

ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE  
FAKULTA JADERNÁ A FYZIKÁLNĚ INŽENÝRSKÁ



DISERTAČNÍ PRÁCE

**Využití polovodičové spektrometrie beta  
ke stanovení radionuklidové čistoty  
zdrojů záření beta**

Praha 2021

Ing. Pavel Novotný



# Bibliografický záznam

Autor: Ing. Pavel Novotný  
České vysoké učení technické v Praze  
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská  
Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření

Název práce: Využití polovodičové spektrometrie beta ke stanovení radionuklidové čistoty zdrojů záření beta

Studijní program: Aplikace přírodních věd

Studijní obor: Jaderné inženýrství

Školitel: doc. Ing. Jaroslav Klusoň, CSc.  
České vysoké učení technické v Praze  
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská  
Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření

Školitel specialista: RNDr. Pavel Dryák, CSc.  
Český metrologický institut  
Oddělení primární metrologie veličin ionizujícího záření

Akademický rok: 2020/2021

Počet stran: 84 + 14 (přílohy)

Klíčová slova: beta spektrometrie, Si(Li) detektor, Monte Carlo, radionuklidová čistota



# Bibliographic Entry

Author: Ing. Pavel Novotný  
Czech Technical University in Prague  
Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering  
Department of Dosimetry and Application of Ionizing Radiation

Title of Dissertation: Application of Beta Semiconductor Spectrometry for Radionuclide Purity Determination of Beta Emitters

Degree Programme: Applications of Natural Sciences

Field of Study: Nuclear Engineering

Supervisor: doc. Ing. Jaroslav Klusoň, CSc.  
Czech Technical University in Prague  
Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering  
Department of Dosimetry and Application of Ionizing Radiation

Supervisor specialist: RNDr. Pavel Dryák, CSc.  
Czech Metrology Institute  
Department of Primary Metrology of Ionizing Radiation

Academic Year: 2020/2021

Number of Pages: 84 + 14 (appendices)

Keywords: beta spectrometry, Si(Li) detector, Monte Carlo, radionuclide purity



## Poděkování

Rád bych vyjádřil poděkování svému školiteli doc. Ing. Jaroslavu Klusoňovi, CSc. za vedení mé disertační práce a ochotu v průběhu celého doktorského studia. Rovněž bych chtěl poděkovat RNDr. Pavlu Dryákovi, CSc. za pomoc při osvojování metod měření beta spekter.

Výzkum provedený v rámci řešení této disertační práce byl podpořen projektem 15SIB10 MetroBeta (Radionuclide beta spectra metrology) Evropského metrologického programu pro inovace a výzkum (EMPIR).

## Prohlášení

Prohlašuji, že jsem disertační práci na téma „*Využití polovodičové spektrometrie beta ke stanovení radionuklidové čistoty zdrojů záření beta*“ vypracoval samostatně pod vedením školitele a uvedl jsem veškerou použitou literaturu.

V Praze dne 17. února 2021

Ing. Pavel Novotný





# Abstrakt

Disertační práce se zabývá spektrometrií záření beta pomocí křemíkových polovodičových detektorů a její aplikací pro rozvoj metrologie beta radionuklidů. Hlavním přínosem realizovaného výzkumu je návrh a ověření metodiky pro kvalitativní i kvantitativní stanovení radionuklidových příměsí ve vzorcích tvořených čistými zdroji záření beta. Tento druh analýzy nachází uplatnění zejména při hodnocení radionuklidové čistoty radiofarmak, může však být upotřeben i při kontrole vlastností radioaktivních látek užívaných pro jiné účely (například výrobu kalibračních standardů). Navržený postup je založen na srovnání naměřených beta spekter s odezvami detektoru příslušejícím jednotlivým radionuklidům. Ty jsou získány Monte Carlo výpočtem provedeným v geometrii odpovídající přesnému popisu měřicí sestavy. Součástí prezentované experimentální činnosti tedy je i charakterizace Si(Li) detektoru, sestavení modelu pro simulaci v prostředí MCNP a jeho validace na základě měření radionuklidových standardů. V neposlední řadě je pozornost věnována problematice vlastností vzorků připravených odpařovací metodou, neboť ty zásadním způsobem ovlivňují opakovatelnost prováděných měření a limitují tak využití analýzy beta spekter pro zamýšlené účely.

# Abstract

The PhD thesis deals with beta radiation spectrometry using silicon semiconductor detectors and its application for beta radionuclide metrology development. The main contribution of the research performed is the proposal and verification of a technique for both qualitative and quantitative determination of radionuclide impurities in mixtures of pure beta-emitting nuclides. This type of analysis is mainly applicable to the radionuclide purity assessment of radiopharmaceuticals. However, it can also be used in the control of the properties of radioactive substances utilized for other purposes (e.g. calibration standards production). The proposed method is based on the comparison of measured beta spectra with the detector responses to individual radionuclides. These are obtained using a Monte Carlo calculation performed in the geometry corresponding to the measuring assembly exact description. Therefore, the characterization of a Si(Li) detector is a part of the experimental work presented in the thesis. This task also includes the development of a model for simulation in the MCNP software package and its validation based on the measurement of radionuclide standards. Finally, attention is paid to the properties of the samples prepared by the evaporation method as they have a major influence on the measurement repeatability, and thus limit the use of beta spectra analysis for the purposes intended.



# Obsah

Seznam zkratk	13
Úvod	15
<b>1 Základy beta spektrometrie</b>	<b>17</b>
1.1 Fyzika beta přeměny . . . . .	17
1.1.1 Klasifikace přechodů – výběrová pravidla . . . . .	17
1.1.2 Fermiho teorie beta přeměny . . . . .	19
1.1.3 Aplikace Fermiho teorie při analýze spekter . . . . .	22
1.2 Interakce elektronů s látkou . . . . .	24
1.2.1 Lineární brzdná schopnost . . . . .	24
1.2.2 Dosah . . . . .	25
1.3 Spektrometrie záření beta – polovodičové detektory . . . . .	26
1.3.1 Pásová struktura pevných látek . . . . .	26
1.3.2 Nositelé náboje v polovodičích . . . . .	28
1.3.3 Vlastní a nevlastní polovodiče . . . . .	31
1.3.4 Materiály pro polovodičové detektory . . . . .	33
1.3.5 Princip polovodičových detektorů ionizujícího záření . . . . .	34
1.4 Spektrometrie záření beta – další metody . . . . .	38
1.4.1 Magnetické spektrometry . . . . .	38
1.4.2 Scintilační detektory . . . . .	40
1.4.3 Magnetické mikrokalorimetry . . . . .	40
1.5 Zpracování signálu z detektoru . . . . .	41
1.5.1 Předzesilovač . . . . .	41
1.5.2 Zesilovač . . . . .	43
1.5.3 Mnohokanálový analyzátor . . . . .	44
<b>2 Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru</b>	<b>47</b>
2.1 Charakterizace Si(Li) detektoru . . . . .	47
2.1.1 Vlastnosti a parametry měřicího zařízení . . . . .	47
2.1.2 Monte Carlo model a jeho validace . . . . .	50
2.1.3 Diskuse výsledků . . . . .	53
2.2 Polovodičová beta spektrometrie . . . . .	53
2.2.1 Úprava Monte Carlo modelu pro výpočet beta spekter . . . . .	55
2.2.2 Beta spektra vybraných radionuklidů . . . . .	56
2.2.3 Diskuse výsledků . . . . .	61
2.3 Možnosti zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu . . . . .	64
2.3.1 XRF analýza vzorků pro beta spektrometrii . . . . .	64
2.3.2 Úprava definice zdrojového členu v simulaci . . . . .	66
2.3.3 Diskuse výsledků . . . . .	68
2.4 Stanovení příměsí na základě beta spekter . . . . .	69
2.4.1 Metoda dvou oken . . . . .	70
2.4.2 Metoda odečítání spekter . . . . .	71
2.4.3 Diskuse výsledků . . . . .	74
Závěr	75
Seznam použité literatury	77

Obsah

<b>Seznam obrázků</b>	<b>83</b>
<b>A Úprava podložek při výrobě vzorků pro beta spektrometrii</b>	<b>85</b>
<b>B Publikační činnost vztahující se k tématu disertační práce</b>	<b>87</b>

# Seznam zkratek

ADC	Analog to Digital Converter (analogově-digitální převodník)
BLR	BaseLine Restorer (obnovovač základní hladiny)
CAMAC	Computer Automated Measurement and Control (standard jaderné elektroniky)
ČMI	Český metrologický institut
DDEP	Decay Data Evaluation Project (projekt vyhodnocování jaderných dat)
EMPIR	European Metrology Programme for Innovation and Research (Evropský metrologický program pro inovace a výzkum)
FWHM	Full Width at Half Maximum (plná šířka v polovině maxima)
HEROICA	Hades Experimental Research Of Intrinsic Crystal Appliances (experimentální zařízení)
HPGe	High Purity Germanium (vysoce čisté germanium)
KDAIZ	Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření
MC	Monte Carlo
MCNP[X]	Monte Carlo N-Particle [eXtended] (výpočetní kód)
NIM	Nuclear Instrumentation Module (standard jaderné elektroniky)
PIXE	Particle-Induced X-ray Emmission (částicemi vybuzená emise rentgenového záření)
PUR	Pile-Up Rejector (obvod potlačující vliv nakupení pulzů)
PZC	Pole-Zero Cancellation (kompenzace pólu nulou)
Si(Li)	křemík driftovaný lithiem
SQUID	Superconducting QUantum Interference Device (supravodivé kvantové interferenční zařízení)
USB	Universal Serial Bus (univerzální sériová sběrnice)
VME	Versa Module Europe (standard jaderné elektroniky)
WHO	World Health Organization (Světová zdravotnická organizace)
XRF	X-Ray Fluorescence (rentgenová fluorescence)



# Úvod

Radioaktivní látky podstupující přeměnu beta jsou běžně využívanými zdroji ionizujícího záření v různých aplikacích. Jedná se například o měření tloušťky tenkých vrstev, jako jsou textilie, kovové a syntetické folie či povlakové vrstvy, pomocí průchodu nebo rozptylu svazku elektronů [1, s. 234].

Další aplikací ionizujícího záření, ve které jsou hojně používány zdroje emitující záření beta, je nukleární medicína. S ohledem na charakter interakce lehkých nabitých částic s hmotou slouží beta radionuklidy při terapeutických procedurách. Nejčastějším nuklidem pro tyto účely je  $^{131}\text{I}$ , dále jsou též užívány  $^{32}\text{P}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{99}\text{Mo}$  a  $^{90}\text{Y}$  [2, s. 2]. *Radionuklidová čistota*<sup>1</sup> je jedním z přirozených požadavků kladených na výrobu radiofarmak. Důvodem je především zamezení nadbytečnému ozáření pacienta, dále pak dosažení vyšší kvality při zobrazování a snížení nejistot při měření in-vivo [3, s. 21]. Konkrétní nároky na jednotlivé preparáty jsou uvedeny v národních a mezinárodních lékopisech. Příkladem budiž požadavky stanovené Mezinárodním lékopisem vydávaným Světovou zdravotnickou organizací (WHO) [4]. V případě  $^{32}\text{P}$  musí být radionuklidová čistota lepší než 95 %. U  $^{90}\text{Y}$  je požadována 99% čistota a obsah  $^{90}\text{Sr}$  musí být pod  $10^{-3}$  %. Odtud je patrné, že medicínské uplatnění beta radionuklidů je spojeno s určitými nároky na měření dozimetrických veličin. Současné možnosti jejich určení však ne zcela odpovídají kladeným požadavkům. Zvýšení přesnosti tudíž vyžaduje jak lepší znalost jednotlivých energetických spekter, tak i rozvoj měřicí techniky a metod.

K přeměně beta ve velké míře též dochází v jaderném reaktoru, jelikož produkty vzniklé při štěpení jsou bohaté na neutrony. Zdokonalení poznání procesu přeměny by tak mohlo být uplatněno při výpočtech zbytkového tepla reaktoru [5] nebo při jeho monitorování [6]. Navrhované zařízení by s využitím hodnot o toku antineutrin umožnilo externě a online sledovat výkon reaktoru. Jelikož energetické spektrum antineutrin je závislé na izotopickém složení, též by bylo možné získání časového průběhu změn v jaderném palivu, díky čemuž by šlo zaznamenat kupříkladu neoprávněnou manipulaci se štěpnými materiály, jako je plutonium. Budoucí využití uvedené metody se neobejde bez přesnějších spekter antineutrin, což je přímo spojeno i s rozvojem popisu jednotlivých beta spekter.

Vedle problémů praktických aplikací nastíněných výše vyvstává potřeba přesnější beta spektrometrie i při řešení otázek fundamentálních. Jde například o stanovení hmotnosti neutrina [7]. Dále též o absolutní měření aktivity pomocí hojně využívané metody kapalných scintilátorů. Jejich detekční účinnost je ovlivněna tvarem příslušného beta spektra, a jak ukázaly studie věnující se standardizaci nuklidů  $^{63}\text{Ni}$  [8] a  $^{60}\text{Co}$  [9], volba správného je kruciólní.

Výzkum v oblasti metrologie beta radionuklidů byl v letech 2016 až 2019 na úrovni národních metrologických institucí řešen v projektu MetroBeta [10], který byl vyhlášen v rámci Evropského metrologického programu pro inovace a výzkum (EMPIR). Jeho teoretická část byla věnována analytickým výpočtům beta spekter. Získané poznatky byly implementovány do počítačového programu BetaShape, nově vyvinutého za účelem zpřesnění jaderných dat (střední energie, komparativní poločas přeměny, spektra elektronů a neutrin) vztahujících se k beta přeměně různých radionuklidů [11]. Experimentální část projektu byla zaměřena na rozvoj metod měření spekter záření beta pomocí magnetických spektrometrů, magnetických mikrokalorimetrů nebo též křemíkových detektorů.

---

<sup>1</sup>Podíl aktivity příslušného nuklidu a celkové aktivity zdroje.

Jednou z případných aplikací měření beta spekter se zabývá i tato disertační práce. Problematika byla řešena na pracovišti Českého metrologického institutu (ČMI) v Praze v rámci výše zmíněného projektu MetroBeta. Cíle výzkumu byly následující:

1. Zpřesnit charakterizaci křemíkového detektoru používaného v ČMI pro beta spektrometrii a na základě získaných údajů vytvořit jeho Monte Carlo model v prostředí MCNP.
2. S využitím stávající instrumentace a získaného Monte Carlo modelu navrhnout rutinní metodu pro identifikaci radionuklidových příměsí ve zdrojích ionizujícího záření tvořených čistými beta radionuklidy.

