_{10}^T} \cdot \varepsilon_{10}^T, \quad (1.4.1)$$

где је

- N_{10} број импулса у детектору који су резултат тоталне апсорпције фотона енергије E_{10} (прелаз са 1. побуђеног на нулти ниво),
- A је активност извора,
- P_{10} је вероватноћа прелаза,
- α_{10}^T је коефицијент тоталне интерне конверзије и
- ε_{10}^T је ефикасност детектора на енергији E_{10} .

У пракси, вероватноћа сумирања линија γ_{21} и γ_{10} резултује губитком импулса на енергији E_{10} . Број изгубљених импулса је пропорционалан броју емитованих фотона који су депоновали целокупну енергију у детектору (пик тоталне апсорпције), вероватноћи коинциденције фотона γ_{21} и γ_{10} и вероватноћи детекције (тотална ефикасност детектора). У крајњем резултату имамо следећи број импулса [20]:

$$N'_{10} = N_{10} - \Delta N_{10} = N_{10} \cdot \left[1 - \frac{P_{21}}{T_1(1 + \alpha_{21}^T)} \cdot \varepsilon_{21}^T \right], \quad (1.4.2)$$

где је T_1 сума вероватноћа прелаза са и на ниво 1.

Корекциони фактори C_{10} и C_{21} којима коригујемо број емитованих фотона односно површине испод пика тоталне апсорпције који одговарају енергијама E_{10} и E_{21} респективно, дефинишу се следећим изразима [2, 20]:

$$C_{10} = \left[1 - \frac{P_{21}}{T_1(1 + \alpha_{21}^T)} \cdot \varepsilon_{21}^T \right]^{-1}$$

$$C_{21} = \left[1 - \frac{P_{10}}{T_1(1 + \alpha_{10}^T)} \cdot \varepsilon_{10}^T \right]^{-1} \quad (1.4.3)$$

Са друге стране, у пику тоталне апсорпције који одговара енергији E_{20} , биће регистровано више импулса него што је заиста емитовано [2, 20].

$$N'_{20} = N_{20} + \Delta N_{20}$$

$$\Delta N_{20} = A \cdot \frac{P_{21}}{1 + \alpha_{21}^T} \cdot \varepsilon_{21}^P \cdot \frac{P_{10}}{T_1(1 + \alpha_{10}^T)} \cdot \varepsilon_{10}^P \quad (1.4.4)$$

где је ΔN_{20} представља импулсе који су резултат симултане апсорпције фотона енергија E_{10} и E_{21} док су ε_{21}^P и ε_{10}^P ефикасности детектора на одговарајућим енергијама. Корекциони фактор за пик тоталне апсорпције на енергији E_{20} износи:

$$C_{20} = \left[1 + \frac{P_{21} \cdot P_{10}}{T_1 \cdot P_{20}} \cdot \frac{1 + \alpha_{20}^T}{(1 + \alpha_{21}^T) \cdot (1 + \alpha_{10}^T)} \cdot \frac{\varepsilon_{21}^P \cdot \varepsilon_{10}^P}{\varepsilon_{20}^P} \right]. \quad (1.4.5)$$

Ови изрази се односе само на корекције везане за коинциденцију гама фотона и то у ситуацији кад их емитује тачкасти извор. У случају цилиндричних извора, производе појединачних ефикасности замењујемо одговарајућим интегралима по запремини извора.

Осим тога, могуће су и коинциденције X фотона са гама фотонима и X фотона међусобно. Ово проширење доводи до знатне компликације рачуна за радионуклиде са веома комплексном шемом распада која садржи бројне каскадне прелазе.

Величина корекционих фактора зависи од експерименталне поставке, типа детектора и извора и расте са порастом ефикасности. Зато су ефекти коинцидентног сумирања од специјалног значаја у мерењу узорака из животне средине где се примењују детектори са великом ефикасношћу, узорци се мере у контактної геометрији када је коинциденција најизраженија и природни радионуклиди углавном имају комплексне шеме распада [21].

Неколико различитих метода за рачунање корекционих фактора за коинцидентно сумирање је развијано током година. Ови методи се заснивају на различитим приступима, од експерименталног одређивања до Монте Карло симулација [22, 23]. У овом раду ће за израчунавање корекционих фактора бити

коришћен програм EFFTRAN, модул Coincidence Summing Corrections. Овај програм омогућава израчунавање корекционих фактора за специфичну геометрију детектора и секундарног референтног материјала и специфични матрикс.

2. Методе и материјали

У овом поглављу ће бити конкретно и детаљно представљене све методе које су коришћене за калибрацију детектора у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке Винча. Такође, биће речи и о материјалима који су коришћени за мерења, њиховој припреми и карактеристикама. У оквиру сваке методе, биће дефинисана мерна несигурност резултата те методе, дефинисањем буџета мерне несигурности и сваког појединачног доприноса.

2.1. Експериментални метод

Експериментални метод калибрације ефикасности детектора подразумева коришћење референтних радиоактивних материјала, који су по хемијском саставу, густини и геометрији у највећој мери слични узорцима који се мере у пракси. Директно мерење различитих калибрационих извора који садрже појединачне емитере γ фотона, чија енергија покрива распон енергија које су од интереса за мерење и даље фитовање добијених појединачних ефикасности параметарском функцијом, даје најбоље резултате [24].

У Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке Винча, експериментални метод калибрације детектора је примаран. С обзиром на велику разноврсност узорака који се редовно мере у лабораторији, експериментална калибрација подразумева мерење секундарних референтних материјала различитих геометрија и матрикса.

Од примарног референтног радиоактивног материјала, 5ml радиоактивног раствора, произвођача Czech Metrological Institute из Прага, направљен је сет секундарних референтних материјала. Садржај радиоактивног раствора по елементима и њихове специфичне активности, дате су у табели 2.1.1.

-Примарни референтни материјал бр. 1: сертификат бр.9031-OL-427/12, ERX Prod no.170712-1374036; запремина OR је 4.987 ml, масе 5.3109 g са додатим ^{210}Pb , Чешког Метролошког Института укупне активности 72.4 kBq на референтни датум 31.08.2012.

-Примарни референтни материјал бр 2: сертификат бр. 9031-OL-426/12, ERX Prod no.170712-1374034; запремина OR је 4.998 ml, масе 5.3234 g, Чешког Метролошког Института, укупне активности 38.02 kBq на референтни датум 31.08.2012.

Табела 2.1.1. Садржај примарног референтног материјала по елементима и њихове специфичне активности

	Примарни референтни материјал: сертификат бр.9031-OL-427/12	Примарни референтни материјал: сертификат бр. 9031-OL-426/12
	A [Bq/kg]	A [Bq/kg]
²⁴¹ Am	624.4 ± 2.5	632.9 ± 2.5
¹⁰⁹ Cd	2868 ± 29	2907 ± 29
¹³⁹ Ce	186.2 ± 0.9	188.7 ± 0.9
⁵⁷ Co	155.8 ± 0.8	158.0 ± 0.8
⁶⁰ Co	474.8 ± 2.4	481.2 ± 2.4
¹³⁷ Cs	345.3 ± 2.0	352.6 ± 2.1
²⁰³ Hg	313 ± 6	354.4 ± 7.0
¹¹³ Sn	578.4 ± 12.7	550 ± 12
⁸⁵ Sr	797.0 ± 4.8	757.8 ± 4.5
⁸⁸ Y	799.4 ± 4.0	760.1 ± 3.8
²¹⁰ Pb	6490 ± 65	/

2.1.1. Прављење секундарних референтних материјала

Секундарни референтни радиоактивни материјали пружају могућност да се према потребама варира густина и ефективни атомски број матрикса који користимо за калибрацију ефикасности детектора. Да би се ово постигло може се произвести матрикс контролисане густине и атомског броја (скупа и непрактична процедура). Други начин прављења секундарних референтних материјала

подразумева коришћење природних материјала који су нам доступни и који симулирају реалну ситуацију – мерење узорака из животне средине.

Материјали који се користе као матрикс за секундарне референтне материјале треба да задовоље неколико критеријума [25]:

1) материјали треба да буду погодних механичких карактеристика, тј. да је могуће самлети их и просејати, тако да се добије што хомогенија гранулација. Самлевени материјал треба да буде растресит и да се не слепљује. Честице материјала не треба да се распршују услед фрикције и мешања након додавања активних супстанци, транспорта и пребацивања у различите амбалаже;

2) материјали треба да имају ниску хигроскопност, тј. да не мењају густину стајањем, услед апсорпције влаге из ваздуха;

3) материјали треба да везују активне супстанце на површини честица тако да не долази до редистрибуције активности;

4) уколико се користе органске материје, оне треба да буду отпорне на оксидацију и стерилизацију гама зрачењем.

За потребе калибрације ефикасности нашег мерног система, матрикси и геометрије секундарних референтних материјала су бирани тако да на најбољи могући начин реплицирају матриксе и геометрије узорака из животне средине који се редовно мере у лабораторији. Матрикси који су одабрани су: аеросол, песак, земља, активни угаљ, минерализована трава и вода. Сви секундарни референтни материјали су припремани у Лабораторији за нуклеарну и физику плазме Института за нуклеарне науке Винча.

Од примарног референтног радиоактивног материјала бр.1, направљени су следећи секундарни референтни радиоактивни материјали:

1. аеросол у геометрији фиоле од 50 ml, $m = 4.22$ g, у даљем тексту **аеросол**;
2. трава у геометрији цилиндричне посуде од 120 ml, напуњене са укупно $m = 6.03$ g матрикса, у даљем тексту **трава 1**;
3. трава у геометрији цилиндричне посуде од 120 ml, напуњене са укупно $m = 26.07$ g матрикса, у даљем тексту **трава 2**;
4. земља у геометрији цилиндричне посуде од 120 ml, напуњене са $m = 152.78$ g матрикса, у даљем тексту **земља 1**;

5. земља у геометрији цилиндричне посуде од 250 ml, напуњене са $m = 322.32$ g матрикса, у даљем тексту **земља 2**;
6. активни угаљ у геометрији цилиндричне посуде од 120 ml, напуњене са $m = 50.37$ g матрикса, у даљем тексту **угаљ 1**.

Од примарног референтног радиоактивног материјала бр 2, направљени су следећи секундарни референтни радиоактивни материјали:

1. водени раствор у геометрији цилиндричне боце од 120 ml, напуњене са $m = 114.97$ g матрикса, у даљем тексту **вода 1**;
2. водени раствор у геометрији цилиндричне боце од 250 ml, напуњене са $m = 202.37$ g матрикса, у даљем тексту **вода 2**;
3. песак у геометрији цилиндричне посуде од 120 ml, напуњене са укупно $m = 176.67$ g матрикса, у даљем тексту **песак 1**;
4. песак у геометрији цилиндричне посуде од 250 ml, напуњене са укупно $m = 384.04$ g матрикса, у даљем тексту **песак 2**;
5. активни угаљ у геометрији цилиндричне посуде од 250 ml, напуњене са $m = 113.79$ g матрикса, у даљем тексту **угаљ 2**.

Свакодневним сакупљањем аеросола из приземног слоја атмосфере, на мерном месту Метеоролошки стуб у Институту Винча, системом за узорковање аеросола F&J Specialty Products Ocala Florida prod.no. 240-33680/2013, протока $142-1133 \text{ m}^3/\text{h}$, направљен је збирни месечни узорак. Након минерализације узорка на температури од 450°C узорак је коришћен као матрикс за секундарни референтни материјал аеросол.

Песак, коришћен за секундарне референтне материјале песак 1 и песак 2, сакупљен је на локацијама у Београду. Припрема овог матрикса се састојала од сушења на собној температури, просејавања кроз сито и одмеравања у одређене геометрије.

Земља, коришћена за секундарне референтне материјале земља 1 и земља 2, припремљена је у складу са захтевима МААЕ и стандардом ISO 17025. Прикупљено је приближно 5 килограма земље и очишћено од механичких нечистоћа (каменчићи, делови биљака и др). Целокупна количина земље је осушена на 105°C , затим хомогенизована мешањем у порцеланском авану и просејана [26].

Матрикс коришћен за секундарне референтне материјале угаљ 1 и угаљ 2, није посебно припреман.

Матрикс коришћен за секундарне референтне материјале трава 1 и трава 2, је биљна култура сакупљена у околини термоелектрана. Након сушења у сушници на 105⁰С биљна култура је минерализована у пећи за жарење на 450⁰С да би се из матрикса отклониле све органске компоненте.

Као водени матрикс коришћена је дејонизована вода произведена у лабораторији.

Припрема секундарних референтних материјала се одвијала према препорукама МААЕ [27].

Припрема секундарних референтних материјала земља 1, земља 2, аеросол, трава 1, трава 2, песак 1 и песак 2, извршена је на основу референце [27] и обухватила је следећу процедуру:

- 50 mg активног угља је коришћено као носач.
- 200 µl стандардног радиоактивног раствора је микропипетом накапано на носач и затим остављено да се осуши на собној температури.
- Након сушења, носач је додат у целокупну количину матрикса.
- Проверена је активност испразњене амбалаже у којој је носач сушен мерењем на NaI(Tl) сцинтилационом бројачу. У овом случају, губитак активности је био занемарљив (< 0.01%) што указује на то да је дошло до везивања свих јона из стандардног радиоактивног раствора за носач.
- Матрикс са додатим носачем је хомогенизован мешањем.
- Хомогеност матрикса је тестирана мерењем случајно изабраних делова укупног узорка и показало се да је нехомогеност мања од 2% [26].

У случају секундарног референтног радиоактивних материјала вода 1, вода 2, угаљ 1 и угаљ 2, одређена количина стандардног радиоактивног раствора је накапана директно у матрикс а затим је извршена хомогенизација механичким мешањем и одмеравање у геометрију мерења.

Посебна пажња је посвећена висини пуњења секундарних референтних материјала. С обзиром на то да су матрикси узети из животне средине, присуство природних радионуклида уранијумовог низа условљава и појаву краткоживећих потомака, нарочито радона ²²²Rn. Овај радиоактивни гас еманира из узорка и накупља се у слободном простору геометрије који није заузет матриксом.

Делимични губитак гаса кроз микроскопске отворе у геометрији би условио промену почетне концентрације активности у узорку и тиме увео мерну несигурност. Да би се ово избегло, амбалажа у коју је смештен матрикс земље и песка је пуњена до врха чиме се смањила запремина у којој би се радон задржавао.

Такође, секундарни референтни материјали који садрже ове матриксе су затупани пчелињим воском и остављени у лабораторији 28 дана, до постизања радиоактивне равнотеже.

У матриксу траве и аеросоли, постоји природно присуство космогеног радионуклида берилијума 7. Ови секундарни референтни материјали направљени су од узорака старијих од 6 месеци, тако да је, услед природног распада, ^7Be елиминисан из матрикса и не постоји могућност интерференције гама фотона ^7Be са елементима из стандардног раствора.

С обзиром на то да поједини матрикси, као што су земља, песак и аеросол, садрже и одређену концентрацију природних радионуклида, уз секундарне референтне материјале потребно је направити и бланк узорке. То су узорци који су истог хемијског састава и геометрије као секундарни референтни материјали али без стандардног радиоактивног раствора. Механичка припрема и пуњење бланк узорака изведена је на исти начин као и припрема секундарних референтних материјала.

Карактеристике секундарних референтних материјала, као што је густина, хемијски састав, геометрија и накапана ативност по радионуклиду, дате су у табелама 2.1.2. и 2.1.3. Наведена густина секундарних референтних материјала је одређена на основу густине бланк узорака и представља тзв. густину паковања. Густина паковања представља количник запремине коју матрикс заузима у геометрији и масе матрикса и може бити различит од специфичне тежине матрикса.

Табела 2.1.2 Геометрија, хемијски састав и густина секундарних референтних материјала произведених у Лабораторији.

Секундарни референтни материјал	Геометрија мерења	Хемијски састав	Густина [g/cm ³]
Угаљ 1	Цилиндар 120ml	C 100%	0.486
Земља 1	Цилиндар 120 ml	SiO ₂ 90.00% Ca 1.00% K 4.00% Fe 1.00% C 4.00%	1.381
Песак 1	Цилиндар 120 ml са 176.67 g матрикса	SiO ₂	1.591
Угаљ 2	Цилиндар 250 ml са 113.79 g матрикса	C 100%	0.454
Земља 2	Цилиндар 250 ml	SiO ₂ 90.00% Ca 1.00% K 4.00% Fe 1.00% C 4.00%	1.426
Песак 2	Цилиндар 250 ml са 384.04 g матрикса		1.556
Трава 1	Цилиндар 120 ml са 6.03 g матрикса	C 99% , Остало 1%	0.30
Трава 2	Цилиндар 120 ml са 26.07 g матрикса	C 99% Остало 1%	0.256
Вода 1	Боца 120 ml са 114.97 g матрикса	H ₂ O 100%	1.012
Вода 2	Боца 250 ml са 202.37 g матрикса	H ₂ O 100%	1.011
Аеросол	Фиола 50 ml са 4.22 g матрикса	SO ₄ 15.00% NH ₄ 15.00% NO ₃ 15.00% CH 50.00%	0.572

Табела 2.1.3 Активност радионуклида у секундарним референтним материјалима. [26].

Секундарни референтни материјал	A [Bq/kg]										
	²⁴¹ Am	¹⁰⁹ Cd	¹³⁹ Ce	⁵⁷ Co	⁶⁰ Co	¹³⁷ Cs	²⁰³ Hg	¹¹³ Sn	⁸⁵ Sr	⁸⁸ Y	²¹⁰ Pb
Угаљ 1	332.4±2.1	1526.7±17.1	99.1±0.7	82.9±0.6	252.8±1.8	183.8±1.4	166.6±3.4	307.9±6.9	424.3±3.3	425.5±3.0	3454.9±38.6
Земља 1	408.1±2.6	1874.3±21.0	121.7±0.9	101.8±0.7	310.3±2.2	225.7±1.8	204.5±4.2	378.0±8.5	520.8±4.1	522.4±3.7	4241.3±47.4
Песак 1	352.9±2.3	1620.8±18.1	105.2±0.7	88.1±0.6	268.3±2.0	196.6±1.5	197.6±4.1	306.7±7.0	422.5±3.3	423.8±3.0	/
Угаљ 2	429.3±2.7	1971.9±22.0	128.0±0.9	107.2±0.8	326.4±2.3	239.2±1.9	240.4±5.0	373.1±8.4	514.0±4.0	515.6±3.6	/
Земља 2	430.6±2.8	1977.6±22.1	128.4±0.9	107.4±0.8	327.4±2.3	238.1±1.9	215.8±4.4	398.8±9.0	549.6±4.3	551.2±3.9	4475.2±50.0
Песак 2	434.7±2.8	1996.9±22.3	129.6±0.9	108.5±0.8	330.5±2.3	242.2±2.0	243.4±5.0	377.8±8.5	520.5±4.1	522.1±3.7	/
Трава 1	381.8±2.4	1753.6±19.6	113.9±0.8	95.3±0.7	290.3±2.1	211.1±1.6	191.4±4.0	353.7±8.0	487.3±3.8	488.8±3.5	3968.3±44.4
Трава 2	388.6±2.5	1785.0±20.0	115.9±0.8	97.0±0.7	295.5±2.1	214.9±1.7	194.8±4.0	360.0±8.1	496.0±3.9	497.5±3.5	4039.2±45.2
Вода 1	516.7±2.1	2373.2±23.7	154.0±0.8	129.0±0.6	393.0±2.0	287.9±1.7	289.3±5.8	449.0±9.9	618.6±3.7	620.5±3.1	/
Вода 2	640.9±2.6	2943.9±29.4	191.1±1.0	160.0±0.8	487.3±2.4	357.1±2.1	358.9±7.2	557.0±12.3	767.4±4.6	769.8±3.8	/
Аеросол	380.8±1.5	1749.3±17.5	113.6±0.6	95.0±0.5	289.6±1.5	210.6±1.3	190.9±3.8	352.8±7.8	486.1±2.9	487.6±2.4	3958.6±39.6

2.1.2 Снимање спектра

Секундарни референтни радиоактивни материјал користе се за калибрацију ефикасности три HPGe детектора, који су означени са D_1 , D_2 и D_3 .

Мерење се врши у контактної геометрији, што значи да се узорак поставља директно на капу детектора осим у случају детектора D_2 , где се узорак поставља на танки полистиренски носач да би се заштитио берилијумски прозор детектора. Ова геометрија мерења је идентична геометрији мерења узорака из животне средине у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине.

Време мерења је 60000 s живог времена, тако да није потребно извршавати корекције на мртво време детектора. Спектар бланк узорака је сниман непосредно пре или после снимања спектра секундарног референтног радиоактивног материјала и коришћен је за корекцију спектра.

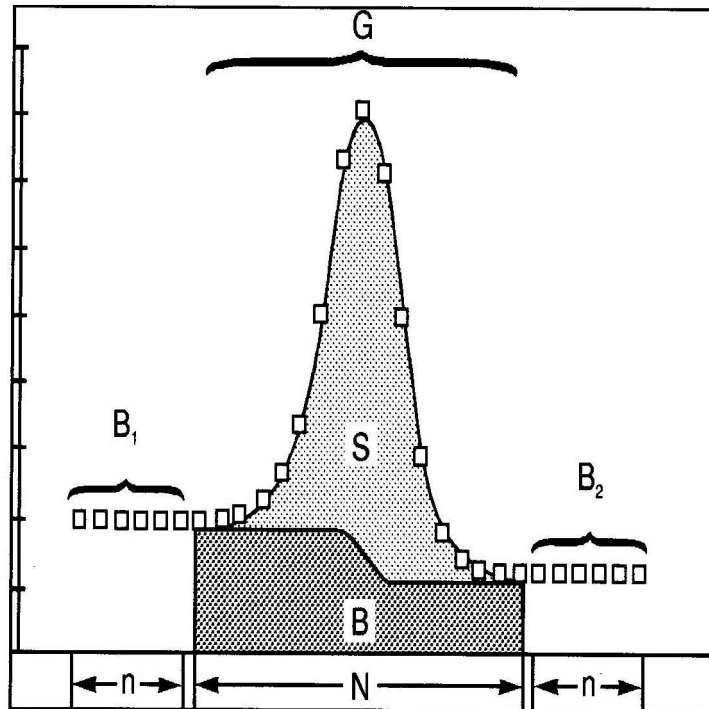
Снимање и анализа спектра извршена је коришћењем софтверског пакета GENIE2000, прозвођача Canberra [28] који пружа неколико могућности одређивања површине испод пика тоталне апсорпције. Коришћењем опције Analyze→Peak Locate→VMS Standard Peak Search Parameters пик тоталне апсорпције се фитује најбољим гаусијаном.

Затим се дефинише површина испод пика тоталне апсорпције – $S = G - B$ где је G укупан број детектованих импулса испод целе области дефинисане гаусијаном и B је континуум дефинисан изразом:

$$B = \left(\frac{N}{2n} \right) (B_1 + B_2), \quad (2.1.1)$$

где је

- N број канала у пику тоталне апсорпције,
- n број канала лево и десно од пика тоталне апсорпције,
- B_1 и B_2 су суме детектованих импулса у континууму лево и десно од пика тоталне апсорпције. Ово је случај тзв. линеарног континуума.



Слика 2.1.1. Изглед фотопика са степ континуумом [28].

У случају да пик тоталне апсорпције који посматрамо наседа на Комптонову ивицу у спектру или из било ког разлога имамо значајно више импулса у једном крилу пика тоталне апсорпције у односу на друго, примењује се формула за тзв. степ континуум.

$$B = \sum_{i=1}^N \left(\frac{B_1}{n} + \frac{(B_2 - B_1)}{nG} \cdot \sum_{j=1}^i y_j \right), \quad (2.1.2)$$

где је y_i број импулса у i -том каналу.

Након анализирања спектра, приступа се рачунању ефикасности за дате енергије по следећој формули:

$$\varepsilon = \frac{N \cdot C(E)}{t \cdot P_\gamma \cdot A_0 \cdot e^{-\tau / T_{1/2}}}, \quad (2.1.3)$$

где је

- N површина испод пика тоталне апсорпције (након одузимања спектра бланка) изражена преко броја детектованих фотона,
- t време трајања мерења,
- P_γ вероватноћа емисије фотона дате енергије,
- $C(E)$ корекциони фактор за коинцидентно сумирање,
- A_0 почетна активност секундарног референтног материјала на датој енергији на дан прављења материјала,
- τ време у данима протекло од момента прављења секундарног референтног материјала до момента мерења и
- $T_{1/2}$ време полураспада, у данима, радионуклида чију енергију посматрамо.

Нису рађене корекције на распад радионуклида у току мерења, с обзиром на то да сви радионуклиди у саставу стандардног радиоактивног раствора имају времена полураспада која су за више редова величине дужа од времена мерења. Такође, стандардни радиоактивни раствор садржи већином елементе који емитују само један гама фотон по распаду, тако да су корекције на коинцидентно сумирање биле неопходне само за ^{60}Co и ^{88}Y који емитују по два фотона по распаду, у случају детектора D_1 и D_3 . У случају детектора D_2 , корекције су биле неопходне за више радионуклида. Корекциони фактори су израчунати коришћењем програма EFFTRAN, о којем ће више речи бити у наредним поглављима.

2.1.3. Мерна несигурност експерименталног метода

Као и код сваког мерења, потребно је дефинисати мерну несигурност резултата. Чак и најједноставнија мерења могу подразумевати низ варијабли које не можемо рачунским путем уврстити у резултат а чије промене значајно утичу на тачност и прецизност коначног резултата. Један од начина да се побољшају карактеристике резултата је велики број понављања мерења, усредњавање добијених вредности и узимање статистичке стандардне девијације као мере тачности. У случају експерименталне калибрације ефикасности, извршено је једно мерење, а параметри који утичу на резултат су уврштени у буџет мерне несигурности. На основу овог буџета, израчуната је мерна несигурност која укључује све релевантне варијабле које се јављају у току припреме и мерења секундарних референтних радиоактивних материјала [29].

Комбинована стандардна мерна несигурност се добија преко Гаусовог закона пропагације мерне несигурности. Према овом закону, мерна несигурност $u(y)$ величине y , која је функција више променљивих x_i дата је формулом [30]:

$$u(y(x_1, x_2, \dots, x_n)) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i}\right)^2 \cdot (u(x_i))^2}, \quad (2.1.4)$$

где су $u(x_i)$ мерне несигурности сваке од променљивих x_i које улазе у рачун.

Ова формула је валидна само ако су променљиве x_i међусобно независне односно некорелисане и ако је мерна несигурност сваке променљиве значајно мања од њене апсолутне вредности. Уколико су променљиве међусобно зависне, ситуација се компликује и важи (у случају да је функција $y(x_1, x_2, \dots, x_n)$ диференцијабилна):

$$u(y(x_1, x_2, \dots, x_n)) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i}\right)^2 \cdot (u(x_i))^2 + 2 \sum_{i=1}^n \sum_{j>i}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i}\right) \left(\frac{\partial y}{\partial x_j}\right) \text{cov}(x_i, x_j)}, \quad (2.1.5)$$

где је $\text{cov}(x_i, x_j)$ коваријанса променљивих x_i и x_j .

Проширена мерна несигурност се добија множењем комбиноване стандардне мерне несигурности фактором поверења k_α што значи да је вредност мерене величине у интервалу $y \pm u(y)$ на нивоу поверења једнаким α [29, 30].

Неће све променљиве имати исти допринос комбинованој стандардној мерној несигурности. Неки од тих доприноса ће бити занемарљиви, а неки ће носити већи део. Зато је потребно направити буџет мерне несигурности, у којем ће бити побројане променљиве које утичу на мерену величину и њихове појединачне мерне несигурности. У буџету разликујемо две врсте променљивих: априори квантификване доприносе мерној несигурности и доприносе који потичу од мерених величина [29, 30].

Априори квантификвани доприноси су:

- Стабилност мерног система; поновљена мерења на истом детектору под истим условима морају дати приближно исте резултате. Допринос овог фактора мерној несигурности се може практично измерити одређеним бројем понављања једног мерења и узимањем стандардне девијације

рачуна као мере тог доприноса. У мерењима која су урађена у оквиру ове тезе, стабилност има занемарљив допринос.

- Несигурност вероватноће за емисију гама фотона је дефинисана у литератури уз саму величину и углавном је реда величине 0.1% или мање, па се и овај допринос може занемарити [31].
- Несигурност полувремена живота је дата у табелама уз сам податак и углавном је занемарљива у односу на друге доприносе [31]

Доприноси мерној несигурности које потичу од мерених величина су:

- Несигурност која потиче од мртвог времена детектора. То је разлика између времена које је реално протекло од почетка мерења и времена у којем је детектор био способан да региструје пулсаве, тзв. живог времена. Због коначне временске резолуције детектора, систем није у стању да детектује два фотона која су емитована у временском размаку краћем од временске резолуције. Ова мерна несигурност се елиминише увођењем корекције на мртво време или подешавањем времена мерења на живо време а не на реално време.
- Несигурност која потиче од нуклеарног распада елемената у току самог мерења. Ова мерна несигурност се елиминише избором радионуклида са дугим полувременом живота.
- Несигурност која потиче од самоапсорпције у матриксу. Да би се избегао овај допринос мерној несигурности, праве се секундарни референтни радиоактивни материјали коришћењем истог матрикса као и узорци који ће се мерити. Приликом мерења у сврху калибрације, корекције на самоапсорпцију улазе у вредност ефикасности.
- Допринос мерној несигурности који потиче од статистике бројања је највећи и најзначајнији. Претпоставља се да и пик тоталне апсорпције и континуум имају Поасонову расподелу па је несигурност броја импулса у континууму дефинисана изразом:

$$\sigma_G = \sqrt{G}, \sigma_B = \sqrt{\left(\frac{N}{2n}\right)^2 \cdot (B_1 + B_2)} \Rightarrow$$
$$\sigma_S = \sqrt{G + \left(\frac{N}{2n}\right)^2 \cdot (B_1 + B_2)} \quad (2.1.6)$$

за случај линеарног континуума и:

$$\sigma_s = \sqrt{G + \frac{1}{nG} \left[(NG - \sum \sum y_j)^2 B_1 + (\sum \sum y_j)^2 B_2 + (B_2 - B_1)^2 (\sum \sum y_j)^2 \left(\frac{1}{G} + \frac{1}{(\sum \sum y_j)^2} \right) \right]} \quad (2.1.7)$$

за случај степ континуума [28].

- Допринос мерној несигурности који потиче од мерења масе матрикса и мерења количине додатог стандардног радиоактивног раствора, дефинисан прецизношћу ваге и поновљеним мерењима масе матрикса. У случају мерења матрикса, тачност ваге је реда величине 0.1 g тако да се може занемарити у односу на укупну масу али у случају радиоактивног раствора, који се додаје у количини реда величине 100 μg , може бити значајна. У нашем случају, ова несигурност је уврштена у буџет преко мерне несигурности припреме секундарног референтног материјала.

Мерна несигурност ефикасности добијене експерименталним методом у овој тези, одређена је на основу следеће једначине:

$$u(\varepsilon) = \sqrt{(\delta A)^2 + (\delta N)^2 + (\delta M)^2 + (\delta P)^2} \quad (2.1.8)$$

где је

- δA релативна несигурност активности, која је једнака релативној несигурности активности A_0 датај у сертификату стандардног раствора, у опсегу 1-2%,
- δN статистичка грешка бројања, тј. релативна несигурност површине испод фото пика,
- δM релативна несигурност уведена у процесу припреме секундарног референтног материјала и
- δP су остале компоненте мерне несигурности као што је несигурност мерења масе секундарног референтног материјала стављеног у геометрију, несигурност положаја извора у односу на осу симетрије детектора, несигурност мерења времена, мале корекције на распад радионуклида у току времена итд. Последњи

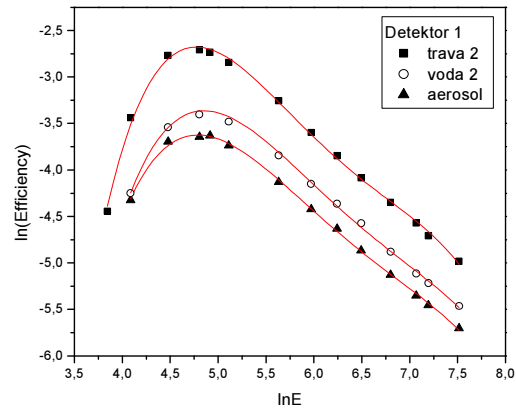
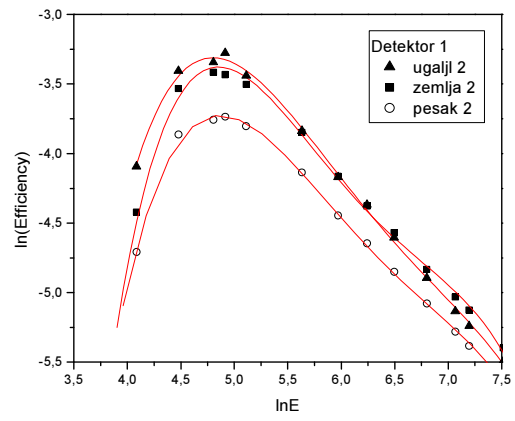
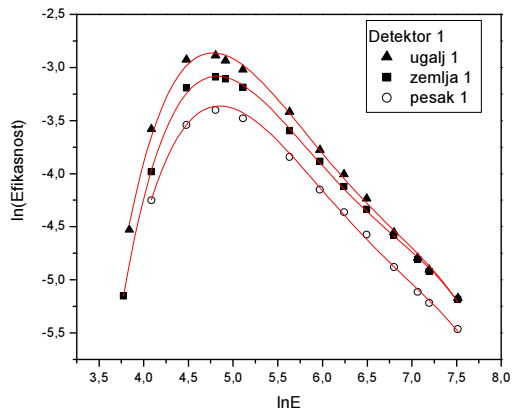
фактор у себи садржи несигурност мерења масе матрикса, несигурност мерења масе односно запремине додатог радиоактивног раствора, несигурност хомогености материјала која је експериментално установљена и друге изворе мерне несигурности чији допринос је процењен на основу искуства рада у лабораторији.

Крива ефикасности се добија фитовањем експерименталних резултата неком параметарском кривом која треба да покрије цео опсег енергија које се појављују у спектру. Неколико функција, као и комбинације функција су предлагане и тестиране и у литератури у нашој лабораторији, а она која се показала најуспешнијом је [32]:

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=1}^n a_i (\ln E)^{i-1}, \quad (2.1.9)$$

где a_i представљају параметре фита. За наш мерни систем, показало се као најбоље користити функцију са $i = 5$.

За сваки матрикс и сваку геометрију, криве ефикасности имају исти функционални облик а различите параметре. На основу једначина кривих ефикасности, можемо израчунати ефикасности за било коју енергију која нас занима и сматра се да је за дати мерни систем извршена калибрација. Пример неколико кривих ефикасности дат је на слици 2.1.2.



Слика 2.1.2. Пример неколико кривих ефикасности за детектор D_1

2.2 Калибрација аналитичким методом

У случајевима када су доступни само тачкасти или референтни радиоактивни материјали ограниченог броја геометрија и матрикса, могуће је применити аналитички метод калибрације.

Овај метод је нашао примену у мерењу узорака из животне средине с' обзиром на то да се, у пракси, реалан узорак често разликује по геометрији мерења и матриксу од секундарног референтног материјала искоришћеног за калибрацију. У оваквим случајевима, неопходно је извршити корекције калибрационе криве тако да се узме у обзир геометрија и састав матрикса специфичног узорка.

