

ACTA UNIVERSITATIS SZEGEDIENSIS DE ATTILA JÓZSEF NOMINATAE
ACTA IUVENUM
SECTIO SCIENTIAE NATURALIS, SERIES NOVA, TOMUS I.
SZEGED, HUNGARIA, 1987

GAMMA ÉS RÖNTGEN SPEKTRUMOK SZÁMÍTÓGÉPES ELEMZÉSE
HUSZKA JENŐ

BEVEZETÉS

A JATE Radiokémiai Tanszékén elkészült egy berendezés, mely gamma és röntgen spektrumok felvételére alkalmas. A spektrumok értékelése szükségessé tette egy olyan programcsalád kidolgozását, mely lehetővé teszi a spektrumok feldolgozását, ugyanis ezt a feladatot számítógép nélkül elvégezni kilátástalan lenne. A röntgen spektrumok elsősorban elemanalitikai célokat szolgálnak, a gamma spektrumokat pedig különböző nyomjelzési eljárásoknál lehet hasznosítani (pl. radiometrikus titrálások, elválasztások ellenőrzése, különböző izotóphigítási analízisek stb.; mindezeket esetleg 15-20 komponensre egyidejűleg). A spektrumértékelés során tehát pontos mennyiségi adatokat kell kapnunk. A mérendő minták tartalmazhatnak ismert és ismeretlen komponenseket is. Mindezeket figyelembe kellett venni a programcsalád elkészítéskor.

A RÖNTGEN- ÉS GAMMASUGÁRZÁS MÉRÉSE

A radioaktív bomlást gyakran kíséri gamma sugárzás, melynek energiája jellemző a kibocsájtó magra. Az energiatartomány 0,1-0,2 MeV-től 4-6 MeV-ig terjed. A röntgen spektrumok létrehozásához izotópos gerjesztést alkalmaznak. Maga a mérőrendszer a következő: a mintából a foton a detektorba jut, ahol elektromos jelet vált ki. Pillanatnyilag legkorszerűbbek a félvezető detektorok. Gamma sugárzás mérésére germánium, röntgenre szilícium félvezetőt alkalmaznak. Hatékony térfogatukat és ezzel érzékenységüket lítium szennyezéssel növelik meg, ezt driftelésnek

hívják. A detektálás azon alapul, hogy a becsapódó foton a szilárd félvezetőben ionpárt (elektront és töltéshiányt) hoz létre, az energiájának megfelelő mértékben, s ez a töltés eljutva a detektorra kapcsolt elektródokra, elektromos jelet vált ki. A jel az előerősítőn és az erősítőn áthaladva az analóg-digitális konverterbe jut. Itt a jel a nagyságával arányos csatornacímmé lesz, s a sokcsatornás analizátor ezen csatornájának tartalma eggyel megnő. Az analizátor 4096 csatornás, így egy adott energiatarományt ennyi részre tud bontani. Azaz minden csatornának megfelel egy kis energia-intervallum. Nagyobb analizátor finomabb felbontásra képes. Az analizátor csatornatartalmait kirajzolva rendre az egyes csatornaindexek függvényében kapjuk a spektrumot. (Azt, hogy az egyes csatornák illetve a 4096 csatorna mekkora energiaintervallumot fog át, az erősítéssel lehet változtatni.) A spektrum ún. fotocsúcsokat tartalmaz, melyek GAUSS-görbék. A sokcsatornás analizátorból az adatokat a mérés végeztével kismámítógép segítségével mágnesszalagos kazettára lehet átíratni. Erről a kazettáról a spektrum az R-55-ös számítógépre továbbítható, ahol az elemző programokkal feldolgozatható. Egy tipikus gamma spektrum látható az 1. ábrán.