Obsah předložené práce je rozdělen do dvou hlavních kapitol. První tvoří teoretický základ a jsou v ní shrnuty stěžejní fyzikální poznatky týkající se radioaktivní přeměny beta. Detailně je vysvětlena Fermiho teorie, pomocí níž je možné teoreticky vyjádřit tvar spektra emitovaných elektronů. Dále je přehledově popsán charakter interakce elektronů s hmotou. Poslední část kapitoly je pak věnována představení metod využitelných pro spektrometrii záření beta. S ohledem na zaměření práce je kladen důraz především na polovodičové detektory. Nejsou však opomenuty ani další metody – počínaje magnetickými spektrometry přes scintilační detektory až po nově vyvíjené aparatury s magnetickými mikrokalorimetry.

Kapitola druhá obsahuje výsledky vlastní experimentální práce. Na jejím počátku je popsán postup charakterizace detektoru, jejímž výsledkem je Monte Carlo model. Další část se věnuje studiu beta spekter, které směřuje k otestování možnosti identifikace jednotlivých složek naměřeného smíšeného spektra pomocí simulovaných odezev na individuální radionuklidy. Nakonec jsou taktéž diskutovány zjištěné meze použitelnosti navržené metody.



# 1. Základy beta spektrometrie

## 1.1 Fyzika beta přeměny

*Přeměna beta* je jedním z druhů radioaktivní přeměny, při které je emitováno záření  $\beta$  (tok elektronů nebo pozitronů) [12, s. 432]. Je rozlišována *přeměna*  $\beta^-$



při níž dochází k emisi elektronu a zvýšení protonového čísla  $Z$  dceřiného jádra o jedna oproti mateřskému, a *přeměna*  $\beta^+$



kteřá je doprovázena emisí pozitronu a naopak snížením protonového čísla  $Z$  o jedna. Jelikož obdobný účinek má i *elektronový záchyt*, bývá též zařazován mezi procesy beta přeměny. Při něm je jádrem pohlcen elektron z atomového obalu, což vede k transformaci jednoho protonu na neutron, jak ukazuje reakční schéma



Symboły  $\nu_e$  a  $\bar{\nu}_e$  v (1.1) až (1.3) je v uvedeném pořadí označeno elektronové *neutrino* a *antineutrino*. Jedná se o elektricky neutrální částici s nulovou nebo velmi malou klidovou hmotností. Její existenci navrhl Wolfgang Pauli<sup>1</sup>, aby objasnil skutečnost, že spektrum elektronů emitovaných při přeměně beta je spojité a dále též zdánlivě nezachování momentu hybnosti.

Z hlediska energetické bilance je přeměna beta spojena s uvolněním energie

$$E_{0\beta^-} = m_Z c^2 - (m_{Z+1} + m_e) c^2 = (M_Z - M_{Z+1}) c^2, \quad (1.4)$$

respektive

$$E_{0\beta^+} = m_Z c^2 - (m_{Z-1} + m_e) c^2 = (M_Z - M_{Z-1} - 2m_e) c^2, \quad (1.5)$$

kde  $m_Z$  označuje klidové hmotnosti jader a  $M_Z$  klidové hmotnosti atomů. Tato energie je odnášena v podobě kinetické energie emitovaných částic. Hodnota  $E_{0\beta^\pm}$  též udává *koncový bod* beta spektra, tedy maximální možnou energii záření beta.

### 1.1.1 Klasifikace přechodů – výběrová pravidla

Požadavek zachování celkového momentu hybnosti<sup>2</sup> klade určitá omezení na možné přechody při přeměně beta [16, s. 137]. Tyto restriky změny stavu kvantověmechanického systému jsou obecně nazývány *výběrovými pravidly*.

Při *Fermiho přechodu* jsou spiny emitovaných leptonů vzájemně antiparalelně orientovány (singletový stav). Jejich celkový spin  $\mathbf{S}$  je roven nule, a tudíž vztah mezi

<sup>1</sup>Vysvětlení beta přeměny pomocí nově postulované částice – neutrino – uvedl Wolfgang Pauli roku 1930 v otevřeném dopise [13] (jeho anglický překlad je k dispozici například v článku [14]). Existence této částice byla experimentálně prokázána až roku 1956 při studiu inverzního rozpadu beta – reakce antineutrino s protonem, při které vzniká pozitron a neutron [15]. Vytvořené částice byly registrovány prostřednictvím vzájemně zpožděné dvojice pulzů, přičemž první z nich odpovídal anihilaci pozitronu a druhý emisi fotonu po radiačním záchytu zpomaleného neutronu jádrem kadmia.

<sup>2</sup>Celkový moment hybnosti je dán složením orbitálních momentů hybnosti a spinů všech částic systému [12, s. 447].

## 1. Základy beta spektrometrie

celkovým momentem hybnosti mateřského  $\mathbf{J}_X$  a dceřiného jádra  $\mathbf{J}_Y$  je následující

$$\mathbf{J}_X = \mathbf{J}_Y + \mathbf{L}, \quad (1.6)$$

kde  $\mathbf{L}$  je orbitální moment hybnosti dvojice elektron-antineutrino nebo pozitron-neutrino. Naproti tomu v případě *Gamowova–Tellerova přechodu* nabývá tento vztah tvaru

$$\mathbf{J}_X = \mathbf{J}_Y + \mathbf{L} + \mathbf{1}, \quad (1.7)$$

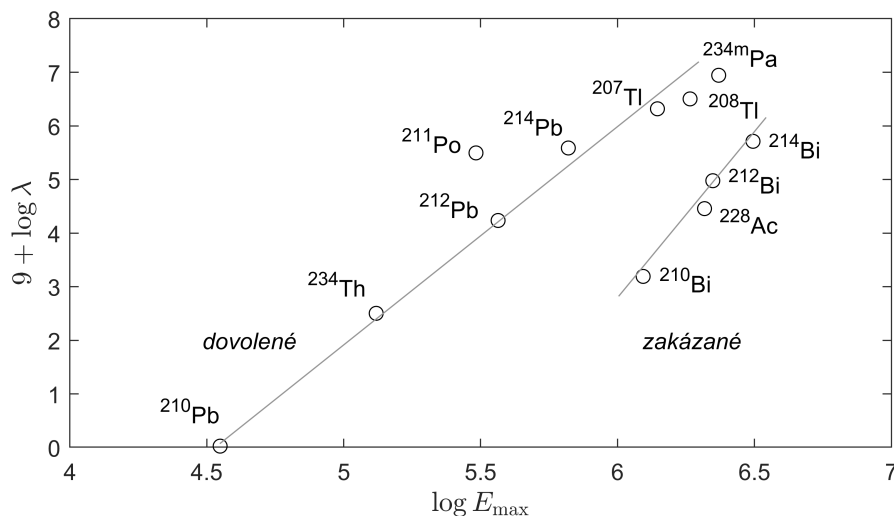
neboť orientace leptonů je paralelní (tripletový stav), a tedy  $\mathbf{S} = \mathbf{1}$  [17, s. 225]. Obě výše uvedená výběrová pravidla se uplatňují při popisu přeměny beta, ve většině případů se však jedná o přechody Gamowovy–Tellerovy [18, s. 221].

Orbitální moment hybnosti, přesněji řečeno jeho velikost  $L = |\mathbf{L}|$ , též určuje, zda při daném typu přechodu dochází ke změně parity<sup>3</sup> vlnové funkce mateřského a dceřiného jádra. Tato skutečnost je matematicky popsána rovnicí

$$\pi_i = \pi_f \cdot (-1)^L, \quad (1.8)$$

ve které  $\pi_i$  a  $\pi_f$  značí paritu vlnové funkce jádra před a po přeměně. Faktor  $(-1)^L$  vyjadřuje paritu spojenou s orbitálním momentem hybnosti leptonů [19, s. 289].

První rozdělení radionuklidů podléhajících beta přeměně podle typu přechodu nastínil *Sargentův diagram* [20, s. 671] zobrazující pro několik beta radionuklidů závislost logaritmu přeměnové konstanty na logaritmu maximální energie emitovaných beta částic (viz obrázek 1.1). Body v grafu vytváří dvě téměř přímé linie, přičemž pro danou energii se příslušné hodnoty přeměnových konstant liší o dva až tři řády. Přechody odpovídající kratší době života byly označeny za *dovolené*, ty s dobou delší pak za *zakázané*<sup>4</sup>. Klasifikace přechodů pouze do dvou skupin se však ukazuje jako nedostačující.



**Obrázek 1.1:** Sargentův diagram [20, s. 671]

Do samostatné skupiny *super-dovolených*<sup>5</sup> jsou vyčleněny dovolené čisté Fermiho přechody  $0 \rightarrow 0$  u lehkých jader ( $A < 44$ ), ve kterých nespárovaný nukleon po přeměně setrvává na stejné hladině [18, s. 221]. Ve většině případů lze tento typ přechodu

<sup>3</sup>Parita je vlastnost vlnové funkce  $\psi$  popisující její chování při prostorové inverzi. Pokud funkce zůstane nezměněna, tedy  $\psi(x, y, z) = \psi(-x, -y, -z)$ , má paritu sudou. Naopak, jestliže dojde ke změně znaménka, tedy  $\psi(x, y, z) = -\psi(-x, -y, -z)$ , má paritu lichou [12, s. 414].

<sup>4</sup>V daném smyslu označení přechodu jako zakázaného neznamená, že by nemohl vůbec nastat, jako spíše vyjádření skutečnosti, že jevu je více bráněno, a tudíž probíhá s nižší pravděpodobností než v případě přechodu dovoleného.

<sup>5</sup>V anglické literatuře jsou tyto přechody označovány jako *super-allowed* nebo *favoured*.

pozorovat mezi vzájemně zrcadlovými<sup>6</sup> mateřskými a dceřinými jádry, jejichž počet protonů a neutronů se liší o jedničku.

Zakázané přechody jsou spojeny s emisí leptonů, jejichž celkový orbitální moment hybnosti  $L$  je odlišný od nuly. Pravděpodobnost takového přechodu klesá s rostoucí velikostí  $L$ . Podle její hodnoty je označován jako *jednou zakázaný* ( $L = 1$ ), *dvakrát zakázaný* ( $L = 2$ )...  $N$ -krát zakázané Gamowovy–Tellerovy přechody, při nichž se celkový moment hybnosti jádra mění o  $\Delta J = |\mathbf{J}_X - \mathbf{J}_Y| = n + 1$ , jsou nazývány *unikátní* [21, s. 179].

Výběrová pravidla pro jednotlivé typy přechodů shrnuje tabulka 1.1 sestavená s pomocí údajů z [17, s. 225–228].

**Tabulka 1.1:** Typy přechodů – výběrová pravidla

Typ přechodu	$L$	$\Delta\pi$	$\Delta J$		log $ft$
			<i>Fermi</i>	<i>Gamow-Teller</i>	
super-dovolený	0	ne	0	×	2,7 až 3,7
dovolený	0	ne	0	(0), 1	4 až 6
jednou zakázaný	1	ano	(0), 1	(0), 1, 2*	6 až 10
dvakrát zakázaný	2	ne	(1), 2	(2), 3	10 až 14
$n$ -krát zakázaný	$n$	ano** ne***	$(n - 1), n$	$(n), n + 1$	×

\* S výjimkou přechodů  $1 \rightarrow 0$  a  $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ . \*\* Pro  $n$  liché. \*\*\* Pro  $n$  sudé.

Závorkou vyznačené přechody nejsou možné, pokud je počáteční nebo koncový stav nulový.

$L$  – velikost orbitálního momentu hybnosti neseného dvojicí elektron-antineutrino (v jednotkách  $\hbar$ )

$\Delta\pi$  – změna parity jádra

$\Delta J = |\mathbf{J}_X - \mathbf{J}_Y|$  – změna celkového momentu hybnosti jádra (v jednotkách  $\hbar$ )

$ft$  – komparativní poločas přeměny (viz definici v podkapitole 1.1.3)

### 1.1.2 Fermiho teorie beta přeměny

Popis procesu přeměny beta formuloval roku 1934 Enrico Fermi [22] (anglický překlad viz [23]). Jeho teorie vycházela z Pauliho hypotézy o existenci neutrina a byla vybudována na základě analogie mezi emisí elektronu a neutrina při beta přeměně a emisí fotonu z excitovaného atomu. Fermi předpokládal, že elektron a neutrina<sup>7</sup> nejsou součástí atomového jádra, ale vznikají až v okamžiku přeměny, obdobně jako kvanta elektromagnetické energie emitovaná při přechodech v elektronovém obalu nebo jádře. S ohledem na podobnost popisu obou procesů byl hamiltonián pro odvození teorie beta přeměny sestaven jako součet členů popisujících v reakci vyskytující se částice, který je narušen interakčním elementem  $H'$ .

Výsledkem časové teorie poruch je vztah udávající pravděpodobnost přechodu kvantového systému z počátečního stavu  $i$  do koncového stavu  $f$  [24, s. 134]. Pomocí tohoto *Fermiho zlatého pravidla* lze pravděpodobnost emise elektronu o hybnosti ležící v intervalu  $p_e$  a  $p_e + dp_e$  při beta přeměně  $N(p_e)$  vyjádřit coby

$$N(p_e) dp_e = \frac{2\pi}{\hbar} \cdot \left| \langle f | H' | i \rangle \right|^2 \cdot \frac{dN}{dE_0}. \quad (1.9)$$

Faktor  $\frac{dN}{dE_0}$  ve vztahu (1.9) je hustota možných konečných stavů [25, s. 279]. Jinými slovy, tímto členem je vyjadřován počet způsobů, kterými je možno celkovou energii  $E_0$

<sup>6</sup> Zrcadlové jádro k jádru  ${}^A_Z X^N$  je jádro  ${}^A_{Z'} X^Z$  a opačně [12, s. 430].

<sup>7</sup> Přesněji vyjádřeno, v případě  $\beta^-$  přeměny se jedná o antineutrino.

## 1. Základy beta spektrometrie

uvolněnou při přeměně rozdělit mezi  $e^-$  a  $\bar{\nu}$  [16, s. 127]. Symbol  $\hbar$  značí redukovanou Planckovu konstantu.