Постоји више модела који одређују зависност ефикасности од геометрије извора, али у већини случајева, те зависности немају аналитичко решење. До решења се долази или нумеричком интеграцијом или низом апроксимација.

Једна од апроксимација је модел виртуелног тачкастог детектора. Основа овог модела је претпоставка да се запремина детектора може апроксимирати тачком која се налази на ефективној дубини интеракције.

Да би се одредила ефективна дубина интеракције, треба извршити сет мерења тачкастих референтних радиоактивних материјала на неколико различитих удаљености од детектора, дуж осе симетрије. У том случају, ефикасност на различитим висинама је обрнуто пропорционална квадрату удаљености извора од виртуелног тачкастог детектора. Ако удаљеност извора од капе детектора означимо са x , однос између ефикасности на удаљеностима x и x_0 је дата изразом [13, 33]:

$$\frac{\varepsilon(x_0)}{\varepsilon(x)} = \frac{N(x_0)}{N(x)} = \frac{(x+h_0)^2}{(x_0+h_0)^2} \Rightarrow \sqrt{\frac{N(x_0)}{N(x)}} - 1 = \frac{x-x_0}{x_0+h_0} \quad (2.2.1)$$

где је

- $\varepsilon(x)$ ефикасност детектора за извор на удаљености x
- $N(x)$ број детектованих фотона на удаљености x и

- h_0 ефективна дубина интеракције.

Ако ставимо да је $x_0=0$, једнакост се поједностављује.

Мерењем броја детектованих фотона на више различитих удаљености x , долазимо до линеарне зависности фактора $\sqrt{\frac{N(x_0)}{N(x_2)}} - 1$ од $x - x_0$. Нагиб линеарне зависности једнак је $1/h_0$. Из ове зависности, користећи тачкасте референтне радиоактивне материјале познате активности, можемо одредити h_0 [14, 34].

Ефективна дубина интеракције зависи и од енергије, тако да за различите енергије фотона важи једнакост [10, 35]:

$$\ln h_0 = a_1 + b_1 \ln E + c_1 (\ln E)^2, \quad (2.2.2)$$

где је E енергија гама фотона, а a_1 , b_1 , и c_1 коефицијенти фита.

Према моделу виртуелног тачкастог детектора, ефикасност за тачкасти извор је обрнуто пропорционална квадрату растојања од извора до виртуелног тачкастог детектора тј. $h_0 + h$. Одатле следи следећа релација за ефикасност [10]:

$$\varepsilon(h, E) = a(h + h_0(E))^{-2}, \quad (2.2.3)$$

где је a коефицијент пропорционалности који има димензије површине.

На основу једначине (2.2.3) можемо закључити да се ефикасност детектора за цилиндричне узорке може израчунати, уз извесне апроксимације, на основу познате ефикасности за тачкасти референтни радиоактивни материјал и измерене ефективне дубине интеракције. Такође, пошто у случају волуминозних узорка не можемо да занемаримо самоатенуацију, у поменутој једначини треба увести фактор $e^{-\mu h(x,r)}$, где је μ линеарни аенуациони коефицијент матрикса извора а $h(x,r)$ је дебљина слоја узорка.

Тада је допринос детектованих фотона који потичу од диска дебљине dh на удаљености h од дна цилиндричног узорка постављеног на капу детектора, дат изразом (1.3.16), чије је решење бесконачни ред [14].

За довољно високе енергије ($>250\text{keV}$) коефицијент апсорпције може бити занемарен и израз за ефикасност је дат једнакошћу (1.3.17)

Ова функције се може употребити као индикација облика функције коју треба применити приликом калибрације мерног система помоћу аналитичке функције. Такође, ако диференцирамо израз (1.3.18) по H и изједначимо први извод са нулом, можемо наћи висину пуњења амбалаже која за дати полупречник даје највећи број импулса чиме бисмо побољшали статистику мерења и смањили мерну несигурност површине испод пика.

Основни проблем са овом једноставном једнакошћу је што коефицијент α у изразу (1.3.18) није могуће израчунати на основу расположивих података. Познајући експериментално добијене ефикасности и применом једнакости (1.3.19) установљава се да постоји зависност коефицијента α од висине H које је облика $\alpha = m \cdot e^{-nH}$ где су m и n константе.

Peng et all [36] предлажу следећу формулу за израчунавање односа ефикасности детектора за тачкасти и за цилиндрични извор:

$$\frac{\varepsilon_{point}}{\varepsilon_{cil}} = a e^{b(h+h_0+H/2)^2/h_0^2} \cdot R_0^2 (h+h_0+H/2) \ln(R^2H) \quad (2.2.4)$$

где је

- ε_{point} ефикасност за тачкасти извор,
- ε_{cil} ефикасност за цилиндрични узорак,
- h удаљеност извора од капе детектора,
- h_0 ефективна дубина интеракције,
- H висина а R је полупречник извора,
- R_0 полупречник кристала детектора и
- a и b су параметри које треба одредити.

У овом изразу,

- $\ln(R^2H)$ је запремински фактор извора,
- $e^{b(h+h_0+H/2)^2/h_0^2}$ је фактор који описује самоапсорпцију у извору, док је
- $R_0^2 (h+h_0+H/2)$ је геометријски фактор система детектор – извор.

Установљено је у том раду да је параметар a функција променљиве h . У нашем случају, узорци као и секундарни референтни материјали се мере у контактної геометрији, $h=0$, што значи да је параметар a константа.

Група аутора [37] је анализирила зависност ефикасности детектора од удаљености цилиндричног извора од виртуелног тачкастог детектора, при константном полупречнику геометрије мерења. Облик криве којом су фитовали своје мерене резултате сугерисао је следећи облик зависности:

$$\varepsilon(h + h_0) = \frac{1}{h + h_0} C(1 - e^{-k(h+h_0)}) \quad (2.2.5)$$

где су C и k коефицијенти фита а h је удаљеност извора од капе детектора.

На основу свих претходних разматрања, тражена је функција којом би било могуће фитовати добијене експерименталне резултате и установи зависност ефикасности од геометрије узорка. Основно је одредити зависност од висине узорка, с обзиром на то да су геометрије мерења, које се користе у Лабораторији Заштита, цилиндричне са константним полупречником. Са друге стране, висина пуњења узорка може драстично да варира у зависности од количине узорка. Такође, матрикси узорака могу бити различити у односу на матриксе секундарних референтних материјала.

Примена функција предложених у радовима [36, 37] није дала задовољавајуће резултате јер добијене експерименталне резултате није било могуће фитовати предложеним функцијама.

Један од модела зависности ефикасности од висине узорка, добијен је на основу једнакости (2.2.5) и дат је изразом:

$$\varepsilon(H, E, h_0) = a_2 - b_2 e^{-(H+h_0)/c_2}, \quad (2.2.6)$$

где је

- H висина пуњења стандарда,
- a_2 , b_2 и c_2 су коефицијенти фита.

Већ је показано [38] да овакав тип једнакости важи за NaI детектор, а ми ћемо показати да уз правилан избор коефицијената a_2 , b_2 и c_2 , ова једнакост важи и за HPGe детекторе.

Коефицијент c_2 би требало да буде димензије cm да би израз у експоненту био бездимензионалан. Коефицијенти a_2 и b_2 такође морају имати физички смисао. Ефикасност опада са порастом висине због дужине пута који фотон треба да пређе

кроз матрикс, тако да је очекивано да ће фактор a_2 бити димензија ефикасности на максималној испитиваној висини. Коефицијент b_2 би требало да показује зависност од енергије, с обзиром на то да је вероватноћа самоатенуације услед проласка фотона кроз матрикс зависна од енергије.

Да би се дошло до података, потребно је варирати висину пуњења референтних радиоактивних материјала, што подразумева прављење додатног сета секундарних референтних материјала различите висине пуњења (велики материјални трошкови). Уместо тога коришћен је трансфер ефикасности на основу програма EFFTRAN којим се може одредити ефикасности за различите висине пуњења секундарних референтних радиоактивних материјала. Приликом трансфера варира се само висина извора, тако да можемо да претпоставимо да су резултати довољно блиски онима које бисмо добили експерименталним путем. [39]. Провера је извршена на две цилиндричне геометрије – цилиндрична кутија од 125 и 250 ml, које се најчешће користе у мерењима узорака из животне средине.

У раду [40] као и у магистарској тези аутора Иване Вукашиновић, која је урађена у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, показано је да у првој апроксимацији, постоји линеарна зависност ефикасности од густине матрикса. Овај податак се може искористити за одређивање ефикасности за узорак чији матрикс не одговара матриксу секундарног референтног радиоактивног материјала.

Узимајући ово у обзир, комплетна једначина која описује зависност ефикасности од ефективне дубине и висине пуњења секундарног референтног материјала, за матрикс одређене масе, на основу две познате ефикасности матрикса масе m_1 и m_2 , може се записати на следећи начин:

$$\begin{aligned} \varepsilon(H, m, h_0) = & \frac{m - m_1}{m_2 - m_1} \left(\varepsilon_1(H_0) + b_{21} \cdot e^{-\frac{H+h_0}{c_{21}}} \right) + \\ & + \left(1 - \frac{m - m_1}{m_2 - m_1} \right) \left(\varepsilon_2(H_0) + b_{22} \cdot e^{-\frac{H+h_0}{c_{22}}} \right) \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

где су

- m_1 и m_2 масе првог и другог секундарног референтног материјала познате ефикасности, респективно

- m је маса узорка за који рачунамо ефикасност

- h_0 је ефективна дубина интеракције на датој енергији

- H је висина пуњења узорка за који рачунамо ефикасност

- b_{21} и c_{21} су коефицијенти фита у једначини (2.2.6) који се односе на први секундарни референтни материјал

- b_{22} и c_{22} су коефицијенти фита у једначини (2.2.6) који се односе на други секундарни референтни материјал

- $\varepsilon_1(H_0)$ и $\varepsilon_2(H_0)$ су ефикасности првог и другог секундарног референтног материјала на максималној висини пуњења, једнак коефицијенту фита a_2 у једначини (2.2.6) за први и други други секундарни референтни материјал респективно.

Ради провере, ефикасности добијене трансфером за различите висине пуњења, фитоване су функцијом (2.2.6) и то за два матрикса разичитих густина и исте геометрије. Добијена зависност је примењена на одређивање ефикасности на жељеној висини, која одговара висини пуњења H трећег секундарног референтног радиоактивног материјала. Из израчунатих ефикасности за матрикс 1 и матрикс 2 висине H на основу линеарне зависности ефикасности од густине, одређена је ефикасност за густину (односно масу) трећег секундарног референтног материјала, чија је висина H . На овај начин проверено је да ли се резултати добијени на овај начин уклапају са експериментално добијеним резултатима. Провера је извршена на две цилиндричне геометрије – кутија од 125 и 250 ml. Као почетни матрикси коришћени су угаљ и песак а за матрикс земља и трава је одређена теоријска ефикасност.

По угледу на релацију (1.3.19) варира се и полупречник геометрије, како би се одредила зависност ефикасности од полупречника при константној висини. Користи се софтвер EFFTRAN да би се добила вредност ефикасности за одређене полупречнике, при чему се трансфер врши са цилиндричне кутије 125 ml за полупречнике од 5-33,5 cm, док се за полупречнике од 33,5-42,5 cm, као полазна вредност за трансфер користи ефикасност за геометрију цилиндрична кутија од 250 ml. Крајње вредности полупречника у наведеним опсезима представљају управо полупречнике цилиндричних кутија од 125 и 250 ml.

На основу овако добијених података, тестирана је функција облика

$$\varepsilon(R, E, H = const) = \sum_i P_i \cdot (\ln R)^i \quad (2.2.8)$$

где су P_i коефицијенти фита. Ова функција је показала задовољавајуће слагање са експерименталним резултатима и није даље проверавана.

2.2.1. Мерна несигурност аналитичког метода

Као и код експерименталног метода, и у случају аналитичког метода, мерна несигурност се дефинише као комбинована стандардна мерна несигурност која се добија преко Гаусовог закона пропагације мерне несигурности. Према овом закону, мерна несигурност $u(y)$ величине y , која је функција више променљивих x_i дата је формулом (2.1.4)

У случају аналитичког метода, у променљиве величине које улазе у рачун спада и ефективна дубина интеракције. Мерна несигурност ове величине одређена је на основу једнакости:

$$u(h_0) = \sqrt{(\delta N(x_0))^2 + (\delta N(x))^2 + (\delta x)^2} \quad (2.2.9)$$

где је

- $\delta N(x)$ релативна несигурност броја детектованих фотона на висини x ,
- $\delta N(x_0)$ релативна несигурност броја детектованих фотона на висини x_0 и
- δx је релативна грешка одређивања висине x .

Резултат фитовања вредности функцијом (2.2.6) такође има своју мерну несигурност. С обзиром на то да је одређивање непознате ефикасности потребно фитовати експерименталне податке за два секундарна референтна материјала, у изразу за мерну несигурност ефикасности добијене аналитичким методом имамо два пута допринос мерној несигурности који потиче од експерименталне ефикасности. На основу Гаусовог закона пропагације мерне несигурности можемо дефинисати

$$u(\varepsilon_{teorija}) = \sqrt{(u(\varepsilon_{matriks1}))^2 + (u(\varepsilon_{matriks2}))^2 + (u(h_0))^2 + (u(h))^2 + (u(funkcija))^2} \quad (2.2.10)$$

где су

- $u(\varepsilon_{matriks1})$ и $u(\varepsilon_{matriks2})$ мерне несигурности експериментално добијених ефикасности за матрикс 1 и матрикс 2, респективно,
- $u(h)$ је мерна несигурност висине пуњења секундарног референтног материјала за који се рачуна ефикасност
- $u(funkcija)$ представља допринос мерној несигурности који потиче од свих апроксимација које су примењене да би се дошло до једначине (2.2.6).
- $u(h)$ је мерна несигурност ефективне дубине интеракције.

2.3. Калибрација полуемпиријским методом

У литератури су познати и у пракси често коришћени програми који рачунају, на основу низа познатих параметара, трансфер ефикасности од референтне (измерене) ефикасности за једну геометрију до нове, за нову геометрију и матрикс. Уједно, ови програми могу да обрађују и резултате мерења тако што рачунају корекционе факторе за коинцидентно сумирање. Иако је потребно добро познавање геометријских карактеристика детекторског система, као и геометрије и хемијског састава калибрационих извора, ови програми не захтевају посебно познавање програмског језика. Недостатак овог приступа је тај што је неопходно познавати тј. измерити бар једну калибрациону криву, што смешта овај метод негде на пола пута између експерименталне калибрације и Монте Карло метода.

Основна претпоставка овог модела је да се ефикасност детектора за непознату геометрију можемо одредити на основу познате, референтне ефикасности путем трансфера ефикасности. Релација између референтне ефикасности и ефикасности за непознату конфигурацију дата је изразом:

$$\varepsilon_x = \varepsilon_{ref} \frac{\bar{\Omega}_x}{\bar{\Omega}_{ref}}, \quad (2.3.1)$$

где је ε_x непозната ефикасност, ε_{ref} је референтна ефикасност, $\bar{\Omega}_x$ је ефективни просторни угао за непознату конфигурацију и $\bar{\Omega}_{ref}$ је ефективни просторни угао за референтну конфигурацију.

2.3.1 EFFTRAN

За разлику од аналитичких метода у којима низом апроксимација долазимо до аналитичке функције за ефикасност, у случају полуемпиријског метода, развијају се програми у циљу нумеричког израчунавања свих потребних величина.

Један од таквих програма је и EFFTRAN (EFFiciency TRANSfer), програм дизајниран да превазиђе два главна проблема која се јављају при калибрацији:

може се користити за рачунање ефикасности у другачијим условима од оних под којима је извршена калибрација и за корекцију ефеката коинцидентног сумирања. Резултат је побољшање тачности резултата и избегавање дуготрајних мерења потребних за калибрацију [41].

Како је описано у поглављу 1.3.3 и како је предложено у радовима чланова Де Кортеове групе осамдесетих година [15], однос виртуелне ефикасности у пику тоталне апсорпције и виртуелне тоталне ефикасности не зависи од геометрије и састава узорка који се мери. Сматра се да овај однос зависи само од енергије и да је унутрашња особина детектора. У овој ситуацији се под виртуелном ефикасношћу подразумева ефикасност која по дефиницији занемарује расејање гама фотона у неактивним деловима детекторског система. Уз ову претпоставку, потребно је најпре измерити ефикасност за стандардни тачкасти извор.

Ефикасност за цилиндрични референтни радиоактивни материјал ε , се може израчунати као производ ефикасности за тачкасти референтни радиоактивни материјал, ε_{ref} и односа виртуелних тоталних ефикасности за тачкасти референтни радиоактивни материјал и цилиндрични референтни радиоактивни материјал $\frac{\eta}{\eta_{ref}}$ који се рачуна у програму, при чему се велики број мерних несигурности међусобно поништава

$$\varepsilon = \varepsilon_{ref} \frac{\eta}{\eta_{ref}} . \quad (2.3.2)$$

У случају EFFTRAN-а, за решавање једначина се, уместо Гаусове интеграције, користи Монте Карло интеграција која је погодна за системе са великим бројем димензија [42], с обзиром на то да се интеграција спроводи и по запремини детектора и по запремини узорка.

Да би се израчунале виртуелне тоталне ефикасности, модел детектора мора бити конструисан на основу параметара које најчешће обезбеђује произвођач. Ти параметри су димензије кристала, дебљина предњег и бочних мртвих слојева, димензије централне шупљине и мртвог слоја који је окружује, радијус, дебљина и састав прозора на капи детектора, димензије и састав кућишта. Претпоставља се да су сам кристал и мртви слојеви од германијума, док су све шупљине по претпоставци испуњене ваздухом.

Такође, потребно је познавати карактеристике референтног радиоактивног материјала и узорка за који се одеђује ефикасност. Неопходни параметри су димензије и материјал амбалаже у којој се узорак налази, положај у односу на капут детектора, висина пуњења геометрије и густина матрикса узорка.

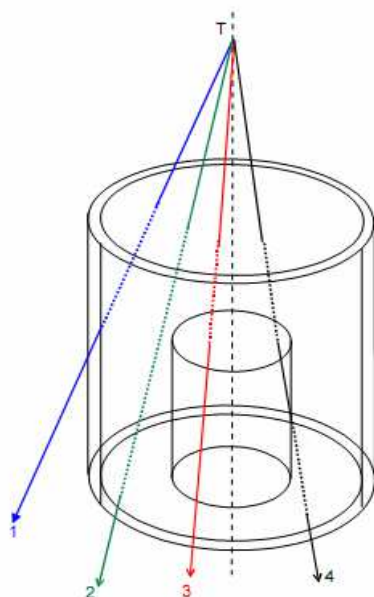
Овакав модел мерног система одговара и p и n типовима детектора и најразличитијим величинама цилиндричних узорака било каквог састава, постављених на детектор коаксијално дуж осе симетрије. Сви параметри одговарају цилиндричној геометрији па се комплетна конструкција и детектора и узорка своди на коначан број цилиндара. Овим је такође и успостављено ограничење примене овог софтвера. Наиме, он није применљив на геометрију Маринели посуде, као ни на узорке чији је положај ексцентричан.

Да би се израчунала вероватноћа интеракције сваког појединачног гама фотона са кристалом детектора, потребно је израчунати дужину слободног пута који тај фотон пређе од места настанка до места интеракције са кристалом. Захваљујући чињеници да сви делови у конструисаном моделу детектора имају цилиндричну геометрију, рачуна се пут гама фотона, насталог на произвољном месту у узорку, кроз цилиндар датих димензија. Вероватноћа за интеракцију гама фотона са кристалом детектора дефинише се изразом:

$$P_i = (1 - e^{-\mu_i})F \quad (2.3.3)$$

где је

- μ линеарни коефицијент атенуације за германијум
- F атенуациони фактор који је једнак производу низа чинилаца облика $e^{-\mu_j l_j}$
- μ_j линеарни атенуациони коефицијенти за j -ти материјал кроз који пролази гама фотон на свом путу и
- l_j дужина слободног пута кроз тај материјал [41].



Слика 2.3.1. Место настанка и могући путеви гама фотона кроз детектор [16]

Место настајања гама фотона у узорку се бира случајним избором по дистрибуцији која је униформна по запремини узорка. Сваки од овако генерисаних фотона се емитује изотропно у просторни угао Ω_i под којим се детекторски систем види из тачке настанка фотона. У овом сегменту се користи Монте Карло интеграција која подразумева генерисање великог броја случајних фотона и рачунање њихове вероватноће интеракције. Овим поступком долазимо до виртуалне тоталне ефикасности која је потребна за даљи рачун. Виртуелна тотална ефикасност је дата изразом:

$$\eta = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N w_i P_i \quad , \quad (2.3.4)$$

где је N број гама фотона и w_i је тежински фактор. Поступак се понавља два пута, једном за референтну ефикасност а други пут за непознату ефикасност.

Размотримо различите путеве којима се емитовани фотон може кретати (слика 2.3.1).

Нека гама фотон настаје у тачки $T(x_0, 0, z_0)$ (због цилиндричне симетрије, увек се може одабрати xz раван) и нека се простире дуж правца дефинисаног косинусима (t_x, t_y, t_z) у односу на z осу која се поклапа са осом симетрије детектора, радијуса R . Нека су z координате горње и доње равни детектора дате са z_u и z_L респективно. Прво се рачунају z_1 и z_2 , координате у којима емитовани фотон сече бесконачно дуги цилиндар. Затим се свака z координата која се налази изнад горње равни детектора изједначи са z_u и свака испод доње равни, изједначи са z_L . Тада је дужина пута унутар детектора, било ког фотона, једнака $|z_2 - z_1|/t_z$ [41].

Координате z_1 и z_2 одређујемо на следећи начин.

У општем случају, x и y координате гама фотона дуж његовог правца кретања су дате са

$$\begin{aligned} x &= x_0 + t_x u \\ y &= t_y u \end{aligned} \tag{2.3.5}$$

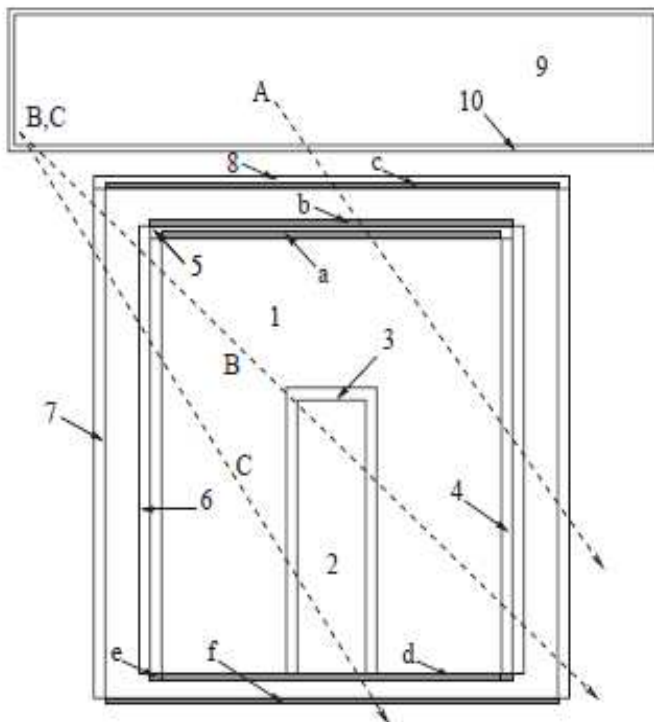
где је u параметар пута.

Уз гранични услов дат релацијом

$$x^2 + y^2 = R^2, \tag{2.3.6}$$

добијамо квадратну једначину по u , чија решења u_1 и u_2 дају тачке пресека пута фотона са детектором, односно

$$z_1 = t_z u_1 \text{ и } z_2 = t_z u_2. \tag{2.3.7}$$



Слика 2.3.2. Компоненте модела мерног система, шематски приказ (односи међу димензијама нису реални): 1-кристал, 2- централна шупљина, 3- унутрашњи мртви слој, 4- бочни мртви слој, 5- горњи мртви слој, 6-носач кристала, 7- кућиште, 8- прозор, 9- узорак, 10- амбалажа, *a, b, c, d, f* виртуелни слојеви (шрафиране области) [42].

Овај софтвер занемарује утицај централне шупљине на ефикасност. Из тог разлога, њене димензије служе искључиво за дефинисање активне запремине. Из израчунате дужине пута фотона изузима се део који се евентуално налази унутар централне шупљине. Такође, занемарује се апсорпција у бочним мртвим слојевима, носачу и кућишту детектора. Ово се постиже анулирањем дужине пута кроз неки од ових слојева. Из тог разлога се дефинише 6 виртуелних слојева који служе за тестирање да ли је фотон прошао кроз неки од неактивних слојева. (слика 2.3.2) .

Као радно окружење EFFTRAN користи Microsoft Excel, што га чини приступачним за корисника и лаким за употребу.

Примена софтвера се састоји од неколико корака.

- Дефинишу карактеристике детектора у модулу Detector. Кликом на дугме Load, из понуђеног списка може се одабрати тип детектора (p или n).

- У поља за унос потребних података уноси се: пречник и дужина кристала детектора, булетизација (bulletization) односно радијус закривљености ивица кристала, дебљина горњег и бочних мртвих слојева и пречник и дужина централне шупљине; пречник, дебљина и материјал кућишта у којем је кристал (end cap housing), дебљина и материјал прозора, удаљеност прозора од кристала, дебљина и материјал носача кристала и пречник, дебљина и материјал евентуалног апсорбера који се налази између детектора и узорка. Све димензије се дају у милиметрима, а материјали се позивају из листе.
- Карактеристике детектора се смештају у посебан фајл командом Store, а командом Load, може се позвати претходно забележени фајл са карактеристикама детектора.
- Дефинишу се карактеристика референтног радиоактивног материјала и непознатог узорка уношењем следећих података у предвиђена поља: висина пуњења, матрикс, пречник цилиндричне амбалаже у коју је матрикс смештен, дебљина дна и бочних страна амбалаже и материјал амбалаже. Карактеристике референтног радиоактивног материјала и узорка се смештају у посебан фајл командом Store, а командом Load, може се позвати претходно забележени фајл са карактеристикама. Материјал геометрије и матрикс се позивају путем листе која је везана за модул Material.

- Модул Material служи за дефинисање матрикса. Матрикс се дефинише преко хемијског састава и густине. Хемијски састав се дефинише давањем хемијске формуле и масеним уделом једињења израженим у процентима. Уколико збир фракција није једнак 100%, програм аутоматски врши нормализацију. Постоји и могућност задавања комплексног матрикса који се састоји од два или више матрикса. Задавањем хемијске формуле једињења која улазе у састав матрикса, позива се фајл из модула XCOM у којем су дати атенуациони коефицијенти и вероватноће интеракције фотона за велики број познатих хемијских једињења. Овако дефинисан матрикс се може позивати у било ком другом модулу (Слика 2.3.3).
- Уноси се позната ефикасност за референтни радиоактивни материјал. Команда Transfer Efficiency покреће рачунање ефикасности за непознату геометрију и матрикс (Слика 2.3.4).

Material Definiton

Name

No.	Compound (i.e., H2SO4, NaCl)	Fraction by weight [%]
1	SiO2	80.00%
2	Ca	1.00%
3	K	4.00%
4	Fe	1.00%
5	C	14.00%
6		
7		
8		
9		
10		

Density [g/ccm]

Create

material data file

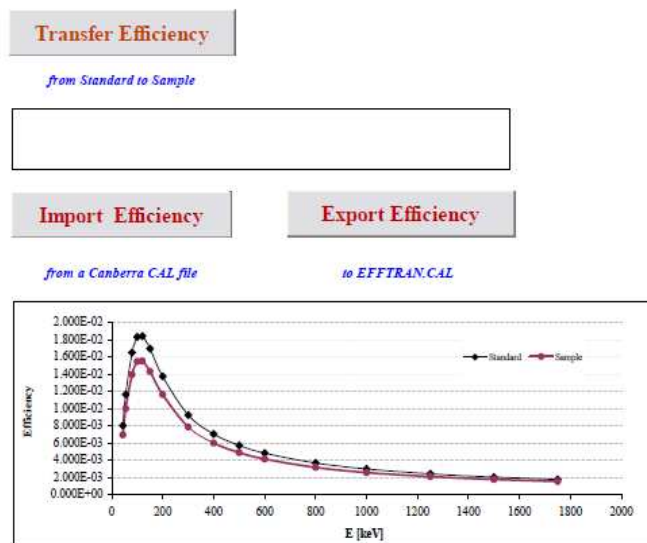
Load

material composition

Слика 2.3.3. Изглед екрана у програму EFFTRAN, модул Material.

Efficiency

E [keV]	Standard		Sample	
	Efficiency	Uncertainty	Efficiency	Uncertainty
44.00	8.035E-03	0.000E+00	6.939E-03	0.000E+00
55.00	1.167E-02	0.000E+00	1.001E-02	0.000E+00
80.00	1.651E-02	0.000E+00	1.398E-02	0.000E+00
100.00	1.836E-02	0.000E+00	1.550E-02	0.000E+00
120.00	1.844E-02	0.000E+00	1.555E-02	0.000E+00
150.00	1.699E-02	0.000E+00	1.433E-02	0.000E+00
200.00	1.377E-02	0.000E+00	1.164E-02	0.000E+00
300.00	9.263E-03	0.000E+00	7.869E-03	0.000E+00
400.00	7.053E-03	0.000E+00	6.011E-03	0.000E+00
500.00	5.720E-03	0.000E+00	4.889E-03	0.000E+00
600.00	4.819E-03	0.000E+00	4.128E-03	0.000E+00
800.00	3.678E-03	0.000E+00	3.161E-03	0.000E+00
1000.00	2.982E-03	0.000E+00	2.569E-03	0.000E+00
1250.00	2.417E-03	0.000E+00	2.087E-03	0.000E+00
1500.00	2.033E-03	0.000E+00	1.759E-03	0.000E+00
1750.00	1.757E-03	0.000E+00	1.522E-03	0.000E+00



Слика 2.3.4. Изглед екрана у програму EFFTRAN приликом рачунања трансфера ефикасности.

2.3.2 Корекције на коинцидентно сумирање у програму EFFTRAN

У случају детекције радионуклида са комплексном шемом распада, време живота побуђених нивоа у језгру може бити знатно краће од временске резолуције детектора, што резултује симултаном детекцијом импулса из каскадних прелаза. Овај феномен има два типа ефеката: губитак импулса у одговарајућим пиковима на пуној енергији и појава додатних пикова у спектру који одговарају сумираној енергији фотона који не могу бити разлучени.

Корекциони фактор који омогућава рачунање правога броја емитованих фотона енергије E_{10} , односно E_{21} дефинишу се изразима (1.5.3), датим у поглављу 1.5 [19].

Са друге стране, у пик укупне апсорпције који одговара енергији E_{20} , биће регистровано више импулса него што је емитовано. Корекциони фактор за пик укупне апсорпције на енергији E_{20} је дат изразом (1.5.5) [19]

Ови изрази се односе само на корекције везане за коинциденцију гама фотона.

Програм EFFTRAN пружа могућност рачунања корекционих фактора за коинцидентно сумирање путем модула Coincidence Summing. Овај модул рачуна коефицијенте за гама-гама коинциденције, гама – X и X- X коинциденције.

Овај модул има три корака:

-Дефинисање карактеристика детектора, исто као и код трансфера ефикасности.

- Дефинисање карактеристика узорка за који тражимо корекционе факторе, по истом принципу као и код трансфера ефикасности.

-Помоћу падајућег менија, из листе радионуклида бира се елемент за чије гама фотоне се рачунају корекциони коефицијенти. Рачунање се покреће командом Correction Factors, а резултат су коефицијенти за корекцију на коинцидентно сумирање за све енергије које дати радионуклид емитује. И у овом случају могуће је сачувати добијене резултате командом Store.

Такође, програм укључује и појаву анихилационих фотона и других специјалних случајева као што су две гране распада, распад са метастабилним нивоима итд.

True Coincidence Summing Correction Factors

E [keV]	Correction Factor
40	1.052
71	1.049
73	1.049
77	1.418
79	1.180
82	1.049
85	1.658
90	1.751
92	2.990
180	1.478
288	1.000
328	1.000
434	1.000
453	1.000
474	1.000
493	1.000
620	1.000
727	1.037
785	1.127
893	1.133
952	1.126
1074	1.125
1079	1.125
1513	0.836
1621	0.989
1679	1.000

Correction factors

Store

for the selected nuclide Correction Factors

BI-212

Minimum Energy keV

The calculation always uses the detector model from the "Detector" sheet and the source description from the "Source" sheet. No experimental data are used or required.

The correct use of the calculated correction factors is to multiply the measured peak areas with them.

Gamma-gamma, gamma-X and X-X coincidences are taken into account and the correction factors for X-rays and gamma rays are provided.

The minimum energy is the lowest energy to which the setup (detector + sample) is sensitive. Its value may influence some results quite considerably. Setting it too low, however, may result in very slow execution.

Please note that the processing of certain radionuclides may require quite some time.

Слика 2.3.5. Изглед екрана у модулу Coincidence Summing програма EFFTRAN

Као коначни резултат, програм даје корекционе факторе по енергијама за сваки радионуклид, којим се множи број детектованих фотона да би се добио кориговани број фотона.

2.3.3 Мерна несигурност резултата добијених EFFTRAN-ом

С обзиром на то да се рачунање у програму EFFTRAN изводи на основу података о геометрији детектора и геометрији и саставу секундарног референтног материјала, несигурности ових података улазе у буџет мерне несигурности.

На основу Гаусовог закона пропагације мерне несигурности, мерна несигурност резултата добијених програмом EFFTRAN дефинисана је следећом једнакошћу:

$$u(\varepsilon) = \sqrt{(\delta A)^2 + (\delta N)^2 + (\delta fit)^2 + (\delta M)^2 + (\delta P)^2} \quad (2.3.8)$$

где је

- δA релативна мерна несигурност активности тачкастог извора и износи 2.5% како је дато у сертификату прозвођача извора,
- δN је релативна несигурност броја импулса при мерењу тачкастих извора,
- δfit је несигурност фита ефикасности тачкастих извора функцијом (3.1.4) дефинисана као $1-R^2$, при чему је R^2 параметар квалитета фита, па се δfit креће од 1 до 5%.
- δM је допринос мерној несигурности који потиче од дефинисања геометрије детектора и
- δP је допринос мерној несигурности који потиче од дефинисања карактеристика секундарног референтног материјала.

Доприносе δM и δP се процењују на основу искуства. Већи део података потребних за дефинисање геометрије детектора се налази у сертификату произвођача тако да се њихов допринос мерној несигурности може занемарити.

Мерна несигурност фактора за корекцију на коинцидентно сумирање потиче једино од параметара детектора и секундарног референтног материјала, па се може сматрати да је овај допринос већ урачунат у једначини (2.3.8)

2.4. Калибрација Монте Карло методом

У овом поглављу биће представљена два софтвера која врше Монте Карло симулацију спектралног одговора детектора. Ова два софтвера, иако користе исто начело МК симулације, разликују се по комплексности, по нивоу специјализованости за конкретно гамаспектрометрију, и по третману и улазним параметрима симулације.