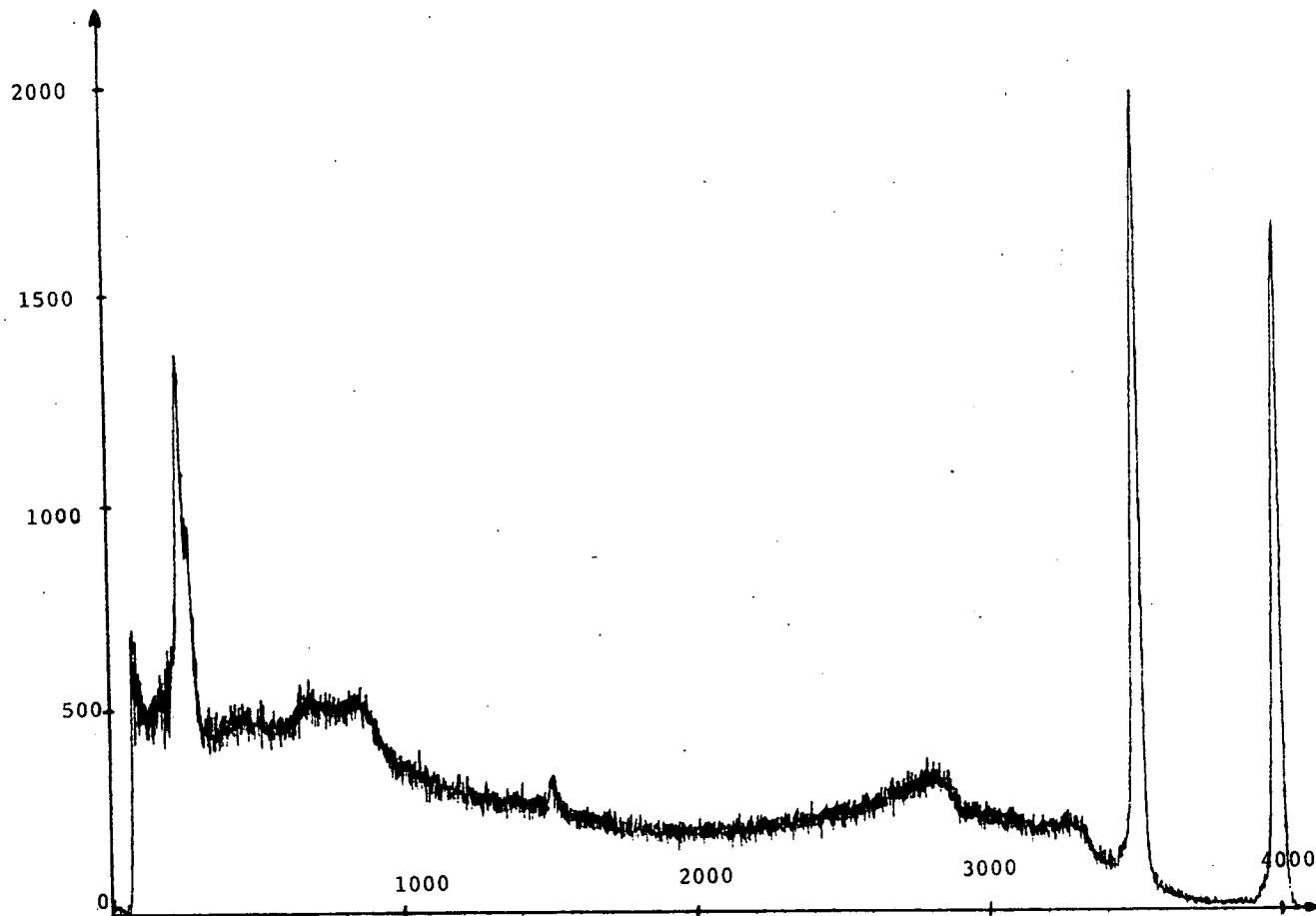
A SPEKTRUMOK LEÍRÁSÁRA ALKALMAS MATEMATIKAI APPARÁTUS

Az önálló kiértékelő számítógépi programok általában komoly matematikai apparátust használnak. A következőkben leírjuk, hogy milyen eljárásokat szokás alkalmazni.

A simítás

A mért spektrumok a fotocsúcsok mellett több-kevesebb statisztikai ingadozást tartalmaznak. Létezik olyan eljárás, amely elég nagy biztonsággal ki tudja szűrni ezeket az ingadozásokat. Ez a simítás, amely különböző, súlyozott átlagokkal dolgozik. A csatornatartalmakat a környezetükből vett átlagokkal helyettesítjük. Az általános képlet:

$$y_i^* = \frac{\sum_{j=i-k}^{i+k} C_j y_j}{n}$$



1. *abra*

ahol y_j = simítatlan csatornatartalom
 C_j = súlyfaktor
 y_i^* = simított érték az i -edik csatornában
 n = normalizáló faktor, a C_j értékek algebrai összege
 i = csatornaszám
 k = a simításban résztvevő csatornák száma.