Prvek matice Hamiltonova operátoru mezi počátečním a koncovým stavem se dá dále rozepsat jako

$$\langle f | H' | i \rangle = g \cdot \langle \psi_e \psi_{\bar{\nu}} \psi_f | H' | \psi_i \rangle, \quad (1.10)$$

kde  $g$  je konstanta vyjadřující intenzitu interakce [24, s. 135]. Vlnové funkce  $\psi_i$  a  $\psi_f$  popisují počáteční a konečný stav jádra. Jelikož oba leptony interagují slabě<sup>8</sup>, je možné jejich vlnové funkce  $\psi_e$  a  $\psi_{\bar{\nu}}$  vyjádřit v tvaru

$$\psi = A \exp\left(\frac{i \mathbf{p} \mathbf{r}}{\hbar}\right), \quad (1.11)$$

jenž odpovídá řešení Schrödingerovy rovnice pro volné částice<sup>9</sup>. Hodnota multiplikační konstanty  $A$  ve výrazu (1.11) plyne z požadavku na normalizaci vlnové funkce, tedy

$$\int_V \psi_e^* \psi_e dV = \int_V \psi_{\bar{\nu}}^* \psi_{\bar{\nu}} dV = 1, \quad (1.12)$$

a rovná se výrazu  $\frac{1}{\sqrt{V}}$ , přičemž  $V$  je objem jádra [16, s. 127].

Ježto  $\psi_i$  a  $\psi_f$  jsou nenulové jen v oblasti jádra, taktéž vlnové funkce  $\psi_e(r)$  a  $\psi_{\bar{\nu}}(r)$  přispějí k integrálu (1.10) jen pro  $r \leq R$ , kde  $R$  značí poloměr atomového jádra<sup>10</sup> [24, s. 136]. S ohledem na skutečnost, že  $R$  je výrazně menší než vlnová délka de Broglieho vlny pro  $e^-$  a  $\bar{\nu}$ , je možné vlnové funkce leptonů v objemu jádra nahradit konstantní hodnotou pro  $r = 0$ . Využitím těchto úvah je výchozí výraz (1.9) upraven na

$$N(p_e) dp_e = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{1}{V^2} g^2 |M_{if}|^2 \frac{dN}{dE_0}, \quad (1.13)$$

kde  $M_{if}$  označuje *prvek matice jádra* [25, s. 279–280], jenž je dán vztahem

$$M_{if} = \langle \psi_f | H' | \psi_i \rangle. \quad (1.14)$$

Tato veličina vyjadřující pravděpodobnost přechodu mezi počátečním a konečným stavem jádra je určena pouze jeho strukturou.

K odvození faktoru  $\frac{dN}{dE_0}$  v (1.9) a (1.13) lze dojít následující úvahou [24, s. 481–482]. Stav každé objevivší se částice je reprezentovatelný vektorem v šestiřozměrném fázovém prostoru souřadnic a hybností. Uvedené dvě veličiny jsou však spolu svázány Heisenbergovými relacemi neurčitosti, a proto namísto jednoho bodu bude stav systému ve fázovém prostoru určen elementární buňkou o objemu

$$\Delta x \Delta y \Delta z \Delta p_x \Delta p_y \Delta p_z \approx h^3. \quad (1.15)$$

Předpokládejme nyní částici nacházející se v objemu  $V$  v prostoru souřadnic o hybnosti, jejíž velikost  $|\mathbf{p}|$  leží v intervalu ohraničeném  $p$  a  $p + dp$ . Potom objem odpovídajícího fázového prostoru<sup>11</sup> je roven  $V \cdot 4\pi p^2 dp$ . Podíl této hodnoty a velikosti elementární buňky

$$dn = \frac{4\pi V p^2 dp}{h^3} \quad (1.16)$$

udává počet možných stavů v určitém objemu fázového prostoru.

<sup>8</sup>*Slabá interakce* je jednou ze čtyř základních fyzikálních sil. Vyznačuje se malým dosahem řádu  $10^{-18}$  m [12, s. 417]. Skutečnost, že k přeměně beta dochází jejím prostřednictvím, se též ukazuje menší pravděpodobností přechodu (a tudíž vyšší střední dobou života) oproti procesům způsobeným silnou nebo elektromagnetickou interakcí [25, s. 272].

<sup>9</sup>Odvození příslušné vlnové funkce je popsáno například v učebnici [26, s. 41–42].

<sup>10</sup>Poloměr koule, která ve zjednodušené představě reprezentuje jádro atomu. Řádově odpovídá dosahu jaderných sil ( $10^{-15}$  m) [12, s. 429].

<sup>11</sup>Objem fázového prostoru je dán součinem objemu v prostoru souřadnic a objemu v prostoru hybností (v uvedeném případě se jedná o kulovou slupku).

Výše uvedený vztah (1.16) lze přímo aplikovat na případ emise elektronu  $e^-$  a antineutrína  $\bar{\nu}$  při beta přeměně [16, s. 129]. Počet stavů, které mohou uvedené dvě částice o hybnostech ležících mezi  $p_e$  a  $p_e + dp_e$  (elektron) a  $p_{\bar{\nu}}$  a  $p_{\bar{\nu}} + dp_{\bar{\nu}}$  (antineutrino) v objemu  $V$  zaujímat, je roven

$$dN = \frac{16\pi^2 V^2}{h^6} p_e^2 p_{\bar{\nu}}^2 dp_e dp_{\bar{\nu}}. \quad (1.17)$$

Vycházejíce z relativistického vztahu mezi energií a hybností<sup>12</sup> a za předpokladu, že klidová hmotnost antineutrína je nulová, můžeme jeho hybnost  $p_{\bar{\nu}}$  vyjádřit jako

$$p_{\bar{\nu}} = \frac{E_{\bar{\nu}}}{c} = \frac{E_0 - E_e}{c}. \quad (1.18)$$

Při konstantní hodnotě energie elektronu  $E_e$  taktéž platí

$$dp_{\bar{\nu}} = \frac{dE_0}{c}. \quad (1.19)$$

Dosazením výrazů (1.18) a (1.19) do rovnice (1.17) obdržíme výsledný tvar hledaného statistického faktoru

$$\frac{dN}{dE_0} = \frac{16\pi^2 V^2}{h^6 c^3} p_e^2 \cdot (E_0 - E_e)^2 dp_e. \quad (1.20)$$

Celkem pak pro pravděpodobnost emise elektronu o určité hybnosti  $N(p_e)$  platí následující relace

$$N(p_e) dp_e = \frac{1}{2\pi^3 \hbar^7 c^3} g^2 |M_{if}|^2 p_e^2 \cdot (E_0 - E_e)^2 dp_e. \quad (1.21)$$

Pro některé výpočty je vhodné vyjádřit závislost (1.21) jako funkcí energie elektronů. S ohledem na potřebné úpravy je užitečné hybnost a energii<sup>13</sup> uvádět v *přirozených jednotkách*  $m_0 c$  a  $m_0 c^2$  [25, s. 281] a zavést níže uvedené veličiny

$$\eta = \frac{p_e}{m_e c}, \quad \epsilon = \frac{E_e}{m_e c^2} \quad \text{a} \quad \epsilon_0 = \frac{E_0}{m_e c^2}, \quad (1.22)$$

pomocí nichž lze pravděpodobnost emise elektronu v závislosti na jeho celkové energii  $\epsilon$  formulovat způsobem

$$N(\epsilon) d\epsilon = \frac{m_e^5 c^4}{2\pi^3 \hbar^7} g^2 |M_{if}|^2 \epsilon \sqrt{\epsilon^2 - 1} \cdot (\epsilon_0 - \epsilon)^2 d\epsilon. \quad (1.23)$$

V předchozích úvahách této podkapitoly byl dosud pomíjen vliv náboje dceřiného jádra  $Z$  na kinetickou energii emitovaného elektronu (nebo pozitronu) [16, s. 130]. Coulombické působení, jehož vliv na tvar spektra je patrný na obrázku 1.2, je do vztahu (1.23) zahrnuto pomocí dalšího multiplikativního korekčního faktoru  $F(Z, E_e)$  nazývaného *Fermiho funkce*. Její hodnoty jsou pro vybrané kinetické energie elektronů tabulovány<sup>14</sup>. Pro nerelativistické elektrony též existuje zjednodušený vzorec

$$F(Z, E_e) = \frac{2\pi\tau}{1 - e^{2\pi\tau}}, \quad \text{kde} \quad \tau = \pm \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 \hbar v_e}. \quad (1.24)$$

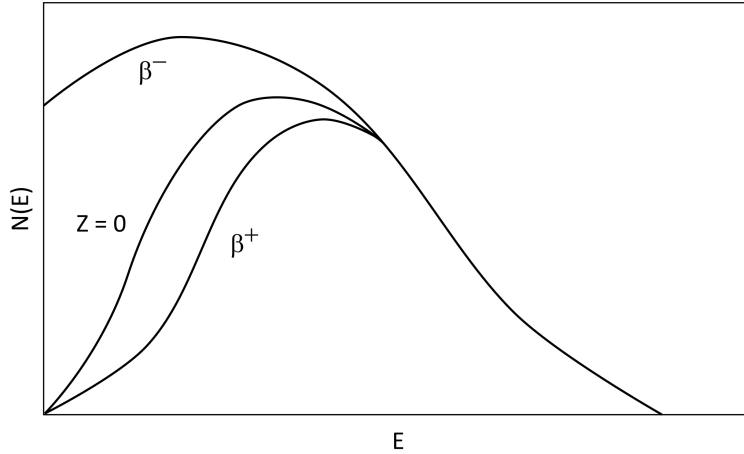
Kladné znaménko v definici  $\tau$  platí pro elektrony (přeměna  $\beta^-$ ), záporné pro pozitrony (přeměna  $\beta^+$ ). Symbolem  $v_e$  je označena rychlost emitovaného elektronu, nebo případně pozitronu, ve velké vzdálenosti od jádra [17, s. 222].

<sup>12</sup>Mezi energií  $E$  a hybností  $p$  platí vztah  $E^2 = p^2 c^2 + m_0^2 c^4$ , ve kterém  $m_0$  značí klidovou hmotnost částice a  $c$  rychlost světla ve vakuu. Energie  $E$  je dána součtem kinetické energie částice a její klidové energie.

<sup>13</sup>Jedná se o celkovou energii, jež je dána součtem kinetické a klidové energie částice.

<sup>14</sup>Tabulované hodnoty Fermiho funkce  $F(Z, E_e)$  jsou uvedeny například v [27, s. 28–69] nebo [28, s. 22–61]. Oproti notaci v tomto textu je v publikaci [27] symbolem  $Z$  míněno atomové číslo rozpadajícího se (mateřského) jádra.

## 1. Základy beta spektrometrie



**Obrázek 1.2:** Znázornění vlivu coulombického působení mezi emitovanou částicí a jádrem na tvar spektra [29, s. 167]. Případy  $\beta^-$  a  $\beta^+$  přeměny jsou doplněny hypotetickou variantou, při níž by došlo k emisi nenabitě beta částice.

Na podobu spektra má též vliv typ přechodu (viz podkapitolu 1.1.1), na nějž je zavedena další multiplikativní korekce původně odvozeného vztahu (1.21), respektive (1.23). *Tvarový faktor* rovný jedné je možné vedle přechodů dovolených použít i pro většinu jednou zakázaných (neunikátních), jelikož dané spektrum je takřka neodlišitelné od tvaru příslušejícího dovolenému přechodu [30, s. 1308]. U dvakrát zakázaných (neunikátních) přechodů již tato podobnost tvaru spekter není obvyklá, na druhou stranu je stále možná [31, s. 646]. Pro unikátní jednou zakázané přechody lze tvarový faktor vypočítat podle vztahu

$$C_1^u = \frac{1}{12} \cdot (\epsilon_\nu^2 L_0 + 9L_1), \quad (1.25)$$

obdobným způsobem je tato veličina vyjádřena i pro unikátní dvakrát zakázané přechody, konkrétně

$$C_2^u = \frac{1}{72} \cdot \left( \frac{1}{15} \epsilon_\nu^4 L_0 + 2\epsilon_\nu^2 L_1 + 15L_2 \right). \quad (1.26)$$

Proměnná  $\epsilon_\nu$  v (1.25) a (1.26) je energie neutrina (v jednotkách  $m_0 c^2$ ), výrazy  $L_0$ ,  $L_1$  a  $L_2$  jsou kombinacemi radiálních vlnových funkcí, jejichž hodnoty jsou tabelovány [27, s. 142–147 a 162–195].

Formule pro popis spektra záření emitovaného při beta přeměně finálně nabývá tvaru

$$N(\epsilon) d\epsilon = \text{konst} \cdot C_L F(Z, E_e) \epsilon \sqrt{\epsilon^2 - 1} \cdot (\epsilon_0 - \epsilon)^2 d\epsilon. \quad (1.27)$$

### 1.1.3 Aplikace Fermiho teorie při analýze spekter

#### Komparativní poločas přeměny

Prostřednictvím Fermiho teorie je možné odvodit vztah mezi dobou života radionuklidu a energií emitovaného beta záření [24, s. 139]. Jako výchozí budiž výraz  $N(p_e) dp_e$  vyjadřující pravděpodobnost emise elektronu s hybností ležící v intervalu  $(p_e, p_e + dp_e)$  v jednotkovém čase. Přeměnovou konstantu  $\lambda$ , tedy pravděpodobnost emise elektronu

s libovolnou hybností, obdržíme integrací celého spektra

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} = \int_0^{p_0} N(p_e) dp_e, \quad (1.28)$$

přičemž  $T_{1/2}$  značí poločas přeměny. Po dosazení (1.21) za  $N(p_e) dp_e$ , včetně zahrnutí korekce vyjádřené Fermiho funkcí, lze dále psát

$$\frac{\ln 2}{T_{1/2}} = \frac{g^2}{2\pi^3 \hbar^7 c^3} |M_{if}|^2 \int_0^{p_0} F(Z, E_e) p_e^2 \cdot (E_0 - E_e)^2 dp_e \quad (1.29)$$

a s použitím výrazů (1.22) vztah dále upravit na

$$\frac{\ln 2}{T_{1/2}} = \frac{m_e^5 c^4 g^2}{2\pi^3 \hbar^7} |M_{if}|^2 \int_0^{\eta_0} F(Z, E_e) \eta^2 \cdot (\epsilon_0 - \epsilon)^2 d\eta. \quad (1.30)$$

Hodnota integrálu v (1.30), dále označená jako  $f(Z, E_0)$ , je bezrozměrná veličina závisající na dvou parametrech – protonovém čísle  $Z$  a mezi integrace odpovídající koncovému bodu spektra.