2.4.1. GEANT4

Модерна нуклеарна и физика елементарних честица постављају високе захтеве кад су у питању софтвер и софтверске апликације. Конкретно, све је већа потражња за свеобухватним и детаљним симулацијама детектора честица који се користе у експериментима, а такође и свих осталих процеса где имамо било какву интеракцију честица са материјом. Као одговор на ове захтеве, развијен је GEANT4, објектно оријентисани пакет алата за симулацију. Интернационални скуп научника из различитих институција развијао је овај пакет на основу две студије независно рађене у CERN-у и КЕК-у 1993. године. Идеја је била да се направи програм за симулацију базиран на објектно оријентисаном програмирању.

Пакет GEANT4 садржи комплетан алат за моделирање трајекторија и интеракција честица приликом проласка кроз дефинисану средину: дефиниције геометрије и материјала детектора, податке о честицама и интеракцијама и генерисање тзв. примарних догађаја (основни тип интеракције датих честица са материјом). То чини GEANT4 пакет применљивим за широк опсег примена у физици високих енергија, нуклеарној и акцелераторској физици, као и студијама у медицини и астрофизици [43].

Да би се применио на германијумске детекторе и гама спектрометрију, овај пакет мора бити прилагођен тако што се из комплета алата изврши избор и дефинисање у неколико категорија [43].

- *Глобална* категорија дефинише систем јединица који ће бити коришћен, подешавање методе случајног избора бројева итд.
- Категорије *Материјали* и *Честице* дефинишу физичке особине и тип честица и материјала који учествују у симулираним интеракцијама.

- Модул *Геометрија* служи за дефинисање геометријске структуре детектора и пропагацију честица кроз ту структуру.
- Категорија *Трек (Путања)* садржи класе трајекторија и корака у интеракцијама које користи категорија *Процес*, која са своје стране садржи имплементацију физичких интеракција у конкретном случају (електромагнетна интеракција лептона, фотона, хадрона и јона и хадронске интеракције).
- Сви процеси се позивају категоријом *Трекинг (Праћење)* која је задужена за урачунавање доприноса различитих процеса еволуцији система и даје информације о осетљивој запремини за даље прорачуне и дигитализацију.
- Категорија *Догађај* руководи догађајима, а категорија *Ран* сакупља и пребројава догађаје истог типа.

У категорији *Материјали*, дефинишемо материјал извора чији спектар желимо да симулирамо. За неке материјале који се стандардно користе постоје већ дефинисане класе, потребно је само одредити густину и геометрију извора. Густина ће утицати на коефицијент самоатенуације а геометрија ће представљати геометријско место тачака које ће случајним избором бити стављене као почетна тачка главног догађаја (емисије фотона)

Категорија *Честице* дефинише фотоне одређене енергије, места емисије, правца простирања и вероватноће емисије.

У модулу *Геометрија* у којем се дефинише геометрија детектора, треба детаљно дефинисати све структуре које се налазе у систему, попут димензија кристала, дебљине мртвог слоја, димензија кошуљице детектора, димензије централне шупљине итд. Такође треба дефинисати, односно из понуђених изабрати, материјале од којих је направљен сваки појединачни део система. То ће утицати на евентуалну појаву асорпције ван активне запремине детектора.

У категорији *Трек* програм рачуна дужине путања од сваке појединачне тачке у геометрији до првог следећег догађаја.

Спектар је директна последица депоновања енергије фотона унутар активне запремине детектора. Да би овај догађај био симулиран, потребно је дефинисати процесе који доводе до депоновања енергије, као и вероватноће (ефикасне пресеке) за те процесе. Категорија *Процес* симулира процесе интеракције зрачења са материјом и места где се те интеракције догађају.

Категорија *Трекинг* садржи функције и команде које врше сабирање депоноване енергије од почетне емитоване честице кроз све процесе које је она прошла, са одређеном вероватноћом. Честица која је сву своју енергију кроз различите процесе депоновала у активној запремини, биће детектована у пику тоталне апсорпције, док ће честице које су делимично депоновале енергију у активној запремини, а делимично, преко секундарних честица биле изгубљене ван детектора, доприносити континуалном делу спектра.

Коначни резултат симулације је спектар са којег се читавањем површина испод пикова тоталне апсорпције утврђује број детектованих фотона неопходан за рачунање ефикасности.

2.4.2 PHOTON

Као алтернатива релативно гломазном и тешком програмском пакету GEANT4 који од корисника захтева познавање програмирања у C++ језику, направљен је програм PHOTON који је уже специјализован и значајно лакши за употребу [44]. Овај програм симулира пролазак фотона кроз различите средине различитих геометрија, од којих неке могу бити декларисане као активне (извори и/или детектори) а друге су пасивне (апсорбери и расејање), свака са дефинисаним особинама. Резултујућа информација је спектрални одговор сваког испитиваног детектора самостално или у евентуалној коинциденцији са неким другим детекторима. Овај програм, за разлику од GEANT4-а не захтева велико процесорско време нити RAM меморију.

За опсег енергија од 50 keV до 2 MeV који је типичан за узорке из животне средине, фотони углавном интерагују са материјом путем фотоелектричног, Комптоновог ефекта и продукције парова. Вероватноћа интеракције зависи од особина средине и енергије полазног фотона.

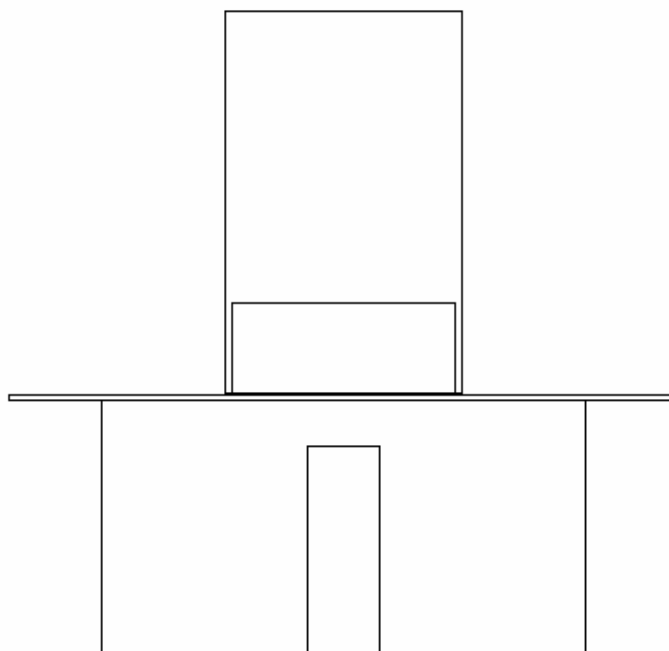
За потребе симулације PHOTON, ефикасни пресеци и линеарни коефицијенти апсорпције за сва три начина интеракције се интерполирају и задају за сваку појединачну средину на почетку саме симулације. Средина може бити састављена од чистог елемента, једињења или смеша више једињења и елемената.

За реалне енергије фотона, случајна тачка у којој се одвија један од три типа интеракције, се дефинише на основу израза [44]:

$$L = -\frac{1}{\mu} \ln \eta, \quad (2.4.1)$$

где је L дужина пута између две интеракције (или емисије и прве интеракције), μ линеарни коефицијент апсорпције за дати процес, а η је псеудослучајни број у интервалу $(0,1)$. Ефекат са најмањом дужином пута до тачке интеракције (најмање L) бива изабран. Ако је тачка интеракције у истој зони из које је фотон потекао или се последњи пут појавио, симулација се наставља сходно типу интеракције која се десила, а ако није, зона се мења.

У случају фотоелектричног ефекта, целокупна енергија полазног фотона, умањена за енергију везе електрона, бива предата електрону што се у симулацији огледа у покретању субрутинe која симулира кретање електрона те енергије у датој средини.



Слика 2.4.1. Пример шематског приказа детектора са узорком како се дефинише у програму PHOTON

Код Комптоновог ефекта, вероватноћа расејања под углом θ у односу на правац кретања упадног фотона се рачуна помоћу формуле Клајн-Нишине. Азимутални угао φ је случајно изабран из опсега $(0,2\pi)$. Енергије расејаног фотона и електрона се рачунају а затим се расејани фотон прати даље, а за електрон се позива одговарајућа субрутина.

Код продукције парова, енергија фотона бива подељена између електрона и позитрона који се даље прате. После термализације позитрона прати се еволуција два анихилациона фотона који се емитују у случајној тачки и у супротним смеровима. Транспорт електрона је компликован проблем с обзиром на велики број интеракција са малим губитком енергије. Ипак, постоји низ поједностављених алгоритама који користе Бете-Хајтлерову формулу и ефикасне пресеке које су дефинисали Селцер и Бергер [45].

Детекторски систем се дефинише у посебном фајлу. Овде се сваки део детектора (као што је активна и неактивна запремина кристала, кућиште итд.) дефинише преко различитих зона, њихових облика, димензија, густина и хемијског састава. Унапред су дефинисане геометрије призме, цилиндра, торуса, коцке и тачке (Слика 2.4.1) и димензије одабране геометрије се дају у *cm*. Опција *Description* дефинише хемијски састав зоне који може бити елемент, хемијско једињење или смеша задата масеним уделом елемената смеше.

Опис извора се састоји од дефинисања зоне која представља извор зрачења, енергије или више енергија са релативним интензитетима емитованих фотона, геометрије поља зрачења и начина посматрања еволуције фотона. Извор зрачења је дефинисан као зона у којој се зрачење генерише и то хомогено по запремини. Уколико је таквих зона више, оне се наводе редом са сепаратором *+*. Тип извора зрачења је предефинисан у неколико категорија. *Fixed* представља фиксирану - познату енергију; *Random* - енергије гама фотона се генеришу случајно у опсегу од *E_{Min}* до *E_{Max}*; *Linear* – енергије гама фотона се генеришу линеарно у опсегу од *E_{Min}* до *E_{Max}* тако да је целокупни опсег подељен на онолико тачака колико је дефинисано канала; *Log* – енергија гама фотона се генеришу логаритамски у задатом опсегу, тако да је целокупни опсег подељен на онолико тачака колико је дефинисано канала; *Anihilation* – генерише се анихилационо зрачење енергије 511 keV и по сваком догађају, генеришу се два гама фотона усмерена у супротним смеровима. Такође, за неке ситуације није потребно пратити, као нпр. фотоне расејане у неактивне делове запремине детектора, при чему свако такво ограничавање повећава брзину рачунања. Под геометријом поља зрачења предефинисане су две опције: сферна – гама фотони се генеришу са подједнаком вероватноћом у свим правцима у простору и конусна –

гама фотони се генеришу у конусу дефинисаном максималним и минималним просторним углом.

Опис спектра се дефинише у посебном одсеку који садржи име спектра, име зоне у којој се догађају интеракције које посматрамо, име фајла под којим ће спектар бити меморисан, број канала који ће бити анализирани, веза између броја канала и енергије (тј. енергетска калибрациона крива) и FWHM за дати тип детектора. Постоји могућност дефинисања спектра у којем се енергија фотона депонује у више зона. Енергетска калибрациона крива је дефинисана као линеарна функција броја канала, при чему је коефицијент правца дат величином GAIN а слободни члан, величином OFFSET. Величина FWHM се такође дефинише формулом која повезује висину и ширину сваке линије у спектру путем 11 основних математичких функција и свих основних оператора.

Симулирани спектар се даље користи за добијање ефикасности на исти начин на који бисмо користили и експериментално добијен спектар. Резултати симулације се могу графички представити или се експортовати као текстуални фајл, чиме се манипулација резултатима значајно олакшава.

2.4.3 Мерна несигурност у Монте Карло симулацији

У израчунавањима која користе Монте Карло метод одступање од тачне вредности има другачију природу од свог еквивалента у мерењу, односно мерне несигурности. У Монте Карло методи, мерна несигурност је пробабилистичка по својој природи. Да би смо n пута повећали тачност процењене вредности неке величине коју рачунамо потребно је да повећамо број N случајних тачака у којима вршимо процену вредности и то $2^{d/2}$ пута, при чему је d број димензија функције. У 68,3% случајева, процењена вредност ће бити у интервалу ширине једне стандардне девијације у околини тачне вредности. Са повећањем броја N , смањује се ширина интервала, тј имамо конвергенцију средње вредности ка тачној вредности. Ова конвергенција зависи од пробабилистичке природе усредњавања а не од броја димензија функције, тако да за функције са великим бројем димензија, Монте Карло метод конвергира тачној вредности брже од других нумеричких метода. [46]. Ово одступање симулираног од тачног резултата можемо приписати методи рачунања и назвати је несигурношћу методе. За довољан број N

симулираних догађаја овај допринос постаје занемарљив, под условом да су сви параметри добро дефинисани.

С обзиром на то да су улазни параметри величине које се мере или процењују, њихов допринос одступању од тачне вредности не може бити занемарљив.

У случају симулације спектра из којег се добија калибрациона крива, као улазни подаци дефинишу се величине које су карактеристике геометрије и састава детектора и узорка, а које су мерене и самим тим уносе своју мерну несигурност. Улазне величине су пречник и дужина кристала, димензије централне шупљине, дебљине мртвих слојева, димензије прозора детектора, запремина извора, густина и хемијски састав извора и амбалаже и положај извора у односу на детектор. Свака од ових величина има свој допринос несигурности крајњег резултата, који треба правилно проценити и уврстити у комбиновану мерну несигурност, дату релацијом [47, 48]:

$$u_{simulation} = \sqrt{\sum (\delta x_i)^2}, \quad (2.4.2)$$

где δx_i представља релативну мерну несигурност величине x_i .

Доприноси мерној несигурности који потичу од дефинисања геометрије детектора могу значајно да утичу на резултат. Показано је у [49] да промена геометријских параметара детектора за само неколико милиметара може довести до разлике у резултујућој ефикасности које је $\sim 15\%$. Зато је чак и са модерним кодовима за симулацију тешко свести мерну несигурност на мање од 5% [50].

Било је примера [51] у којима су аутори укупну комбиновану несигурност смањили на вредност мању од 1% . Смањење мерне несигурности се постиже такозваном оптимизацијом параметара. Сукцесивним променама параметара који описују геометрију и хемијски састав делова детектора као и извора зрачења за који се симулација изводи и поређењем добијених резултата са експерименталним вредностима, могуће је доћи до оптимизованих параметара, који дају најбоље слагање. Мерна несигурност која потиче од оптимизованих параметара је значајно смањена у односу на мерну несигурност почетних параметара.

3. Резултати и дискусија

У наредним поглављима биће представљени резултати калибрације ефикасности детектора применом пет различитих метода, као и анализа и дискусија резултата мерења и израчунавања.

3.1 Експериментална калибрација ефикасности

Као што је наведено у поглављу 2.1, за потребе експерименталне калибрације ефикасности детектора коришћени су секундарни референтни радиоактивни материјали. У табели 3.1.1. дате су карактеристике детектора који су калибрисани.

Табела 3.1.1. Карактеристике детектора.

ДЕТЕКТОР		D₁	D₂	D₃
Релативна ефикасност		20 % (сертификат)	18 % (сертификат)	50 % (сертификат)
Резолуција	на 122 keV	0,850 keV (сертификат)	0,759 keV (експериментално)	1.00 keV (експериментално)
	на 1332 keV	1,8 keV (сертификат)	1,69 keV (експериментално)	1,9 keV (експериментално)
Пик/Комптон однос		51:1 (сертификат)	56.1:1 (експериментално)	65:1 (сертификат)
Пречник кристала		49,5 mm	48 mm	65 mm
Дужина кристала		56,5 mm	48,5 mm	67 mm
Удаљеност кристала од капе детектора		5,5 mm	5 mm	5 mm
Материјал улазног прозора		Al	Be	Be
Радни напон		(+) 4500 V	(-) 3000 V	(+) 3000 V

Детектори D₁ и D₃ су *p* – типа са алуминијумским улазним прозором, док је детектор D₂ *n* – тип са берилијумским прозором. Сва три детектора су смештена у оловно заштитно кућиште. Унутар кућишта налази се додатна заштита у виду облога од гвожђа и кадмијума код детектора D₁ и облога од бакра и плексигласа код детектора D₂ и D₃.

Мерења су трајала по 60000 секунди а секундарни референтни радиоактивни материјали су постављани директно на капу детектора,

коаксијално. Непосредно пре или после мерења секундарних референтних материјала, приступало се мерењу бланк узорака исте геометрије и матрикса, под истим условима и у истом трајању.

Да би прецизност, тачност и репродуцибилност резултата била загарантована, као и да би се елиминисали извори мерне несигурности, над детекторима се редовно врши контрола квалитета која подразумева планиране и редовне мере као што су:

- мерење фона да би се потврдило одсуство контаминације кућишта, заштите и носача детектора. Интензитет и стабилност фона зависе од мноштва фактора као што је материјал и техничке карактеристике детектора, дизајн и материјал кућишта, проветравање просторије у којој се мерење изводи итд. Свако одступање укупног броја импулса у фону од неке просечне стабилне вредности указује на могућу контаминацију детектора или околине или пак, високу концентрацију радона у просторији. У сваком од ових случајева треба предузети корективне мере које обезбеђују поузданост резултата мерења. У нашој лабораторији фон се мери свакодневно и показује стабилност броја импулса у оквиру статистичке грешке бројања, са сезонским варијацијама које су последица природних сезонских варијација радона;

- Мерење активности тачкастог извора се врши ради контроле стабилности ефикасности детектора.

- Такође, положај пикова тоталне апсорпције при мерењу тачкастих извора говори о стабилности енергетске калибрације, док ширина на полувисини (FWHM) и ширина на десетини висине (FWTM) говоре о стабилности појачања у електронском колу детектора.

Границе прихватљивости величина које се мере у оквиру контроле квалитета су постављене на $\pm 2\sigma$, док су границе упозорења постављене на $\pm 3\sigma$, где је σ стандардна девијација претходних мерења у унапред утврђеном периоду. Све ове величине се контролишу периодично (једном недељно) и према потреби се предузимају корективне мере (поновна енергетска калибрација, подешавање појачања, проветравање просторије и сл.)

Осим претходно наведених, интерних провера стабилности и репродуцибилности мерног система и резултата мерења, контрола квалитета обухвата и екстерне провере. Један од облика екстерне провере је учествовање у међулабораторијским интеркомпарацијама и тествима, који подразумевају

упоређивање резултата добијених мерењем непознатог узорка са сертификованим вредностима које дефинише организатор теста, нпр. Међународна Агенција за Атомску Енергију (МААЕ) [52].

За анализу спектра се користи софтверски пакет за аквизицију и анализу - GENIE2000, произвођача Canberra Industries. Анализа спектра подразумева идентификацију радионуклида на основу пикова тоталне апсорпције и одређивање површине испод пика која представља број фотона детектованих на појединачној енергији. Ефикасност детектора на датој енергији за дату геометрију и матрикс, одређује се на основу једнакости (2.1.3).

Активност секундарног референтног радиоактивног материјала се одређује на основу количине примарног референтног материјала од којег је направљен. Такође, урачунава се и корекција на радиоактивни распад, тако да је активност одређена на основу једнакости:

$$A = A_0 e^{-T/T_{1/2}} \quad (3.1.1)$$

где је

- A_0 активност радионуклида у секундарном референтном материјалу на референтни датум, како је дато у Табели 2.1.3,

- T је време у данима протекло од референтног датума до датума када је мерење извршено и

- $T_{1/2}$ је време полураспада радионуклида, такође у данима.

Корекција на коинцидентно сумирање је урађена је применом софтвера EFFTRAN, модула Coincidence Summing Corrections, којим се одређују корекциони фактори. Кригована вредност броја фотона детектованих у пику тоталне апсорпције, добија се множењем величине N корекционим фактором.

Релативна мерна несигурност ефикасности се дефинише једначином (2.1.8) [29]. У овој једнакости, релативна несигурност активности δA , која је једнака релативној несигурности активности A_0 датој у сертификату стандардног раствора, је била у опсегу 1-2%, δP је на основу искуства у раду Лабораторије процењена на 2%. Вредност δM је процењена на 2% за матрикс водени раствор и активни угаљ и 3% за остале матриксе и углавном потиче од евентуалне нехомогености настале приликом мешања носача и радиоактивног раствора и

одмеравања количине раствора за накапавање [26]. Доприноси мерној несигурности који потичу од мерења времена t и вероватноће емисије фотона $P\gamma$ су занемарљиви.

Укупна релативна мерна несигурност $u(\varepsilon)$ која је овако дефинисана даје резултат на нивоу поверења од 1σ и за све енергије и све матриксе и геометрије не прелази вредност од 5%.

Калибрациона крива у функцији енергије добија се фитовањем експериментално добијених ефикасности параметарском функцијом која описује зависност ефикасности од енергије за сваки детектор и сваку геометрију и матрикс. Ова функција мора да покрије широк опсег енергија (40-2000 keV).

Од свих испитиваних функција и комбинација двеју функције, најбоље слагање са експерименталним резултатима показује функција дата релацијом (2.1.9) [32].

Експериментални резултати фитовани овом функцијом за сва три детектора и све испитиване геометрије и матриксе дати су на сликама 3.1.1, 3.1.2 и 3.1.3. У свим случајевима, фактор R^2 који описује слагање фитоване функције са експерименталним тачкама је у опсегу од 99%-99.9%.

На графицима који приказују калибрационе криве за теже матриксе (песак и земља) уочава се локални минимум на енергијама око 600 keV. Овај феномен је последица узастопних Комптонових расејања која су доминантни ефекат у средњем делу опсега енергија [53]. Такође, посматрањем калибрационих кривих за све геометрије на једном графику, уочавамо постојање зависности ефикасности од густине матрикса [40], која је израженија од зависности од запремине узорка.

Уочљива је и разлика у нагибу калибрационе криве између два различита типа детектора. Наиме детектори D_1 и D_3 (p -тип) имају стрмији нагиб са мањом ефикасношћу у нискоенергетском делу спектра и максимумом на енергији 130-150 keV. Детектор D_2 (n - тип) са друге стране, има мање стрм нагиб на почетном делу криве и значајно већу ефикасност на ниским енергијама.

Тачност калибрације је проверена редовним мерењем референтних материјала у оквиру великог броја међулабораторијских интеркомпарација и тестова. Као пример, у табели 3.1.2 наведени су резултати мерења и референтне вредности за узорак IAEA-477 маховина-земља мерен у оквиру интеркомпарације IAEA-CU-2009-03 [54], IAEA-434 фосфогипс мерен у оквиру интеркомпарације IAEA-CU-2008-03 [55], узорак воде мерене у оквиру интеркомпарације IAEA-CU-

2008-03 [55] и узорак траве мерене у оквиру интеркомпарације IAEA-TEL-2012-03 [56].

Припрема узорака IAEA-477 маховина-земља и траве IAEA-TEL-2012-03 обухватала је сушење на 105°C, док је узорак воде IAEA-CU-2009-03 концентрисан упаравањем до 200 ml. Узорак IAEA-434 фосфогипс није посебно припреман. Геометрије мерења су биле цилиндрична кутија од 250 ml за узорак маховина-земља, цилиндричн кутија од 120 ml за узорак траве и фосфогипса и боца од 125 ml за узорак воде.

Мерење је извршено на сва три детектора а наведени резултат представља средњу вредност резултата добијених на различитим детекторима. Да би се оценила тачност резултата, коришћен је u_{test} критеријум дат једнакошћу [57]:

$$u_{test} = \frac{|A_{IAEA} - A_{LAB}|}{\sqrt{u_{IAEA}^2 + u_{LAB}^2}}, \quad (3.1.2)$$

где су

A_{LAB} и u_{LAB} активност и мерна несигурност активности узорка, како је измерено у лабораторији кандидату,

A_{IAEA} и u_{IAEA} су референтне вредности за активност и мерну несигурност које је дао организатор интеркомпарације (МААЕ).

Мерна несигурност лабораторијског резултата је израчуната на основу следеће једначине:

$$u_{LAB} = \sqrt{u(\varepsilon)^2 + (\delta N)^2 + (\delta_{fit})^2}, \quad (3.1.3)$$

где је $u(\varepsilon)$ дефинисано у једначини (2.1.8), δN је релативна мерна несигурност броја детектованих фотона при мерењу узорака, а δ_{fit} је допринос мерној несигурности који потиче од фитовања експерименталних ефикасност параметарском кривом дефинисаном у (2.1.9). Остали доприноси мерној несигурности су занемарљиви.

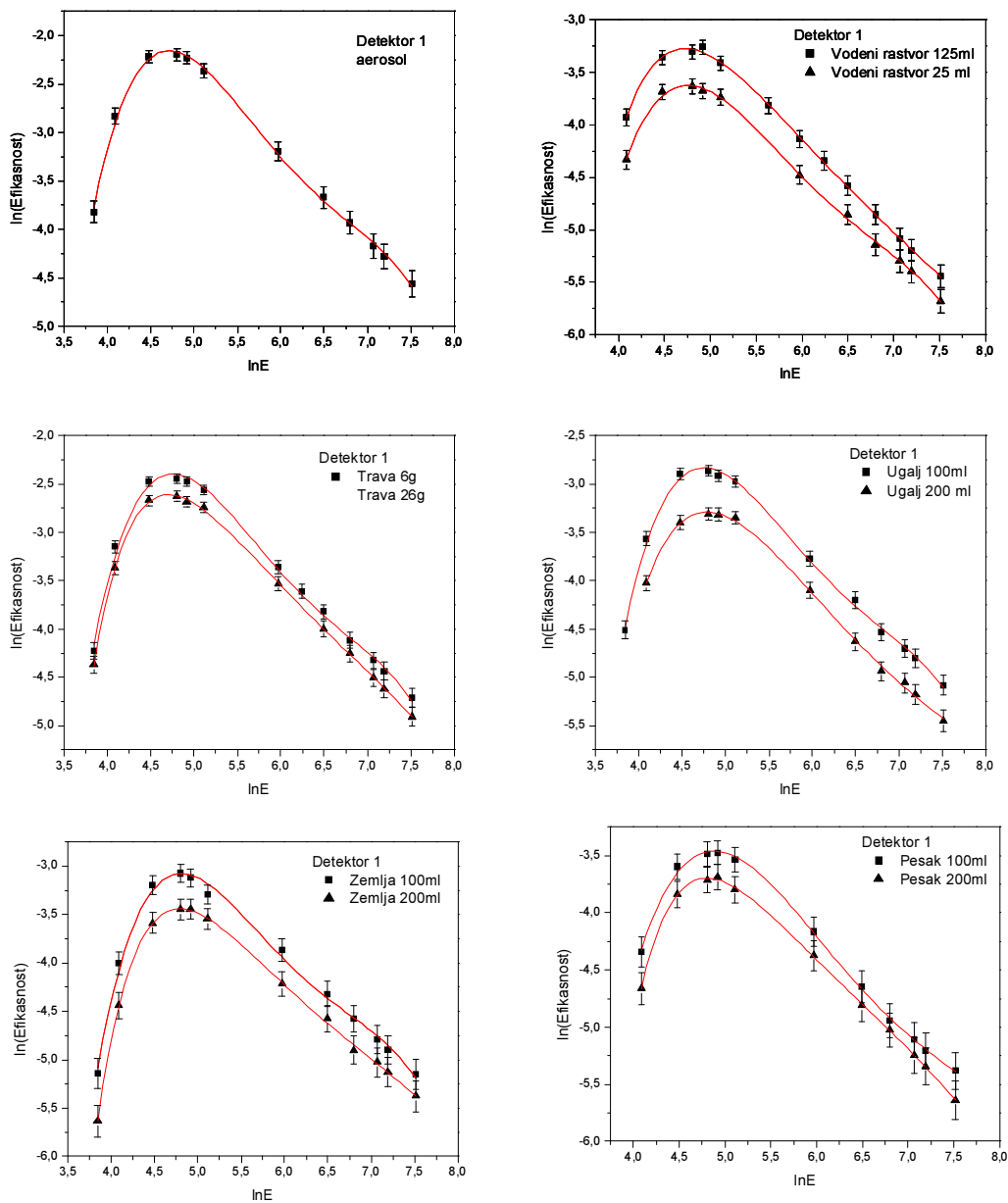
Гранична вредност за u_{test} параметар износи 2.58 за ниво вероватноће од 99% тако да су сви резултати са $u < 2.58$ прихватљиви [57].

Резултати мерења наведених узорака дати су у табели 3.1.2. заједно са референтним вредностима и вредностима u_{test} параметра.

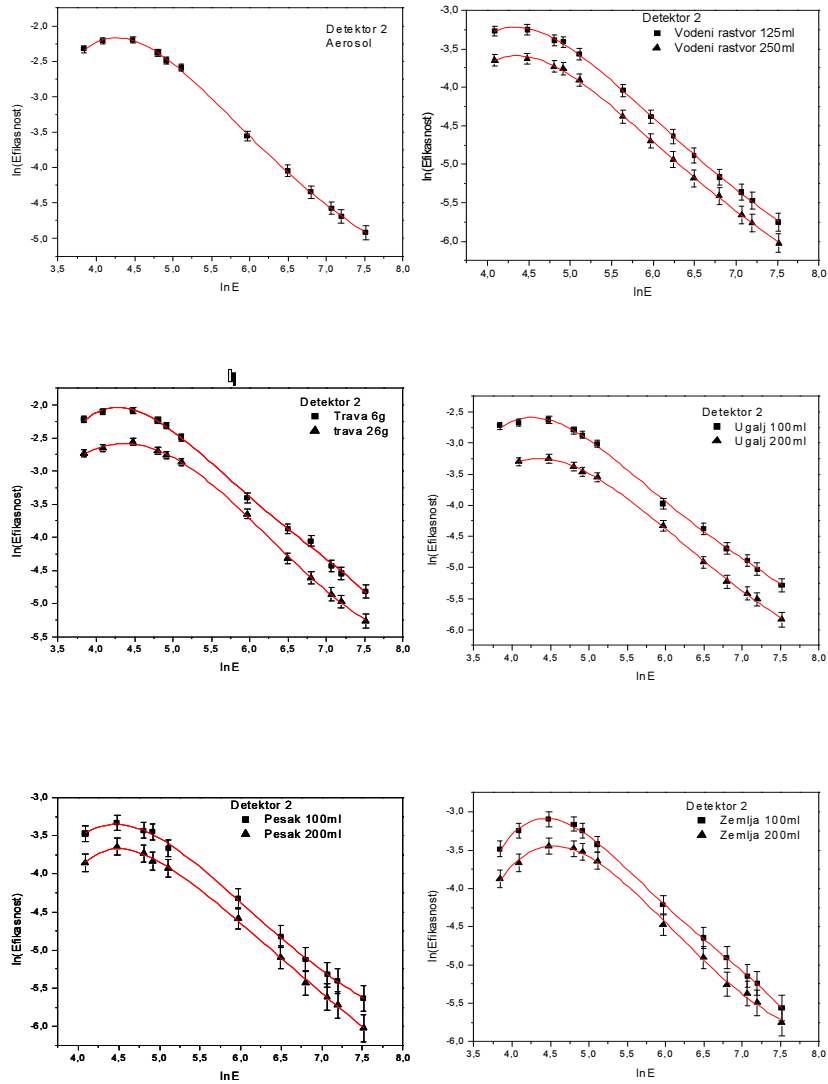
Табела 3.1.2. Резултати мерења и референтне вредности за узорке мерене у оквиру различитих интеркомпарација. Резултати су наведени са комбинованом мерном несигурношћу на нивоу поверења од 2σ .

Узорак	Радионуклид	Измерена активност [Bq/kg]	Референтна вредност [54, 55, 56] [Bq/kg]	u_{test}
Водени раствор IAEA-TEL- 2012-03	^{134}Cs	75 ± 2	82.6 ± 0.71	1.69
	^{152}Eu	112 ± 4	118.6 ± 1.0	0.39
IAEA-477 маховина- земља IAEA-CU- 2009-03	^{241}Am	2.2 ± 0.3	2.2 ± 0.2	0
	^{228}Ac	32 ± 2	37 ± 2	1.77
	^{226}Ra	27 ± 2	25.1 ± 2.0	0.67
	^{214}Bi	27 ± 2	24.8 ± 2.0	0.78
	^{214}Pb	27 ± 2	26.0 ± 2.0	0.35
	^{212}Pb	31 ± 4	37.0 ± 1.5	1.40
	^{210}Pb	440 ± 20	420 ± 20	0.71
	^{208}Tl	13 ± 1	13.0 ± 0.5	0
	^{40}K	530 ± 30	550 ± 20	0.55
Трава IAEA-TEL- 2012-03	^{137}Cs	860 ± 30	785 ± 24	1.95
	^{134}Cs	320 ± 10	306 ± 20	0.63
IAEA-434 фосфогипс IAEA-CU- 2008-03	^{210}Pb	610 ± 40	680 ± 29	1,42
	^{238}U	103 ± 9	120 ± 5.5	1,61
	^{226}Ra	710 ± 40	780 ± 31	1,38

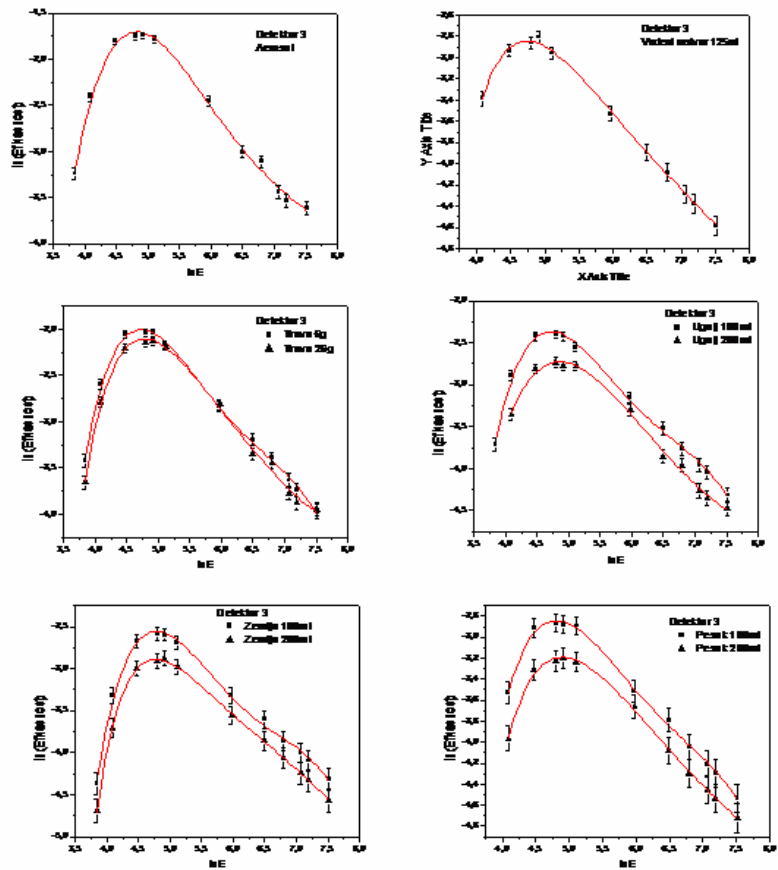
Измерена активност је дата као средња вредност мерења на два или сва три детектора. Као што се види из табеле, сви резултати су прихватљиви.



Слика 3.1.1. Калибрационе криве и експерименталне тачке за детектор D_1 . Криве су груписане по матриксима.



Слика 3.1.2. Калибрационе криве и експерименталне тачке за детектор D_2 . Криве су груписане по матриксима.