Egy, a gyakorlatban jól bevált formula:

$$y_i^* = \frac{1}{35} (-3(y_{i-1} + y_{i+2}) + 12(y_{i-1} + y_{i+1}) + 17(y_i))$$

A simítóformulák elemzése [1]-ben és [2]-ben található. A simított értéket kiszámítva az összes csatornára, megkapjuk a simított spektrumot. Az eljárás többször ismételhető.

Csúcskeresés, intervallum kijelölés

Egy teljesen ismeretlen spektrum elemzéséhez szükség van egy olyan eljárásra, amely lehetőleg minél kevesebb előzetes információ alapján el tudja dönteni egy jelről, hogy az szignifikáns, avagy sem. Azaz megadja, legalábbis hozzávetőlegesen, a spektrumban található csúcsok helyét. Egy ilyen módszer, az általánosított második deriváltak módszer [3], [4]. Mivel a sokcsatornás analizátor működésének velejárója, hogy a spektrumok diszkrét adatokként állnak rendelkezésre, a deriváltak előállítása csatornatartalom különbségekkel elvégezhető. A második derivált ilymódon:

$$dd_i = -n_{i-1} + 2n_i - n_{i+1} = \sum_{j=-1}^1 C_j^0 n_{i+j}$$

ahol n_i = az i -edik csatorna tartalma

C_j^0 = értékei rendre -1; 2; -1

A helyi fluktuációk miatt a derivált számítására általánosabb képletet alkalmazunk:

$$dd_i = \sum_{j=-k}^k C_j^n n_{i+j}$$

Ezt hívják általánosított második deriváltak. Ennek standard deviációja:

$$sd_i = \left(\sum_{j=-k}^k C_j^2 n_i^{+j} \right)^{1/2}$$

A C_j értékek a következő módon számíthatók:

$$C_j = [(p^2 - j^2) / p^4] \exp(-\frac{1}{2} j^2 / p^2)$$

ahol $j=0; \pm 1; \pm 2 \dots \pm k$

p =félértékszélesség/2,355

k értékét úgy kapjuk meg, hogy meghatározzuk $C_{j=0}$ értékét, majd kiszámítjuk a C_j értékeket; ezt addig ismételjük, amíg $C_{k+1} < 0,01 C_0$ be nem következik. Láthatjuk, hogy mindeddig csak a félérték szélességet (fwhm) használtuk fel, mint külső paramétert. A csúskeresés algoritmusá ezek után a következő: minden csatornára kiszámítjuk dd_i és sd_i értékét, majd képezzük ezek hányadosát:

$$\frac{dd_i}{sd_i} = ss_i$$

Ahol az ss_i meghalad egy előre megadott küszöbértéket, csúcsot tételezünk fel, ss_i értéke zérustól elvileg csak szignifikáns jel esetén tér el (2. ábra). A csúcsokat ílymódon megtalálva, intervallumot kell kijelölnünk köréjük az illesztéshez. Ugyanis a csúcshelyet pontosítani, illetve a többi csúcsparamétert meghatározni az illesztés fogja. Ennek az intervallumnak lehetőség szerint minél nagyobbak kell lennie, mert annál több pontot tartalmaz, s annál pontosabb eredményt várhatunk. Viszont csak a csúcspontjait szabad tartalmaznia. Az eljárás a következő: kijelölnünk a csúcs környezetében a szélessége háromszorosának megfelelő intervallumot, majd ezt bővítjük tovább. Ha a szórás a többi csatornában (a képelt háttérhez képest, melyet az eddigi intervallum talppontjai képviselnek) kisebb, mint a csúcs pontjai szórásának 3-szorosa, az intervallumot kiterjesztjük ezekre a pontokra is. így még max. $2 \times$ fwhm-et nyújthatunk az intervallumon [4].

Az illesztés

A spektrumértékelés leglényegesebb része az illesztés. En-

nek során kerül sor a csúcsok pontos helyének megállapítására, a többszörösen összetett csúcsok szétválasztására, a csúcsparaméterek: amplitúdó, csúcshélesség, csúcsterület számítására, s mindezen paraméterek hibájának megállapítására.