Rovnici (1.30) můžeme přepsat do tvaru

$$f(Z, E_0) T_{1/2} = \text{konst} \cdot |M_{if}|^{-2}. \quad (1.31)$$

Součin  $ft = f(Z, E_0) T_{1/2}$  na levé straně je nazýván *komparativní poločas přeměny*. Jak je vidno, tato veličina je závislá nepřímo úměrně na čtverci prvku matice jádra a odráží tedy vlastnosti dané jeho strukturou [17, s. 240].

Na základě velikosti komparativního poločasu přeměny mohou být radionuklidy tříděny do skupin dle jednotlivých druhů přechodů (viz tabulku 1.1). Jelikož veličina nabývá hodnot přes několik řádů (od  $10^3$  do  $10^{20}$ ), bývá obvykle vyjadřována ve formě dekadického logaritmu [16, s. 136].

### Kurieho diagram

Formuli popisující tvar beta spektra vyplývající z Fermiho teorie lze upravit do následující podoby

$$\left( \frac{N(p)}{F(Z, E_e) p_e^2} \right)^{1/2} = \text{konst} \cdot (E_0 - E_e), \quad (1.32)$$

která se ukazuje jako užitečná pro vyhodnocení experimentálně získaných hodnot. Vykreslíme-li výraz na levé straně v závislosti na energii emitovaného elektronu, obdržíme klesající přímkou, jejíž průsečík s osou nezávisle proměnné určuje hodnotu koncového bodu (viz obrázek 1.3). Uvedený typ grafu se jmenuje *Kurieho diagram*<sup>15</sup> podle jednoho z autorů této metody analýzy spekter [32].

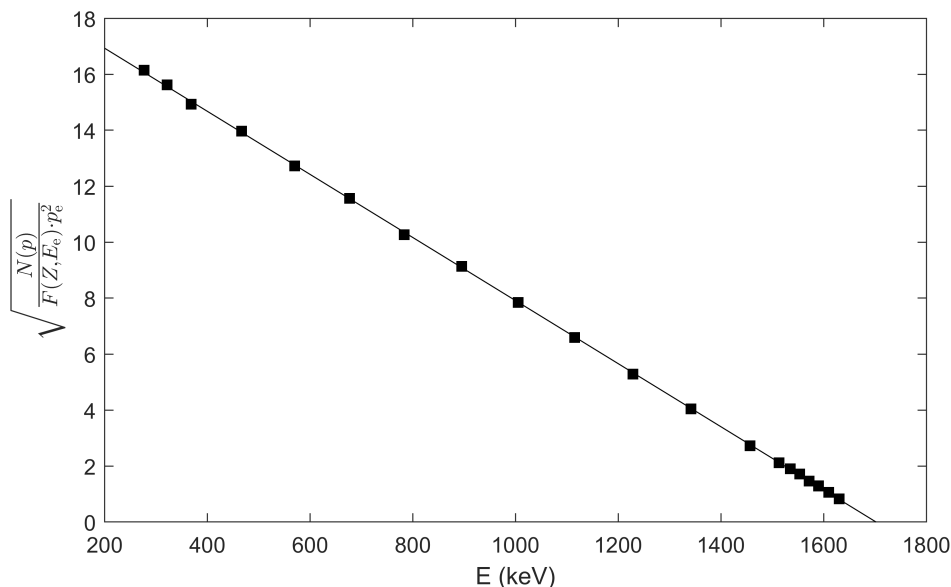
Jelikož vztah (1.32) byl odvozen pro dovolené přechody, lze očekávat, že v případě zakázaných budou pozorovatelné odchylky od přímkového charakteru závislosti [16, s. 130]. Ty je možno korigovat zahrnutím tvarového faktoru.

Část diagramu v blízkosti energie koncového bodu je zajímavá i z hlediska otázky hmotnosti neutrína. Jeho nenulová hmotnost by totiž vedla k malému zakřivení závislosti ve směru k nižším energiím. Výsledkem analýzy beta spektra tritia<sup>16</sup> bylo stanovení horního odhadu hmotnosti elektronového neutrína na 2 eV (na 95% hladině významnosti) [7].

<sup>15</sup>V některé literatuře též *Fermiho–Kurieho diagram*.

<sup>16</sup>Nuklid  ${}^3\text{H}$  je vhodným kandidátem pro tento typ studie, jelikož energie jeho koncového bodu je nízká (18 keV). Křivka v Kurieho diagramu je citlivější vůči rozdílné hmotnosti neutrína právě v případech nízkých maximálních energií [24, s. 143].

## 1. Základy beta spektrometrie



**Obrázek 1.3:** Ukázka Kurieho diagramu pro radionuklid  $^{32}\text{P}$ . Zobrazené hodnoty jsou převzaty z publikace [33].

Kurieho diagram také posloužil k otestování Fermiho teorie [34, s. 1366–1368], zejména v období krátce po jejím publikování. Prvotní studie poukazovaly na rozpor mezi teorií a experimentem, protože naměřená závislost se zejména v oblasti nízkých energií vzdalovala od teoretické lineární. Měření (dovolených) spekter  $^{35}\text{S}$  a  $^{64}\text{Cu}$  vedlo ke zjištění, že pozorované odchýlení je funkcí tloušťky zdroje a jeho homogenity, a nemá tedy příčinu v nějaké neznámé a teorií nepopsané fyzikální skutečnosti.

## 1.2 Interakce elektronů s látkou

Elektrony, jakožto nabitě částice, interagují s hmotou dominantně prostřednictvím elektromagnetické síly. K předání energie dochází jednak při srážkách s obalovými elektrony atomů materiálu, které vedou k *ionizaci* nebo *excitaci*<sup>17</sup>, druhým významným procesem pak je emise *brzdného záření*<sup>18</sup>. Celková lineární brzdná schopnost

$$\frac{dE}{dx} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{col}} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}} \quad (1.33)$$

je tudíž pro elektrony dána dvěma členy – srážkovým a radiačním.

### 1.2.1 Lineární brzdná schopnost

Srážkové procesy pozorujeme při interakci libovolných nabitých částic, leč pro případ elektronů musíme vzít v potaz dvě odlišnosti od částic těžkých [35, s. 37]. S ohledem na nižší hmotnost nalétávajících částic již není platný předpoklad, se kterým byla odvozena *Betheho–Blochova formule*<sup>19</sup>, a to konkrétně, že k vychýlení částice z původní

<sup>17</sup>Pokud je energie předaná nabitou částicí orbitálnímu elektronu větší než příslušná hodnota vazbové energie, dojde k jeho odtržení od atomu a vzniku iontového páru. V opačném případě je elektron pouze vybuzen do vyšší energetické hladiny v atomovém obalu. První případ nazýváme ionizací, druhý excitací.

<sup>18</sup>Elektromagnetické záření emitované nabitou částicí pohybující se s nenulovým zrychlením.

<sup>19</sup>Vztah pro výpočet lineární brzdné schopnosti těžkých nabitých částic.



dráhy dochází minimálně. Dalším aspektem je interakce mezi totožnými částicemi (elektrony), pročež ve výpočtu musí být zohledněna jejich nerozlišitelnost. Při uvážení uvedených skutečností pak korigovaný vztah určující ztráty energie elektronů v důsledku ionizace a excitace nabývá tvaru

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{col}} = \frac{2\pi e^4 N Z}{m_e v^2} \cdot \left( \ln \frac{m_e v^2 E}{2I^2 \cdot (1-\beta)^2} - \ln 2 \cdot \left( 2\sqrt{1-\beta^2} - 1 + \beta^2 \right) + (1-\beta^2) + \frac{1}{8} \cdot \left( 1 - \sqrt{1-\beta^2} \right)^2 \right), \quad (1.34)$$

kde  $E$  je energie nalétávajícího elektronu,  $v$  jeho rychlost,  $N$  je hustota počtu elektronů v materiálu,  $Z$  protonové číslo atomů absorbátoru,  $m_e$  klidová hmotnost elektronu,  $e$  elementární elektrický náboj,  $c$  rychlost světla ve vakuu a  $\beta \equiv \frac{v}{c}$  [36, s. 42].

Vybuzení brzděného záření je naopak procesem, který hraje významnou roli jen u částic lehkých. Míru radiačních ztrát popisuje vzorec

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}} = \frac{NEZ(Z+1)e^4}{137m_e^2c^4} \cdot \left( 4 \ln \frac{2E}{m_e c^2} - \frac{4}{3} \right), \quad (1.35)$$

přičemž značení veličin je stejné jako v předcházejícím výrazu (1.34) [36, s. 43]. Rovnice (1.35) mimo jiné napovídá, že význam radiačních ztrát roste s protonovým číslem absorbujícího materiálu  $Z$  (kvadraticky) a energií elektronů  $E$ . Naproti tomu kvadrát hmotnosti částice  $m_e$  ve jmenovateli vysvětluje, proč pro těžší nabitě částice je možné tento interakční proces zanedbat<sup>20</sup>.

### 1.2.2 Dosah

Uvažujme nyní experiment, při kterém bude kolimovaný monoenergetický svazek nabitých částic kolmo dopadat na absorbátor, za nímž bude umístěný detektor [36, s. 34 a 43]. Pro různé tloušťky absorbátoru budeme zaznamenávat počet částic prošlých materiálem. Výsledkem budou křivky vykreslené na obrázku 1.4. Dráhy těžkých nabitých částic jsou přímé, a proto se počet zaznamenaných částic pro malou tloušťku absorbátoru příliš nemění. K prudkému poklesu dojde, až když rozměry absorbátoru odpovídají dosahu částic. Naproti tomu elektrony jsou podstatně více rozptylovány a pokles v počtu prošlých částic tak zaznameneáme i pro malou tloušťku absorbátoru. Dráha lehkých nabitých částic je zakřivená a její délka je typicky větší než vzdálenost průniku do materiálu ve směru původního vektoru rychlosti částice.

Pro zdroj emitující elektrony při beta přeměně (spojité spektrum energií) je situace jiná [36, s. 45]. Platí, že závislost počtu detekovaných částic  $N$  na tloušťce absorbátoru  $t$  vykazuje téměř exponenciální průběh<sup>21</sup>. Ten lze popsat rovnicí

$$N = N_0 \exp(-nt), \quad (1.36)$$

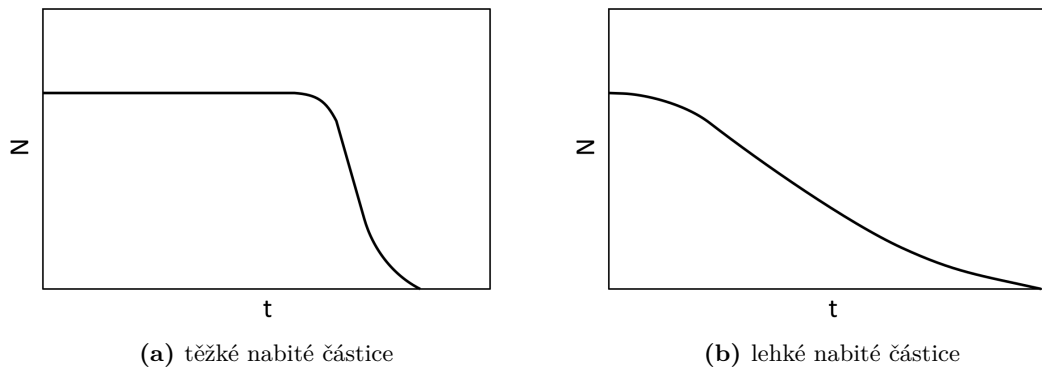
kde  $N_0$  udává počet částic detekovaných v případě měření bez absorbátoru a koeficient  $n$  charakterizuje absorpční vlastnosti prozařované látky.

Vztah (1.36) na první pohled může připomínat popis zeslabení svazku fotonového záření. Mezi oběma situacemi je však zásadní a principiální rozdíl – zatímco v případě fotonů exponenciála plyne z charakteru interakce záření, a je tedy podložena fyzikální teorií, u beta částic jde o empirickou aproximaci.

<sup>20</sup>Pro miony, které jsou druhé nejlehčí nabitě částice a mají přibližně 200krát větší hmotnost než elektrony ( $105,66 \text{ MeV}/c^2$  [37, s. 36]), bude za stejných podmínek ztráta energie prostřednictvím emise brzděného záření čtyřicettisíckrát menší.

<sup>21</sup>V semilogaritmickém grafu bude závislost přímková.

## 1. Základy beta spektrometrie



**Obrázek 1.4:** Závislost počtu částic v monoenergetickém svazku  $N$  na tloušťce absorbující vrstvy  $t$  pro případ těžkých a lehkých nabitých částic. Grafické znázornění vychází z [38, s. 23–24].

Na základě absorpčního měření je mimo jiné možné určit maximální energii elektronů emitovaných při beta přeměně [39]. Metoda využívá skutečnosti, že existuje korelace mezi energií koncového bodu  $E_0$  a absorpčním koeficientem  $n$ , kterou lze matematicky aproximovat vztahem

$$n = K t E_0^{-a}, \quad (1.37)$$

kde  $K$  a  $a$  jsou konstanty závislé na použitém absorbátoru a geometrickém uspořádání měření. V pozdější zpřesňující studii [40] autor dále uvádí, že závislost podobného charakteru existuje též mezi absorpčním koeficientem  $n$  a velikostí plochy pod křivkou spektra, přičemž odchylky měřených hodnot od modelových jsou v tomto případě menší než v předchozím. Kromě zpřesnění stanovení hodnoty koncového bodu by tak pomocí absorpčního měření mělo být možné získat určitou informaci ohledně tvaru spektra, s čímž je spojen i typ příslušného přechodu (viz kapitulu 1.1.1). Přesto, obvyklejší postup určení uvedených charakteristik je přímé měření spektra [36, s. 45].

### 1.3 Spektrometrie záření beta – polovodičové detektory

Přechozí části teoretického základu disertační práce byly zaměřeny na fyzikální popis beta přeměny a charakter interakce emitovaného záření s hmotou. V následujících je pozornost věnována možnostem detekce a měření spekter.