Слика 3.1.3. Калибрационе криве и експерименталне тачке за детектор D₃ Криве су груписане по матриксима.

3.2 Резултати калибрације ефикасности аналитичким методом

Први корак у аналитичкој методи одређивања ефикасности је одређивање ефективне дубине интеракције h_0 . Извршена су мерења тачкастих извора ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{54}Mn and ^{60}Co , произвођача LMRI Coffret d'etalons, тип производа gamma ECGS-2, на 5 различитих висина (0, 5.5, 7.5, 9.5 и 11.5 cm) у односу на капу детектора. Различите висине су постигнуте помоћу пластичног носача са покретним дном. Почетна висина је била $x_0=0$ cm. Време мерења је 1000, 1500 или 2000 секунди у зависности од активности извора, како би се обезбедило да мерна несигурност бројања буде мања од 1%.

Затим је извршено фитовање резултата линеарном функцијом $\sqrt{\frac{N(x_0)}{N(x)}} - 1 = f(x - x_0)$ чији коефицијент правца даје ефективну дубину интеракције h_0 .

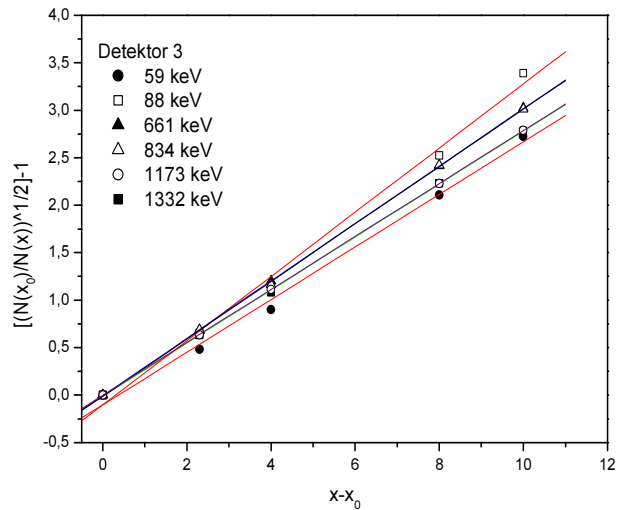
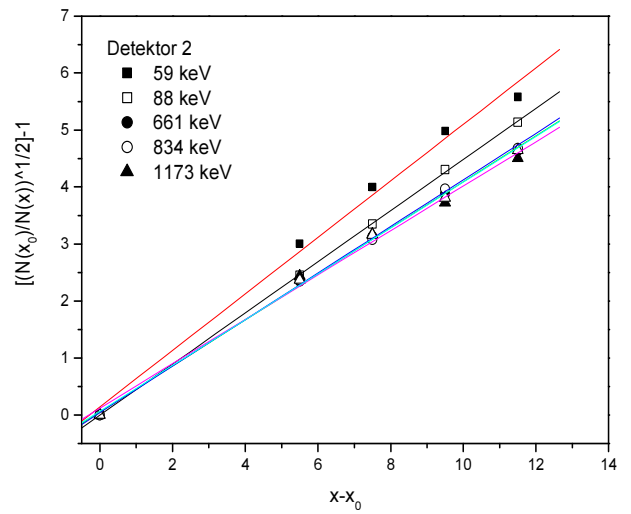
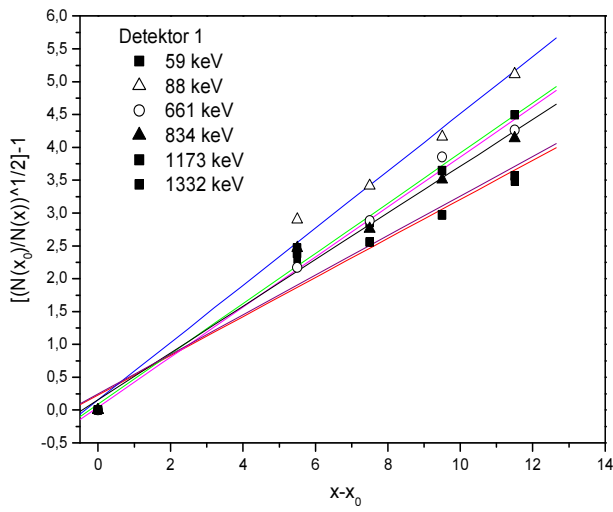
Мерна несигурност овако добијене величине h_0 добијена је на основу једнакости (2.2.9). Допринос мерној несигурности који потиче од одређивања висине на коју се извор поставља је процењена на 1%.

Ефективне дубина интеракције h_0 зависи од енергије. Такође, секундарни референтни материјали садрже друге радионуклиде у односу на тачкасте изворе, тако да је неопходно да се одреди $h_0 = f(E)$. Ова зависност је описана функцијом (2.2.2) коју овде поново наводимо ради подсећања [14]:

$$\ln h_0 = a_1 + b_1 \ln E + c_1 (\ln E)^2 \quad (2.2.2)$$

где су a_1 , b_1 , и c_1 коефицијенти фита.

Линеарна зависност $\sqrt{\frac{N(x_0)}{N(x)}} - 1$ од висине за испитиване енергије тачкастих извора представљена је на слици 3.2.1. Ефективне дубине интеракције добијене за сва три детектора представљене су у табели 3.2.1, док је зависност h_0 од енергије приказана на слици 3.2.2.



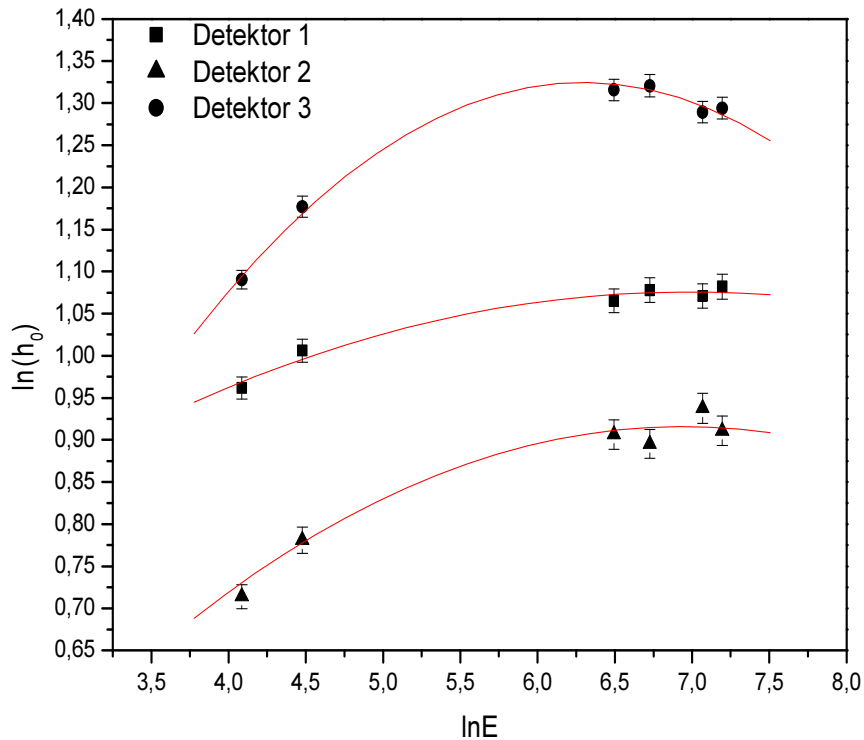
Слика 3.2.1. График зависности $\sqrt{\frac{N(x_0)}{N(x)}} - 1 = f(x - x_0)$ за сва три детектора. Реципрочна вредност коефицијента правца представља ефективну дубину интеракције на тој енергији. Мерна несигурност је дефинисана једначином (2.2.9)

Табела 3.2.1. Ефективне дубине интеракције h_0 за сва три детектора. Вредности су добијене мерењем тачкастих извора на 5 различитих висина у односу на капу детектора.

Тачкасти извор	E [keV]	h_0 [cm] D ₁	h_0 [cm] D ₂	h_0 [cm] D ₃
²⁴¹ Am	59,5409	2,62 ± 0,03	2,04 ± 0,02	2,98 ± 0,03
¹⁰⁹ Cd	88	2,73 ± 0,03	2,23 ± 0,02	3,45 ± 0,03
¹³⁷ Cs	661,657	2,84 ± 0,03	2,47 ± 0,02	3,62 ± 0,04
⁵⁴ Mn	834	2,94 ± 0,03	2,45 ± 0,02	3,75 ± 0,04
⁶⁰ Co	1173,228	2,92 ± 0,03	2,55 ± 0,03	3,63 ± 0,04
	1332,492	2,95 ± 0,03	2,49 ± 0,02	3,65 ± 0,04

Како се може видети из табеле 3.2.1, све ефективне дубине интеракције се налазе унутар запремине детектора. Ако посматрамо h_0 на истој енергији за три различита детектора, уочавамо зависност од пречника кристала детектора. Показано је [58, 59] да је h_0 директно пропорционално полупречнику кристала детектора и да је коефицијент пропорционалности функција дужине детектора.

Након одређивања ефективне дубине интеракције, на основу једначине 2.2.6 дате у поглављу 2.2, фитоване су експериментално добијене ефикасности за одређене геометрије и матриксе. Изабране геометрије су оне које се најчешће користе у раду, тачније цилиндрична кутија од 120 и 250 ml. Висина пуњења геометрије зависи од доступне количине узорка (било у нативном стању или после концентрисања), која значајно варира. Успостављена је аналитичка веза између висине пуњења узорка и ефикасности, за константан полупречник геометрије мерења. Такође, коришћена је веза између густине и ефикасности [40] за два матрикса са приближно истом запремином и са највећом разликом у густини, односно за песак и угаљ.



Слика 3.2.2. График зависимости эффективной глубины взаимодействия h_0 от энергии. Заједно су приказани фитови експерименталних тачака функцијом (2.2.2) за сва три детектора. Мерна несигурност је дефинисана једначином (2.2.9)

С обзиром на то да је за фитовање предложеном аналитичком функцијом потребно познавање ефикасности за различите висине пуњења извора истог матрикса, на основу познате, експерименталне ефикасности, трансфером ефикасности се добија ефикасност за различите висине. Овако добијене вредности су фитоване функцијом (2.2.6).

На основу коефицијената фита, израчунава се ефикасност за исти матрикс на другој висини пуњења h , која одговара висини пуњења непознатог узорка. Овај поступак је урађен за матрикс песак и за матрикс угаљ, за геометрије цилиндрична кутија од 120 и 250 ml.

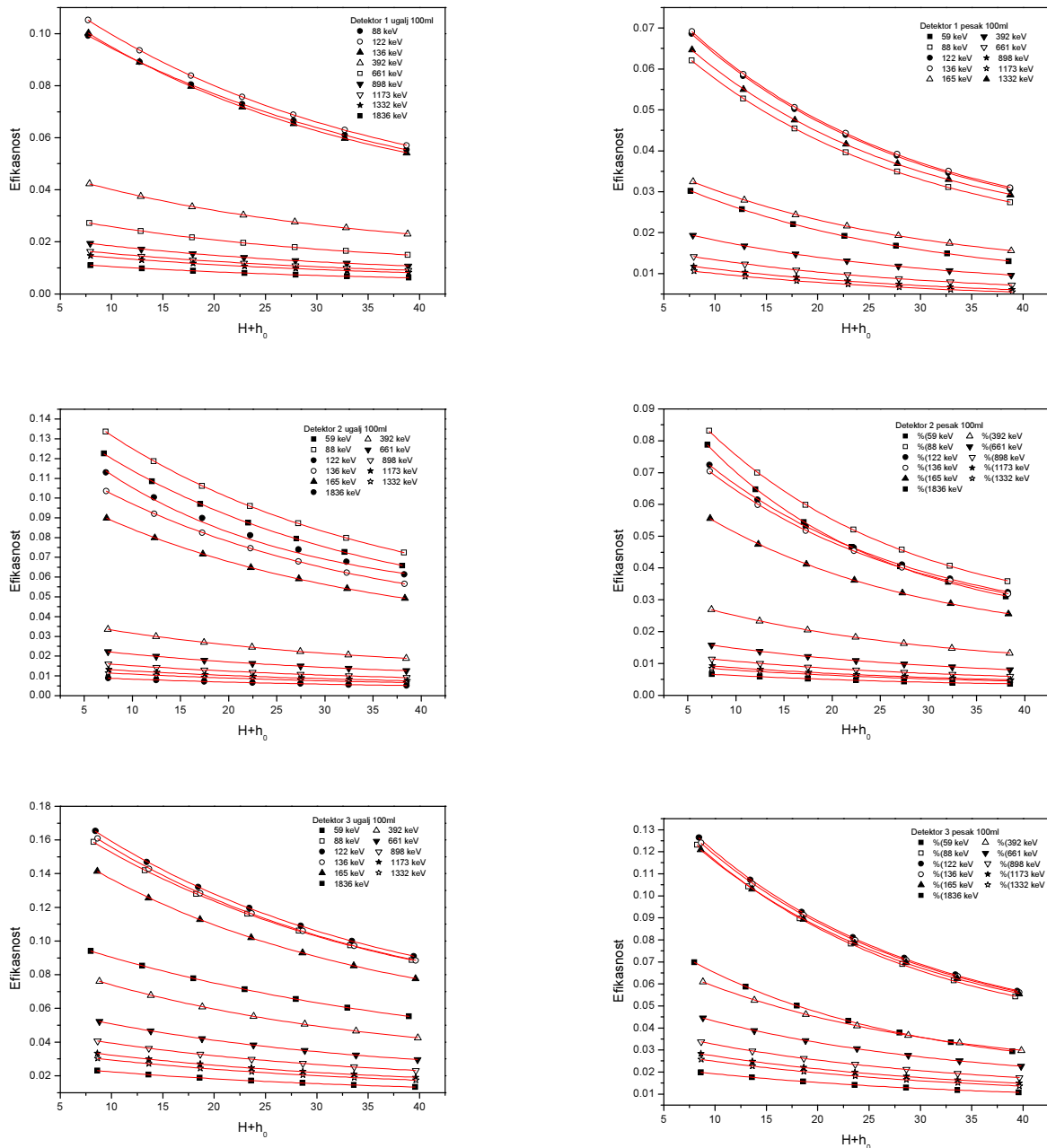
Овако израчунате ефикасности на висини h , за два матрикса различитих густина, фитујемо линеарном функцијом и на основу те зависности се одређује ефикасност на густини ρ , која одговара густини непознатог узорка. Треба напоменути да густина ρ представља густину паковања материјала, како је

дефинисано у поглављу 2.2.1, а не његову специфичну тежину. Из тог разлога постоји једнозначна веза између ρ и масе узорка односно иста линеарна функција повезује и масе матрикса. На слици 3.2.3 приказани су резултати фитовања ефикасности за различите висине, функцијом (2.2.6). Ради подсећања, овде поново наводимо ову функцију:

$$\varepsilon(H, E, h_0) = a_2 + b_2 e^{-(H+h_0)/c_2}, \quad (2.2.6)$$

Применом функције (2.2.6) за одређивење ефикасности на висини h у два различита матрикса и затим линеарне зависности ефикасности од масе (густине) долазимо до ефикасности за узорак напуњен до висине h матриксом густине ρ .

Фитовање је дало вредности коефицијената a_2 , b_2 и c_2 . Коефицијент a_2 управо је једнак ефикасности на максималној испитиваној висини на датој енергији. То је и очекивано, с обзиром на то да је познато да ефикасност опада са порастом висине узорка због све израженијег ефекта атенуације фотона у самом узорку.



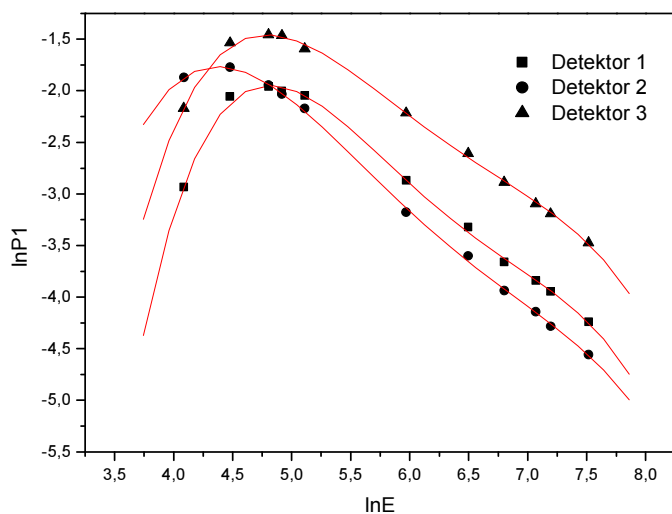
Слика 3.2.3. Ефикасности на различитим висинама за угаљ и песак у цилиндричној кутији од 120 ml. Крива представља фит функцијом (2.2.6).

На слици 3.2.4 представљена је зависност коефицијента фита b_2 од енергије. Установљено је да је ова зависност облика

$$b_2 = \exp\left(\sum_i \alpha_i (\ln E)^i\right) \quad (3.2.1)$$

где су α_i коефицијенти фита и i је од 0 до 4. На овај начин је инкорпорирана зависност ефикасности од енергије која је потврђена на експериментално добијеним ефикасностима.

Коефицијент c_2 има приближно константну вредност која не зависи од димензија и типа детектора. Овај коефицијент износи између 10.1 и 10.2 за сва три детектора за матрикс угаљ 1 и 10 за угаљ 2. За матрикс песок 1, овај коефицијент има за сва три детектора приближно исту вредност од 9.8 док у случају песка 2, он износи приближно 12. У случају лакшег матрикса, коефицијент c_2 се спорије мења са променом запремине, што је последица мањих разлика у густини паковања код угља у односу на песок. Очигледно је да коефицијент c_2 зависи од густине и осталих карактеристика матрикса, и да је обрнуто пропорционалан линеарном атенуационом коефицијенту за дати матрикс и густину паковања. С обзиром на то да коефицијент c_2 не зависи од карактеристика детектора, можемо претпоставити да је везан искључиво за матрикс и да га назовемо ефективним коефицијентом самоапсорпције.



Слика 3.2.4. Зависност коефицијента b_2 од енергије. Као пример представљен је случај матрикс угаљ, цилиндрична кутија од 120 ml

Процедура аналитичког метода калибрације је проверена одређивањем ефикасности за земљу 1, земљу 2 и траву 2. На основу ефикасности за угаљ 1 и песок 1, израчуната је ефикасност за земљу 1, а на основу ефикасности за угаљ 2 и песок 2, израчуната је ефикасност за земљу 2 и траву 2. Израчунате вредности су упоређене са експериментално добијеним вредностима за ове геометрије.

Мерна несигурност је одређена на основу једнакости (2.2.10). Мерна несигурност добијених резултата је одређена на основу мерне несигурности експерименталних ефикасности, с обзиром на то да се непозната ефикасност рачуна на основу две познате. За детекторе D_1 и D_3 укупна мерна несигурност ефикасности је око 5% док је за D_2 мерна несигурност око 7%.

Табела 3.2.2 Релативно одступање теоријски од експериментално добијених ефикасности, за три различита секундарна референтна материјала, за све енергије присутне у секундарном референтном материјалу.

Матрикс и геометрија	E [keV]	Релативно одступање од експерименталних вредности [%]		
		D_1	D_2	D_3
Трава 2	59,5364	0,3	14,0	25,8
	88,0341	2,4	14,2	9,3
	122,0612	4,1	10,5	5,6
	136,473	8,8	7,5	0,3
	165,8575	3,9	4,9	2,6
	391,698	7,1	15,5	7,7
	661,657	3,2	11,8	5,4
	898,036	7,7	8,4	8,7
	1173,2	2,4	14,9	3,9
	1332,5	3,2	11,4	5,0
	1836,05	2,7	14,6	0,2
Земља 1	59,5364	0,06	6,3	9,2
	88,0341	8,6	8,4	0,6
	122,0612	12,1	2,2	4,4
	136,473	9,8	5,7	4,8
	165,8575	2,2	5,1	0,4
	391,698	8,6	9,1	0,9
	661,657	9,9	4,4	1,3
	898,036	9,4	3,6	0,9
	1173,2	5,3	2,9	3,9
	1332,5	4,7	3,1	3,6
	1836,05	0,6	7,4	3,4
Земља 2	59,5364	3,3	4,2	1,2
	88,0341	4,2	0,8	4,1
	122,0612	8,3	8,9	3,1
	136,473	7,3	13,9	3,9
	165,8575	11,6	8,5	2,0
	391,698	2,4	2,5	5,8
	661,657	4,0	8,0	8,5
	898,036	0,5	0,74	1,4
	1173,2	6,5	4,6	0,8
	1332,5	6,4	3,7	1,4
	1836,05	10,3	8,0	5,9

Ради поређења, израчуната ефикасност у зависности од енергије заједно са експериментално добијеним ефикасностима, приказана је на сликама 3.2.5, 3.2.6 и 3.2.7 за траву 2, земљу 1 и земљу 2, респективно.

Резултати поређења, у виду односа теоријски и експериментално добијене ефикасности за три различита секундарна референтна материјала, дати су у табели 3.2.2.

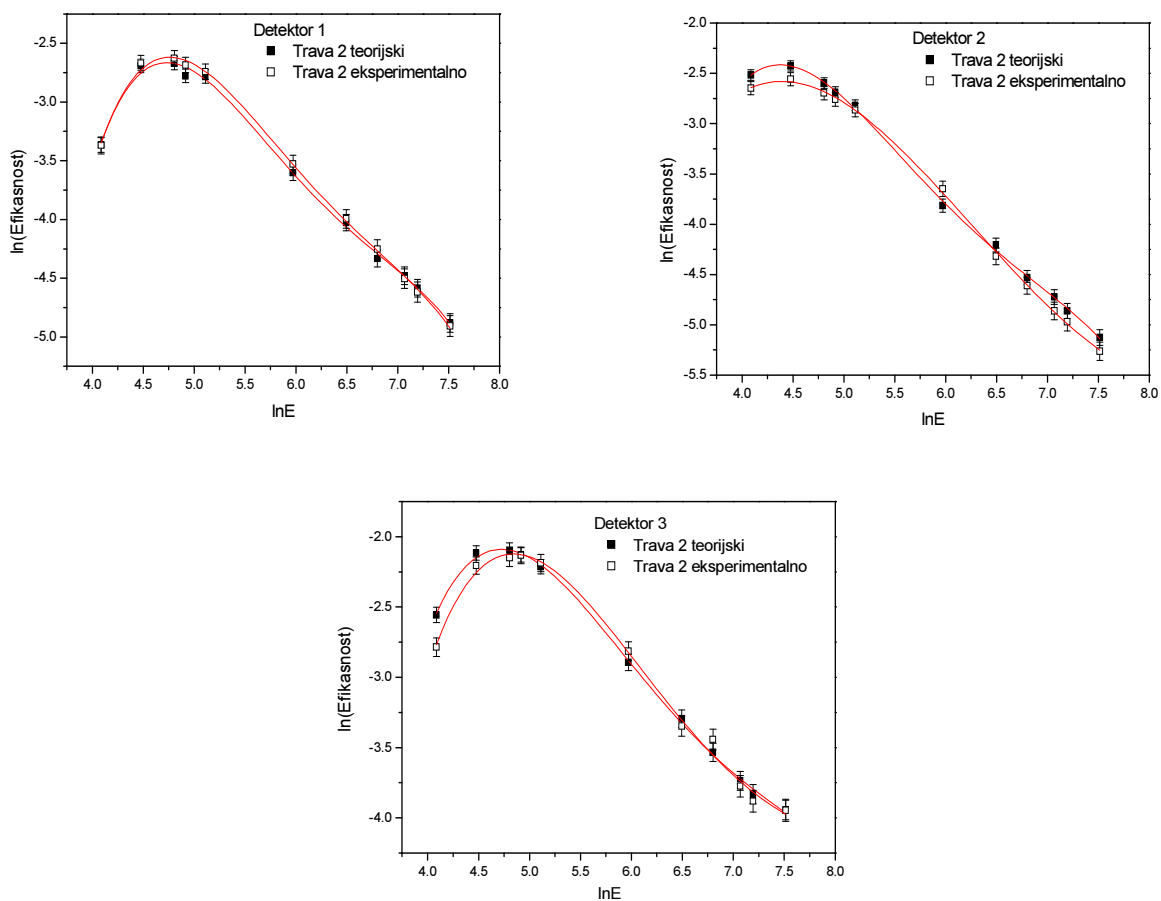
Одступања теоријски добијене ефикасности од експерименталних резултата су у распону од 0,06% до 25,8%. За детектор D_1 максимално одступање износи 12,1% на 122 keV у геометрији земља 1, док је најмање 0,06% на 59 keV у матриксу земља 1. Велико одступање на 122 keV је последица мале вероватноће емисије на тој енергији, због чега су почетни подаци измерени са великом мерном несигурношћу. Уочљиво је и са слике 3.2.5, да је ефикасност за земљу 1 нижа за 5-12% у односу на експерименталну на свим енергијама осим 59, 165 и 1836 keV. Такође, добро слагање резултата постоји за земљу 2, где су одступања реда величине мерне несигурности експерименталне ефикасности. Уколико се ова одступања додају у буџет мерне несигурности, израчуната ефикасност се може применити у редовном мерењу, нарочито за узорке мање масе.

За детектор D_2 , одступања се крећу у распону од 0,7 до 15,5%. Уочљив је тренд "прецењивања" ефикасности у нискоенергетском делу спектра, нарочито у матриксу трава. За разлику од D_1 , овде су одступања мања за матрикс земља у обе геометрије. Ипак ова одступања су прихватљива јер не прелазе 10% за земљу у обе геометрије. Ефикасност израчуната за траву показује нешто већа одступања која се крећу око 10%. Теоријски добијене ефикасности су више у односу на експерименталне вредности. У овом случају, занемаривање ефеката самоапсорпције у узорку трава 2, доводи до већег одступања.

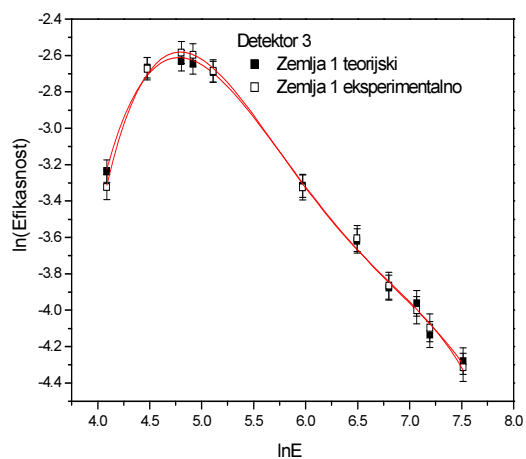
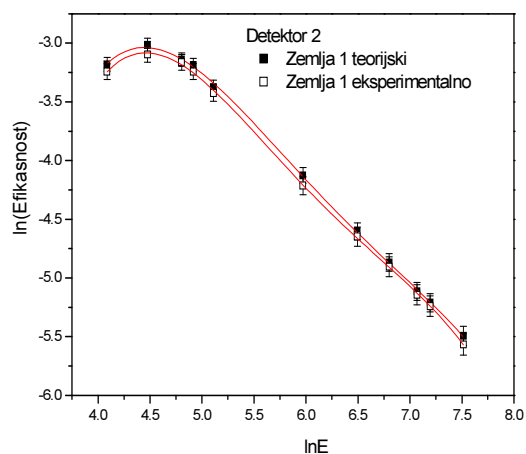
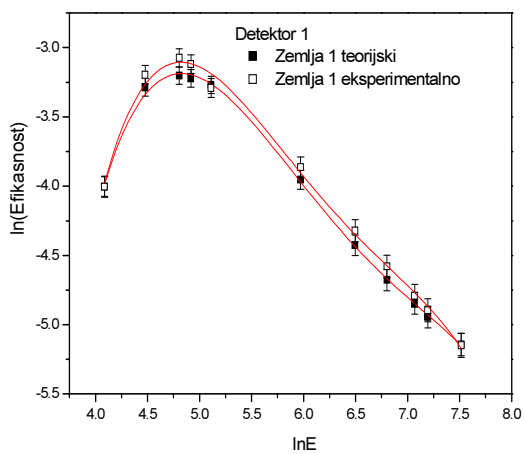
У случају детектора D_3 одступања су од 0,2% до 25,8%, с тим да се највеће одступање уочава само на најнижој енергији у матриксу трава, која потичу од занемаривања ефеката самоапсорпције. Сва остала одступања су мања од 10% и углавном се крећу око 3-5% што је за потребе мерења узорака из животне средине сасвим задовољавајуће. Мерна несигурност од 5% која би потицала од овако израчунате ефикасности је реда величине доприноса мерној несигурности експерименталне ефикасности. С обзиром на то да је D_3 детектор са највећом запремином кристала и највећом релативном ефикасношћу (50%) очигледно је да је он мање осетљив на апроксимације које се тичу извора. У овом случају,

аналитички метод са предложеном функцијом (2.2.6) се може примењивати на мерења на детектору D_3 , уз додавање доприноса реда величине 5% у буџет мерне несигурности.

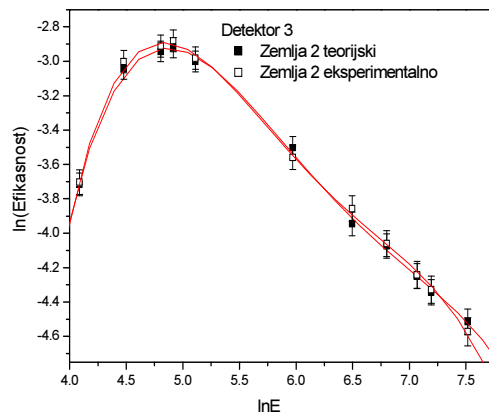
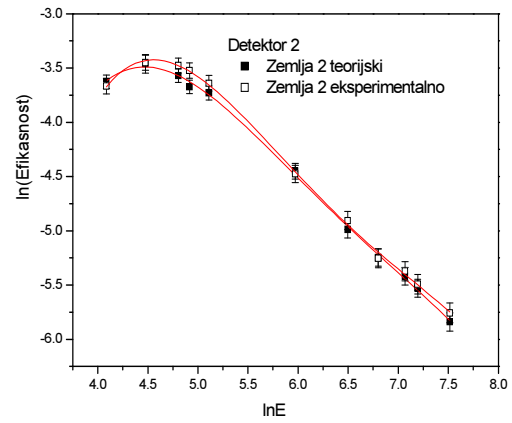
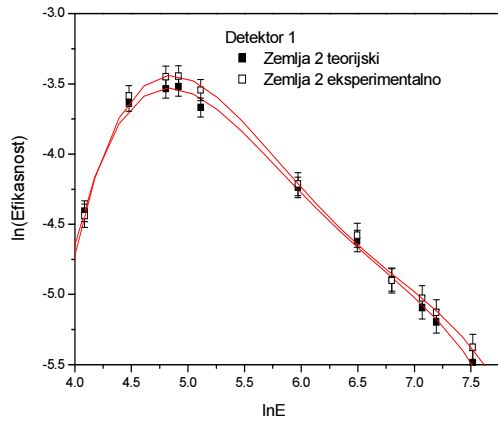
Неукључивање коефицијената самоапсорпције у рачун доводи до значајних одступања теоријских од експерименталних резултата [58]. Ипак, у нашем приступу, овај недостатак се делимично заобилази интерполацијом ефикасности на основу густине матрикса.



Слика 3.2.5. Теоријске и експерименталне вредности ефикасности за траву 2 за сва три детектора. Мерне несигурности су добијене на основу једнакости (2.2.10) за теоријске и (2.1.8) за експерименталне вредности. Пуне линије представљају калибрационе криве добијене фитовањем функцијом (2.1.9)



Слика 3.2.6. Теоријске и експерименталне вредности ефикасности за земљу 1 за сва три детектора. Мерне несигурности су добијене на основу једнакости (2.2.10) за теоријске и (2.1.8) за експерименталне вредности. Пуне линије представљају калибрационе криве добијене фитовањем функцијом (2.1.9)



Слика 3.2.7. Теоријске и експерименталне вредности ефикасности за земљу 2 за сва три детектора. Мерне несигурности су добијене на основу једнакости (2.2.10) за теоријске и (2.1.8) за експерименталне вредности. Пуне линије представљају калибрационе криве добијене фитовањем функцијом (2.1.9)

3.3 Резултати калибрације ефикасности програмом EFFTRAN

У овом поглављу ће бити представљени резултати одређивања ефикасности коришћењем програма EFFTRAN. Програм захтева познавање геометријске конструкције детектора, као и геометрије, хемијског састава и густине узорака за које желимо да одредимо ефикасност. Такође, потребно је да имамо најмање једну, експериментално одређену калибрациону криву за извор познате геометрије и састава, која се користи као почетни податак за трансфер ефикасности.

За почетак рада потребно је познавати карактеристике детектора које су дате у сертификату произвођача. Потребни параметри су:

- димензије кристала,
- булетизација кристала (радијус заобљеног дела на теменима кристала облика паралелепипеда),
- дебљина предњег и бочних мртвих слојева,
- димензије централне шупљине и мртвог слоја који је окружује,
- радијус, дебљина и састав прозора на капи детектора,
- димензије и састав кућишта.

Претпоставља се да су сам кристал и мртви слојеви од германијума, док су све шупљине испуњене ваздухом. Све потребне карактеристике детектора су наведене у табели 3.1.1 у поглављу 3.1. Додатне карактеристике, као што су булетизација, дебљине мртвих слојева и димензија централне шупљине су процењене на основу познатих карактеристика других детектора истог произвођача [39] и наведене у табели 3.3.1.

Табела 3.3.1. Карактеристичне димензије детектора процењене на основу познатих карактеристика других детектора истог произвођача [39].

	Димензија [mm]		
	D ₁	D ₂	D ₃
Булетизација	4	4	6
Дебљина горењег мртвог слоја	0.7	0	0.55
Дебљина бочног мртвог слоја	1	0	1
Пречник централне шупљине	10	10	10
Дужина централне шупљине	40	40	55

Следећи корак у раду је дефинисање карактеристика секундарног референтног материјала чија ће крива ефикасности бити коришћена као почетни податак у трансферу ефикасности. Ефикасности тачкастих извора ²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn and ⁶⁰Co, измерених у оквиру Поглавља 3.2 на висини $x_0=0$ mm су искоришћене за овај корак. Затим су унете карактеристике секундарних референтних радиоактивних материјала за које се примењује трансфер ефикасности. Те карактеристике подразумевају пречник и дебљину геометрије, висину пуњења, хемијски састав и густину матрикса и удаљеност од капе детектора. Све карактеристике за секундарне референтне материјале су набројане у табели 2.1.2.

На крају, уноси се експериментално добијена, референтна крива ефикасности за тачкасти извор. Секундарни референтни материјали садрже радионуклиде различите од тачкастих извора који су мерени. Зато се експериментално добијене ефикасности за тачкасти извор фитују функцијом (3.1.4) и на тај начин се добијају ефикасности на енергијама које емитују радионуклиди садржани у секундарним референтним материјалима. Установљено је да није битно да ли ће се фитовање овом функцијом извршити пре или после трансфера ефикасности.

Мерна несигурност резултата добијених програмом EFFTRAN дефинисана је једнакошћу (2.3.8). Релативна мерна несигурност активности, δA је процењена на 2.5%, док је δ_{fit} износило 1-5%. Допринос мерној несигурности који потиче од параметара наведених у табели 3.1.1 су добијени на основу анализе дате у [60]. На основу мерења ефективне дубине интеракције, може се проценити допринос мерној несигурности који потиче од геометријских карактеристика детектора. Установљено је да је ово одступање реда величине 4 - 10% за сва три детектора.