A háttér exponenciális függvénnyel írjuk le:

$$f(k, k_0, p) = \exp(p_1 + p_2(k - k_0) + p_3(k - k_0)^2 + p_4(k - k_0)^3)$$

ahol p = paramétervektor

k_0 = az intervallum kezdő csatornája

k = futó csatornaszám, a tulajdonképpeni független változó

f = a k -edik csatornatartalom háttér része

Routti és Prussin [4] méréseik során szignifikáns eltérést találtak a GAUSS függvényről. Ez az ún. fark (tail), mely a csúcsok bal oldalán, azaz a kisebb energia felől található első sorban (3. ábra). Oka a detektorban keresendő. Általában szennyződés, nem kompenzált töltéskészlet okozza. Csak nagy pontosságú méréseknél okoz zavart, de az illető függvényt érdemes kiegészíteni egy további paraméterrel, mely ezt az eltérést figyelembe veszi. A függvény, melyet a spektrum előző módon kijelölt tartományaira illesztünk, a következő:

$$F(k, k_0, p_a, p_1, p_s, p_t, p_b) = \exp(p_{b1} + p_{b2}(k - k_0) + p_{b3}(k - k_0)^2 + p_{b4}(k - k_0)^3) +$$

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^m p_{a_i} \cdot \exp(-0,5((k - p_{b_i}) / p_{s_i})^2) & \text{ha } \frac{k - p_{1_i}}{p_{s_i}} \geq p_t \\ \sum_{i=1}^m p_{a_i} \cdot \exp(p_t (p_t / 2 + (k - p_{1_i}) / p_{s_i})) & \text{ha } \frac{k - p_{1_i}}{p_{s_i}} < p_t \end{cases}$$

ahol p_{a_i} = az i -edik csúcs amplitúdója

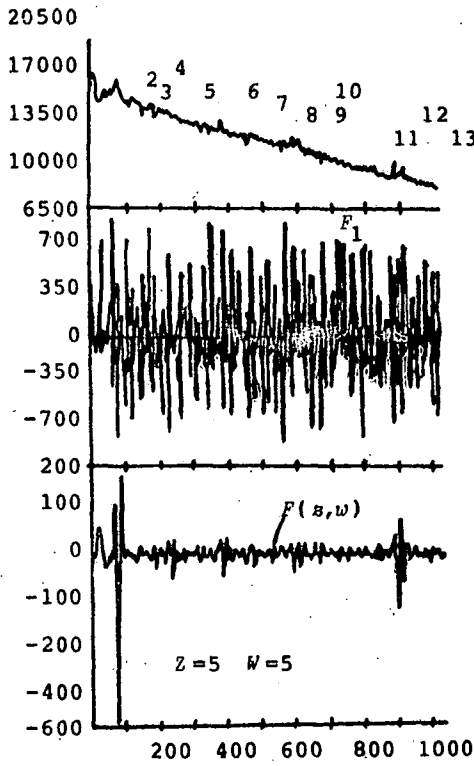
p_{1_i} = az i -edik csúcs helye

p_{s_i} = az i -edik csúcs szórása

p_{t_i} = fark paraméter

p_b = háttér paraméter vektor

m = az illesztési tartományban lévő csúcsok száma

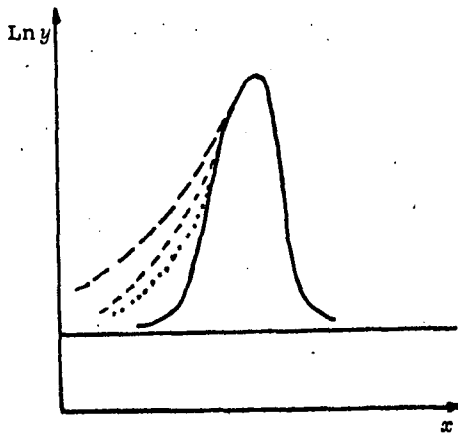


eredeti spektrum

második derivált és
standard deviációja

általánosított
második derivált és
standard deviációja

2. ábra



3. ábra

k_0 = az illesztési tartományt kezdő csatorna
 k = futó csatorna szám

A függvény első rész a háttérrel, a további tagok az egyes csúcsokat írják le.