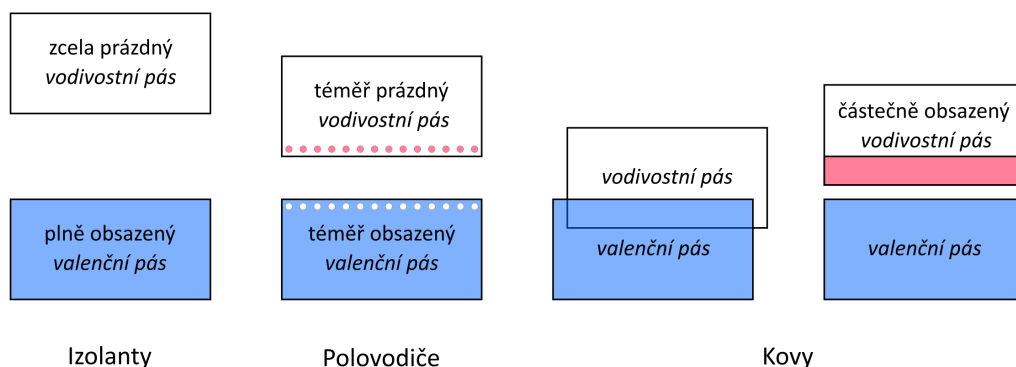
V této podkapitole jsou nejprve popsány základní vlastnosti polovodičů. Dále je diskutována jejich aplikace pro detekci ionizujícího záření, zejména s ohledem na potřeby beta spektrometrie. Větší míra pozornosti věnovaná instrumentaci na bázi polovodičových detektorů je v první řadě motivována skutečností, že tato byla využita v experimentální části práce. Obecně ale též platí, že uvedený druh detekční techniky patří mezi běžnější a dostupnější vybavení laboratoří zabývajících se radioaktivitou a jejím měřením, než je tomu v případě pokročilých spektrometrických systémů (magnetický spektrometr nebo magnetický mikrokalorimetr) stručně představených v další podkapitole 1.4.

#### 1.3.1 Pásová struktura pevných látek

Periodická mřížka krystalických pevných látek vede k vytvoření pásů energií, které udávají všechny přípustné energetické stavy elektronů nacházejících se v pevné látce [41, s. 203]. Existenci pásové struktury lze ukázat řešením Schrödingerovy rovnice pro pohyb

elektronu v periodickém potenciálovém poli. Její vznik též může kvalitativně přiblížit následující úvaha. Mějme soustavu izolovaných atomů, které budeme k sobě postupně přibližovat. V případě jednotlivých atomů mohou elektrony obsazovat pouze diskrétní hladiny energie, které vychází z kořenů příslušné Schrödingerovy rovnice. Když se při přiblížení začnou elektronové obaly atomů překrývat, dojde s ohledem na Pauliho vylučovací princip k rozštěpení hladin. Počet hladin v pásu odpovídá počtu interagujících atomů.

V pevné látce tak vzniká sada energetických pásů dovolených energií, které se mohou vzájemně překrývat, nebo být odděleny pásem zakázaných stavů. Dovolené stavy jsou obsazovány ve shodě s výstavbovým principem známým pro izolované atomy. Jinými slovy, elektrony zaplňují hladiny v souladu s Pauliho principem tak, aby měly co nejmenší energii<sup>22</sup>.



**Obrázek 1.5:** Pásová struktura pevných látek (podle [42, s. 10])

Z hlediska elektrické vodivosti látky jsou důležité nejvyšší energetické pásy – *valenční*<sup>23</sup> a *vodivostní*<sup>24</sup> [43, s. 14]. Zjednodušený diagram pásové struktury pro polovodiče, izolanty i vodiče je znázorněn na obrázku 1.5. Je patrné, že toto uspořádání je pro jednotlivé typy pevných látek podobné a hlavní odlišnost je ve velikosti zakázaného pásu. U kovů je nejvyšší energetický pás zaplněn elektrony jen částečně [43, s. 17]. Dvě možnosti vedoucí k takové konfiguraci jsou naznačeny na obrázku – v prvním případě vidíme částečně obsazený vodivostní pás, v druhém překrývající se valenční a vodivostní pásy. V obou případech je tudíž k dispozici dostatek volných energetických hladin, na které mohou elektrony přecházet s dodáním jen malého množství energie. Pevná látka tohoto typu se proto vyznačuje dobrou vodivostí. Izolanty mají zakázaný pás značné šířky (větší než cca 3,5 eV [41, s. 205]), a proto ani výrazná tepelná excitace nepostačuje k vybuzení některého elektronu do vodivostního pásu, a látka elektrický proud nevede. U polovodičů, jejichž zakázaný pás je menší bariérou, je naproti tomu takový přechod nositelů náboje možný.

Náčrtek na obrázku 1.5 je ovšem jen výrazně zjednodušeným znázorněním pásové struktury. O něco podrobnější náhled přináší graf 1.6, v němž je informace o energii dovolených kvantověmechanických stavů doplněna o krystalovou hybnost<sup>25</sup> [44, s. 9]. Lze tak rozlišit dvě situace s ohledem na vzájemný vztah minima ve vodivostním pásu

<sup>22</sup>Uvedené platí za předpokladu, že elektrony v látce nejsou v důsledku různých procesů excitovány [41, s. 204]. Takový stav nastává při teplotě 0 K za předpokladu, že na látku zároveň nepůsobí žádné záření.

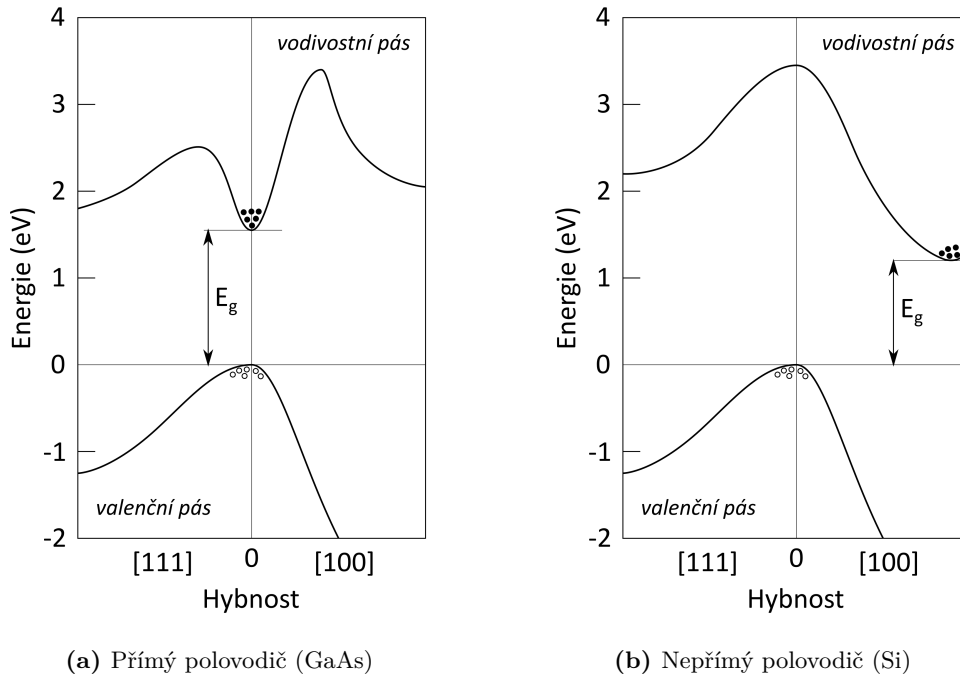
<sup>23</sup>Valenční pás je posledním elektrony zcela obsazeným pásem energetického spektra pásové struktury [12, s. 464].

<sup>24</sup>Vodivostní pás je první pás energií, který je elektrony ne zcela obsazen [12, s. 464].

<sup>25</sup>Případně o vlnový vektor; vztah mezi krystalovou hybností  $\mathbf{p}$  a vlnovým vektorem de Broglieho vlny  $\mathbf{k}$  je  $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$ , kde  $\hbar$  je redukovaná Planckova konstanta.

## 1. Základy beta spektrometrie

a maxima v pásu valenčním. Mají-li elektrony nebo díry obsadivší tyto stavy stejnou hodnotu hybnosti, hovoříme o *polovodiči přímém* (viz obrázek 1.6a, minimum vodivostního pásu je přímo nad maximum pásu valenčního). V opačném případě, kdy je hodnota hybnosti rozdílná, jde o *polovodič nepřímý* (viz obrázek 1.6b). Příkladem přímého polovodiče je arsenid gallitý (GaAs), nepřímými polovodiči jsou křemík nebo germanium.



**Obrázek 1.6:** Pásová struktura přímých a nepřímých polovodičů (podle [45, s. 32]). Diagram znázorňuje závislost energie na krystalové hybnosti ve dvou směrech<sup>a</sup> [111] a [100].  $E_g$  označuje velikost zakázaného pásu.

<sup>a</sup>Pro stanovení směru je v krystalografii užívána notace indexů zapsaných do hranatých závorek [46, s. 36]. Jde o soubor nejmenších celých čísel, jejichž vzájemný poměr je stejný jako poměr mezi složkami vektoru určujícího daný směr vůči krystalovým osám.

### 1.3.2 Nositelé náboje v polovodičích

Elektron excitovaný do vodivostního pásu za sebou ve valenčním pásu zanechává volnou pozici. Ta je nazývána dírou a chová se efektivně jako kladná částice. Některý z dalších valenčních elektronů může tento uprázdněný energetický stav obsadit, čímž dojde k posunu díry. Pohyb obou nositelů náboje, elektronů i děr, přispívá k celkovému elektrickému proudu tekoucímu polovodičem. To je odlišností ve srovnání s vedením proudu v kovech, v nichž je zprostředkováno pouze elektrony.

#### Vznik páru elektron-díra

Páry elektron-díra produkované při interakci ionizujícího záření v polovodičovém materiálu vytváří elektrický signál, který je využíván pro účely detekce<sup>26</sup>. Je nutné ale

<sup>26</sup>Nabitě částice při průchodu materiálem ztrácí energii především v pružných srážkách s elektrony, což je proces vedoucí ke vzniku párů elektron-díra. Část energie je ale též deponována v podobě excitace mřížových vibrací nebo neradiačních ztrát, jako je vyražení atomů z původní polohy v krystalové

vzít v úvahu, že ke vzniku páru může v polovodiči dojít i v důsledku několika dalších procesů, jako je tepelná nebo optická excitace [42, s. 21–24].

Tepelné generování nositelů náboje není žádoucím jevem, neboť vede ke zvýšení šumu superponovanému na užitečný signál. Detektory vyrobené z materiálu s nízkou šířkou zakázaného pásu, u nichž je za pokojové teploty možná přímá excitace velkého počtu elektronů z valenčního do vodivostního pásu, je proto nutné při jejich provozu chladit. Vybuzení elektronu do vodivostního pásu může způsobit i absorpce fotonu elektromagnetického záření<sup>27</sup>, čehož se využívá ve fotodiodách, fototranzistorech nebo solárních článcích.

Energetický práh tvorby páru elektron-díra je o něco větší než hodnota šířky zakázaného pásu<sup>28</sup>, neboť část absorbované energie vede k excitaci mřížových vibrací krystalu [47, s. 256–257]. To nastává v případě nepřímého přechodu<sup>29</sup>, kdy elektron excitovaný z valenčního do vodivostního pásu nemění pouze svůj energetický stav, ale též hybnost. Průměrná energie potřebná pro vytvoření páru elektron-díra nezávisí na druhu dopadajícího záření, nýbrž na použitém materiálu a jeho teplotě.

Ve srovnání s energií potřebnou na produkci jednoho páru iont-elektron v plynovém detektoru, popřípadě jednoho fotoelektronu ve scintilační detekční jednotce, je energie nutná pro vznik páru elektron-díra v polovodiči o řád, respektive o dva řády, menší [35, s. 228]. Pro stejně velkou hodnotu absorbované energie tak v polovodiči vznikne nejvíce nositelů náboje, což je výhodou, která se obecně projevuje v dobrém energetickém rozlišení polovodičových detektorů.

### Pohyb elektronů a děr

V polovodičovém materiálu, který dosáhl tepelné rovnováhy, se při nenulové teplotě volní nositelé náboje pohybují nahodile krystalickou mřížkou [43, s. 19]. Jejich střední kinetická energie, odpovídající tepelné energii mřížových vibrací, je rovna  $\frac{3}{2}kT$ , kde  $k$  je Boltzmannova konstanta a  $T$  absolutní teplota. Při pohybu jsou rozptylovány na elektricky neutrálních atomech mřížky kmitajících kolem svých rovnovážných poloh nebo působením coulombických sil na ionizovaných atomech příměsí. Pro kvantifikaci míry těchto interakcí je zavedena veličina *střední volná dráha*, eventuálně *střední doba života*.

V případě, že v polovodiči vznikne nehomogenní distribuce volných nositelů náboje nebo je na něj aplikováno elektrické pole, projeví se další fenomény transportu náboje, které přispívají k celkovému elektrickému proudu tekoucím materiálem.

Působením elektrického pole jsou volní nositelé náboje mezi jednotlivými srážkami unášeni (driftováni) ve směru určeném tímto polem [42, s. 17]. *Drift* je superponován na nahodilý tepelný pohyb (popsaný v prvním odstavci této podkapitoly), a v důsledku toho je střední hodnota jejich rychlosti, na rozdíl od situace bez působení elektrického pole, nenulová. Závislost mezi driftovou rychlostí  $\mathbf{v}$  a intenzitou elektrického pole  $\mathbf{E}$  je dána vztahem

$$\mathbf{v} = \text{sgn}(e) \mu \mathbf{E}, \quad (1.38)$$

kde konstanta úměrnosti  $\mu$  se nazývá *pohyblivost* a  $\text{sgn}(e)$  vyjadřuje znaménko náboje. Platí, že pohyblivost nositele náboje je tím větší, čím menší je jeho efektivní hmotnost a čím delší je odpovídající střední doba života. Dále  $\mu$  vykazuje závislost na teplotě,

mříži [47, s. 255]. Vytvoření těchto poruch je příčinou vzniku radiačního poškození, které se v makroskopickém pohledu projevuje změnou elektrických charakteristik polovodičové součástky v obvodu.

<sup>27</sup>Energii srovnatelnou s šířkou zakázaného pásu polovodičů má viditelné světlo.