Такође, поређењем резултата добијених трансфером ефикасности са експерименталним резултатима, у првој итерацији су установљена одређена одступања. Параметри дебљина мртвог слоја и димензије централне шупљине су затим варирани један по један у корацима од по 0.5 mm док се није постигло најбоље слагање са експерименталним резултатима. Овај поступак је познат као оптимизација параметара и надаље ће се сви резултати односити на оптимизоване параметре. Такође, у табели 3.3.1 дати су оптимизовани параметри.

Иста процедура оптимизације параметара је примењена и на геометрију секундарног референтног радиоактивног материјала. На основу овог поступка, процењен је допринос мерној несигурности који потиче од геометрије секундарног референтног материјала и установљено је да је реда величине 3%.

Допринос који потиче од дефинисања хемијског састава за матриксе земља, аеросол, песак и трава, не могу бити процењени оптимизацијом, него само на основу искуства. Овог доприноса нема за матрикс водени раствор и активни угаљ, чији хемијски састав је познат.

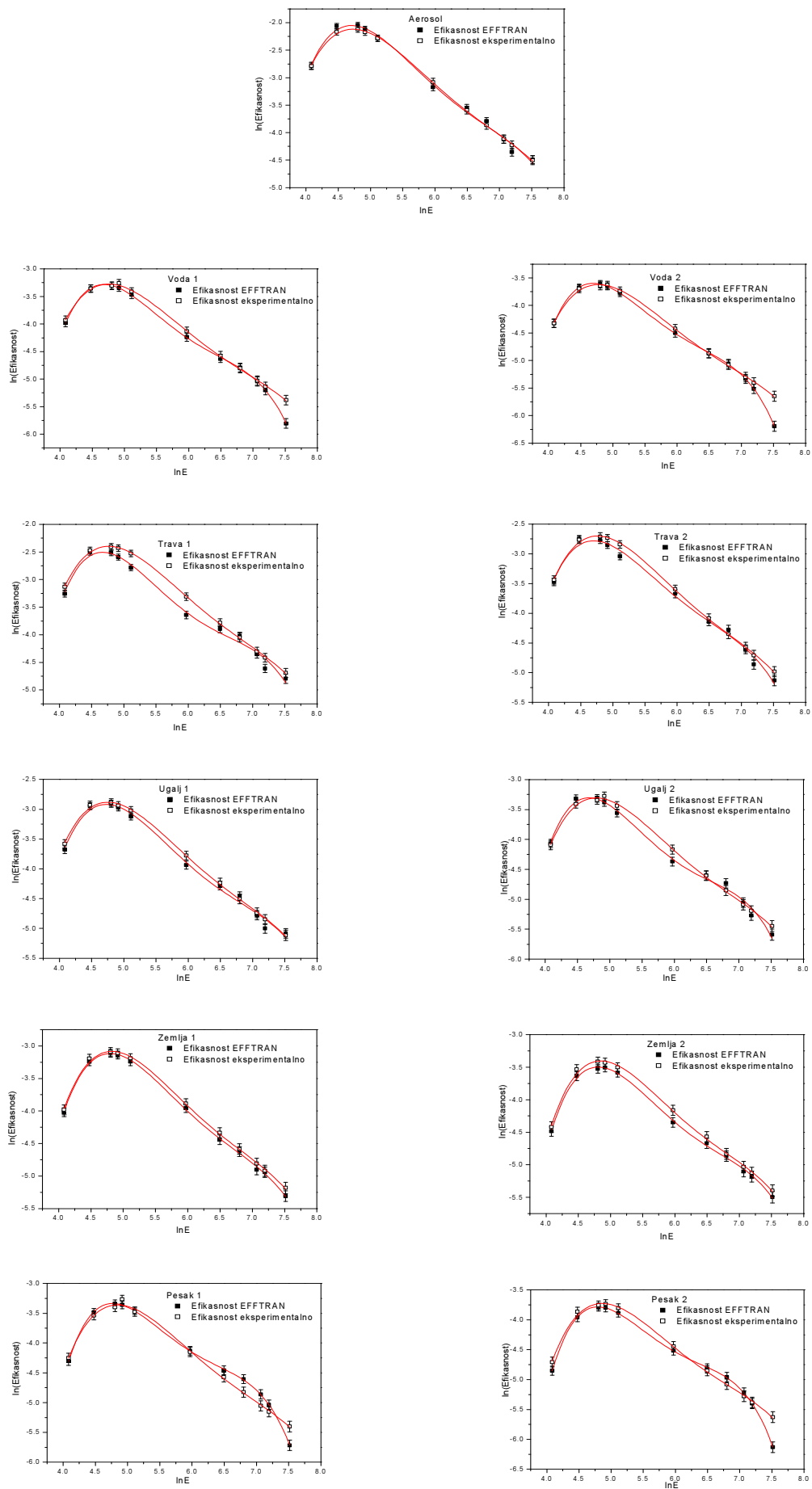
Допринос мерној несигурности означен са δP (допринос мерној несигурности настао у току припреме секундарног референтног материјала) за матрикс земља, песак и трава је процењен на 5% док је за водени раствор, аеросол и угаљ процењен на 3%.

И за измерене ефикасности за тачкасти извор и за израчунате ефикасности за све друге геометрије, примењене су корекције на коинцидентно сумирање. Коефицијенти корекције су израчунати коришћењем програма EFFTRAN, модул Coincidence Summing Corrections. За овај модул користе се већ дефинисани параметри детектора и секундарних референтних материјала а програм дозвољава да се изабере најнижа енергија фотона који коинцидирају. Код детектора *p*-типа, довољно изабрати границу на 40 keV, при чему неће бити рачунати корекциони фактори на коинциденцију гама и X - фотона [61]. Са друге стране, због велике

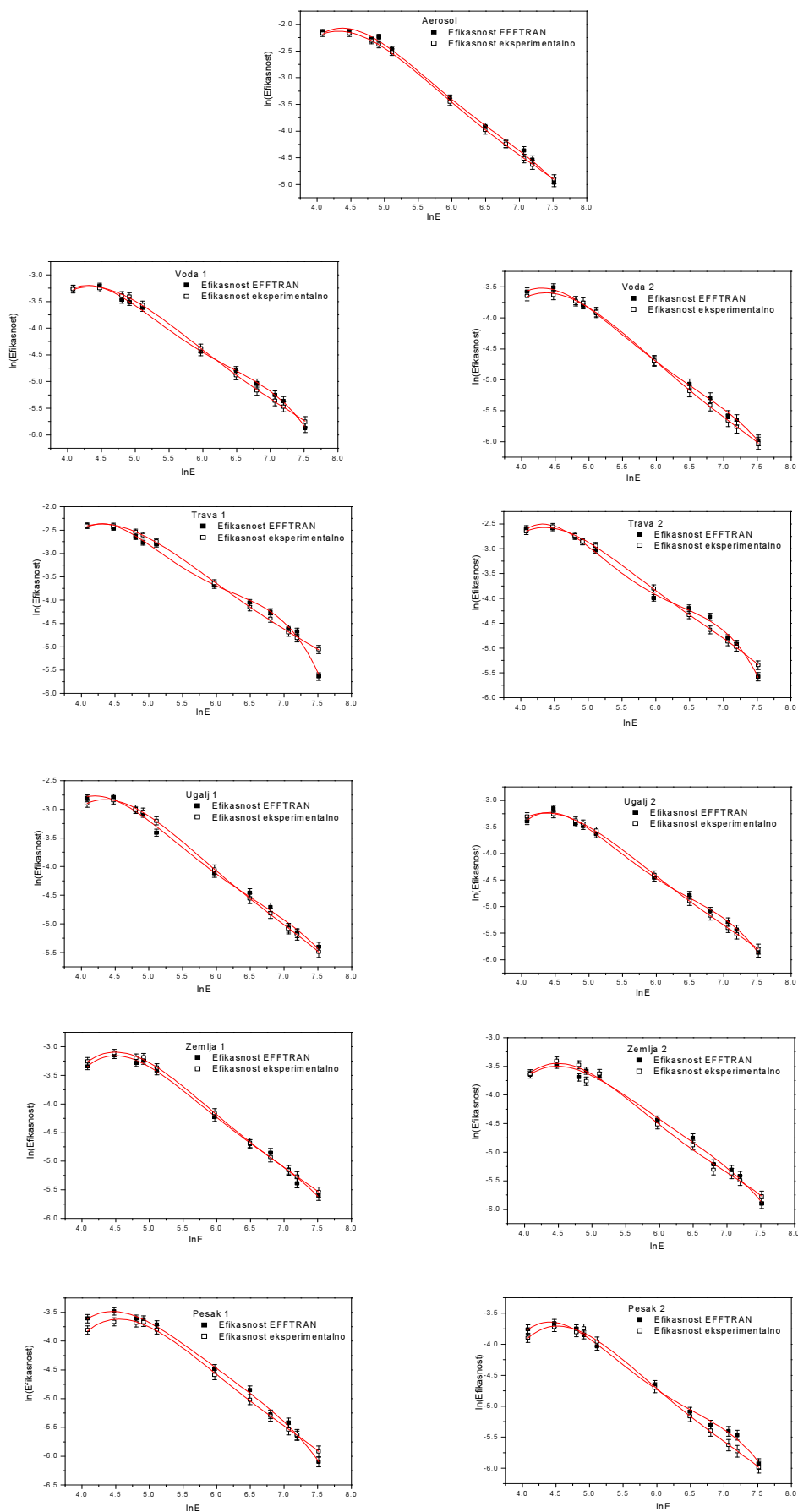
пропустљивости берилијумског улазног прозора и велике ефикасности у нискоенергетском делу спектра, доња граница за детектор D₂ који је *n*-тип, стављена је на 10 keV, што значи да је узета у обзир и коинциденција гама и X - фотона.

Код детектора D₁ и D₃, корекциони фактори су били једнаки јединици за све енергије осим за енергије ⁶⁰Co (1173 и 1332 keV) и за енергије ⁸⁸Y (898 и 1836 keV). У зависности од матрикса, ове поправке су се кретале од 4-10% за D₁ и 8-16% за D₃. У случају детектора D₂, сви корекциони фактори, сем за ²⁴¹Am (59 keV) и ¹³⁷Cs (661 keV) су били различити од 1. Највећи број ових фактора је био реда величине 0.1%, а највећи су били за ⁶⁰Co и ⁸⁸Y и кретали су се у распону од 4-12%. Код сва три детектора, најмањи корекциони фактори су били за најлакши матрикс, односно аеросол, а највећи, за песак 2.

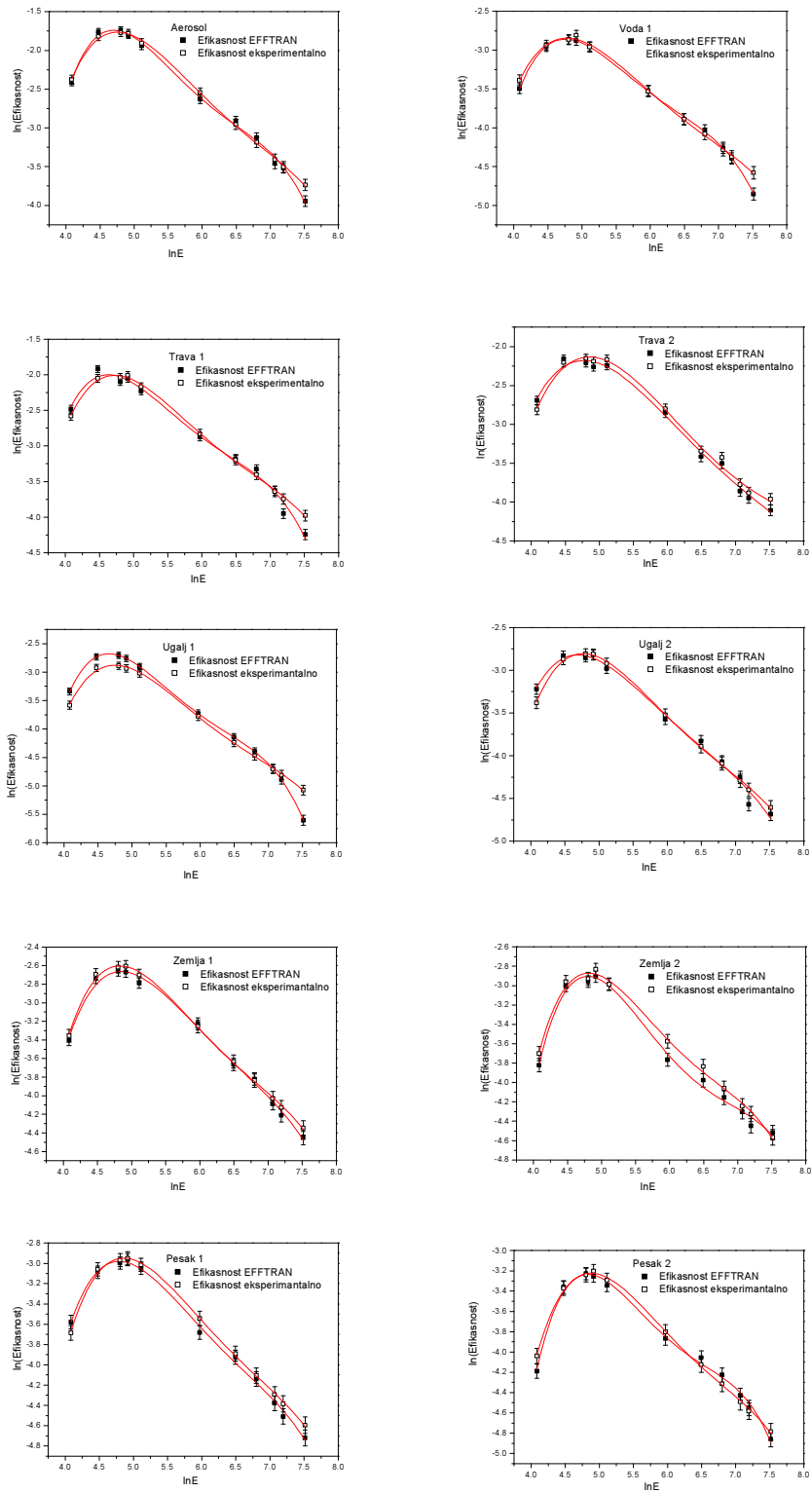
На сликама 3.3.1, 3.3.2 и 3.3.3 приказани су резултати трансфера ефикасности заједно са експерименталним ефикасностима. Мерне несигурности које су представљене на графицима су добијене коришћењем једначина (2.3.10) за теоријске и (3.1.3) за експерименталне вредности. Видимо да, уз одређена одступања, облик зависности теоријски израчунатих ефикасности од енергије одговара зависности добијеној експерименталним методом.



Слика 3.3.1. Ефикасности добијене EFFTRAN-ом и експерименталне ефикасности за детектор D₁. Пуне линије представљају фит функцијом (2.1.9)

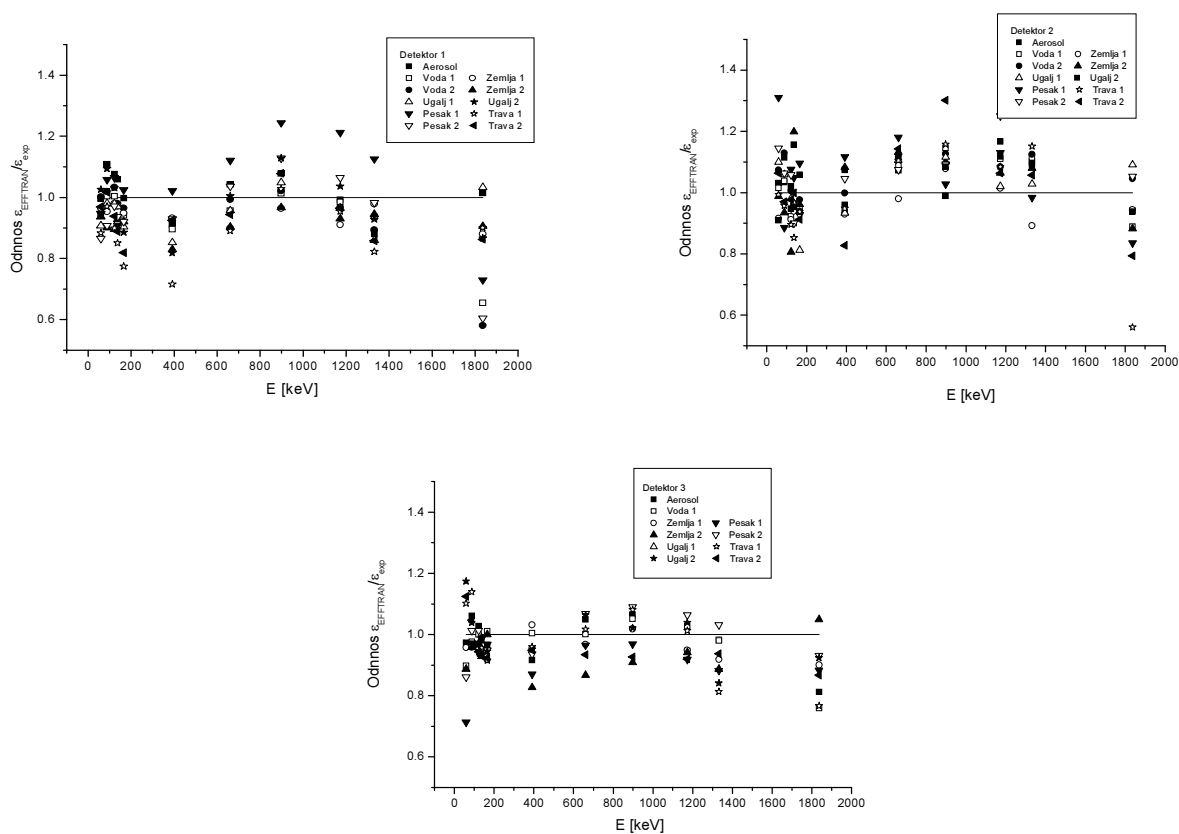


Слика 3.3.2. Ефикасности добијене EFFTRAN-ом и експерименталне ефикасности за детектор D_2 . Пуне линије представљају фит функцијом (2.1.9)



Слика 3.3.3. Ефикасности добијене EFFTRAN-ом и експерименталне ефикасности за детектор D₃. Пуне линије представљају фит функцијом (2.1.9)

Да би се оценило слагање израчунатих вредности са експериментално добијеним ефикасностима, израчунат је однос $\epsilon_{\text{EFFTRAN}}/\epsilon_{\text{exp}}$, где је $\epsilon_{\text{EFFTRAN}}$ ефикасност израчуната коришћењем програма а ϵ_{exp} је експериментално добијена ефикасност. Овај однос је приказан на слици 3.3.4.



Слика 3.3.4. Однос $\epsilon_{\text{EFFTRAN}}/\epsilon_{\text{exp}}$, где је $\epsilon_{\text{EFFTRAN}}$ ефикасност израчуната коришћењем програма а ϵ_{exp} је експериментално добијена ефикасност за сва три детектора и све геометрије и матриксе.

Како се види са слике 3.3.4, одступања су равномерно распоређена око јединице у случају сва три детектора. Такође, приметно је да су најмања одступања у средње енергетском делу спектра, док су на крајевима опсега одступања већа. Најмања одступања се уочавају код детектора D₃. Код свих детектора примећујемо да су ефикасности на највишој енергији "потцењене".

У табели 3.3.2 наведени су опсежи одступања теоријских од експерименталних података изражени у процентима. Уочљиво је да су опсежи веома широки и да се најбоље поклапање са експерименталним резултатима показује код матрикса

водени раствор и угаљ. За матрикс трава највећа одступања су за најнижу и највишу енергију док се у осталом делу спектра резултати поклапају у оквиру мерне несигурности.

Такође, код тежих матрикса као што су земља и песак и посебно у случају детектора D_2 , максимално одступање од готово 30% чини да је метод трансфера ефикасности у овој ситуацији употребљив само за део спектра средњих енергија. Дакле, треба бити обазрив у примени овог метода са ефикасношћу тачкастог извора као почетним податком и не примењивати га у граничним деловима опсега. Боље познавање хемијског састава комплексних матрикса би довело до побољшања резултата, али такви подаци су у већини случајева недоступни. Најбољи начин примене би био рачунање трансфера ефикасности из блиских геометрија или сличних матрикса. И ова претпоставка је тестирана рачунањем ефикасности трансфером на другу геометрију истог матрикса и одступања резултата од експериментално добијених ефикасности су била реда величине 2-3%.

Основни узрок одступања код калибрације програмом EFFTRAN су недовољно познавање параметара геометрије детектора и састава секундарног референтног материјала. Иако је извршено оптимизовање параметара да би се постигло најбоље слагање са експерименталним вредностима, неки параметри, као што је дебљина мртвог слоја, булетизација и хемијски састав секундарног референтног материјала, нису могли бити оптимизовани због нехомогености. Такође, трансфер ефикасности је извршен коришћењем калибрације тачкастим извором као почетног податка. С обзиром на то да се тражене ефикасности односе на несродне геометрије и матриксе, извесна одступања су неминовна.

Табела 3.3.2. Опсег релативног одступања ефикасности добијених програмом EFFTRAN од експерименталних ефикасности изражени у процентима.

$$\text{Одступање је дато односом } \left| 1 - \frac{\varepsilon_{EFFTRAN}}{\varepsilon_{\text{exp}}} \right| \cdot 100$$

Матрикс и геометрија	Релативно одступање од експерименталних вредности [%]		
	D ₁	D ₂	D ₃
Аеросол	0.3-11.9	1.1-16.6	1.7-18.8
Вода 1	0.3-10.4	1.5-14.6	0.04-10.3
Вода 2	0.009-4.7	2.1-12.9	/
Трава 1	2.8-28.4	0.7-15.7	1.7-18.7
Трава 2	1.7-18.1	0.1-20.6	4.7-13.3
Угаљ 1	1.9-14.8	1.9-18.8	0.02-27.5
Угаљ 2	0.4-18.2	0.4-11.8	2.2-17.3
Земља 1	2.1-12.0	0.1-10.8	1.8-10.0
Земља 2	3.3-17.0	0.1-19.8	0.02-11.3
Песак 1	2.2-24.4	0.3-18.0	2.8-12.9
Песак 2	1.7-13.4	0.4-29.6	1.2-13.9

3.4. Резултати калибрације коришћењем програма GEANT4

Као што је наведено у поглављу 2.4, Монте Карло симулација у програмском пакету GEANT4 [43], је развијена са намером да репродукује експерименталне спектре детектора за широк распон примена у гама спектрометријским мерењима [62, 63].

У примени GEANT4 пакета у овом раду, као и у случају трансфера ефикасности програмом EFFTRAN, димензије које су процењене су булетизација и дубина и пречник централне шупљине. Такође, дебљина мртвог слоја је варирана да би се постигло најбоље слагање са експерименталним резултатима. Вредности ових димензија су наведене у табели 3.3.1.

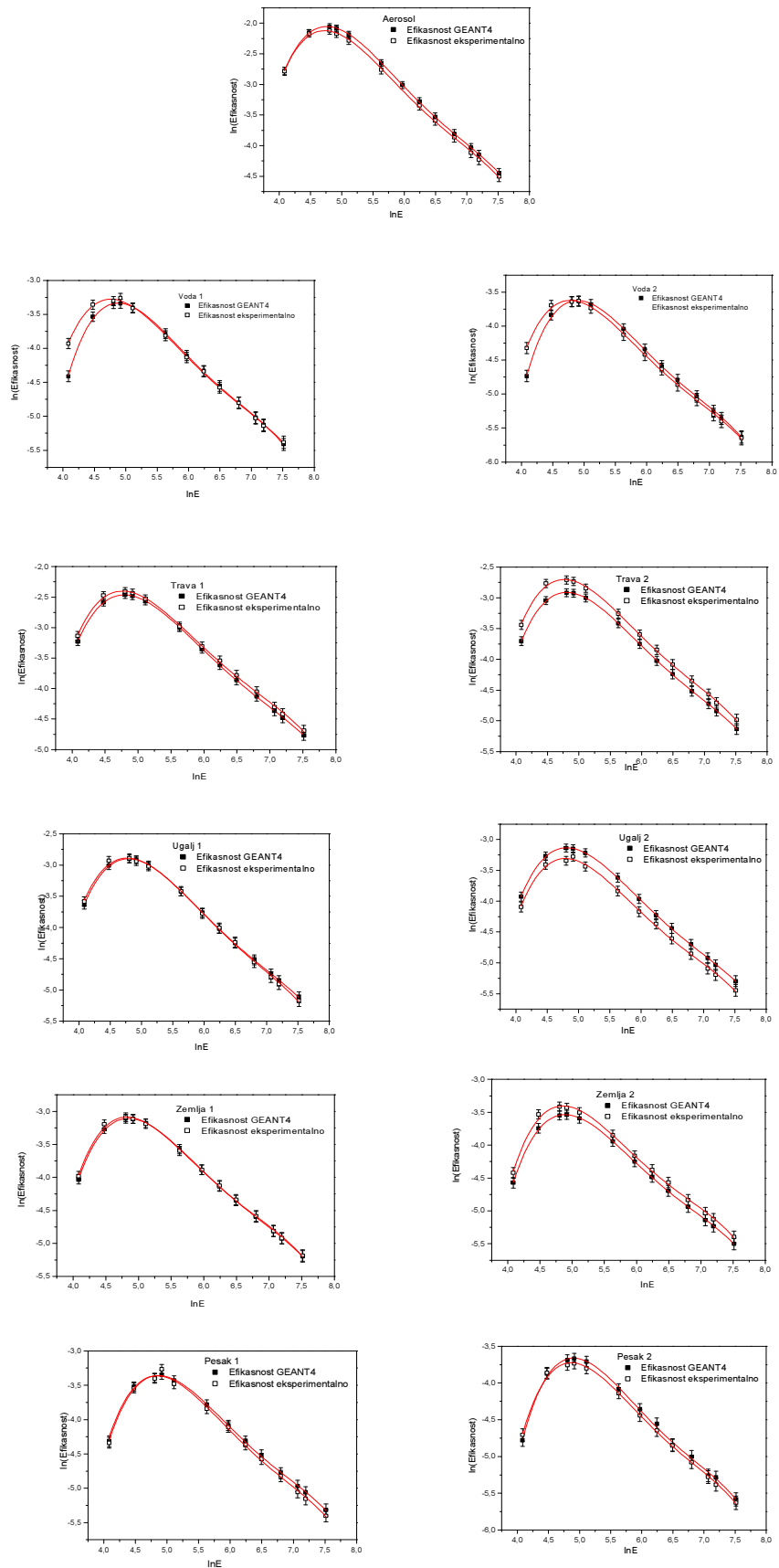
Мерна несигурност за ефикасност добијену симулацијом је одређена на основу једнакости (2.4.2). Процењено је да допринос несигурности геометрије кристала износи 1%, 2% за дебљину и удаљеност улазног прозора (након оптимизације), док је допринос за хемијски састав за матрикс земља, песак и трава процењен на 5% а за водени раствор, аеросол и угаљ на 3%. Укупна мерна несигурност износи од 5,3% за детекторе D_1 и D_3 и 7% за детектор D_2 .

И у случају симулације, рачунати су коефицијенти за корекцију на коинцидентно сумирање, коришћењем програма EFFTRAN.

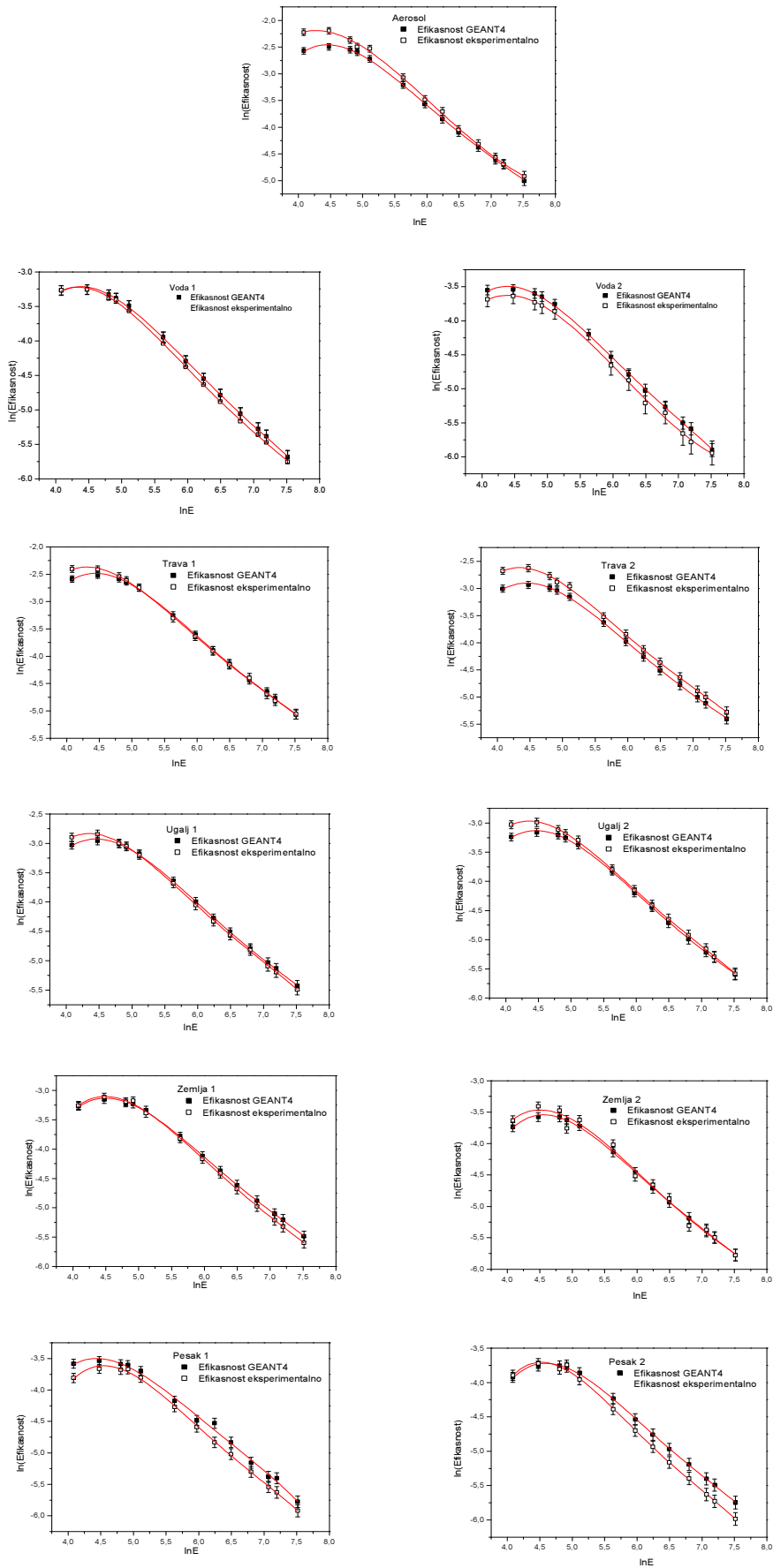
Извођење саме симулације је урађено у сарадњи са колегама из Нискофонске лабораторије за нуклеарну физику Института за физику у Земуну.

На сликама 3.4.1, 3.4.2 и 3.4.3 представљене су калибрационе криве добијене фитовањем ефикасности добијених GEANT4 симулацијом, функцијом (3.1.4) за детектор D_1 , D_2 и D_3 респективно. На графицима су истовремено, ради поређења, приказане и калибрационе криве добијене на основу експерименталних ефикасности.

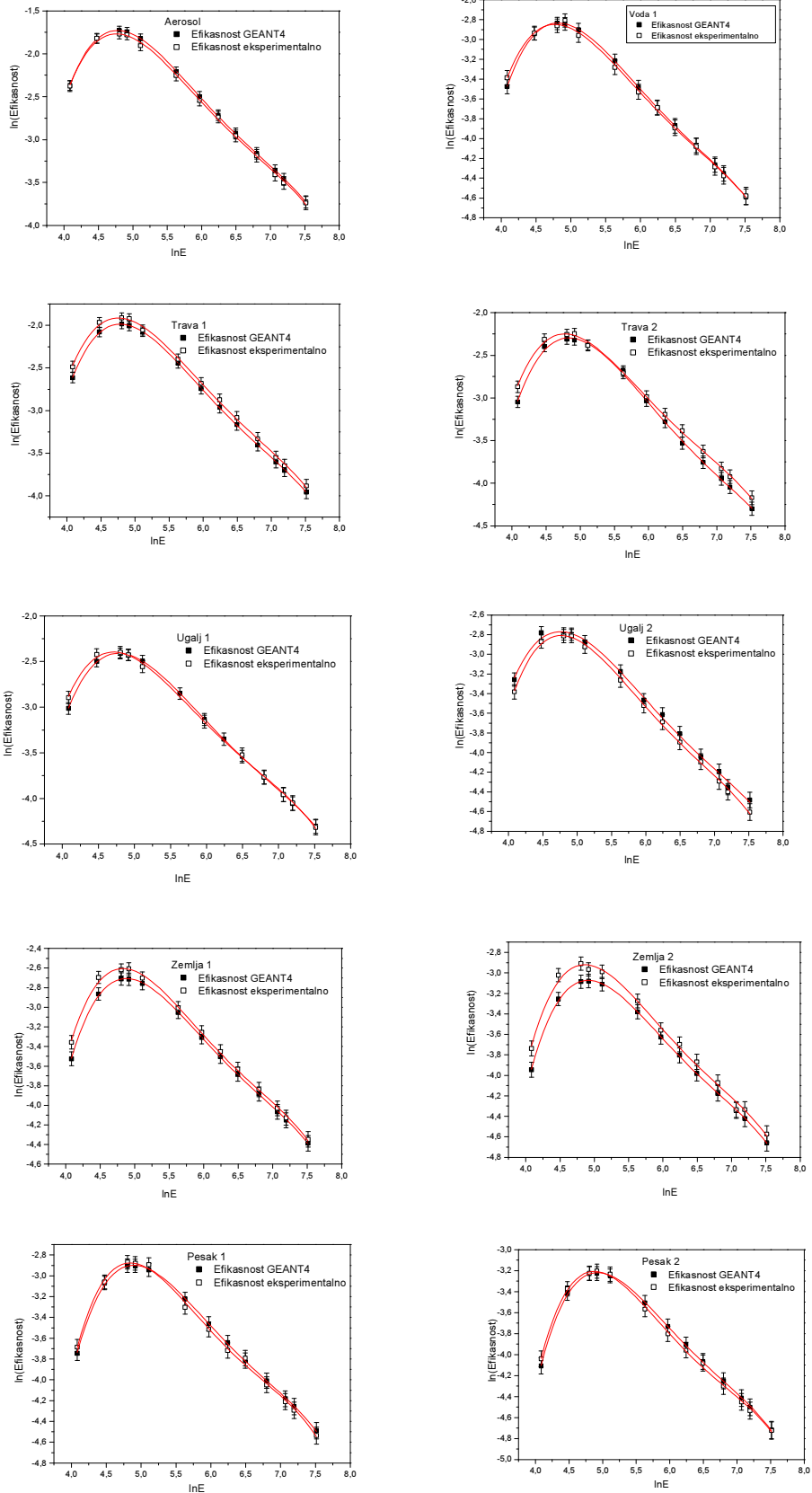
Одступање ефикасности добијених симулацијом од експерименталних вредности илустроване су на слици 3.4.4, преко односа $\epsilon_{\text{GEANT}}/\epsilon_{\text{exp}}$ где је ϵ_{GEANT} ефикасност израчуната коришћењем програма GEANT4 а ϵ_{exp} је експериментално добијена ефикасност. Мерне несигурности које су представљене на графицима су добијене коришћењем једначина (2.4.2) за теоријске и (2.1.8) за експерименталне вредности. Облик зависности теоријски израчунатих ефикасности од енергије одговара зависности добијеној експерименталним методом, уз одређена одступања.