A kétféle tag a farok figyelembevételével tér el egymástól. Az adatelőkészítés során kezdőértékeket kell generálni az illesztéshez. Ugyanis az illesztendő függvény szemmel láthatóan nem lineáris a paraméterekben, így az illesztés csak iterációs úton lehetséges. A kezdőértékeket különböző lineáris közelítések alapján képezzük. A konkrét illesztési eljárás a LEVENBERG-MARQUARD által módosított GAUSS-NEWTON módszer. Az illesztett paraméterek hibáját az utolsó iterációban kapott inverz HESS-mátrix diagonális elemeinek négyzetgyökei adják.

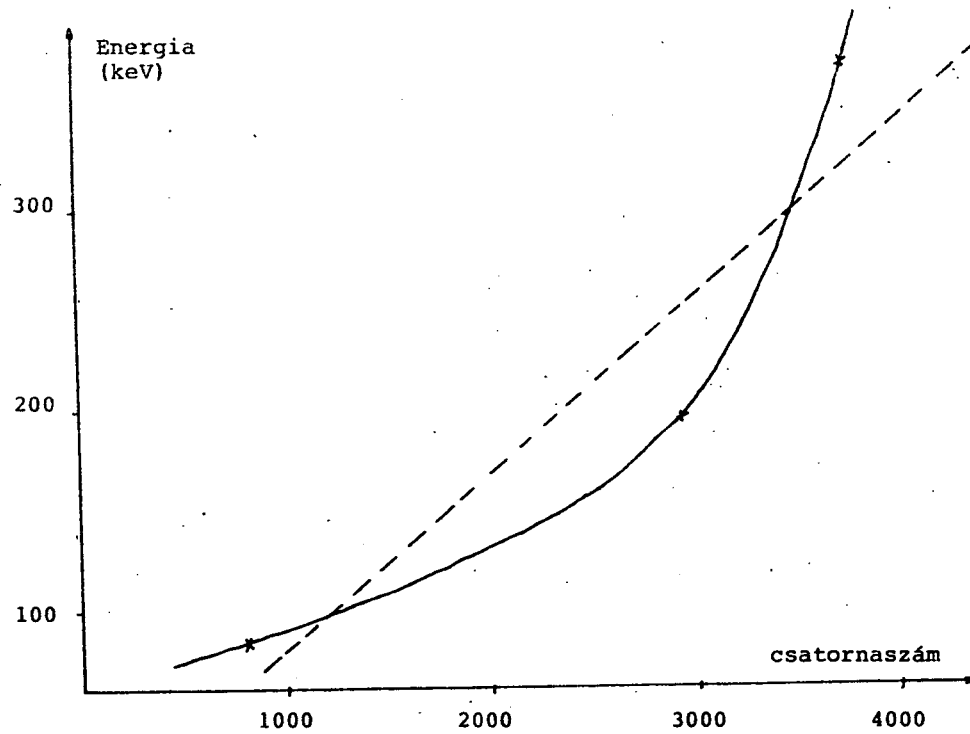
A MÉRT SPEKTRUMOK SPECIÁLIS TULAJDONSÁGAI