<sup>28</sup>Pro řadu polovodičů platí empirické pravidlo, že energie potřebná na vznik jednoho páru elektron-díra  $w$  je zhruba trojnásobek šířky jejich zakázaného pásu  $E_g$ . Studie [48] uvádí přesnější vyjádření závislosti  $w(E_g) = 2,78 E_g + 0,55$  eV získané prokladem dat pro deset různých materiálů.

<sup>29</sup>Rozdílná hybnost maxima valenčního a minima vodivostního pásu [42, s. 28], viz obrázek 1.6b.

## 1. Základy beta spektrometrie

kteřou lze v intervalu 100–400 K přibližně vyjádřit jako  $T^{-m}$ , kde  $m$  je konstanta charakterizující materiál a nositele náboje<sup>30</sup>.

Linearita ve vztahu (1.38) platí jen tehdy, je-li změna rychlosti způsobená elektrickým polem malá ve srovnání s rychlostí tepelného pohybu. Této situaci odpovídají intenzity elektrického pole maximálně  $10^3 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$  [49, s. 51]. V elektrickém poli o větší intenzitě se závislost od lineárního průběhu výrazně odchyluje, driftová rychlost roste pomaleji, až se nakonec stává na intenzitě nezávislou a nabývá saturevané hodnoty řádu  $10^7 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Druhým fenoménem, který přispívá ke vzniku elektrického proudu v polovodiči, je *difúze* [43, s. 21]. Tento proces nastává, pokud je prostorová distribuce částic<sup>31</sup> nehomogenní. Částice z oblasti s vyšší koncentrací mají tendenci přecházet do oblasti s koncentrací nižší. Jsou-li tyto částice nabité, projeví se vzniklý difúzní tok jako elektrický proud. Matematicky je tento jev popsán Fickovým zákonem

$$\mathbf{F} = -D \nabla n, \quad (1.39)$$

kde  $F$  je tok částic<sup>32</sup> a  $\nabla n$  gradient koncentrace částic. Difúzní konstanta  $D$  a pohyblivost  $\mu$  charakterizující drift jsou vzájemně závislé veličiny [42, s. 18], což vyjadřuje Einsteinův vztah<sup>33</sup>

$$D = \frac{kT}{e} \mu, \quad (1.40)$$

v němž  $e$  značí velikost elektrického náboje nositele.

Hustota elektrického proudu je dána součinem hustoty elektrického náboje a rychlosti pohybu jeho nositelů. Jde o vektorovou veličinu, jejíž směr odpovídá směru pohybu kladného náboje. V polovodiči, kde k vedení proudu přispívají elektrony i díry, je celková proudová hustota  $\mathbf{J}$  vyjádřena výrazem

$$\mathbf{J} = en\mu_n \mathbf{E} + ep\mu_p \mathbf{E} + eD_n \nabla n - eD_p \nabla p, \quad (1.41)$$

ve kterém  $n$  značí koncentraci volných elektronů a  $p$  koncentraci děr (stejně symboly jsou použity pro odlišení obou druhů nositelů náboje i v indexech dalších ve výrazu se vyskytujících veličin). První dva sčítance v (1.41) přísluší driftovému proudu, zbývající členy pak popisují proud difúzní. Je patrné, že za podmínek, kdy platí linearita mezi driftovou rychlostí a intenzitou elektrického pole, odpovídá vyjádření hustoty driftového proudu Ohmovu zákonu

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}. \quad (1.42)$$

Srovnáním (1.41) a (1.42) lze pro celkovou vodivost  $\sigma$  (součet elektronové a děrové vodivosti) psát

$$\sigma = e \cdot (n\mu_n + p\mu_p). \quad (1.43)$$

### Záchyt a rekombinace

Opačným procesem ke vzniku páru elektron-díra je přímá *rekombinace*, při níž elektron přejde za vyzáření fotonu z vodivostního do valenčního pásu [35, s. 219]. S ohledem na zachování energie a hybnosti nemohou libovolný elektron a libovolná díra spolu zrekombinovat, a tudíž se tento mechanismus jen řídce podílí na zániku volných nositelů

<sup>30</sup>Hodnota  $m$  je v křemíku rovna 2,5 pro elektrony a 2,7 pro díry; v germaniu 1,66 pro elektrony a 2,33 pro díry [35, s. 218].

<sup>31</sup>V diskutovaném případě volných nositelů náboje.

<sup>32</sup>Počet částic procházejících jednotkovou plochou za jednotkový čas.

<sup>33</sup>Einsteinův vztah (1.40) lze odvodit z výrazu (1.41) aplikovaného na systém v tepelné rovnováze, kdy proudová hustota v každém jeho bodě je rovna nule. Podrobněji v [42, s. 18–19].

náboje v nepřímém polovodiči<sup>34</sup>. V přímém polovodiči je tento druh zářivé rekombinace častější, čehož se využívá při výrobě světlo emitujících polovodičových součástek.

Není-li možná rekombinace přímá, dochází dominantně k zániku volných nositelů náboje prostřednictvím *rekombinačních center*, která v polovodičovém materiálu vznikají vlivem přítomnosti příměsí v krystalu<sup>35</sup> [36, s. 375]. Ty způsobují změnu pásové struktury přidáním nových energetických hladin do zakázaného pásu<sup>36</sup>. Příměsí chovající se jako rekombinační centra mohou postupně zadržet volný elektron i díru a způsobit tak jejich rekombinaci. Hladiny hlubokých příměsí se též projevují jako *záchytná centra*, jejichž chování se od rekombinačních mírně odlišuje. Jsou schopna zachytit pouze jeden z druhů nositelů náboje, a tudíž v nich nedochází k rekombinaci páru elektron-díra. Znehybnění nositelé jsou po určitém čase opět uvolněni, ale pokud je doba zadržení delší než doba sběru náboje, nepřispějí k měřenému impulzu.

Rekombinace a záchyt jsou sice dva odlišné procesy, nicméně ve své podstatě oba vedou ke stejnému výsledku – ztrátám nositelů náboje a snížení jejich střední doby života. Při využití polovodiče coby detektoru je obecně žádoucí, aby veškerý náboj, který je v něm vytvořen při interakci ionizujícího záření, byl kompletně sebrán. Je proto nutné, aby doba sběru náboje byla kratší střední doby života.

### 1.3.3 Vlastní a nevlastní polovodiče

#### Vlastní polovodiče

*Vlastním* (též *intrinsickým*) je nazýván takový polovodič, v kterém nejsou přítomny žádné elektricky aktivní příměsi, respektive jejich vliv na vodivost je minimální [47, s. 251–252]. Prakticky totiž není možné dosáhnout stoprocentní čistoty, a tudíž v reálných materiálech jsou, byť v nízkých koncentracích, příměsí vždy přítomné.

V intrinsickém polovodiči existuje rovnováha mezi elektrony excitovanými do vodivostního pásu a těmi, které rekombinují. Jinými slovy, počet volných elektronů  $n$  je roven počtu děr  $p$ . Pro jejich intrinsickou koncentraci<sup>37</sup>  $n_i$  a  $p_i$ , platí vztah

$$n_i = p_i = AT^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-E_g}{2kT}\right), \quad (1.44)$$

kde  $T$  je absolutní teplota,  $A$  materiálová konstanta,  $E_g$  šířka zakázaného pásu a  $k$  Boltzmannova konstanta [35, s. 217].

#### Nevlastní polovodiče

Jak již bylo uvedeno v předchozí kapitole 1.3.2, elektrické charakteristiky polovodičů mohou být ovlivněny přítomností jiných prvků v krystalu. Řízeným vnesením příměsí do objemu intrinsického materiálu lze zvýšit koncentraci volných elektronů nebo děr, což povede k nárůstu jeho vodivosti. Tento proces je nazýván *dopování* nebo také *dotování*. Mezi využívané technologické postupy patří termická difúze<sup>38</sup> nebo iontová

<sup>34</sup>Pro úplnost dodejme, že rekombinace není procesem, který by vedl k anihilaci, to znamená fyzickému zániku částic. Volný elektron je pouze zachycen ve valenčním pásu a nemůže přispívat k vedení elektrického proudu materiálem.

<sup>35</sup>Kromě příměsí mohou ke vzniku rekombinačních nebo záchytných center vést též poruchy krystalové mřížky, ať již jde o bodové (vakance, částice v intersticiální poloze) nebo čárové (dislokace) [36, s. 376].

<sup>36</sup>Příměsí, které vytváří nové hladiny přibližně v polovině zakázaného pásu, jsou nazývány *hluboké* [36, s. 375]. Naproti tomu příměsí doplňující donorové nebo akceptorové hladiny (viz kapitolu 1.3.3) jsou označovány jako *mělké*.

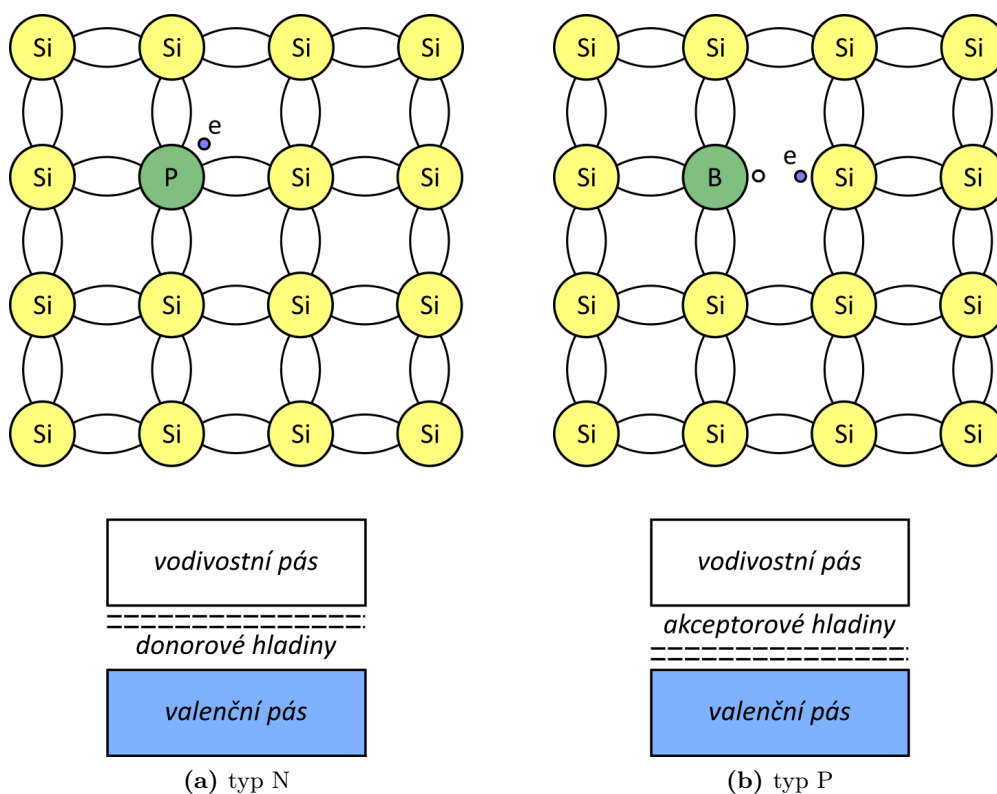
<sup>37</sup>Počet částic na jednotkový objem.

<sup>38</sup>Polovodič zahřátý na vysokou teplotu je ponořen do plynné atmosféry, která obsahuje požadovanou příměs [36, s. 387]. Její atomy difundují do objemu materiálu skrze jeho povrch.

## 1. Základy beta spektrometrie

implantace<sup>39</sup>. Výsledkem je *nevlastní* (též *extristický*) polovodič, přičemž v závislosti na přidané příměsi je rozlišován *typ N* s přebytkem elektronů ve vodivostním pásu a *typ P* s přebytkem děr v pásu valenčním.

V následujících úvahách bude předpokládáno, že výchozí polovodičový materiál je tvořen čtyřmocným prvkem (křemík, germanium). Při nahrazení některého z atomů v krystalové mřížce pětímocnou<sup>40</sup> příměsí jsou čtyři z pěti valenčních elektronů využity pro vytvoření kovalentní vazby s okolními atomy (viz obrázek 1.7a). Zbývající elektron obsazuje energetickou hladinu utvořenou v zakázaném pásu v blízkosti pásu vodivostního<sup>41</sup>. Je jen slabě vázán, a proto pouze velmi málo energie postačí, aby se stal vodivostním elektronem (bez vzniku díry). Příměs tohoto typu poskytuje volné elektrony, pročez je označována jako *donor*. Nadbytek elektronů vzniklý ionizací atomů donoru vede k snížení koncentrace děr. V materiálech s touto příměsí (polovodič typu N) je tudíž vedení elektrického proudu dáno především pohybem elektronů, zatímco díry přispívají jen velmi málo. V polovodiči typu N jsou proto elektrony *majoritními* nositeli náboje a díry *minoritními*.



**Obrázek 1.7:** Nevlastní polovodiče (podle [47, s. 254 a 256]). Na horní části obrázku jsou znázorněny kovalentní vazby mezi jednotlivými atomy v krystalu. Vlevo je jeden atom křemíku nahrazen pětímocným fosforem (donorem), vpravo třímocným borem (akceptorem). V dolní části jsou pro oba případy doplněna zjednodušená schémata pásové struktury, v nichž jsou znázorněny donorové/akceptorové hladiny v zakázaném pásu.

<sup>39</sup>Polovodičový materiál je umístěn do svazku ionizovaných atomů příměsi produkovaného urychlovačem [36, s. 389]. Energie iontů určuje hloubku, do níž příměsí v materiálu proniknou.

<sup>40</sup>Prvek z V. skupiny periodické tabulky; kupříkladu arsen, fosfor nebo antimon [35, s. 221].

<sup>41</sup>Energetický rozdíl mezi touto hladinou a vodivostním pásem je v germaniu 0,01 eV a v křemíku 0,05 eV [35, s. 221].



Vodivostní charakteristiky polovodiče podobným způsobem ovlivní i trojmocná příměs<sup>42</sup>, jejíž atom má valenčních elektronů méně, než je počet kovalentních vazeb se sousedními atomy, a jedna tak zůstává nesaturována. V důsledku toho dochází k ovlivnění pásové struktury materiálu, a to se projeví vznikem nové energetické hladiny v zakázaném pásu v blízkosti pásu valenčního, která může být snadno obsazena, například vlivem tepelné excitace. Příměs tohoto typu elektrony přijímá, a proto je označována jako *akceptor*. Obsazením akceptorových hladin dochází ke zvýšení koncentrace děr. V takovém polovodiči (typu P) jsou tedy díry majoritními nositeli náboje a elektrony minoritními.