Слика 3.4.1. Ефикасности детектора D_1 добијене GEANT4 симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.



Слика 3.4.2. Ефикасности детектора D_2 добијене GEANT4 симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.

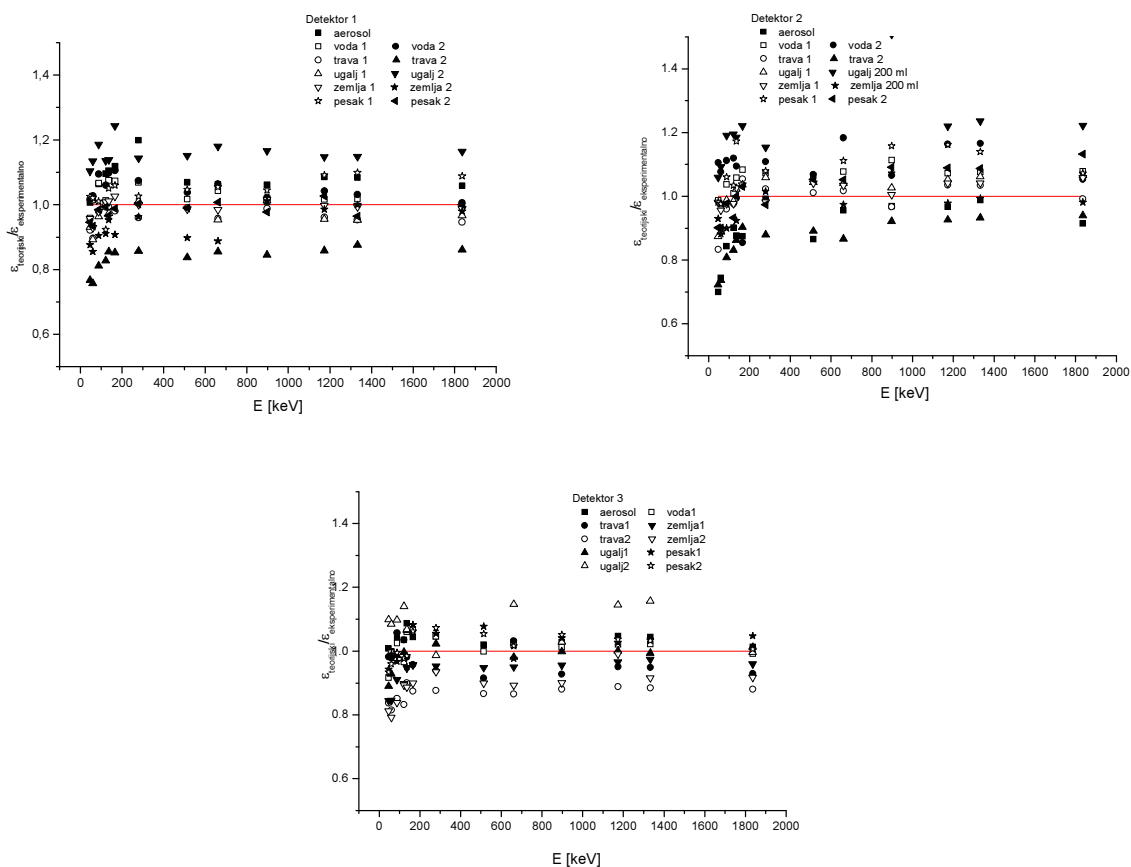


Слика 3.4.3. Ефикасности детектора D_3 добијене GEANT4 симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.

Како се може видети на слици 3.4.4, одступања резултата добијених симулацијом од резултата мерења, не показују посебан тренд. Сва одступања су равномерно распоређена око средишње линије и нема великог растурања тачака што говори у прилог томе да нема систематске мерне несигурности у симулацији. Као и код већине симулација [64, 65], највећа одступања се уочавају на нижим енергијама и такође, код тежих матрикса су одступања већа него код лакших.

Приметна су већа одступања у случају матрикса земља и песак за детекторе D_1 и D_3 што се може објаснити недовољним познавањем хемијског састава ова два матрикса. С обзиром на то да је GEANT4 симулација веома осетљива на дефиницију материјала кроз који фотони пролазе [47] недовољно познавање хемијског састава имају велики утицај.

У случају детектора D_2 приметно је одступање на нижим енергијама код матрикса аеросол и на вишим енергијама за матрикс песак 2. Ова одступања су већа од мерне несигурности и резултати се не могу сматрати прихватљивим.



Слика 3.4.4. Однос $\epsilon_{\text{GEANT4}}/\epsilon_{\text{exp}}$, где је ϵ_{GEANT4} ефикасност израчуната коришћењем програма GEANT4 а ϵ_{exp} је експериментално добијена ефикасност за сва три детектора и све геометрије и матриксе.

Детектор D_2 има берилијумски прозор велике пропустљивости, што доводи до тога да има велику ефикасност на ниским енергијама. Симулација ту предвиђа мању пропустљивост и већу самоатенуацију па је ефикасност "потцењена". У области виших енергија у матриксу песак, ефикасност је "прецењена" у симулацији, опет услед лошег познавања састава матрикса, што условљава лош избор коефицијената за самоатенуацију. Један од узрока одступања симулираних од експерименталних вредности који се наводи у литератури [64] је и велики утицај дебљине и хомогености мртвог слоја детектора на симулацију. Иако је овај параметар вариран тако да се постигне најбоље слагање са експерименталним резултатима, хомогеност мртвог слоја се не може дефинисати у симулацији, а није могуће практично га измерити или проценити, нарочито код детектора који су стари преко 20 година (осим детектора 3 који је стар 6 година). Такође повремено прегревање кристала, које се дешава приликом кварова детектора, утиче на то да облик кристала није идеално цилиндричан. Ово доводи до одступања вредности добијених симулацијом, на које се не може утицати.

У табели 3.4.1 наведени су опсежи одступања теоријских од експерименталних вредности у процентима. Иако су опсежи велики, већина одступања се креће око 5-10 % што је у оквиру мерне несигурности и, за потребе мерења узорка из животне средине, сасвим прихватљиво.

Код Монте Карло метода, неслагања су уочена и у другим радовима [66, 67] и потичу од вредности ефективних пресека интеракције, који зависе од дефинисања материјала детектора и узорка. Разлике такође могу да потичу од различитог третмана података у близини границе апсорпције, нарочито код матрикса са високим ефективним масеним бројем Z , као што су земља и песак. Потврђен је и утицај дебљине и хомогености мртвог слоја детектора на Монте Карло симулацију. С обзиром на то да се овај параметар не може у потпуности оптимизовати његов утицај на коначни резултат треба уврстити у буџет мерне несигурности.

Табела 3.4.1. Опсег релативног одступања ефикасности добијених програмом GEANT4 од експерименталних ефикасности изражени у процентима.

$$\text{Одступање је дато односом } \left| 1 - \frac{\varepsilon_{GEANT4}}{\varepsilon_{\text{експериментално}}} \right| \cdot 100$$

Матрикс и геометрија	Релативно одступање од експерименталних вредности [%]		
	D ₁	D ₂	D ₃
Аеросол	0.7-11.8	0.8-21.2	0.2-8.7
Вода 1	0.4-7.5	0.9-11.4	0.1-8.4
Вода 2	0.6-10.6	4.5-17.2	/
Трава 1	0.7-10.4	0.6-16.7	1.8-8.5
Трава 2	14.2-23.2	6.0-27.7	10.0-18.5
Угаљ 1	0.3-10.8	1.2-14.4	0.06-11.0
Угаљ 2	10.3-18.6	0.8-19.0	0.3-15.7
Земља 1	0.1-7.0	0.5-5.9	2.6-15.5
Земља 2	0.01-14.5	0.7-11.8	0.9-18.8
Песак 1	1.1-9.9	1.9-17.3	1.0-7.7
Песак 2	0.01-6.7	0.05-13.2	0.5-6.6

3.5 Ефикасност добијена програмом PHOTON

GEANT4 пакет је развијен као софтверски алат за симулацију рада сложених детектора и за примену код HPGe детектора захтева обимна подешавања и значајно процесорско време као и познавање програмског језика [43]. За разлику од овог софтверског пакета, програм PHOTON је лак за употребу и направљен у графичком окружењу које је веома приступачно и кориснику који нема напредна знања из програмирања. Такође, програм ради као апликација, са уграђеним библиотекама ефективних пресека за интеракције [44]. Поједностављења подразумевају и изостављање одређених величина из библиотеке. Наиме, допринос спектру од закочног зрачења електрона и позитрона насталих у интеракцијама материје са зрачењем је занемарен, као и нпр. Рејлијево расејање. [68]

Почетак симулације програмом PHOTON обухвата дефинисање димензија детектора које су дате у сертификату произвођача, као и дефинисање секундарних референтних материјала. Кристал детектора са централном шупљином, кућиште и улазни прозор детектора, горњи мртви слој, амбалажа узорка и сам узорак, представљени су низом цилиндара, који заједно чине мерни систем.

Пример шематског приказа детектора са узорком је дат на слици 2.4.1. Конструкција детектора је знатно поједностављена јер не узима у обзир ни бочне мртве слојеве нити булетизацију. Иако булетизација има утицаја на ефикасност детектора, овај параметар није могуће дефинисати у програму. Бочни мртви слој јесте могуће дефинисати али из искуства са оптимизацијом параметара у EFFTRAN-у, види се да овај део система не утиче битно на резултат, тако да је изостављен због значајног поједностављења.

Димензије детектора су дефинисане на исти начин као и у симулацији програмом GEANT4 након оптимизације. Хемијски састав секундарног референтног материјала је дефинисан помоћу хемијске формуле и масеног удела. Библиотека програма садржи одређене елементе и једињења тако да је било могуће користити их у дефинисању хемијског састава. Спектар је дефинисан на основу реалне ситуације. Енергетска калибрација као и FWTM су преузети из експерименталног спектра за сваки симулирани спектар. Вредности FWTM су биле:

- 2,5 keV на нижим до 4,5 keV на високим енергијама за детектор D₁,

- 2,3 keV на нижим до 4,3 keV на високим енергијама за детектор D₂ и

- 2,6 keV на нижим до 4,6 keV на високим енергијама за детектор D₃.

PHOTON пружа низ могућности за генерисање спектра. У овом раду изабрано је генерисање одговора детектора на појединачним енергијама радионуклида за одређивање ефикасности. На овај начин је постигнуто поједностављено одређивање површине испод пика тоталне апсорпције, јер се не одузима позадинско зрачење, а такође нема интерференције са другим пиковима тоталне апсорпције. Такође, избегава се и коинцидентно сумирање. Генерисање комплетног спектра подразумева симулацију која укључује све енергије које емитују радионуклиди присутни у извору, помножене њиховим појединачним уделом у укупној активности.

Из првих неколико симулираних спектра је уочено да је одброј на ниским енергијама значајно већи него што је у реалном спектру. Овакав проблем се јавља, у мањој или већој мери, код свих софтвера базираних и на МК симулацији и на трансферу ефикасности [64, 65]. Калибрација ефикасности за ниске енергије је велики проблем код ових метода. За решавање овог проблема развијају се нови кодови и библиотеке које би требало да доведу до бар делимичног решења. У наредном рачунању, изостављена је енергија од 46 и 59 keV, због великог одступања од експерименталних података.

На основу симулације одговора детектора на појединачним енергијама, израчунате су ефикасности детектора. Симулација као резултат даје број детектованих фотона по каналима. Поставља се питање како најбоље дефинисати пик тоталне апсорпције и како одредити површину испод пика тоталне апсорпције. У овој поједностављеној ситуацији, узета је процена шрине пика тоталне апсорпције на основу једнакости којом је дефинисан FWHM у самом програму а која је преузета из реалног спектра, као и ширина на десетини висине (FWTM) која је процењена на основу реалног спектра. Сума детектованих фотона у онолико канала колико је узето и у реалном спектру, око тачне енергије, дели се са укупним бројем симулираних догађаја (10^6) и добија се ефикасност детектора на датој енергији. Калибрационе криве, добијене на основу овако одређених ефикасности, заједно са експериментално добијеним калибрационим кривама, приказане су на сликама 3.5.1, 3.5.2 и 3.5.3. Пуна линија представља фит функцијом (2.1.9)

Мерна несигурност теоријски добијених резултата одређена је на основу једнакости (2.4.2). Доприноси мерној несигурности који потичу од различитих параметара исти су као и код симулације програмом GEANT4, тако да је укупна мерна несигурност од 5,3% за детекторе D₁ и D₃ до 7% за детектор D₂.

У табели 3.5.1 дат је преглед распона одступања теоријских од експерименталних података. Одступања се крећу од сасвим малих, реда величине процента, до неприхватљиво великих, преко 30%.

Табела 3.5.1. Опсег релативног одступања ефикасности добијених програмом PHOTON од експерименталних вредности, изражен у процентима.

Одступање је дато односом $\left| 1 - \frac{\varepsilon_{GEANT4}}{\varepsilon_{exp}} \right| \cdot 100$

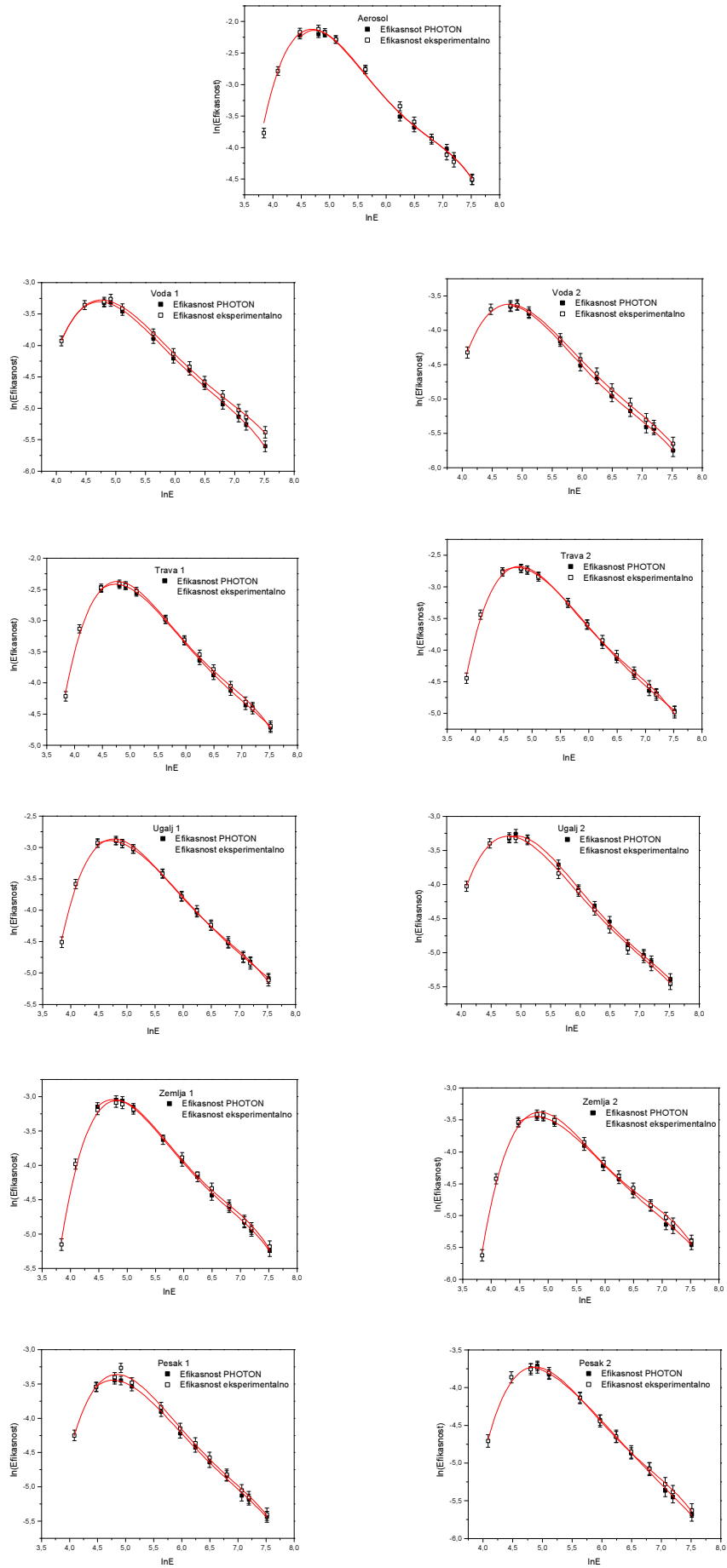
Матрикс и геометрија	Одступање од експерименталних вредности [%]		
	D ₁	D ₂	D ₃
Аеросол	0.5-15.2	1.2-13.7	0.7-14.5
Вода 1	0.3-19.9	0.1-12.7	0.03-8.4
Вода 2	0.7-12.9	0.6-11.5	/
Трава 1	0.4-9.3	0.04-10.3	1.6-19.1
Трава 2	0.5-11.4	0.2-11.6	0.4-19.4
Угаљ 1	0.2-3.1	0.1-9.4	0.5-8.2
Угаљ 2	1.3-13.6	0.06-16	0.3-10.3
Земља 1	1.1-25.7	1.4-16.2	0.8-21.8
Земља 2	1.3-22.3	0.2-14.5	0.5-12.5
Песак 1	0.5-16.8	0.4-26.7	0.07-38.5
Песак 2	0.2-16.9	1.1-8.6	0.4-31.8

Као и код претходних метода, приказан је однос ефикасности добијених програмом PHOTON и експерименталних ефикасности за сва три детектора. На слици 3.5.4. видимо да су све тачке груписане око средње линије и да нема уочљивих трендова нити посебног растурања тачака. За разлику од других примењених софтвера, у случају PHOTON-а, најмања одступања се уочавају код детектора D₂. То је последица робустности програма, па тако несавршености у

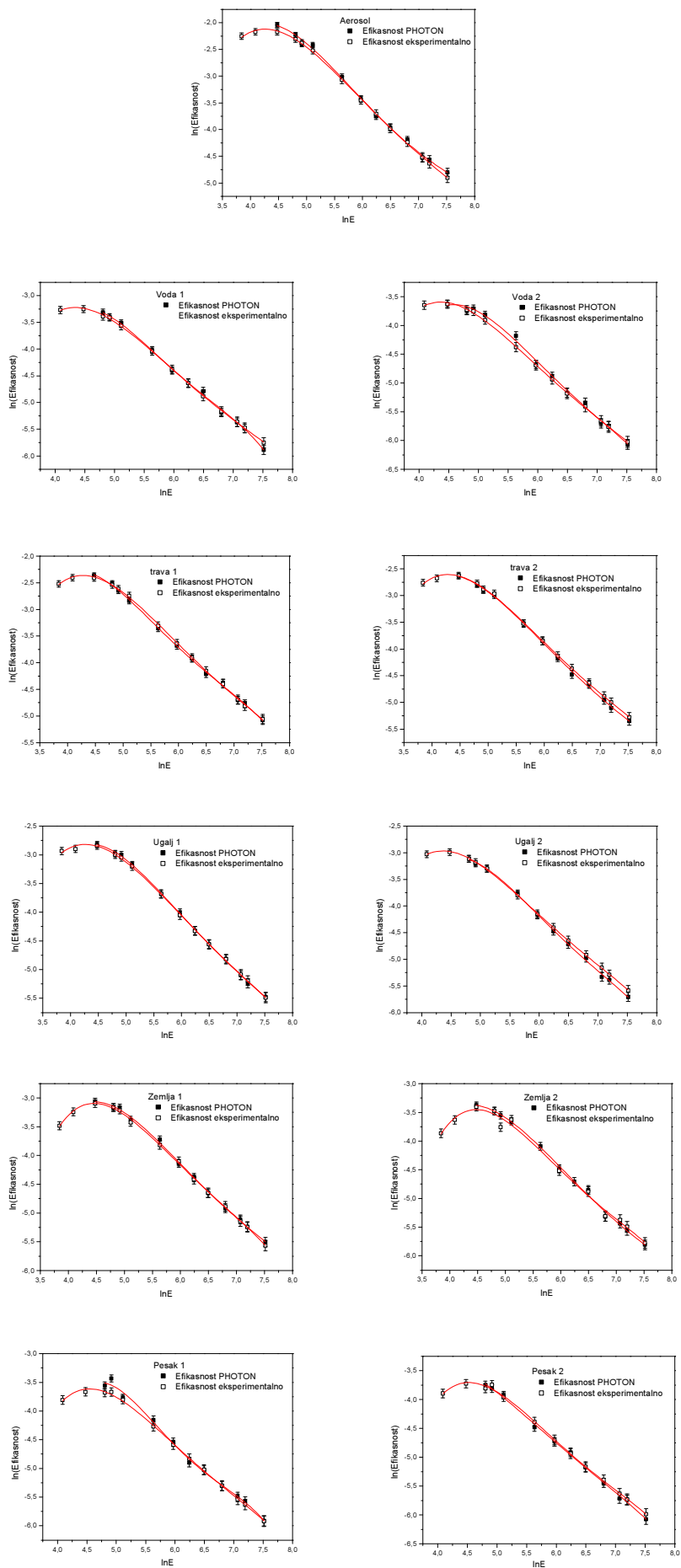
моделу детектора као и недовољно познавање хемијског састава појединих матрикса овде немају толики утицај. Ово се све односи на енергије изнад од 100 keV. Одступања за ниже енергије код детектора D₂ била су и преко 200%. У овом случају, дефинисање мртвих слојева у детектору би довело до побољшања резултата.

Одступања од експериментално добијених ефикасности су се кретала у распону од 0,03% до преко 20%. И у случају симулације програмом PHOTON, највећа одступања се односе на теже матриксе (земља 1 и земља 2) чији хемијски састав није било могуће прецизно дефинисати. У опсегу енергија од 100 – 1000 keV, у којем емитује највећи број природних радионуклида, резултати симулације се налазе у оквиру мерне несигурности у односу на експерименталне резултате.

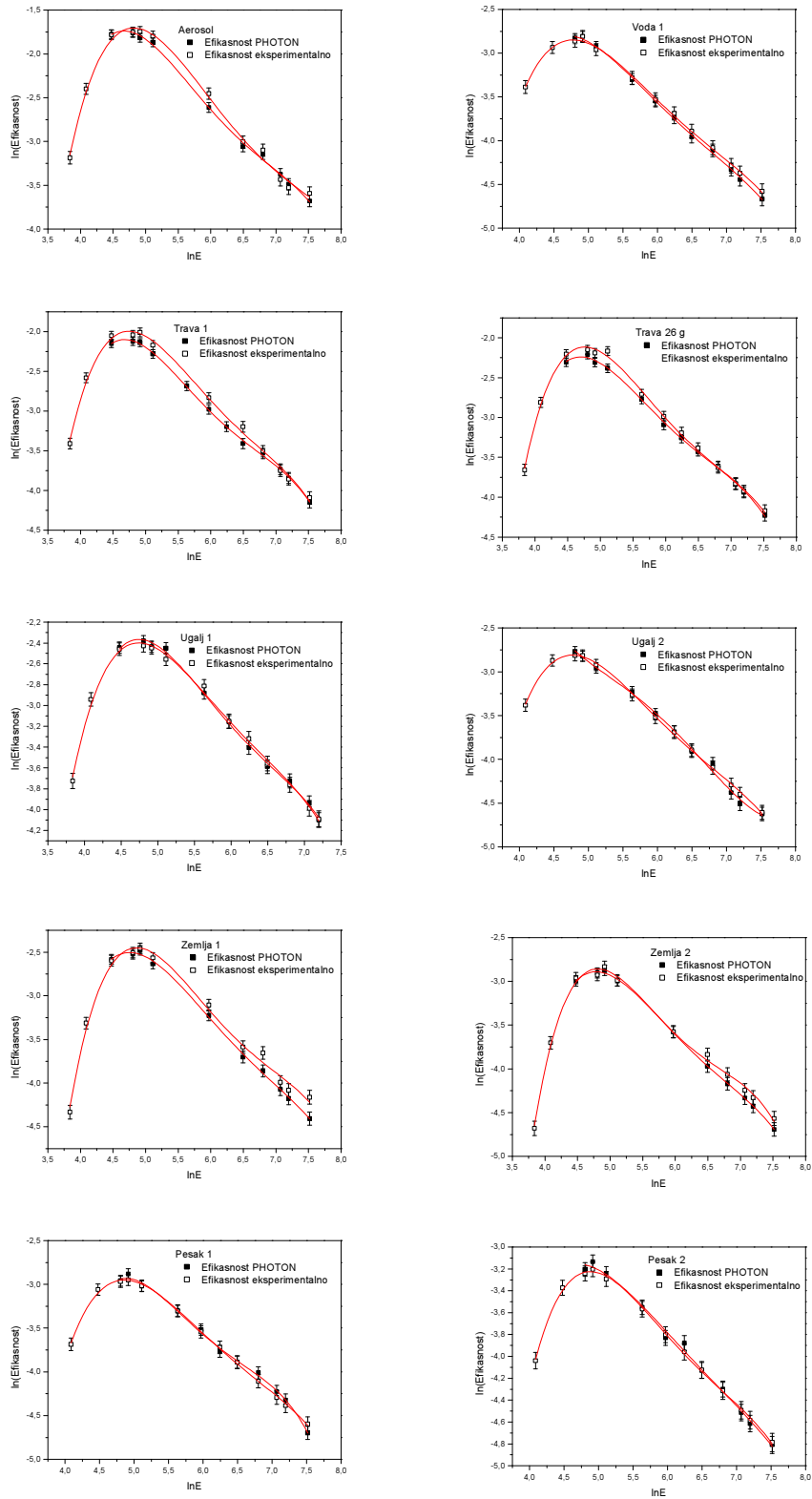
На слици 3.5.5. дат је пример спектра симулираног програмом PHOTON. Симулиран је спектар вода 2 на детектору D₁.



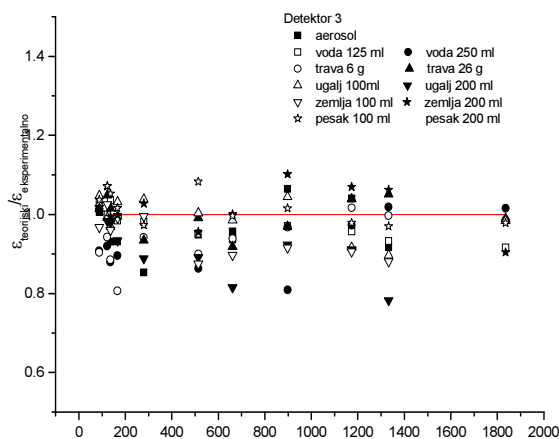
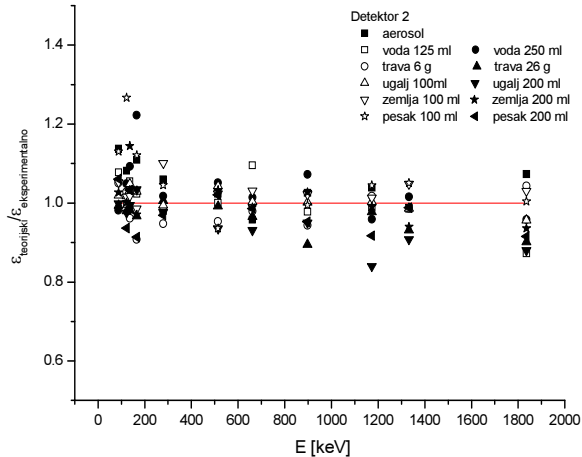
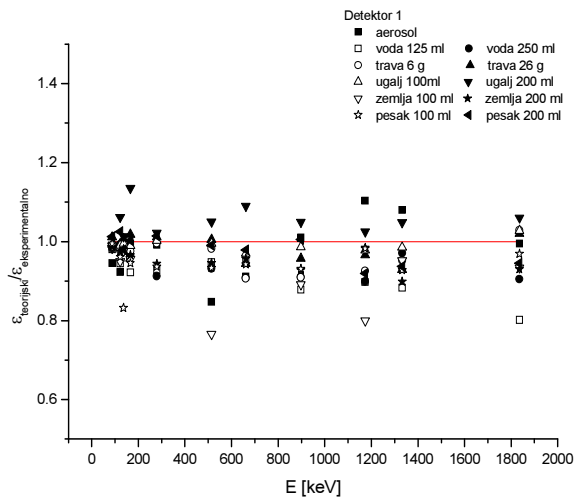
Слика 3.5.1. Ефикасности детектора D₁ добијене PHOTON симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.



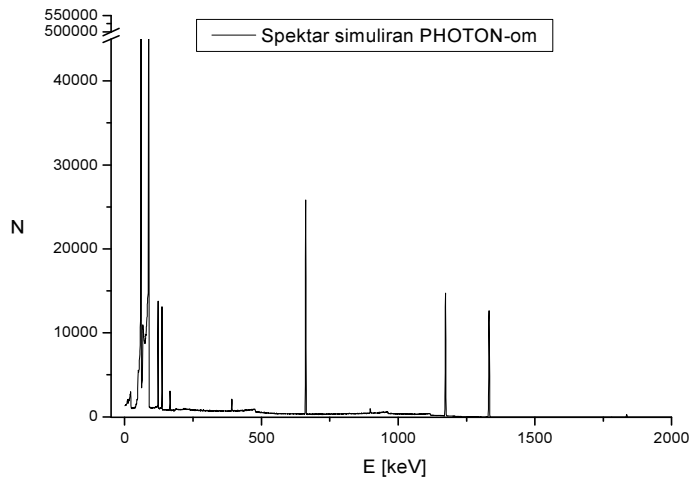
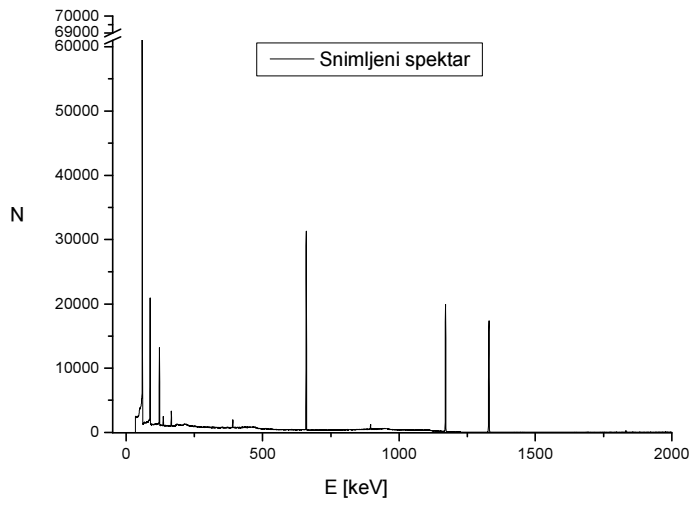
Слика 3.5.2. Ефикасности детектора D_2 добијене PHOTON симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.



Слика 3.5.3. Ефикасности детектора D_3 добијене PHOTON симулацијом заједно са експериментално добијеним ефикасностима.



Слика 3.5.4. Однос $\epsilon_{\text{PHOTON}}/\epsilon_{\text{exp}}$, где је $\epsilon_{\text{PHOTON}}^{E[\text{keV}]}$ ефикасност израчуната коришћењем програма PHOTON а ϵ_{exp} је експериментално добијена ефикасност за сва три детектора и све геометрије и матриксе.



3.6. Дискусија резултата добијених различитим методама

Процена тачности вредности ефикасности добијених различитим методама, урађена је на основу резултата мерења извршених у оквиру неколико различитих интеркомпарација и мерења сертифицикованих секундарних референтних материјала. Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине редовно учествује у међулабораторијским интеркомпарацијама и тестовима које организује МААЕ и друге референтне лабораторије. Предмет испитивања у овим интеркомпарацијама су узорци из животне средине који садрже природне и произведене радионуклиде. Из тог разлога су ови узорци коришћени за поређење вредности ефикасности добијених различитим методама. Такође, с обзиром на то да постоји референтна вредност активности коју обезбеђује организатор интеркомпарације, могуће је објективно утврдити тачност добијених вредности.

Од многобројних мерења која су урађена у Лабораторији, за поређење резултата одабрани су узорци земљишта, воде и разни миксеви траве и органских компоненти. С обзиром на то да у тренутку извођења интеркомпарације нису сви узорци мерени на свим детекторима, као и да узорци нису покривали све могуће геометрије и матриксе, за поређење су одабрана она мерења која покривају исте геометрије на свим детекторима. Такође, провера за матрикс аеросоли није изведена, јер није било организованих интеркомпарација које би укључивале тај матрикс.

За поређење су искоришћена мерења референтног материјала и мерења изведена у оквиру следећих интеркомпарација:

- Референтни материјал IAEA-156, детелина, мерен у геометрији цилиндричне кутије од 120 ml. Примењена ефикасност је трава 1. [69]
- IAEA-TEL-2012-03, узорак сена, мерен у геометрији цилиндричне кутије од 120 ml. Примењена ефикасност је трава 2. [56]
- IAEA-TEL-2014-03, узорак траве, мерен у геометрији цилиндричне кутије од 250 ml. Примењена ефикасности је за угаљ 2. [70]
- IAEA-TEL-2014-03, узорак седимента мерен у геометрији цилиндричне кутије од 250 ml. Примењена ефикасности је за песак 2. [70]
- IAEA-TEL-2014-03, узорак воде мерен у геометрији вода 2. [70]
- IAEA-TEL-2011-03, узорак воде мерен у геометрији вода 2. [70]

- Интеркомпарација Мађарска, узорци седимента. Примењена ефикасности је за угаљ 1, угаљ 2, песак 1 и песак 2 [71].

Поступак упоређивања обухватио је одређивање активности радионуклида у узорцима уз коришћење кривих ефикасности добијених различитим методама. Тачност резултата је тестирана на основу референтне вредности, применом u_{test} критеријума дефинисаног једнакошћу (3.1.2), на основу којег је резултат оцењен као прихватљив (A - acceptable) или неприхватљив (N – not acceptable).

У табелама 3.6.1, 3.6.2 и 3.6.3 дати су резултати мерења са мерном несигурношћу на нивоу поверења од 1σ , за детекторе D_1 , D_2 и D_3 респективно. Табелама су словом N означени резултати који су неприхватљиви тј. чија вредност u_{test} прелази 2.58. Сви остали резултати који су прихватљиви нису посебно означени због прегледности. Такође, референтне вредности означене звездицом представљају средњу вредност резултата које су пријавиле све лабораторије учеснице, укључујући и референтну лабораторију која је организатор, док је мерна несигурност дата као стандардна девијација. Ови резултати нису добијени независним мерењем тако да их треба узети са ограниченим поверењем.