Az energia hitelesítés

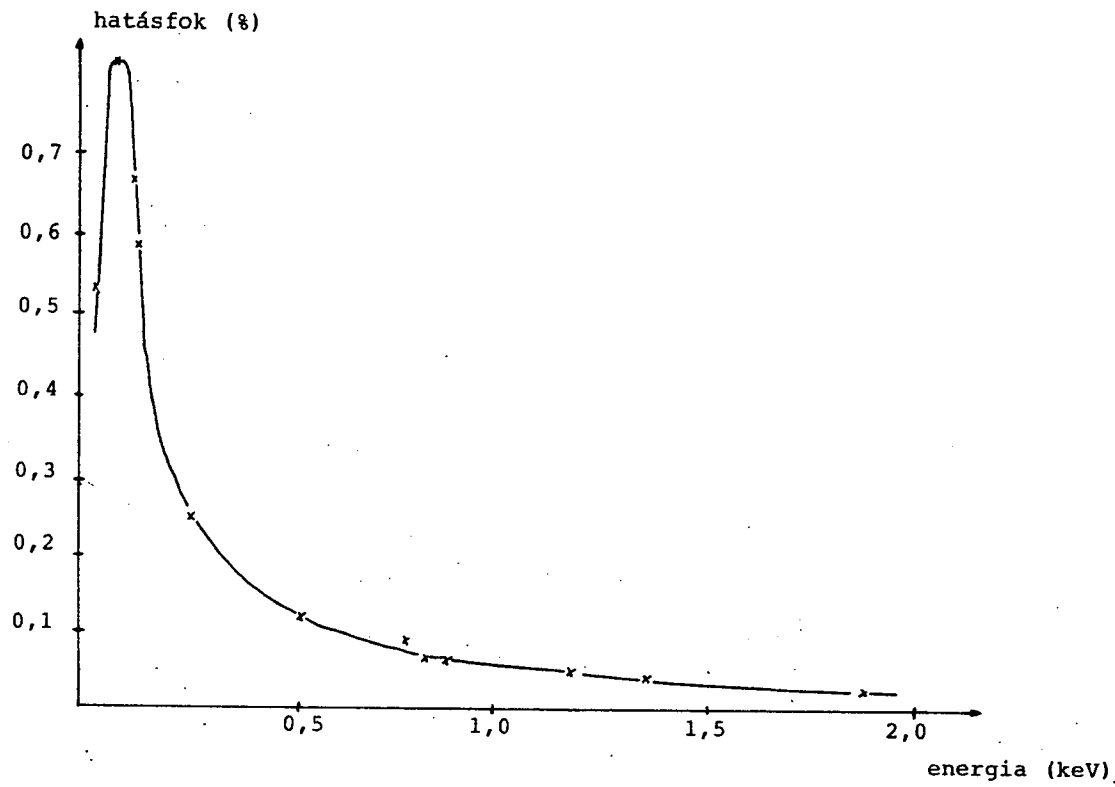
A Ge(Li)-detektorok energia-csatornaszám összefüggése nem lineáris. Ehhez járul még az elektromos rendszer okozta eltérés is (4. ábra). Így ha az egész spektrumra egzakt energiaértékekre van szükségünk, energiahitelesítést kell végeznünk. Mivel az eltérés nem nagy, polinomokkal való közelítés megfelelő. Ismert energiájú csúcsok segítségével energia-csatornaszám értékpárokat állapítunk meg, ezekre polinomot illesztünk. Erre alkalmas a DEMING [5] által leírt optimális fokszámú polinom módszer melynek lényege a következő: speciálisan súlyozott pontokkal végzi az illesztést, a fokszámot 2-től 4-ig változtatja, közben megőrzi azt a fokszámot, amelyre az $S^{*2} = S / (m-n)$ empirikus szórásnégyzet érték az eddig optimálisnak elfogadott fokszámhoz tartozó S^{*2} érték 95 %-ánál kisebb. A tényleges hitelesítést ezzel a fokszámmal végezzük.

Hatásfok korrekció

A Ge(Li)-detektorok hatásfoka sajátosan függ a foton energiájától (5. ábra). A számba jöhető mérési tartományban az összefüggés leírható a következő formulával [6]:



4. ábra



5. ábra. Energia-hatásfok diagram Ge-Li detektorra

$$E = \exp(a_0 + a_1 \ln x + a_2 \ln^2 x) \text{ ha } x \leq E_B$$

és

$$E = \exp(b_0 + b_1 \ln x + b_2 \ln^2 x) \text{ ha } x \geq E_B$$

ahol E =hatásfok

a, b =paramétervektor

x =energia

E_B =energiahatár

Amennyiben a spektrumanalízis során abszolút aktivitást akarunk mérni, előbb meg kell állapítani a hatásfok függvény paramétereit. Ismert energiájú és abszolút aktivitású izotópok birtokában ez viszonylag egyszerű, mert az egyenletet logaritmizálva az a paraméterekben lineárisává válik, s így az illesztés a lineáris legkisebb négyzetek módszerével elvégezhető. Az ílymódon megkapott függvénnyel az adott energiájú csúcsokra hatásfok számítható.

A spektrumfelépítő eljárás

Amennyiben tudjuk, hogy milyen komponensekből áll a spektrum, s csak a mennyiségi viszonyokra vagyunk kíváncsiak, akkor az eljárás leegyszerűsödik a következőképpen: a számba jöhető komponensek spektrumait felvesszük, elhelyezzük egy spektrumkönyvtárban, s a mért spektrumot megkíséreljük azokból felépíteni. A megadott tiszta komponensek energiáiból és a mért spektrum energiahitelesítésére szolgáló pontjaiból az eltolódást, a csatornatartalmakból pedig - a LLNM-nek felhasználásával a mennyiségi viszonyokat állapíthatjuk meg.