Obecně vzato, dopováním se zvyšuje celková koncentrace nositelů náboje, a tedy i elektrická vodivost materiálu [36, s. 372]. Nezávisle na typu v nevlastním polovodiči však platí, že součin koncentrace elektronů  $n$  a děr  $p$  je roven kvadrátu intrinsické koncentrace  $n_i$  dané vztahem (1.44) [35, s. 221]. Dále, jelikož dopovaný krystal zůstává jako celek elektricky nenabitý, velikost kladného a záporného náboje musí být identická, tak jak vyjadřuje rovnice

$$N_D + p = N_A + n, \quad (1.45)$$

kde  $N_D$  a  $N_A$  jsou koncentrace donorů a akceptorů. V polovodiči typu N je počet akceptorových příměsí nulový a dále platí, že  $n \gg p$ . Z toho plyne, že koncentrace volných elektronů  $n$  zhruba odpovídá koncentraci donorů  $N_D$ . V polovodiči typu P lze dovést podobný vztah mezi koncentrací děr  $p$  a akceptorů  $N_A$ .

Typické koncentrace dopantu jsou řádu  $10^{13}$  atomů na  $\text{cm}^3$ , zatímco koncentrace atomů základního materiálu jsou  $10^{22}$  na  $\text{cm}^3$  [35, s. 221]. Vyššího dopování úrovně až  $10^{20}$  atomů na  $\text{cm}^3$  se používá při výrobě tenkých vrstev určených například pro konstrukci elektrických kontaktů polovodičových součástek. Nízká koncentrace minoritních nositelů náboje v silně dopovaných polovodičích (označovaných  $N^+$  a  $P^+$ ) umožňuje vytvoření blokovacích (neinjektujících) struktur.

### Kompenzované polovodiče

Pokud je polovodič dopován jak donorovými, tak akceptorovými příměsemi ve stejných koncentracích, dochází k jejich vzájemnému vykompenzování a materiál se tak svými vlastnostmi blíží vlastnímu (intrinsickému) polovodiči<sup>43</sup> [36, s. 374–375]. *Kompenzovaného polovodiče* není obecně snadné dosáhnout, neboť i malá odchylka v koncentracích jednotlivých příměsí vede ke změně vlastností materiálu na typ N, nebo P. V současnosti jediným užívaným postupem pro vytvoření kompenzované oblasti většího objemu je driftování křemíku nebo germania ionty lithia (podrobněji v kapitole 1.3.5).

#### 1.3.4 Materiály pro polovodičové detektory

Pro konstrukci polovodičových detektorů ionizujícího záření se v největší míře využívá křemíku nebo germania (přehled jejich základních vlastností je uveden v tabulce 1.2) [36, s. 486–487]. Výhodou uvedených materiálů jsou dobré charakteristiky sběru náboje (pohyblivost a střední doba života nositelů), díky kterým je možné vyrobit detektory dostatečně velkých objemů, aniž by docházelo k výraznému nárůstu ztrát vlivem zachytu a rekombinace. Další žádoucí vlastností je dobré energetické rozlišení, které má souvislost s velikostí zakázaného pásu – jeho menší šířka, a tedy nižší energie potřebná na vytvoření jednoho páru elektron-díra, zvyšuje počet nositelů náboje vzniklých při

<sup>42</sup>Prvek z III. skupiny periodické tabulky, například galium, bor nebo indium [35, s. 221].

<sup>43</sup>Vzhledem k vlastnostem blízkým intrinsickým polovodičům se též pro označení kompenzovaných oblastí užívá písmeno I.

## 1. Základy beta spektrometrie

absorpci daného množství energie, a tudíž vede ke snížení statistických fluktuací signálu. Nevýhodou však je nárůst tepelně generovaného šumu, v důsledku čehož se provoz zejména germaniových (ale i některých křemíkových) detektorů neobejde bez chlazení.

Při využití polovodičového detektoru pro spektrometrii záření gama je dalším důležitým parametrem (efektivní) protonové číslo materiálu, jelikož účinný průřez fotoelektrického jevu je na něm výrazně závislý<sup>44</sup>. V tomto kontextu je germanium ( $Z = 32$ ) lepší křemíku ( $Z = 14$ ). Pro detekci elektronů (záření beta) je naopak křemík vhodnější, neboť v něm dochází v menší míře k nežádoucím jevům, jako je zpětný rozptyl částic nebo produkce brzdného záření [36, s. 483].

**Tabulka 1.2:** Vlastnosti křemíku a germania

	Si	Ge
Protonové číslo	14	32
Hustota ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ )	2,33	5,32
Šířka zakázaného pásu při 0 K (eV)	1,165	0,746
Šířka zakázaného pásu při 300 K (eV)	1,115	0,665
Energie na vytvoření jednoho páru při 77 K (eV)	3,76	2,96
Energie na vytvoření jednoho páru při 300 K (eV)	3,62	×
Pohyblivost elektronů při 77 K ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$2,1 \cdot 10^4$	$3,6 \cdot 10^4$
Pohyblivost elektronů při 300 K ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	1350	3900
Pohyblivost děr při 77 K ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$1,4 \cdot 10^4$	$4,2 \cdot 10^4$
Pohyblivost děr při 300 K ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	480	1900

Data v tabulce jsou převzata z [36, s. 368].

V menší míře jsou v detektorové technice využívány i další materiály, které jsou nadále hledány s cílem, aby přinesly zlepšení těch parametrů, v nichž tradiční křemík nebo germanium nevynikají. Jako perspektivní se jeví některé sloučeninové polovodiče – například telurid kademnatý (CdTe), jodid rtuťnatý (HgI<sub>2</sub>) nebo telurid zinečnatokademnatý (CdZnTe), které jsou v dnešní době již komerčně využívány [36, s. 487–490]. Jejich výhodou je větší šířka zakázaného pásu, která umožňuje provoz detektoru bez nutnosti chlazení<sup>45</sup>. Další předností, ve vztahu k detekci záření gama, je vysoká hodnota efektivního protonového čísla<sup>46</sup>. Přes uvedené slibné vlastnosti se využití sloučeninových polovodičů potýká s určitými problémy, jako je například sběr náboje. Ve srovnání s křemíkem nebo germaniem se ve větší míře uplatňuje rekombinace a záchyt na pastech, pročež podstatná část vytvořeného náboje není sebrána, a tudíž nepřispěje k měřené odezvě. Sloučeninové polovodiče se také obvykle vyznačují řádově nižší pohyblivostí děr vůči elektronům, což se projevuje zhoršením energetického rozlišení a závislostí odezvy na místě interakce.

### 1.3.5 Princip polovodičových detektorů ionizujícího záření

Ionizující záření při interakcích v polovodičovém materiálu způsobuje vznik volných nositelů náboje. Jejich sebrání (a tedy i zaznamenání dané interakce) je zajištěno elek-

<sup>44</sup>Závislost účinného průřezu fotoefektu  $\sigma_p$  na protonovém čísle  $Z$  popisuje formule  $\sigma_p = Z^n / E_\gamma^{3,5}$ , kde  $E_\gamma$  značí energii fotonů a  $n$  je číslo ležící mezi 4 a 5 [47, s. 85].

<sup>45</sup>V některých aplikacích je chlazení využito pro snížení šumu, jelikož měřený signál je slabý. Postačí však elektrické chlazení pomocí Peltierova článku, není nutné dosáhnout teplot kapalného dusíku (77 K) [36, s. 488].

<sup>46</sup>Protonová čísla prvků tvořících uvedené sloučeniny: Cd 48, Te 52, Hg 80, I 53, Zn 30.

trickým polem působícím v celém citlivém objemu detektoru<sup>47</sup>. Pro vytvoření takového pole však nepostačí prosté připojení polovodiče pomocí ohmických kontaktů do obvodu ke zdroji vysokého napětí, neboť tepelně generovaný šumový proud by o několik řádů převyšil měřený signál<sup>48</sup>. Řešením je využití konfigurace s blokuujícími (neinjktujícími) kontakty, která zajistí snížení elektrického proudu tekoucího polovodičem. Příkladem struktury tohoto typu je PN přechod.

### PN přechod

Přechod PN vzniká na rozhraní mezi polovodiči typu P a N<sup>49</sup>. V důsledku rozdílné koncentrace nositelů náboje v jednotlivých částech dochází k počáteční difúzi děr do oblasti N a volných elektronů do oblasti P [36, s. 380–381]. Majoritní nositelé náboje, kteří takto přejdou do oblasti, v níž tvoří nositele minoritní, rychle zrekombinují. Také též za sebou zanechávají nepohyblivé ionizované atomy příměsí – v oblasti typu N v blízkosti rozhraní dochází k odkrytí kladného náboje, v oblasti typu P záporného<sup>50</sup>. V původně elektricky neutrálním materiálu vyvstává nábojová nerovnováha, která vede ke vzniku vtištěného pole, jež působí proti difúzi nositelů náboje, a jejich další pohyb tak zastaví.

Zóna vytvořená na rozhraní polovodičů různého dopování neobsahuje volné nositele náboje a je nazývána *vyprázdněná vrstva* (případně *ochuzená* nebo *hradlová*) či též *oblast prostorového náboje*. Její velikost je možné určit řešením Poissonovy rovnice. Za předpokladu homogenní distribuce vázaného náboje pro celkovou šířku vyprázdněné oblasti  $d$  platí

$$d = \left( \frac{2\varepsilon V_0}{e} \cdot \frac{N_A + N_D}{N_A N_D} \right)^{1/2}, \quad (1.46)$$

kde  $e$  je velikost elementárního elektrického náboje,  $\varepsilon$  permitivita prostředí,  $V_0$  je kontaktní potenciál (difúzní napětí),  $N_A$  a  $N_D$  jsou koncentrace akceptorů a donorů [35, s. 225]. Vyprázdněná vrstva zasahuje do obou oblastí tvořících PN přechod. Obvykle je však jedna z částí výrazněji dopovaná než druhá. V takovém případě je oblast prostorového náboje lokalizována nesymetricky podél rozhraní a je více rozšířená do méně dopované části.

Polovodičový přechod PN má vlastnosti diody, může tedy být zapojen do elektrického obvodu ve dvou polaritách. Při zapojení v *propustném směru* – tedy anody (oblast P) ke kladnému pólu zdroje a katody (oblast N) k zápornému – může elektrický proud diodou protékat. Vnější elektrické pole je v tomto případě opačného směru vzhledem k poli vtištěnému, a díky tomu je jeho působením hradlová vrstva, která tvoří bariéru bránící pohybu majoritních nositelů náboje, redukována. Propustný směr je

<sup>47</sup>Hodnota vysokého napětí vytvářejícího elektrické pole pro sběr nositelů náboje se liší podle typu detektoru a nabývá obvykle hodnot stovek až tisíců voltů [35, s. 243].

<sup>48</sup>Uvažujme křemíkový detektor tloušťky 1 mm a plochy 1 cm<sup>2</sup> vybavený dvěma ohmickými kontakty. Měrný elektrický odpor intrinsického křemíku je  $2,3 \cdot 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$  (při teplotě 300 K) [36, s. 368]. Na detektor je přivedeno napětí 1000 V, dle Ohmova zákona jím tedy protéká proud  $I_{\text{noise}} = \frac{1000}{2,3 \cdot 10^4} = 43 \text{ mA}$ .

Pro ilustraci velikosti užitečného signálu poslouží případ absorpce částice o energii 1 MeV. Na vytvoření jednoho páru elektron-díra v křemíku (300 K) je potřeba průměrně 3,62 eV, při úplné absorpci tak v daném případě vznikne  $n \approx 2,76 \cdot 10^5$  párů. Intenzita elektrického pole je dostatečně vysoká, tudíž nositelé náboje dosahují saturované driftové rychlosti řádu  $10^7 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  [36, s. 370]. Doba sběru náboje tedy řádově bude  $t = 10 \text{ ns}$ . Střední hodnotu proudu tak je možné odhadnout jako  $I_{\text{signal}} = \frac{n \cdot e}{t} \approx 4 \mu\text{A}$  ( $e$  značí elementární elektrický náboj).

<sup>49</sup>PN přechod není možné realizovat prostým spojením dvou samostatných polovodičových krystalů [35, s. 223]. Nezbytné je vytvoření oblastí P a N v jednom krystalu bez porušení krystalové mřížky, čehož je dosaženo změnou koncentrací příměsí pomocí dopovacích technik.

<sup>50</sup>Jako celek zůstává polovodič elektricky neutrální, k přesunu náboje dochází jen lokálně.

## 1. Základy beta spektrometrie

využíván v elektrotechnice například pro účely usměrňování, ale pro detekci a spektrometrii ionizujícího záření větší význam nemá.

Při zapojení v *závěrném směru* – anody k zápornému pólu zdroje a katody ke kladnému – elektrický proud diodou neteče<sup>51</sup>. Vnější elektrické pole působí ve stejném směru jako pole vtištěné, a dochází proto k zvětšení rozměrů vyprázdněné oblasti. Ta se s ohledem na absenci volných nositelů náboje nabízí k využití coby citlivý objem detektoru ionizujícího záření. Její šířku lze určit podle vztahu (1.46), v němž je kontaktní potenciál  $V_0$  nahrazen součtem  $V_0$  a předpětí  $V_B$ .