Сви резултати мерења на детектору D_1 су прихватљиви осим резултата за Референтни материјал IAEA-156, ^{137}Cs аналитичком методом и за узорак воде IAEA-TEL-2014-03, за ^{210}Pb (табела 3.6.1). За IAEA-TEL-2014-03, за ^{210}Pb једино програм EFFTRAN даје прихватљив резултат, док аналитички метод није примењен на ову геометрију. С обзиром на то да детектор D_1 има малу ефикасност у нискоенергетском делу спектра и да је ^{210}Pb присутно у фону, лош резултат чак и за експериментални метод је био очекиван. У овој ситуацији не можемо поуздано тврдити да ефикасност није добро одређена, већ је проблем у самом мерењу узорка и фона. Код ^{137}Cs одређеног аналитичком методом у геометрији трава 1, резултат је значајно већи од референтне вредности, а за ^{40}K су нешто ниже, што говори о границама применљивости овог метода. Висок резултат на средњим а низак на високим енергијама говори о неодговарајућем облику калибрационе криве. С обзиром на то да су као почетне, узете калибрационе криве за секундарне референтне материјале значајно различите висине и масе у односу на мерени узорак, можемо да закључимо да екстраполације ефикасности на удаљене геометрије и густине не даје

задовољавајућ резултат. Сви остали резултати се не разликују међусобно и од референтне вредности у оквиру мерне несигурности.

У табели 3.6.2 дати су резултати мерења и рачунања за детектор D₂. Добијено је 7 неприхватљивих резултата од који се 4 односе на ¹³⁷Cs и 3 на ⁴⁰K. Неприхватљиви резултати су за референтни материјал IAEA-156 за ефикасност добијену експерименталним методом и програмима GEANT4 и PHOTON, Интеркомпарација Мађарска седимент 662-1 (геометрија угаљ 1) за ефикасност добијену програмом EFFTRAN и аналитичким методом и IAEA-TEL-2012-03 сено (геометрија трава 2) за ефикасност добијену програмом GEANT4. Како је показано [53], калибрациона крива би требало да има локални минимум на енергијама око 600 keV (¹³⁷Cs емитује на 661 keV). У симулацијама и трансферу ефикасности овај локални минимум се не појављује па су зато ефикасности прецењене што доводи до неслагања резултата са референтним вредностима. У случају ⁴⁰K у узорку IAEA-156, неприхватљив је резултат добијен експерименталном методом и програмом GEANT4 и PHOTON. Пошто су параметри геометрије детектора у симулацијама оптимизовани тако да се добијена ефикасност слаже са експерименталном, очигледно је да за ову геометрију треба ревидирати високоенергетски део експерименталне калибрационе криве. Побољшање би се постигло рачунањем ефикасности за тачно дефинисан хемијски састав и густину мереног узорка. Исто важи и за програм PHOTON, где непрецизно дефинисање хемијског састава доводи до немогућности прецизног дефинисања коефицијената самоапсорпције за секундарни референтни материјал. За разлику од ¹³⁷Cs и ⁴⁰K, други радионуклиди емитују на већем броју енергија, имају корекције на коинцидентно сумирање и њихова активност је одређена као средња вредност активности добијених на свим енергијама. Зато су резултати за друге радионуклиде прихватљиви. У случају програма GEANT4 и резултата за узорак IAEA-TEL-2012-03 сено (геометрија трава 2), узрок је у томе што је коришћена ефикасност добијена за секундарни референтни материјал у којем је матрикс заузимао само половину расположиве запремине, док је мерени узорак испуњавао целокупну запремину геометрије мерења. Побољшање би се добило извођењем нове симулације за конкретан случај. Ипак, у пракси би се сва одступања од критичне вредности u_{test} могла ануирати повећањем мерне несигурности, тако што би се у буџет увео допринос који покрива одступања геометријских карактеристика мереног узорка од

секундарног референтног материјала. За све мерене узорке уочљив је тренд да EFFTRAN и PHOTON, дају мало више а аналитички метод и GEANT4, мало ниже вредности за активност. У случају детектора D₂, сви резултати за узорак воде су прихватљиви и не разликују се од референтне вредности у оквиру мерне несигурности.

И код детектора D₃ уочавају се 4 неприхватљива резултата добијена применом програма EFFTRAN и PHOTON и то опет за ¹³⁷Cs у случају тежег матрикса. Такође, један неприхватљив резултат се односи на ²⁴¹Am, који такође емитује на једној енергији па се сви претходни коментари дати за детектор D₁ односе и на ову ситуацију. Неприхватљив је и резултат за ⁴⁰K добијен помоћу програма PHOTON, јер је као и у другим случајевима, ефикасност већа на крајевима опсега. Утицај димензија кристала детектора показује зависности од енергије [49], тако да одступања уочена на високим енергијама код програма EFFTRAN и PHOTON потичу од дефиниције геометрије кристала. Оптимизација ових параметара је довела до побољшања слагања на нижим енергијама али за високе енергије је остала незанемарљива. Сви остали резултати су прихватљиви и одступају од референтних вредности у оквиру мерне несигурности. За овај детектор, симулација програмом GEANT4 даје најбоље резултате који су ближи референтним вредностима у односу на експериментални метод.

У поређењу вредности ефикасности добијених различитим методама са експериментално добијеним ефикасностима, уочава се добро слагање уз извесна ограничења. Еквивалентност резултата, нарочито на средњим и високим енергијама говори о исправном третману механизма интеракције зрачења са материјом у детектору [39]. Највероватнији узрок одступања у нискоенергетском делу спектра су разлике у коефицијентима апсорпције или у комплетном изостављању тих коефицијената у рачуну.

Код аналитичког метода одступања су очекивана и последица су апроксимација уведених да би се уопште могла установити аналитичка зависност ефикасности од геометријских параметара, до које се иначе долази путем нумеричке интеграције.

Основни узрок одступања код калибрације програмом EFFTRAN су недовољно познавање параметара геометрије детектора и састава секундарног референтног материјала. Иако су неки параметри оптимизовани да би се постигло најбоље слагање са експерименталним вредностима, неки параметри, као што је

дебљина и мрвог слоја, булетизација и хемијски састав секундарног референтног материјала, нису могли бити оптимизовани због нехомогености. Такође, трансфер ефикасности је извршен коришћењем калибрације тачкастим извором као почетног податка. С обзиром на то да се тражене ефикасности односе на несредне геометрије и матриксе, извесна одступања су неминовна.

Код Монте Карло метода, ова неслагања су уочена и у другим радовима [66, 67] и потичу од вредности ефективних пресека интеракције, а који зависе од дефинисања материјала детектора и узорка. Разлике такође могу да потичу од различитог третмана података у близини границе апсорпције, нарочито код матрикса са високим ефективним масеним бројем Z , као што су земља и песак. Потврђен је и утицај дебљине и хомогености мрвог слоја детектора и на Монте Карло симулацију. С обзиром на то да се овај параметар не може у потпуности оптимизовати његов утицај на коначни резултат треба уврстити у буџет мерне несигурности.

Табела 3.6.1. Резултати мерења узорака у оквиру интеркомпарација на детектору D₁ дати са мерном несигурношћу на нивоу поверења од 1σ. Ознаком N означени су резултати који су неприхватљиви на основу вредности u_{test} . Звездицом су означене референтне вредности добијене као средња вредност резултата лабораторија учесница са стандардном девијацијом.

	Експериментални метод	Аналитички метод	EFFTRAN	GEANT 4	PHOTON	Референтна вредност
Референтни материјал IAEA-156, детелина (геометрија трава 1)						
¹³⁷ Cs	275 ± 12	380 ± 20 N	299 ± 13	288 ± 13	290 ± 20	264 ± 10
⁴⁰ K	580 ± 40	620 ± 50	640 ± 40	650 ± 40	620 ± 40	657 ± 20
Интекомпарација Мађарска 665-1 седимент (геометрија угаљ 2)						
²²⁶ Ra	45 ± 4	47 ± 6	46 ± 3	38 ± 2	42 ± 2	37.0 ± 4.4*
¹³⁷ Cs	28 ± 2	26 ± 4	30 ± 2	26.3 ± 0.9	26 ± 1	28.4 ± 1.7*
²²⁸ Ac	39 ± 4	34 ± 4	42 ± 4	43 ± 4	38 ± 4	42.4 ± 3.4*
⁴⁰ K	624 ± 43	570 ± 60	560 ± 40	540 ± 20	590 ± 40	631 ± 63*
Интекомпарација Мађарска 662-1 седимент (геометрија угаљ 1)						
¹³⁷ Cs	17.3 ± 0.9	17.3 ± 1.0	16.9 ± 0.8	17.2 ± 0.9	17.3 ± 0.9	18 ± 3*
²²⁸ Ac	36 ± 2	36 ± 3	35 ± 2	36 ± 2	36 ± 2	38.7 ± 3.1*
⁴⁰ K	559 ± 42	560 ± 30	552 ± 20	580 ± 20	560 ± 20	555 ± 61*
IAEA-TEL-2012-03 Сено (геометрија трава 2)						
¹³⁷ Cs	820 ± 30	800 ± 30	820 ± 30	800 ± 30	820 ± 30	785 ± 24
¹³⁴ Cs	310 ± 20	310 ± 30	320 ± 30	300 ± 20	310 ± 20	306 ± 20
IAEA-TEL-2014-03 вода (геометрија вода 2)						
¹³⁷ Cs	11.9 ± 0.4	/	12.6 ± 0.4	12.0 ± 0.	13.5 ± 0.5	12.06 ± 0.1
¹³⁴ Cs	21.0 ± 0.7	/	21.3 ± 0.7	20.4 ± 0.7	22.2 ± 0.7	21.4 ± 0.2
²¹⁰ Pb	33 ± 4 N	/	38 ± 5	32 ± 4 N	27 ± 3 N	49.87 ± 1.23

Табела 3.6.2. Резултати мерења узорака у оквиру интеркомпарација на детектору D₂ дати са мерном несигурношћу на нивоу поверења од 1σ. Ознаком N означени су резултати који су неприхватљиви на основу вредности u_{test} . Звездицом су означене референтне вредности добијене као средња вредност резултата лабораторија учесница са стандардном девијацијом.

	Експери- ментални метод	Аналитич- ки метод	EFFTRAN	GEANT4	PHOTON	Референтна вредност
Референтни материјал IAEA-156, детелина (геометрија трава 1)						
¹³⁷ Cs	200 ± 10 N	320 ± 20	240 ± 12	258 ± 13	280 ± 20	264 ± 10
⁴⁰ K	420 ± 40 N	660 ± 60	620 ± 60	520 ± 50 N	450 ± 40 N	657 ± 20
IAEA-TEL-2014-03 седимент (геометрија песак 2)						
²³⁸ U	19 ± 1	17 ± 2	18 ± 1	22 ± 2	20 ± 2	16.0 ± 3.8*
²²⁶ Ra	21.2 ± 0.9	18.8 ± 0.9	20.8 ± 0.8	17.6 ± 0.7	22.9 ± 0.9	19.0 ± 4.8*
¹³⁷ Cs	12.4 ± 0.4	11.4 ± 0.5	12.5 ± 0.4	11.0 ± 0.4	13.5 ± 0.7	12.0 ± 0.4
²²⁸ Ac	12.5 ± 0.4	11.3 ± 0.5	12.5 ± 0.4	11.6 ± 0.4	13.5 ± 0.5	12.1 ± 1.5*
⁴⁰ K	239 ± 8	260 ± 10	292 ± 9	278 ± 9	309 ± 14	270 ± 27*
Интеркомпарација Мађарска седимент 662-1 (геометрија угаљ 1)						
¹³⁷ Cs	14 ± 2	11.7 ± 0.7 N	14.0 ± 0.8 N	15.7 ± 0.9	16.3 ± 0.9	18.3 ± 1.3*
²²⁸ Ac	34 ± 5	33 ± 2	37 ± 3	36 ± 3	37 ± 3	38.7 ± 3.1*
⁴⁰ K	454 ± 37	450 ± 40	470 ± 40	520 ± 40	550 ± 40	555 ± 61*
IAEA-TEL-2012-03 сено (геометрија трава 2)						
¹³⁷ Cs	780 ± 20	710 ± 30	700 ± 20	860 ± 30 N	840 ± 30	785 ± 24
¹³⁴ Cs	300 ± 20	270 ± 20	270 ± 20	330 ± 20	320 ± 20	306 ± 20
IAEA-TEL-2011-03 Вода (геометрија вода 2)						
⁶⁰ Co	7.4 ± 0.4	/	7.5 ± 0.4	7.0 ± 0.4	8.1 ± 0.4	7.6 ± 0.1
¹³³ Ba	2.4 ± 0.2	/	2.4 ± 0.2	2.2 ± 0.2	2.4 ± 0.4	2.5 ± 0.1
¹³⁷ Cs	3.2 ± 0.2	/	3.0 ± 0.3	2.9 ± 0.3	3.3 ± 0.3	3.1 ± 0.1
¹³⁴ Cs	4.1 ± 0.2	/	4.0 ± 0.2	3.8 ± 0.2	4.2 ± 0.4	3.8 ± 0.1
¹⁵² Eu	7.5 ± 0.4	/	8.0 ± 0.5	7.3 ± 0.4	7.8 ± 0.5	7.7 ± 0.1
²⁴¹ Am	2.3 ± 0.2	/	2.2 ± 0.2	2.2 ± 0.2	2.2 ± 0.2	2.4 ± 0.1

Табела 3.6.3. Резултати мерења узорака у оквиру интеркомпарација на детектору D₃ дати са мерном несигурношћу на нивоу поверења од 1σ. Ознаком N означени су резултати који су неприхватљиви на основу вредности u_{test} . Звездицом су означене референтне вредности добијене као средња вредност резултата лабораторија учесница са стандардном девијацијом.

	Експери- Ментални метод	Аналитич- ки метод	EFFTRAN	GEANT4	PHOTON	Референт на вредност
Референтни материјал IAEA-156, детелина (геометрија трава 1)						
¹³⁷ Cs	285 ± 10	278 ± 13	280 ± 10	276 ± 10	270 ± 10	264 ± 10
⁴⁰ K	600 ± 30	610 ± 40	670 ± 40	620 ± 30	550 ± 30 N	657 ± 20
IAEA-TEL-2014-03 седимент (геометрија песак 2)						
²³⁸ U	17 ± 4	15 ± 3	21 ± 4	21 ± 4	15 ± 3	16.0 ± 3.8*
²²⁶ Ra	19.9 ± 0.9	17.8 ± 0.9	22 ± 1	19.8 ± 0.9	22 ± 1	19.0 ± 4.8*
¹³⁷ Cs	13.6 ± 0.5	12.5 ± 0.6	14.3 ± 0.5N	13.3 ± 0.4	14.5 ± 0.7 N	12.0 ± 0.4
²²⁸ Ac	12.0 ± 0.7	10.9 ± 0.7	12.9 ± 0.7	11.8 ± 0.6	12.8 ± 0.8	12.1 ± 1.5*
⁴⁰ K	288 ± 9	260 ± 10	292 ± 9	278 ± 9	309 ± 14	270 ± 27*
IAEA-TEL-2014-03 трава (геометрија угаљ 2)						
²²⁶ Ra	5.0 ± 0.3	5.3 ± 0.4	5.8 ± 0.4	5.4 ± 0.4	6.2 ± 0.4	5.1 ± 3.7*
¹³⁷ Cs	21.6 ± 0.7	22.8 ± 1.0	23.4 ± 0.7	22.1 ± 0.7	22.7 ± 0.7	22.96 ± 0.45
¹³⁴ Cs	8.0 ± 0.4	8.3 ± 0.5	8.9 ± 0.5	7.9 ± 0.4	8.4 ± 0.5	8.27 ± 0.2
²²⁸ Ac	2.5 ± 0.3	2.5 ± 0.3	2.8 ± 0.3	2.3 ± 0.3	2.6 ± 0.3	2.5 ± 0.7*
⁴⁰ K	1640 ± 50	1670 ± 70	1860 ± 60	1680 ± 70	1930 ± 60	1780 ± 150*
²¹² Pb	2.4 ± 0.4	2.6 ± 0.4	2.8 ± 0.4	2.7 ± 0.3	2.8 ± 0.5	2.6 ± 0.6*
IAEA-TEL-2012-03 Сено (геометрија трава 2)						
¹³⁷ Cs	730 ± 20	660 ± 30N	730 ± 20	810 ± 30	730 ± 20	785 ± 24
¹³⁴ Cs	270 ± 20	260 ± 20	280 ± 20	310 ± 20	290 ± 20	306 ± 20
IAEA-TEL-2012-03 вода (геометрија 125 ml)						
²⁴¹ Am	128±3	/	156 ± 12 N	140±10	136 ± 12	120.9±0.74
¹³⁷ Cs	106±2	/	111 ± 9	103±7	114 ± 11	102.5±0.75

4. Закључак

У оквиру ове дисертације примењено је пет поступака за калибрацију ефикасности три HPGe детектора. Мерења су извршена у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке Винча. Примењене методе калибрације ефикасности су експериментална, аналитичка, полуемпиријска и Монте Карло метода (представљен са два програмска пакета). Коефицијенти за корекцију на коинцидентно сумирање су израчунати применом програма EFFTRAN и примењени у методама.

Почетак експерименталне методе калибрације обухватио је прављење секундарних референтних радиоактивних материјала у геометријама и са матриксама који одговарају узорцима из животне средине, који су произведени у сарадњи са Лабораторијом за нуклеарну и физику плазме Института за нуклеарне науке Винча. Експерименталне калибрационе криве су добијене мерењем секундарних референтних радиоактивних материјала.

У оквиру калибрације аналитичким методом, на основу теоријских разматрања, одређена је аналитичка зависност ефикасности од ефективне дубине интеракције и висине пуњења секундарног референтног материјала за исти полупречних геометрије мерења. Ефективна дубина интеракције је одређена на основу мерења тачкастих извора. Ова аналитичка функција, у комбинацији са познатом зависношћу ефикасности од густине узорка, примењена је на добијање ефикасности за једну геометрију коришћењем две друге геометрије чија се ефикасност сматрала познатом. Поступак је примењен за добијање ефикасности за секундарне референтне материјале трава 2, земља 1 и земља 2. *Овако добијене ефикасности су упоређене са експерименталним резултатима и установљено је да се одступања крећу у распону од 1% до 14% при чему су највећа одступања уочена за нискоенергетски део спектра.*

За полуемпиријски метод калибрације употребљен је програм за трансфер ефикасности EFFTRAN. Овим програмом се помоћу почетне познате, односно измерене ефикасности, одређује непозната ефикасност на основу дефинисаних параметара геометрије детектора и геометрије и хемијског састава секундарног референтног материјала. Да би се добила почетна ефикасност, измерена је ефикасност за тачкасте изворе ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{54}Mn and ^{60}Co произвођача LMRI Coffret d'etalons. Програмом је након дефинисања потребних параметара

израчуната ефикасности за све испитиване геометрије и матриксе и вредности су упоређене са експериментално добијеним ефикасностима. *Одступања ефикасности добијених програмом EFFTRAN од експерименталних вредности крећу се у опсегу од 0,02% до 20% при чему је на једној енергији уочено одступање од 30%. Најмања одступања су у средње енергетском делу спектра, док су на крајевима опсега одступања већа. Најмања одступања се уочавају код детектора D₃.*

За калибрацију Монте Карло методом примењена су два програма, GEANT4 и PHOTON. Оба програма се заснивају на симулацији спектралног одговора детектора на основу података о геометрији детектора и геометрији и хемијском саставу секундарних референтних материјала. У програму PHOTON, неки доприноси спектру су изостављени у корист поједностављења рачунања па су и резултати симулације другачији. GEANT4 је који даје веома прецизне и тачне резултате и осетљив је на промене у параметрима симулације.

Применом GEANT4 програма, добијени су резултати који од експерименталних одступају о опсегу од 0,06% до 20%. *Највећа одступања су уочена за геометрије трава 2 и земља 2 и то у нискоенергетском делу спектра, док су сва остала одступања мања од 5%.* Код поменутих геометрија, слабости у познавању хемијског састава и густине паковања матрикса су утицали на повећање одступања. Сви остали резултати су у оквиру мерне несигурности у односу на експерименталне податке.

У случају програма PHOTON, због великог одступања од експерименталних вредности, резултати за енергије испод 100 keV су изостављени. За све друге енергије, одступања од експериментално добијених ефикасности су се кретала у распону од 0,03% до 20%. И у овој ситуација највећа одступања се односе на теже матриксе (земља 1 и земља 2) чији хемијски састав није било могуће прецизно дефинисати. *У опсегу енергија од 100 – 1000 keV, резултати симулације се налазе у оквиру мерне несигурности у односу на експерименталне резултате.*

Тачност калибрација је проверена мерењем активности познатих узорака: узорак IAEA-477 moss-soil и узорак воде мерене у оквиру интеркомпарације IAEA-CU-2009-03, узорак траве и земље мерене у оквиру интеркомпарације IAEA-TEL-2012-03 и Референтни материјал IAEA-156, детелина. Активности радионуклида добијене коришћењем различитих метода калибрације су упоређене

са референтним вредностима које су добијене од организатора интеркомпарација. Да би се оценила тачност резултата, коришћен се u_{test} критеријум (препука МААЕ [57]).

У овом поређењу је установљено да су сви резултати за детектор D_1 прихватљиви, осим активности ^{210}Pb у узорку IAEA-TEL-2014-03, где је и активност одређена са експерименталном ефикасношћу била неприхватљива, (проблем калибрација секундарним референтним радиоактивним материјалом који не садржи ^{210}Pb). За остале испитиване радионуклиде, најбоље резултате даје примена програма EFFTRAN и GEANT4 који су давали најприближније резултате. Добре резултате даје и програм PHOTON, док аналитички метод даје најбоље резултате код радионуклида који емитују у средњем и високоенергетском делу спектра. Аналитички метод се најбоље показао код узорка IAEA-TEL-2012-03, мереног у геометрији трава 2. Ово је управо и јесте ситуација у којој је примена овог метода најкориснија јер се ради о узорку сличног састава али различите висине и густине у односу на секундарни референтни материјал коришћен за калибрацију.

У случају детектора D_2 , неприхватљиви су били резултати за активност ^{137}Cs , међутим, неслагања са референтном вредношћу се не могу повезати ни са једном посебном методом калибрације, јер је сваки метод за поједине узорке дао неприхватљиву вредност активности. У случају када је ефикасност потцењена (узорак IAEA-TEL-2014-03, EFFTRAN и PHOTON), као полазна вредност коришћена је експериментална ефикасност која је такође потцењена, па је и активност одређена помоћу експерименталне ефикасности на граници прихватљивости.

У случају детектора D_3 , уочена су 4 неприхватљива резултата, који се односе на активност ^{137}Cs одређена са ефикасношћу добијеном програмима EFFTRAN и PHOTON. *Сви остали резултати су били прихватљиви, при чему се за теже матриксе показало да GEANT4 даје најтачније резултате.*

Посебни проблеми који се тичу калибрације ефикасности за узорке из животне средине се могу решавати на неколико начина. Поред експерименталне калибрације у којој треба постићи максимално слагање матрикса секундарног референтног радиоактивног материјала са матриксом мереног узорка, потребно је у сваком мерењу одредити корекционе факторе за коинцидентно сумирање. За овај поступак најпрактичнија је примена програма EFFTRAN. *У случају да су при*

реалном мерењу потребне мале корекције у геометрији и маси мереног узорка, примена аналитичког модела даје добре резултате и примена не подразумева коришћење компликованих програма што је корисно за *in situ* мерења или за детектор непознатих карактеристика, док се у лабораторијским условима опет може применити програм EFFTRAN.

Монте Карло симулације, конкретно GEANT4, нису практичне за рутинска мерења због времена потребног да се програм прилагоди конкретним условима и због неопходности познавања програмског језика. Ипак, корисно је, пре примене било ког метода који користи геометријске параметре детектора, најпре извршити оптимизацију коришћењем GEANT4 пакета, којим је могуће са великом прецизношћу одредити варијације у ефикасности које су последица варирања геометријских параметара детектора.

Као алтернатива GEANT4 пакету, програм PHOTON је кориснички оријентисан и захтева много мање ресурса, па би примена овог метода била упутна ако је неопходно извршити калибрацију за узорак чије геометријске и физичко-хемијске карактеристике значајно одступају од секундарно референтних радиоактивних материјала коришћених за калибрацију. Примену PHOTON-а ипак треба ограничити на средње енергетски део спектра, где овај програм показује добро слагање са експерименталним резултатима. У граничним деловима спектра, могућа су одступања која далеко превазилазе оквире мерне несигурности чиме доводе до неприхватљивих резултата.

У наредном периоду, у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, биће изведена калибрација ефикасности за велики број геометрија и матрикса коришћењем најбољих комбинација различитих метода које су представљене у овој дисертацији. Такође, биће формулисан протокол за калибрацију у случајевима када мерени узорак не одговара ни једној од калибрација који ће обезбедити већу поузданост мерења.

5. Литература

- [1] Иван А. Гржетић, Раде Ј. Јеленковић, Природни радиоактивни елементи, геолошко порекло и облици појављивања и миграције, Монографија Јонизујућа зрачења из природе, ЈДДЗ Београд, уредник Мр Милојко Ковачевић (1995.)
- [2] K. Debertin and R.G. Helmer gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors, Elsevier Science Publishers New York (1988)
- [3] Glenn F. Knoll, Radiation detection and measurement, John Wiley and Sons USA, (1979)
- [4] Ј. Сливка, И. Бикит, М. Весковић, Ј. Чонкић, Гама спектрометрија, специјалне методе и примене, Универзитет у Новом Саду (2000.)
- [5] UNSCEAR 2010 Sources and Effects of Ionizing Radiation, Report to the General Assembly, United Nations New York (2010)
- [6] И. Бикит, Ј. Сливка, Ј. Чонкић, М. Крмар, Специфични проблеми мерења природних радионуклида, Југословенско друштво за заштиту од зрачења, Јонизујућа зрачења из природе, Уредник Милојко Ковачевић, Београд (1995.)
- [7] R. G. Helmer, J. E. Cline, R. C. Greenwood, The electromagnetic interaction in nuclear spectroscopy. Editor W.D. Hamilton, North-Holland Publishing Company, Oxford (1975)
- [8] W. R. Leo, Tehniques for Nuclear and Particle Physics Experiments, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, New York (1994).
- [9] S. H. Vegors, L.L. Marsden, R. L. Heath, Calculated Efficiencies of Cylindrical Radiation Detectors, USAEC Research and Development Report, IDO-16370 (1958.)
- [10] М. А. Mohammadi, M. R. Abdi, M. Kamali, M. Mostajaboddavati, M. R. Zare, Evaluation of HPGe detector efficiency for point sources using virtual point detector model Applied Radiation and Isotopes 69 (2011) 521–526
- [11] A. P. Kushelevsky, Z. B. Alfassi, Off center gamma ray detection efficiencies of cylindrical single open ended (SOE) Ge(Li) detectors. Nucl. Instr. and Meth. 131, (1975) 93–95
- [12] O. Helmer, Looking forward: A guide to future research. Beverly Hills, CA: Sage (1983.)
- [13] A. Norea, The Ge(Li) Spectrometer as a Point Detector, Nuclear Instruments and Methods, Volume 91, Number 3 (1971) 513-515
- [14] Z. B. Alfasi, F. Groppi, An empirical formula for the efficiency detection of Ge detectors for cylindrical radioactive sources, Nuclear Instruments and Methods A 574 (2007) 280-284
- [15] L. Moens, J. De Donder, Lin Xi-lei, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste, Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries, Nuclear instruments and Methods 187 (1981) 451-472
- [16] Marie-Christine Lépy, Marie-Martine Bé, François Piton, ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) Software for efficiency transfer and coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry, Note Technique LNHB/01/09/A, LABORATOIRE NATIONAL HENRI BECQUEREL
- [17] J. M. Hammersley, D. C. Handscomb, Monte Carlo Method, Methuen (1964.)
- [18] W.L. Dunn, J.K. Shultis, Monte Carlo methods for design and analysis of radiation detectors, Radiation Physics and Chemistry 78 (2009) 852–858
- [19] Gardner, R.P., Sood, A., 2004. A Monte Carlo simulation approach for generating NaI Detector Response Functions (DRFs) that accounts for nonlinearity and variable flat continua. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 213, 87–99

- [20] G. R. Gilmore, Practical Gamma-ray Spectrometry, 2nd edition, John Wiley and Sons, New York (2008.)
- [21] M. Garcia-Talavera, J.P. Laedermann, M. Decombaz, B. Quintana, M.J. Daza, Coincidence summing corrections for the natural decay series in gamma-ray spectrometry. *Journal of Radiation and Isotopes* 54 (2001) 769-776
- [22] B. Quintana, Fernandez, An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma spectrometry *Appl. Radiat. Isot.* 46, (1995) 961-968
- [23] R. G. Helmer, R. J. Gehrke, Calculation of coincidence summing corrections for a specific small soil sample. *Radioactivity Radiochem.* 8, (1997) 18-28
- [24] M.J. Daza, B. Quintana, M. Garcia-Talavera, F. Fernandez, Efficiency calibration of a HPGe detector in the [46.54–2000] keV energy range for the measurement of environmental samples, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 470 (2001) 520–532
- [25] M. Taskaeva, e. Taskaev, I. Penev, On the preparation of efficiency standards for gamma-ray spectrometers. *Appl. Radiat. Isot.* 47 (9), (1996) 981–990.
- [26] I. Vukanac, M. Djurasevic, A. Kandic, D. Novkovic, L. Nadjerdj, Z. Milosevic, Experimental determination of the HPGe spectrometer efficiency curve, *Applied Radiation and Isotopes* 66 (2008) 792–795
- [27] IAEA-TECDOC-530. Nuclear Electronics Laboratory Manual, 1989 EDITION. IAEA, VIENNA, 1989.
- [28] GENIE 2000 Operation manual, Canberra Industries, Meriden CT 06450 2002.
- [29] C. Dovlete, P. P. Povinec, QUANTIFICATION OF UNCERTAINTY IN GAMMA-SPECTROMETRIC ANALYSIS OF ENVIRONMENTAL SAMPLES IN IAEA-TECDOC-1401
- [30] W. Bambynek, Uncertainty Assignment in Radionuclide Metrology, Proc. of the First International Summer School La Rabida, Huelva, Spain, M. Garcia-Leon, G. Madurga, editors World Scientific, New-Jersey (1987)
- [31] IAEA TECDOC-619 1988. IAEA CRP. X-ray and gamma-ray standards for detector calibration
- [32] E. K. Osa, B. J. B Nyarko, Y. Serfor-Armah, E. O. Darko An Empirical Expression for the full energy peak efficiency of an N-type high purity germanium detector *Jour. of Radioanal Nucl Chem* 242: (1999) 617-622
- [33] Z. B. Alfassi, O. Pelled, U. German, The virtual point detector concept for HPGe planar and semi-planar detectors *Applied Radiation and Isotopes* Volume 64, Issue 5, May 2006, Pages 574–578
- [34] Z. B. Alfassi, N. Lavi, O. Presler, V. Pushkarski, HPGe virtual point detector for radioactive disk sources *Applied Radiation and Isotopes* Volume 65, Issue 2, (2006), 253–258
- [35] A. Bacchi, E.A.N. Fernandes, E. J. De Franca, A Semiempirical Approach for the Determination of HPGe Detector Photopeak Efficiency Aiming at k0-INAA *Journal of*
- [36] Nie Peng, Ni Bang-fa, Tian Wei-zhi, An empirical formula for HPGe γ detector efficiency calibration for bulky sources, *Radiation Physics and Chemistry* 81 (2012) 9–11
- [37] C.A. Adesanmi F. A. Balogun, M.K. Fasasi, I.A. Tubosun, A.A. Oladipo A semi-empirical formula for HPGe detector efficiency calibration, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 249, No. 3 (2001) 607–611
- [38] A. Cesana and M. Terrani, AN EMPIRICAL METHOD FOR PEAK-TO-TOTAL RATIO COMPUTATION OF A GAMMA-RAY DETECTOR, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 281 (1989) 172-175
- [39] T. Vidmar, N. Celik, N. Cornejo Diaz, A. Dlabac, I.O.B. Ewa, J.A. Carrazana Gonzalez, M. Hult, S. Jovanovic, M.-C. Lepy, N. Mihaljevic, O. Sima, F. Tzika, M.

- Jurado Vargas, G. Vidmar, T.Vasilopoulou, Testing efficiency transfer codes for equivalence Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 355 – 359
- [40] Ivana Vukasinovic, Dragana Todorovic, and Dragana Popovic, THE DEPENDENCE OF Ge DETECTOR EFFICIENCY ON THE DENSITY OF THE SAMPLES IN GAMMA-RAY SPECTROMETRY, Nuclear Technology & Radiation Protection –2/2007, 58-63
- [41] Tim Vidmar, EFFTRAN – A Monte Carlo Efficiency Transfer Code For gamma-ray spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in physics Research A 550 (2005), 603-608
- [42] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, Numerical Recipes in FORTRAN, Cambridge University Press, Cambridge, 1992
- [43] S. Agostinelli et al. GEANT4—a simulation toolkit Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A Volume 506, Issue 3, 1 July 2003, Pages 250–303
- [44] J.M. Puzovic, I.V. Anicin User-friendly Monte Carlo program for the generation of gamma-ray spectral responses in complex source detector arrangements, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 414 (1998) 279-282
- [45] S.M. Seltzer, M.J. Berger, Bremsstrahlung spectra from electron interactions with screened nuclei and orbital electrons, Nucl. Instr. and Meth. B 12 95-134 (1985)
- [46] A First Course in Computational Physics By Paul L. DeVries, Javier Hasbun
- [47] J. D. Nikolić, D. Joković, D. Todorović and M. Rajačić, Application of GEANT4 simulation on calibration of HPGe detectors for cylindrical environmental samples, Journal of Radiological Protection, Volume 34, No.2 (2014), N47-N55
- [48] S. Hurtado, M. García-Léon, R. García-Tenorio Monte Carlo simulation of the response of a germanium detector for low-level spectrometry measurements using GEANT4 Appl. Radiat. Isot. 61 (2004) 139-143
- [49] Vargas, M.J., Timon, A.F., Diaz, N.C., and Sanchez, D.P., “Influence of the Geometrical Characteristics of an HPGe Detector on its Efficiency,” Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Volume 253, Number 3 (2002) 439-443
- [50] K. R. Jackman, “Monte Carlo Simulations of Germanium Detector Efficiency Curves,” Masters Thesis, University of Texas at Austin, Austin, TX 2004
- [51] J. C. Hardy, V.E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R.T. Effinger, P. Lipnik, V.E. Mayes, D.K. Willis and R.G. Helmer, Precise efficiency calibration of an HPGe detector : source measurement and Monte Carlo calculations with sub-percent precision Appl. Radiat. Isot. 56 (2002) 65-69
- [52] A. Sorbo, A. Colabucci, L. Ciaralli, Control charts to evaluate long-term performance in proficiency tests Accreditation and Quality Assurance 18, (2013) DOI 10.1007/s00769-013-0956-0
- [53] Park S, Gwang M S Choi H D Experimental and Simulated Efficiency of a HPGe Detector in the Range of 0.6-11MeV Journal of the Korean Nuclear Society 35: (2003) 234-242
- [54] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications No. IAEA/AQ/, Worldwide Open Proficiency Test: Determination of Natural and Artificial Radionuclides in Moss-Soil and Water IAEA-CU-2009-03 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2011
- [55] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 18, Worldwide Open Proficiency Test: Determination of Naturally Occurring Radionuclides in Phosphogypsum and Water IAEA-CU-2008-03, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2010.
- [56] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications The world wide open Proficiency Test IAEA-TEL-2012-03 on the Determination of Radionuclides in Water, Hay and Soil

интеркомпарације IAEA-TEL-2012-03, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2013.