SZÁMÍTÓGÉPI PROGRAMOK

A feladatok megoldására készült egy elemző, s ennek kiszolgálásához több kisebb program. A nagy program lényegében az előbb leírt matematikai eljárásokat valósítja meg. Négyféle futásmódja létezik: ismert-ismeretlen, gamma-röntgen. Külön program számítja a hatásfok függvény paramétereit. Létezik még két rajzoló program, melyek sornyomtatón illetve számítógépi plotteren rajzolják ki a spektrumokat, megkönnyítve a feldolgozást.

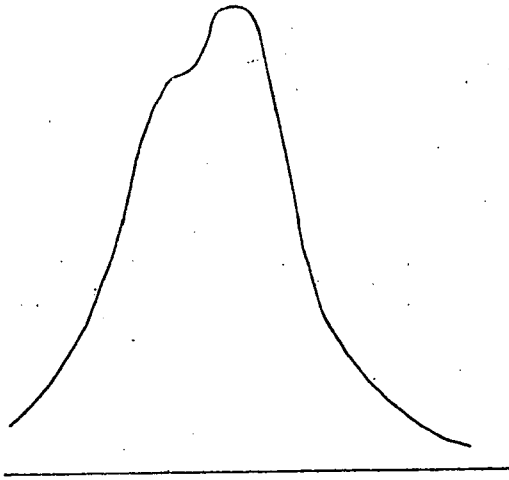
A programok tartalmaznak saját fejlesztésű és könyvtári részeket is. Tesztelésüket a Radiokémiai Tanszéken rendelkezésre álló spektrumokkal végeztem. Az elemzések során a következő tapasztalatok gyűltek össze.

Tapasztalatok a futtatással kapcsolatban

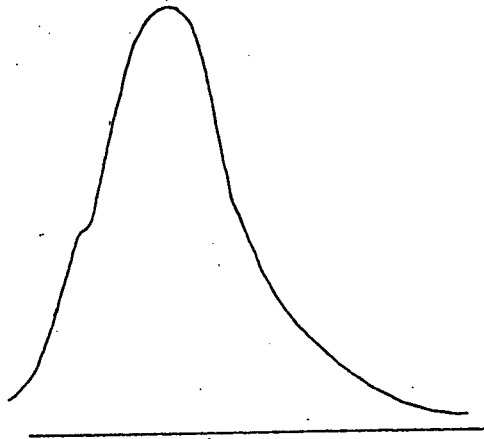
Egyszeri simítás általában javít a spektrumon. Eltűnteti az egyenetlenségeket. Többször alkalmazva a nagyon egyenetlen spektrumokat is kisimítja. De tíz fölötti simításnál szemmel látható torzulások lépnek fel. A csúcskeresés szignifikancia szintje az az érték, amely tulajdonképpen meghatározza, hogy mit talál csúcsnak a program, s mit nem. Fizikai értelme zérustól legfeljebb 60-70-ig van. Érdekes módon a lényeges csúcsok megtalálása alig függ ettől az értéktől. Tehát ezeket megtalálja az eljárás már 3-5-nél, de még 9-10-nél is. Az 5-ös érték az esetek 90 %-ában megfelelő, s viszonylag objektív értékelést tesz lehetővé. Szintén a csúcskeresés eljáráshoz szükséges a priori paraméter a várható félérték szélesség. Azonban ez is hordozhat 20-30 %-os hibát anélkül, hogy a csúcskeresés ennek kárát látná. Az eljárás csak az egészen nyilvánvaló esetekben állapítja meg azt, hogy a csúcs összetett. Ezt sokszor a felhasználónak kell előre valószínűsíteni. Az eljárás a 6. ábrán lévő csúcs kettősségét felfedezte, a 7. ábra csúcsát a csúcskeresés nem tudta szétbontani.

Az illesztő eljárás csak a jellegzetesen GAUSS típusú függvényekre konvergál. Például az erősítőtől származó, nem GAUSS típusú, de az összes csúcsnál nagyobb (8. ábrán n -al megkülönböztetett) jelet a kereső csúcsnak nézi ugyan, de az illesztő eljárás a 20. sikertelen iteráció után törli a csúcsok sorából.