[57] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 18 Vienna, 2010

[58] S. Mahling, I. Orion, Z. B. Alfassi The dependence of the virtual point –detector on the HPGe detector dimensions Nuclear Instruments and Methods A, 557 (2006) 544-553

[59] Mohamed S. Badawi, Mona M. Gouda, Sherif S. Nafee, Ahmed M. El-Khatib, Ekram A. El-Mallah, New analytical approach to calibrate the co-axial HPGe detectors including correction for source matrix self-attenuation, Applied Radiation and Isotopes 70 (2012) 2661–2668

[60] J. Nikolić, M. Rajačić, D. Todorović, V. Tim, Estimation of uncertainty of HPGe efficiency calculated by efranz using virtual point detector model, The Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research, Proceedings, Izdavač: University of Niš, Faculty of Electronic Engineering, Editor Prof. Dr Goran Ristić, Proceedings, ISBN 978-86-6125-101-6, link: www.rad2014.elfak.rs, 27-30 May, 2014, Niš, Srbija, p. 243-246

[61] Lin Xilei, K. Heidorn: Effects of Cascade Coincidences on the Efficiency calibration of a Gamma – X Detector, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 169 (2) 1993. pp 419-427

[62] D. Jokovic, A. Dragic, V. Udovicic, R. Banjanac, J. Puzovic, I. Anicin, Monte Carlo simulations of the response of a plastic scintillator and an HPGe spectrometer in coincidence Applied Radiation and Isotopes 67(5) (2009) 719

[63] M. Krmar, J. Hansman, N. Jovanevic, N. Lalovic, J. Slivka, D. Jokovic, D. Maletic, A method to estimate a contribution of Ge(n,n') reaction to the low-energy part of gamma spectra of HPGe detectors, Nuclear Instruments and Methods A 709 (2013) 8–11.

[64] M. Laborie, G. Le Petit, D. Abt, M. Girard, Monte Carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence-summing corrections in low-level gamma-ray spectrometry using well-type HPGe detectors, Applied Radiation and Isotopes 53 (2000) 57-62

[65] J. Saegusa, K. Kawasaki, A. Mihara, M. Ito, M. Yoshida Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples Appl. Radiat. Isot. 61 (2004) 1383-1390

[66] Vidmar et al., An Intercomparison of Monte Carlo Codes Used in Gamma-Ray Spectrometry Appl. Radiat. Isot. 66 (2008) p. 764-768

[67] O. Sima and D. Arnold, On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems, Applied Radiation and Isotopes 67 (2009) 701–705

[68] I. Orion, L. Wielopolski, Limitations in the PHOTON Monte Carlo gamma transport code, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 480 (2002) 729–733

[95] <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-156.htm>

[70] http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/Proficiency_Tests/index.htm

[71] South Transdanubian Inspectorate for Environmental Protection, Nature Conservation and Water Management from Pécs 2013/1. Međulaboratorijsko poređenje, 7615 Pecz Szentlorinci ut. 4/1

Биографија кандидата

Крнета Николић (Драгослав) Јелена рођена је 23. 10. 1975. године у Пожаревцу, где је завршила Гимназију Јован Шербановић, природно-математички смер. Основне студије је похађала на Физичком факултету Универзитета у Београду, одсек Физика, смер Теоријска и експериментална физика. Дипломски рад на тему „Расподела вибрационе енергије за молекула SF_6 у квазиконтинууму, у смеши SF_6 и N_2 “ одбранила је 12. 7. 2005. године са оценом 10 и дипломирала са просечном оценом 8,73, чиме је стекла стручно звање дипломирани физичар. Мастер студије је уписала 2006. године на Физичком факултету, смер Теоријска и експериментална физика, и завршила са просечном оценом 10.00, 2007. године.

Докторске студије је уписала на Физичком факултету Универзитета у Београду, 2007/2008. године, студијска група Физика језгара. Испите предвиђене планом докторских студија по Статуту Физичког факултета 2006. године положила са просечном оценом 10.00.

Запослена је у ИНН „Винча“ од 01.05.2008. као истраживач приправник у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине. Изабрана је у звање истраживача сарадника 4. марта 2009. године и реизабрана у исто звање 4.07.2012.године. Успешно је завршила Курс за напредне методе гама спектрометрије и грс алфа-бета мерења у трајању од 9 – 13. јуна 2008. године у Институту за медицину рада и радиолошку заштиту "Др Драгомир Карајовић", а у организацији ИАЕА, курс Regional Training Course on Managerial and Technical Requirements for Compliance with the ISO17025 Standard у Веспрему, Мађарска, од 12-16. 11. 2012. у организацији ИАЕА и курс Training workshop on applications of gamma-ray spectrometry to environmental samples for practitioners у Београду, 18-21.11. 2014. у организацији European Commission JRC IRMM Geel, Belgium.

Пројекти:

1. Пројекат 141041G: “Заштита од зрачења – теоријски и експериментални физички аспекти“ 2009-2010.
2. Пројекат III43009: “Напредне технологије за мониторинг и заштиту животне средине од хемијских полутаната и радијационог оптерећења“. 2011-2015.
3. Пројекат III43007: “ Утицај глобалних климатских промена на животну средину“ 2011-2015.
4. Уговор бр.16818 од 10.07.2007.g. и одлука број 14266 од 17.05.2007.g., Мерење радиоактивности у радној и животној средини, ТЕ "Никола Тесла"- TENT-A, TENT-B, ТЕМ.
5. Уговор бр. 17626 од 21.04.2008.g. Мерење радиоактивности у радној и животној средини, ТЕ "Никола Тесла"- TENT-A, TENT-B, ТЕМ.
6. Уговор бр. 18774 од 11.03.2009.g. Мерење радиоактивности у радној и животној средини, у TENT А, TENT В, ТЕК и ТЕМ у 2009.-ој години.
7. Уговор бр. 20726 од 01.07.2010.g. Контрола радиоактивности у ПД ТЕНТ за 2010. годину
8. Контрола радне и животне средине термоелектране **Костолац**, у току 2006.g., 2008.g., 2009.g., Уговор о јавној набавци бр. 237 и уговор бр. 5744 од 03.07.06. заведеног од стране ТЕКО, за 2006.g., Уговор о јавној набавци бр. 093/08 и Уговор бр. 4563 од 19.08.2008. заведеног од стране ТЕКО, за 2008.g., Уговор о јавној набавци бр 878/09 и Уговор бр 7571 од 21.08.2009.g. заведеног од стране ТЕКО, за 2009.g.

9. Систематска контрола Института Винча (контрола радиоактивности узорака из животне средине, редовно прикупљање метеоролошких параметара, свакодневно мерење јачине апсорбоване дозе гама зрачења у приземном слоју атмосфере, обрада резултата).

10. Систематска контрола ЈП НОС у 2012/13 и 2013/14 години.

2. Научно-истраживачка активност

Кандидат msc Јелена Крнета Николић је аутор и коаутор научних радова (из области гама спектрометрије и заштите животне средине), од којих су 2 поглавља у монографији, 13 научних радова у часопису врхунског међународног значаја категорије М-21, 7 радова у истакнутом међународном часопису категорије М-22, 7 радова у међународном часопису категорије М-23, 18 радова сопштених на скупу међународног значаја штампана у целини, категорије М-33, 14 радова сопштених на скупу међународног значаја штампана у изводу, категорије М-34 и 5 радова сопштених на скупу националног значаја штампана у целини, категорије М-63. Радови су цитирани укупно 167 пута без аутоцитата (ISI/Web of science).

Истраживања у области заштите животне средине односе се на: а) гамаспектрометријско одређивање садржаја природних и произведених радионуклида у узорцима из животне средине; б) коришћење виших биљака као биомонитора загађења у урбаним и градским срединама; с) гамаспектрометријско одређивање садржаја природних и произведених радионуклида у узорцима ваздуха и падавина; д) калибрација и контрола квалитета инструмената за гамаспектрометрију и прављење секундарних референтних материјала за калибрацију у различитим геометријама мерења, математичко моделирање ефикасности и анализа метода за добијање калибрационе криве.

Библиографија

Радови који директно следе из дисертације

1. **M₂₁ импакт фактор 1.316** ISSN: 0168-9002

J. Nikolić, T. Vidmar, D. Joković, M. Rajačić, D. Todorović, Calculation of HPGe efficiency for environmental samples: comparison of EFFTRAN and GEANT 4, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Coordinating Editor: W. Barletta; Izdavač: Elsevier; link: <http://www.journals.elsevier.com/nuclear-instruments-and-methods-in-physics-research-section-a-accelerators-spectrometers-detectors-and-associated-equipment>; 763 (2014), 347-353.

2. **M₂₁ импакт фактор 1.488** ISSN: 0952-4746

J. D. Nikolić, D. Joković, D. Todorović and M. Rajačić, Application of GEANT4 simulation on calibration of HPGe detectors for cylindrical environmental samples, Journal of Radiological Protection; Editor: R. Wakeford Visiting Professor, Dalton Institute, Manchester, UK, Izdavač: Institute of Physics Publishing; link: <http://iopscience.iop.org/0952-4746/>, Volume 34, No.2 (2014), N47-N55

3. **M₂₃ импакт фактор 0.981** ISSN: 0144-8420

Nikolic Jelena D, Pantelic Gordana K, Zivanovic Milos Z, Rajacic Milica M, Todorovic Dragana J, Comparison of Two Methods for High Purity Germanium

Detector Efficiency Calibration for Charcoal Canister Radon Measurement
Radiation Protection Dosimetry (2014) 162 (1-2):47-51

4. M₃₃ ISBN 978-86-6125-101-6

Jelena Nikolić, Milica Rajačić, Dragana Todorović, Vidmar Tim, **Estimation of Uncertainty of HPGe Efficiency Calculated by EFFTRAN Using Virtual Point Detector Model**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp. 243-246 ISBN 978-86-6125-101-6 Ed. Goran Ristić

Остали радови

M13

1. D. Popovic, D. Todorovic, M. Anicic, M. Tomasevic, **J. Nikolic** i J. Ajtic: **Trace elements and radionuclides in urban air monitores my moss leaves and tree leaves**, AIR QUALITY, Ed. Ashok Kumar, SCIYO, 2010, Rijeka, Croatia, ISBN 978-953-307-131-2, chapter 6, 117 – 142.

2. D. Popović, D. Todorović, V. Spasic Jokic, J. Nikolić, **Contents of Radionuclides in Soils in Serbia: Dose Calculations and Environmental Risk Assessment**, Advances in Environmental Research. Volume 6, Editors Justin A. Daniels, ISBN: 978-1-61728-163-1, 2012 Nova Science Publishers, pp. 91-134.

M21

1. **J. D. Nikolić**, M. D. Rabasović, D. D. Markushev, “**Buffer-gas influence on multiphoton absorption and dissociation in different gas mixtures**” Optical Materials 30 (2008) 1193-1196

2. M. D. Rabasović, **J. D. Nikolić**, D. D. Markushev, “**Pulsed photoacoustic gas cell design for low pressure studies**” Optical Materials 30 (2008) 1197-12003.

3. M. D. Rabasović, **J. D. Nikolić**, D. D. Markushev, “**Simultaneous determination of the spatial profile of the laser beam and vibrational-to-translational relaxation time by pulsed photoacoustics**” Appl. Phys. B **88**, (2007), 309-315

4. M. D. Rabasović, **J. D. Nikolić**, D. D. Markushev, “**Pulsed photoacoustic system calibration for highly excited molecules: II. Influence of the laser beam profile and the excitation energy decay**” *Meas. Sci. Technol.* **17**, (2006), 2938-2944

5. Pantelic Gordana K, Eremic-Savkovic Maja M, Zivanovic Milos Z, **Nikolic Jelena D**, Rajacic Milica M, Todorovic Dragana J, “**Uncertainty evaluation in radon concentration measurement using charcoal canister**” Applied Radiation and Isotopes, (2014), vol. 87, str. 452-455

6. O. Masson, A. Baeza, J. Bieringer, K. Brudecki, S. Bucci, M. Cappai, F.P. Carvalho, O. Connan, C. Cosma, A. Dalheimer, D. Didier, G. Depuydt, L.E. De Geer, A. De Vismes, L. Gini, F. Groppi, K. Gudnason, R. Gurriaran, D. Hainz, O. Halldorsson, D. Hammond, O. Hanley, K. Holey, Zs. Homoki, A. Ioannidou, K. Isajenko, M. Jankovic, C. Katzlberger, M. Kettunen, R. Kierepko, R. Kontro, P.J.M. Kwakman, M. Lecomte, L. Leon Vintro, A.-P. Leppanen, B. Lind, G. Lujanienne, P. Mc Ginnity, C. Mc Mahon,

H. Mala, S. Manenti, M. Manolopoulou, A. Mattila, A. Mairing, J.W. Mietelski, B. Møller, S.P. Nielsen, **J. Nikolic**, R.M.W. Overwater, S. E. Palsson, C. Papastefanou, I. Penev, M.K. Pham, P.P. Povinec, H. Rameback, M.C. Reis, W. Ringer, A. Rodriguez, P. Rulík, P.R.J. Saey, V. Samsonov, C. Schlosser, G. Sgorbati, B. V. Silobritiene, C. Soderstrom, R. Sogni, L. Solier, M. Sonck, G. Steinhauser, T. Steinkopff, P. Steinmann, S. Stoulos, I. Sykora, D. Todorovic, N. Tooloutalaie, L. Tositti, J. Tschiersch, A. Ugron, E. Vagena, A. Vargas, H. Wershofen, O. Zhukova. **Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks.** *Environ. Sci. & Technol.*, 2011, 45, 7670-7677

7. M. M. Janković, D. J. Todorović, **J. D. Nikolić.** **Analysis of natural radionuclides in coal, slag and ash in coal-fired power plants in Serbia.** *J. Min. Metall. Sect. B-Metall.*, 47 (2) B (2011) 149–155.

8. Todorovic Dragana J, Popovic Dragana L, Ajtic Jelena I, **Nikolic Jelena D, Leaves of higher plants as biomonitors of radionuclides (Cs-137, K-40, Pb-210 and Be-7) in urban air,** *Environmental Science and Pollution Research*, (2013), vol. 20 br. 1, str. 525-532

9. G. K. Pantelić, D. J. Todorović, **J. D. Nikolić**, M. M. Rajačić, M. M. Janković, N. B. Sarap, **Measurement of radioactivity in building materials in Serbia,** *Journal Radioanalytical Nuclear Chemistry*, ISSN: 0236-5731 (print version), ISSN: 1588-2780 (electronic version), Editor-in-Chief: Zsolt Révay, Izdavač: Springer, link: <http://www.springer.com/chemistry/journal/10967>, (2015) DOI 10.1007/s10967-014-3745-2

10. M. M. Rajačić, D. J. Todorović, M. M. Janković, **J. D. Nikolić**, N. B. Sarap, G. K. Pantelić, **⁷Be in atmospheric deposition: determination of seasonal indices;** *Journal Radioanalytical Nuclear Chemistry*, ISSN: 0236-5731 (print version), ISSN: 1588-2780 (electronic version), Editor-in-Chief: Zsolt Révay, Izdavač: Springer, link: <http://www.springer.com/chemistry/journal/10967>, (2015) DOI 10.1007/s10967-014-3733-6

11. N. B. Sarap, M. M. Janković, Ž. K. Dolijanović, D. Đ. Kovačević, M. M. Rajačić, **J. D. Nikolić**, D. J. Todorović; **Soil to plant transfer factor for ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs;** *Journal Radioanalytical Nuclear Chemistry*, ISSN: 0236-5731 (print version), ISSN: 1588-2780 (electronic version), Editor-in-Chief: Zsolt Révay, Izdavač: Springer, link: <http://www.springer.com/chemistry/journal/10967>, (2015)

M22

1. D. Todorović, D. Popović, **J. Nikolić**, J. Ajtić, **Radioactivity monitoring in ground level air in Belgrade urban area,** *Radiation Protection Dosimetry*, 2010, Vol.142, No. 2-4, pp. 308-313

2. Ajtic Jelena I, Todorovic Dragana J, **Nikolic Jelena D,** Djurdjevic Vladimir S, **A Multi-Year Study of Radioactivity in Surface Air and Its Relation to Climate Variables in Belgrade, Serbia,** *NUCLEAR TECHNOLOGY & RADIATION PROTECTION*, (2013), vol. 28 br. 4, str. 381-388

3. Zivanovic Milos Z, **Nikolic Jelena D**, Apostol Andrei I, Anagnostakis Marios J, **Analysis of Interferences from Full Energy Peaks in Gamma Spectrometry of Norm and Tenorm Samples**, NUCLEAR TECHNOLOGY & RADIATION PROTECTION, (2012), vol. 27 br. 4, str. 380-387

4. **Nikolic Jelena D**, Pantelic Gordana K, Todorovic Dragana J, Jankovic Marija M, Eremic-Savkovic Maja, **Monitoring of Aerosol and Fallout Radioactivity in Belgrade After the Fukushima Reactors Accident**, WATER AIR AND SOIL POLLUTION, (2012), vol. 223 br. 8, str. 4823-4829

5. G. Pantelić, M.Eremić Savković, M. Živanović, **J. Nikolić**, M. Rajačić, D. Todorović, **Uncertainty evaluation in radon concentration measurement using charcoal canister**, Applied Radiation and Isotopes, 87 (2014) 425-455

6. Popovic Dragana L, Todorovic Dragana J, Ajtic Jelena I, **Nikolic Jelena D**, **Active Biomonitoring Of Air Radioactivity In Urban Areas**, NUCLEAR TECHNOLOGY & RADIATION PROTECTION, (2009), vol. 24 br. 2, str. 100-103

7. Ajtic Jelena I, Todorovic Dragana J, Filipovic Anka J, **Nikolic Jelena D**, **Ground Level Air Beryllium-7 And Ozone In Belgrade**, NUCLEAR TECHNOLOGY & RADIATION PROTECTION, (2008), vol. 23 br. 2, str. 65-71

M23

1. Jankovic Marija M, Todorovic Dragana J, **Nikolic Jelena D**, Rajacic Milica M, Pantelic Gordana K, Sarap Natasa B, **Temporal concentration changes of beryllium-7 and lead-210 in ground level air in Serbia**, HEMIJSKA INDUSTRIJA, (2014), vol. 68 br. 1, str. 83-88

2. Todorovic Dragana J, Jankovic Marija M, **Nikolic Jelena D**, Kosutic Dusko D, **Radioactivity of mining sites of lead, zinc and phosphate ores in Serbia**, JOURNAL OF ENVIRONMENTAL SCIENCE AND HEALTH PART A-TOXIC/HAZARDOUS SUBSTANCES & ENVIRONMENTAL ENGINEERING, (2012), vol. 47 br. 6, str. 812-817

3. **Nikolic Jelena D**, Rabasovic Mihailo D, Markushev Dragan D, **Limitations of the generalized coupled two-level model during the multiphoton absorption in different gas mixtures**, ACTA PHYSICA POLONICA A, (2007), vol. 112 br. 5, str. 811-816

4. **Nikolic Jelena D**, Rabasovic Mihailo D, Markushev Dragan D, **Calculation of the highly excited SF6 vibrational state distributions and dissociation yields in different gas mixtures**, ACTA PHYSICA POLONICA A, (2007), vol. 112 br. 5, str. 817-822

5. B. Sarap, M. M. Janković, D. J. Todorović, **J. D. Nikolić** and M. S. Kovačević, **Environmental radioactivity in southern Serbia at locations where depleted uranium was used**, Arhiv za higijenu rada i toksikologiju, ISSN 0004-1254 (Print); ISSN 1848-6312 (Online), UDK 613-6, Editor: Nevenka Kopjar, Izdavač :Institute for Medical Research and Occupational Health, Croatia, link: <http://www.degruyter.com/view/j/aiht>; (2014), 65, 189-197

6. **J. D. Krneta Nikolić**, D. J. Todorović, M. M. Janković, G. K. Pantelić and M. M. Rajačić, **Quality assurance and quality control in environmental radioactivity monitoring**, Quality Assurance and Safety of Corps & Foods, ISSN1757-8361, Online ISSN: 1757-837X, Editor: Roland Poms and Stanley Cauvain, Izdavač: Wageningen Academic Publishers, URL: www.wageningenacademic.com/qas; (2014), Vol.6, No.4,403-409.

M33

1.D. D. Markushev, M. D. Rabasović, **J. D. Nikolić**, **Vibrational energy distribution for SF₆ in quasi continuum in SF₆ +N₂ gas mixture** 23rd SPIG, Book of Contributed Papers, Kopaonik, Serbia, (2006) 93-96

2. M. Janković, D. Todorović, **J. Nikolić**, **Contents of natural radionuclides in coal, ash and slag in the Serbian power plants**, The 42th International October Conference on Mining and Metallurgy, 10-13.October 2010, Kladovo, Serbia, Proceedings IQC 2010, 90-93. ISBN 978-86-80987-79-8, 2010.

3. D. Todorović, M. Janković, **J. Nikolić**, D. Košutić, **Radioactivity of ore sites of lead, zinc and Phosphate in Serbia**, 8th Symposium of the Croatia Radiation Protection, Association, with international participation, Krk, Croatia, April 13-15, 2011, Proceedings, 405-410. ISBN 978-953-96133-7-0 CRPA Zagreb

4. M. Janković, D. Todorović, **J. Nikolić**, N. Latinović, **Ispitivanje sadržaja prirodnih radionuklida u keramičkim pločicama**, Četvrti međunarodni kongres "Ekologija, Zdravlje, rad, sport" Banja Luka, Republika Srpska, 08-10.09.2011. Zbornik radova, ISBN 987-99955-619-2-6, 507-512.

5. P. Dragana, D. Todorović, **J. Nikolić**, J. Ajtić, **Natural radionuclides in soils in Serbia: Dose calculations and Environmental risk assessment**, The First International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research, Faculty of electronic engineering, Niš, Serbia, April 25-27, 2012, Proceedings ISBN 978-86-6125-063-7, 301-304.

6. M. Rajačić, **J. Nikolić**, D. Todorović, M. Janković **Comparison of content of naturally occurring radionuclides in imported and pharmaceutical zeolite** The First International conference on radiation and dosimetry in various fields of research Niš Serbia April 25-27.2012. pp. 325-327 ISBN 978-86-6125-063-7

7. M. Janković, D. Todorović, **J. Nikolić**, M. Rajačić, G. Panterlić, N. Sarap **Da li je veći radijacioni rizik po stanovništvo danas ili pre nekoliko hiljada godina** Peti međunarodni kongres "Ekologija, Zdravlje, rad, sport" Banja Luka, Republika Srpska, 06-09.09.2012. Zbornik radova 574-579 ISBN 987-99955-789-3-6

8. M. Janković, D. Todorović, B. Janković, **J. Nikolić**, G. Pantelić, M. Rajačić, **Berillium-7 concentration analysis in ground level air in Serbia**, Physical Chemistry 2012 Proceedings of the 11th International Conference on Fundamental and Applied Aspects of Physical Chemistry Belgrade 2012. 639-641 ISBN 978-86-82475-28-6

9. Jelena Ajtić, Đorđe Stratimirović, Vladimir Đurđević, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić, Wavelet Spectral Analysis of Teleconnection Indices and Activities of Beryllium-7 and Lead-210 in Ground Level Air in Belgrade, Serbia**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp. 53-56 ISBN 978-86-6125-101-6 Ed. Goran Ristić

10. Dimitrije Maletić, Jelena Ajtić, Vladimir Đurđević, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić, Radomir Banjanac, Vladimir Udovičić, Multivariate Analysis of Climate Variables, Teleconnection Indices and Activities of Beryllium-7 and Lead-210 in Surface Level Air in Belgrade, Serbia**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp. 13-16 ISBN 978-86-6125-101-6 Ed. Goran Ristić

11. Marija M. Janković, Dragana J. Todorović, Milica M. Rajačić, **Jelena D. Nikolić, Nataša B. Sarap, Gordana K. Pantelić, Faktor koncentrisanja prirodnih radionuklida iz lja u elektrofilterski pepeo i šljaku**, Šesti međunarodni kongres "Ekologija, Zdravlje, rad, sport" Banja Luka, Republika Srpska, 05-08.09.2013. Zbornik radova pp. 485-490 ISBN 987-99955-789-3-6

12. Gordana K. Pantelić, Dragana J. Todorović, **Jelena D. Nikolić, Maja Eremić Savković, Marija M. Janković, Milica M. Rajačić, Nataša B. Sarap, Ljiljana Javorina, Osiguranje kvaliteta u laboratorijama koje vrše monitoring radioaktivnosti**, Šesti međunarodni kongres "Ekologija, Zdravlje, rad, sport" Banja Luka, Republika Srpska, 05-08.09.2013. Zbornik radova pp. 206-213 ISBN 987-99955-789-3-6

13. Milica M. Rajačić, Nataša B. Sarap, Marija M. Janković, **Jelena D. Nikolić, Dragana J. Todorović, Gordana K. Pantelić, Radioactivity in chemical fertilizers**, 9th Symposium of the Croation Radiation Protection, Association, with international participation, Krk, Croatia, April 10-12, 2013, Proceedings, 405-410. ISBN 978-953-96133-8-7 CRPA Zagreb

14. Nataša B. Sarap, Milica M. Rajačić, Marija M. Janković, Dragana J. Todorović, **Jelena D. Nikolić, Gordana K. Pantelić, Radioactivity in soil samples collected in southern Serbia**, 9th Symposium of the Croation Radiation Protection, Association, with international participation, Krk, Croatia, April 10-12, 2013, Proceedings, 405-410. ISBN 978-953-96133-8-7 CRPA Zagreb

15. Nataša B. Sarap, Dragana J. Todorović, Marija M. Janković, **Jelena D. Nikolić, Milica M. Rajačić, Determination of radionucaesium in blueberries**, Fourth International Scientific Symposium "Agrosym 2013" Jahorina, Oktobar 3-6. 2013. ISBN 978-999555-751-3-7, Izdavač Poljoprivredni Fakultet Istočno Sarajevo

16. **J. Nikolić, M. Rajačić, D. Todorović, V. Tim, Estimation of uncertainty of HPGe efficiency calculated by efranz using virtual point detector model**, The Second International Conference on Radiation and Dosymetry in Various Fields of Research, Proceedings, Izdavač: University of Niš, Faculty of Electronic Engineering, Editor Prof. Dr Goran Ristić, Proceedings, ISBN 978-86-6125-101-6, link: www.rad2014.elfak.rs, 27-30 May, 2014, Niš, Srbija, p. 243-246.

17. I.Vukašinović, D. Todorović, N.Nikolić, **J.Nikolić**, M. Rajačić, M.Janković, **Influence of soil properties on soil –to –plant transfer factors of natural radionuclides in the vicinity of coal fired power plants in Serbia**, The Second International Conference on Radiation and Dosymetry in Various Fields of Research, Proceedings, Izdavač: University of Niš, Faculty of Electronic Engineering, Editor Prof. Dr Goran Ristić, Proceedings, ISBN 978-86-6125-101-6, link: www.rad2014.elfak.rs, 27-30 May, 2014, Niš, Srbija, p.267-270.

M34

1. **J. D. Nikolić**, M. D. Rabasović, D. D. Markushev, **Buffer-gas influence on multiphoton absorption in different gas mixtures: low pressure studies ICOM2006**, Book of Abstracts, Herceg Novi, Montenegro, (2006) 64 ISBN 86-7306-079-6

2. M. D. Rabasović, **J. D. Nikolić**, D.D. Markushev, **Pulsed photoacoustic gas cell design for low pressure studies ICOM2006**, Book of Abstracts, Herceg Novi, Montenegro, (2006) 68 ISBN 86-7306-079-6

3. **J.D. Nikolić**, M.D. Rabasović, D.D. Markushev, **Pulsed photoacoustic system calibration: the role of excitation energy decay**, *Book of Abstracts, 14th International Symposium "Spectroscopy in Theory and Practice"*, April 10-13, 2007, Nova Gorica, Slovenia, O21, 33

4. **J.D. Nikolić**, M.D. Rabasović, D.D. Markushev, **Limitations of the Generalized Coupled Two-Level Model During the Multiphoton Absorption in Different Gas Mixtures**, *ISCOM 2007*, Book of Abstracts, Beograd, Serbia, (2007) 43

5. **J.D. Nikolić**, M.D. Rabasović, D.D. Markushev, **Calculation of the highly excited SF₆ vibrational state distributions and dissociation yields in different gas mixtures**, *ISCOM 2007*, Book of Abstracts, Beograd, Serbia, (2007) 44

6. J. Ajtić, D. Todorović, D. Popović, **J. Nikolić**, **Air Radioactivity Monitoring by Higher Plants**, INSINUME 2012, 6th International Symposium on in situ nuclear metrology as a tool for radioecology, Book of Abstracts, Brussels, Belgium, 11-15 June, 2012, p. 106.

7. D. Todorović, M. Janković, **J. Nikolić**, G. Panterlić, **QA/QC in environmental radioactivity monitoring** INSINUME 2012, 6th International Symposium on in situ nuclear metrology as a tool for radioecology, Book of Abstracts, Brussels, Belgium, 11-15 June, 2012, p. 106.

8. Ivana Vukašinović, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić**, Dragana Popović, Jelena Ajtić, **Contents of radionuclides in soils of urban area (Belgrade city parks)**, 6th Symposium Chemistry and Environmental Protection, Vršac 21-24.05.2013. Book of Abstracts Srpsko Hemijsko Društvo, ISBN 978-86-7132-052-8

9. **Jelena Nikolić**, Milica Rajačić, Dragana Todorović, Vidmar Tim, **Estimation of Uncertainty of HPGe Efficiency Calculated by EFFTRAN Using Virtual Point Detector Model**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.192 ISBN 978-86-6125-100-9

10. Gordana K. Pantelić, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić**, Milica Rajačić, **Testing of homogeneity of material distributed in interlaboratory comparison**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.229 ISBN 978-86-6125-100-9
11. **Jelena Nikolić**, Miloš Živanović, Milica Rajačić, Dragana Todorović, **Comparison of two methods for HPGe detector efficiency calibration for charcoal canister radon measurement**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.252 ISBN 978-86-6125-100-9
12. Ivana Vukašinović, Dragana Todorović, Nataša Nikolić, **Jelena Nikolić**, Milica Rajačić, Marija Janković, **Influence of soil properties on soil-to-plant transfer factors of natural radionuclides in the vicinity of coal fired power plants in Serbia**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.252 ISBN 978-86-6125-100-9
13. Dimitrije Maletić, Jelena Ajtić, Vladimir Đurđević, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić**, Radomir Banjanac, Vladimir Udovičić, **Multivariate Analysis of Climate Variables, Teleconnection Indices and Activities of Beryllium-7 and Lead-210 in Surface Level Air in Belgrade, Serbia**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.252 ISBN 978-86-6125-100-9
14. Jelena Ajtić, Đorđe Stratimirović, Vladimir Đurđević, Dragana Todorović, **Jelena Nikolić**, **Wavelet Spectral Analysis of Teleconnection Indices and Activities of Beryllium-7 and Lead-210 in Ground Level Air in Belgrade, Serbia**, Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research RAD2014, Niš, Serbia May 27-30. 2014. pp.252 ISBN 978-86-6125-100-9

M63

1. D. Todorović, J. Ajtić, D. Popović, **J. Nikolić**, **Radionuklidi u biljkama u urbanim sredinama**, XXV Simpozijum Društva za Zaštitu od Zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova , Kopaonik 2009, 39-42.
2. **J. Nikolić**, D. Todorović, M. Janković, M. Radenković, J.Joksić, **Zemlja-biljka transfer faktor u okolini termoelektrana**, XXV Simpozijum Društva za Zaštitu od Zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova , Kopaonik 2009, 205-207.
3. N. Sarap, M. Janković, D. Todorović, G. Pantelić, **J. Nikolić** i V. Stanić, **Uticaj trasera na ispitivanje sadržaja ⁹⁰Sr u uzorcima rečnih voda i zemljišta**, XXVI Simpozijum društva za zaštitu od Zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova Tara 2011, ISBN 978-86-7306-105-4, 105-108.
4. M. Janković, D. Todorović, B. Janković, **J. Nikolić**, i N. Sarap, **Određivanje simetričnog indeksa za ³H u rečnim vodama**, XXVI Simpozijum društva za zaštitu od

Zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova Tara 2011 ISBN 978-86-7306-105-4, 101-104.

5. **J. Nikolić**, M. Janković, D. Todorović i N. Sarap, **Sadržaj prirodnih radionuklida u uzorcima sa istorijskih lokaliteta u svetu**, XXVI Simpozijum društva za zaštitu od Zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova Tara 2011, ISBN 978-86-7306-105-4, 60-64.

Прилог 1.

Изјава о ауторству

Потписани-а Јелена Крнета Николић _____

број уписа 2007/8007 _____

Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

**Примена аналитичког, експерименталног, полуемпиријског и
Монте Карло метода за
калибрацију ефикасности HPGe детектора у гама спектрометрији
узорака из животне средине**

- резултат сопственог истраживачког рада,
- да предложена дисертација у целини ни у деловима није била предложена за добијање било које дипломе према студијским програмима других високошколских установа,
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио интелектуалну својину других лица.

Потпис докторанда

У Београду, 16. 4. 2015.

Јелена Крнета Николић

Прилог 2.

Изјава о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада

Име и презиме аутора _____ Јелена Крнета Николић _____

Број уписа _____ 2007/8007 _____

Студијски програм _____ Физика језгара и честица _____

Наслов рада

**Примена аналитичког, експерименталног, полуемпиријског и
Монте Карло метода за калибрацију ефикасности HPGe детектора
у гама спектрометрији узорака из животне средине**

Ментор _____ др Јован Пузовић _____

Потписани _____ Јелена Крнета Николић _____

изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла за објављивање на порталу **Дигиталног репозиторијума Универзитета у Београду**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског звања доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Београду.

Потпис докторанда

У Београду, _____ 16. 4. 2015. _____

Јелена Крнета Николић

Прилог 3.

Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Светозар Марковић“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду унесе моју докторску дисертацију под насловом:

**Примена аналитичког, експерименталног, полуемпиријског и
Монте Карло метода за
калибрацију ефикасности HPGe детектора у гама
спектрометрији узорака из животне средине**

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство
2. Ауторство - некомерцијално
3. Ауторство – некомерцијално – без прераде
4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима
5. Ауторство – без прераде
6. Ауторство – делити под истим условима

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци, кратак опис лиценци дат је на полеђини листа).

Потпис докторанда

У Београду, 16. 4. 2015.

Јелена Врњачић-Милошевић

1. Ауторство - Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце, чак и у комерцијалне сврхе. Ово је најслободнија од свих лиценци.

2. Ауторство – некомерцијално. Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела.

3. Ауторство - некомерцијално – без прераде. Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела. У односу на све остале лиценце, овом лиценцом се ограничава највећи обим права коришћења дела.

4. Ауторство - некомерцијално – делити под истим условима. Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада.

5. Ауторство – без прераде. Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела.

6. Ауторство - делити под истим условима. Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада. Слична је софтверским лиценцама, односно лиценцама отвореног кода.