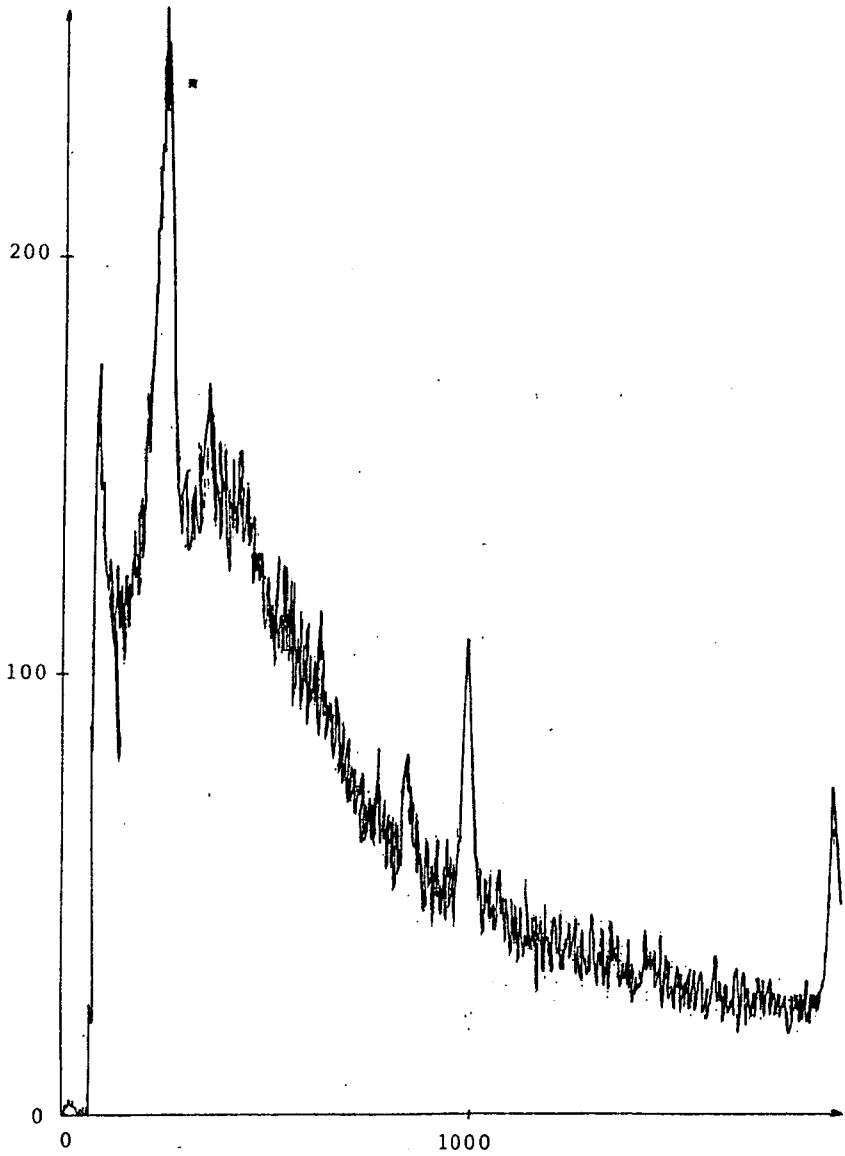
Ezek a programok bár sok specifikumot tartalmaznak, egyes részei mégis jól felhasználhatók lehetnek más, nagyméretű mérési eredmények értékelésében.



6. ábra



7. ábra



8. ábra

IRODALOM

- [1] E. Whittaker, G. Robinson, *The Calculus of Observations*, Blackie, London, 1949.
- [2] F. Nagy, *Mérési eredmények kiértékelése*, ELTE TTK Kém. Kim. Lab., Budapest, 1982.
- [3] M. A. Mariscotti, *Nucl. Instr.*, 50, 1967.
- [4] J. T. Routti, S. B. Prussin, Photopeak Method for the Computer Analysis of Gamma-ray Spectra from Semiconductor Detectors, *Nucl. Instr.*, 72, 1969.
- [5] W. E. Deming, *Statistical Adjustment of Data*. Wiley, New York, 1943.
- [6] W. R. Kane, M. A. Mariscotti, *Nucl. Instr.*, 56, 1967.

Huszka Jenő
tudományos munkatárs
Szeged, Budapesti út 4., 6728
TAURUSZ Gumigyár