Na vyprázdněnou oblast lze z elektrického hlediska pohlížet také jako na kondenzátor (izolátor mezi dvěma elektrodami), který je charakterizován určitou kapacitou  $C$ . Pro planární geometrii přechodu její hodnotu určuje vztah pro deskový kondenzátor

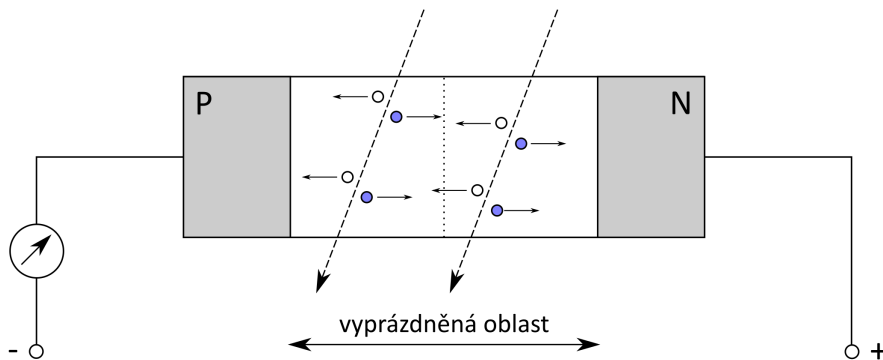
$$C = \varepsilon \cdot \frac{S}{d}, \quad (1.47)$$

kde  $S$  je plocha elektrod a  $d$  jejich vzájemná vzdálenost (v tomto případě šířka hradlové vrstvy). S využitím vztahu (1.46) je možné vyjádření kapacity upravit do tvaru

$$C \cong S \cdot \left( \frac{e\varepsilon N}{2 \cdot (V_0 + V_B)} \right)^{1/2}, \quad (1.48)$$

v němž  $N$  označuje koncentraci dopantů na méně dopované straně přechodu (předpokládáme, že  $N_A \gg N_D$ , nebo  $N_D \gg N_A$ ). Z hlediska minimalizace šumu je vhodné, aby kapacita detektoru byla co nejmenší [36, s. 387], čehož lze podle (1.48) dosáhnout použitím vysokého předpětí  $V_B$ . Maximální provozní závěrné napětí je limitováno hodnotou průrazného napětí, při jehož překročení by vysoká intenzita elektrického pole způsobila zničení PN přechodu.

Na obrázku 1.8 je schematické znázornění využití PN přechodu zapojeného v závěrném směru jako detektoru. Dopadající ionizující záření vytváří ve vyprázdněné oblasti volné elektrony a díry, které se působením vnějšího elektrického pole pohybují (vzájemně v opačném směru) a tvoří přitom elektrický proud, který je možné měřit. Jeho velikost je úměrná množství deponované energie.



**Obrázek 1.8:** Využití PN přechodu jako detektoru

Detektory založené na prostém PN přechodu jsou vyráběny z monokrystalu polovodiče s typem vodivosti P nebo N, jehož část je následně předopována na opačný typ vodivosti. Užívá se různých technologických postupů (viz kapitola 1.3.3), které ovlivňují výsledné vlastnosti detektoru. Uplatnění tohoto typu polovodičových senzorů je

<sup>51</sup>Přesněji vzato, přechod blokuje pouze majoritní nositele náboje, minoritní nosiče přes hradlovou vrstvu procházet mohou, což se projevuje existencí malého závěrného proudu.

především ve spektrometrii nabitých částic, přičemž křemíkové detektory s povrchovou bariérou<sup>52</sup> byly v minulosti využívány i pro účely spektrometrie beta [50]. Křemíkové diody poskytují výborné energetické rozlišení a časové charakteristiky, stabilitu a tenké vstupní okénko. Určitou nevýhodou je malá šířka vyprázdňené oblasti, která v detektorech obvykle dosahuje maximálně 1–2 mm [36, s. 467].

### PIN struktura

Řešení problému nedostatečné velikosti vyprázdňené oblasti detektorů založených na prostém přechodu PN může být využití struktury PIN. Ta je tvořena vysoce čistou nebo kompenzovanou oblastí polovodiče (I), která se nachází mezi částmi dopovanými na typ P, respektive N, jež představují neinjektující kontakty pro připojení do elektrického obvodu. Na rozdíl od PN přechodu není v tomto případě citlivý objem určen velikostí přiloženého napájecího napětí, ale fyzickými rozměry střední oblasti I. Vnější elektrické pole tak jen zajišťuje rychlý sběr nositelů náboje vytvořených zářením.

Příkladem struktury PIN využívané pro měření záření beta jsou křemíkové detektory driftované lithiem [29, s. 206]. Oproti výše uvedeným detektorům s povrchovou bariérou nabízí citlivý objem o typické tloušťce 5 až 10 mm [36, s. 467], což je již dostatečné pro úplnou absorpci elektronů běžně emitovaných radionuklidů při přeměně.

Při výrobě detektoru Si(Li) je jako výchozí materiál obvykle brán krystal křemíku typu P [36, s. 467–469]. Na jeden z jeho povrchů je nanášeno lithium, které v důsledku difúze proniká do hloubky materiálu. Jelikož atom lithia se v křemíku chová jako donor, dochází u exponovaného povrchu k vytvoření vrstvy polovodiče typu N. Vzniklý přechod PN je následně zapojen v závěrném směru. Působením elektrického pole jsou zvýšené teploty lithiové ionty driftovány do oblasti typu P. Koncentrace donorů a akceptorů se v materiálu vyrovnává, a vzniká tak oblast kompenzovaného polovodiče. Na straně, ze které driftování lithia započalo, je vytvořena tenká vrstva  $N^+$  sloužící jako jeden z elektrických kontaktů detektoru. Druhý je zhotoven pokovením protilehlého povrchu nekompenzované části polovodiče typu P. Na rozdíl od germania je pohyblivost lithiových iontů za pokojové teploty v křemíku nízká, a není proto nutné fixovat vzniklou strukturu trvalým ochlazením na teplotu kapalného dusíku (77 K). Po dobu měření je však chlazení nezbytné, neboť s ohledem na velikost kompenzované oblasti jsou tepelné fluktuace závěrného proudu nezanedbatelným zdrojem šumu.

Si(Li) detektor je obvykle instalován v evakuovaném kryostatu, což znamená, že elektrony ztrácí část své energie ve vstupním okénku (a okolním vzduchu) [51]. To činí problematickým měření částic o nízkých energiích ( $< 50$  keV). Řešením může být použití bezokénkového systému, ve kterém je detektor spolu se vzorkem umístěn do společné komory, z níž je následně vzduch odčerpán.

Obdobným způsobem byly konstruovány i germaniové detektory driftované lithiem, které byly využívány pro spektrometrii záření gama. Ty jsou však v dnešní době již prakticky nahrazeny detektory typu HPGe, v nichž je citlivý objem (oblast I) vyroben z vysoce čistého<sup>53</sup> germania. Výhodou HPGe detektorů je cyklovatelnost teploty, tedy že na rozdíl od Ge(Li) nemusí být chlazeny permanentně, ale jen za provozu.

<sup>52</sup>Detektory s povrchovou bariérou využívají přechodu vzniklého na rozhraní kov-polovodič (například křemík typu N a zlato nebo křemík typu P a hliník) [35, s. 233].

<sup>53</sup>Zbytková koncentrace příměsí menší než  $10^{10}$  atomů na  $\text{cm}^3$  [35, s. 240]. Technologie pro dosažení požadované čistoty existuje pro germanium, leč pro křemík nikoli. Důvodem může být vyšší bod tání (křemík  $1410$  °C, germanium  $959$  °C), který znesnadňuje vyloučení nečistot při rafinaci [36, s. 415].

## 1.4 Spektrometrie záření beta – další metody

Vedle křemíkových detektorů diskutovaných v předchozí podkapitole 1.3 je možné získat spektrum elektronů emitovaných při beta přeměně radionuklidu též s použitím jiného přístrojového vybavení. Následující část práce přináší popis základních principů a vlastností jednotlivých systémů.

### 1.4.1 Magnetické spektrometry

Mezi metody umožňující měření beta spekter s největší přesností patří ty využívající vlivu magnetického pole na pohyb elektronu. Nabitá částice nesoucí náboj  $e$  a pohybující se rychlostí  $v$  v rovině kolmé k poli popsanému velikostí magnetické indukce  $B$  je z původního směru odchýlena na kruhovou dráhu o poloměru  $R$ , přičemž platí

$$Bev = \frac{mv^2}{R}, \quad (1.49)$$

kde  $m$  je relativistická hmotnost částice. Uvedený vztah (1.49) lze upravit do tvaru

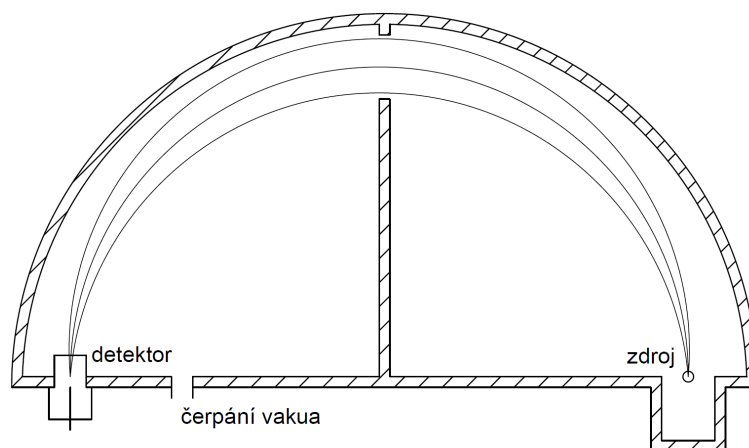
$$p = BeR, \quad (1.50)$$

jenž ilustruje aplikaci výše popsaného jevu pro měření spekter beta záření. Je-li hodnota poloměru  $R$  známa, potom je hledaná hybnost  $p$  přímo úměrná velikosti magnetické indukce  $B$  příslušného pole.

Magnetické spektrometry se skládají ze tří základních částí: zdroje, magnetického fokusačního systému a detektoru [17, s. 211–212]. Poloha zdroje a detektoru, tedy i hodnota poloměru  $R$ , je obvykle fixována a volba hybnosti, respektive energie, je prováděna změnou velikosti magnetické indukce. Vzájemná odlišnost jednotlivých typů níže popsaných spektrometrů je především v rozdílném způsobu aplikace magnetického pole.

#### Magnetický spektrometr transverzálního typu

Konstrukce polokruhového transverzálního (příčného) typu magnetického spektrometru je naznačena na obrázku 1.9. Elektrony emitované ze zdroje v ne příliš odlišných směrech jsou fokusovány do místa detektoru. Homogenní magnetické pole působí kolmo k jejich pohybu (tedy kolmo k nákresně).



**Obrázek 1.9:** Schematické znázornění transverzálního magnetického spektrometru (nakresleno podle vzoru v [24, s. 123])

Nevýhodou výše zmíněného systému je skutečnost, že fokusační vlastnosti magnetického pole se projevují jen v jedné rovině (rovině obrázku). Řešení tohoto nedostatku nabízí metoda *dvojitě fokusace*, které je dosaženo změnou pole homogenního za axiálně symetrické nehomogenní [52]. Magnetická indukce  $B$  vhodného pole se s poloměrem  $R$  mění podle

$$B = B_0 \cdot \left( \frac{R_0}{R} \right)^n, \quad (1.51)$$

kde  $n \in (0, 1)$  je konstanta a  $B_0$  hodnota  $B$  na orbitě o poloměru  $R_0$  [24, s. 125].

Pro vysvětlení principu dvojitě fokusace nyní uvažujme, že zdroj záření se nachází v magnetickém poli popsaném (1.51) vykazujícím symetrii podle osy  $z$ . Je umístěn ve vzdálenosti  $R_0$  od osy  $z$  v rovině  $z = 0$ , jež též určuje zrcadlovou symetrii problému. Elektron emitovaný v této rovině ve směru kolmém k průvodiči  $R_0$  se bude pohybovat po takzvané *referenční kružnici* úhlovou rychlostí  $\omega_0$ , pro niž dle (1.50) platí

$$\omega_0 = \frac{B_0 e}{m}. \quad (1.52)$$

Částice opustivší zdroj pod mírně odlišným úhlem vykazují harmonické oscilace pohybu jak ve směru radiálním, tak ve směru  $z$  [17, s. 213]. Příslušné úhlové rychlosti jsou rovny

$$\omega_R = \sqrt{1-n} \cdot \omega_0, \quad \omega_z = \sqrt{n} \cdot \omega_0. \quad (1.53)$$

Pro dosažení fokusačního efektu je nezbytné, aby oscilace byly synchronizovány v tom smyslu, že návrat na referenční kružnici po polovině obrátky v obou směrech proběhne ve stejný okamžik, tedy  $\omega_R = \omega_z$ . Tato podmínka je splněna pro  $n = \frac{1}{2}$ . Jelikož  $\omega_R = \omega_z = \frac{\omega_0}{\sqrt{2}}$ , dvojitá fokusace se projeví, pokud je mezi zdrojem a detektorem vymezen úhel  $254^\circ 33'$ .

### Magnetický spektrometr longitudinálního typu

Funkce spektrometrů longitudinálního typu je postavena na obdobných principech, jakých je využito při konstrukci magnetických čoček [17, s. 213–214]. Magnetické pole u tohoto systému působí podél osy spektrometru, která pro další úvahy budiž označena  $z$ . Na obrázku 1.10 je schematicky znázorněna trajektorie elektronu emitovaného vzhledem k  $z$  pod úhlem  $\theta$  rychlostí  $v$ . Jelikož složka rychlosti ve směru intenzity magnetického pole jím není ovlivněna, je pro dráhu podél osy  $z$  v závislosti na čase  $t$  možné psát

$$z = vt \cos \theta. \quad (1.54)$$

V rovině kolmé k ose elektron vykazuje kruhový pohyb charakterizovaný úhlovou rychlostí  $\omega$  odpovídající *cyklotronové frekvenci* definované vztahem (1.52).

Vzdálenost, kterou částice urazí podél osy  $z$  za dobu odpovídající jedné periodě  $T = \frac{2\pi}{\omega}$ , je rovna

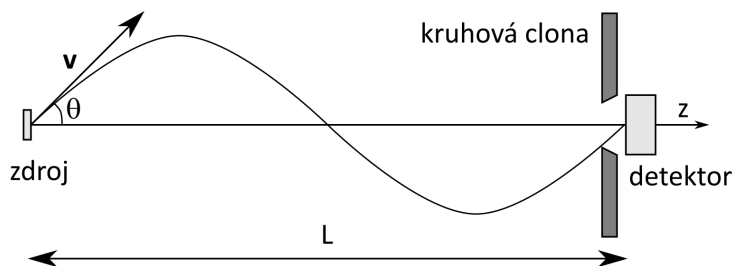
$$L = vT \cos \theta = \frac{2\pi m v}{e B} \cos \theta. \quad (1.55)$$

Pokud je tedy detektor vzdálen od zdroje o  $L$ , pak mezi hybností elektronu  $p$  a magnetickou indukcí  $B$  existuje lineární závislost

$$LB = \frac{2\pi}{e} p \cos \theta. \quad (1.56)$$

Konstanta úměrnosti v rovnici (1.56) však závisí na úhlu emise částice  $\theta$ . Interval měřených úhlů je možné vymežit použitím prstencové clony.

## 1. Základy beta spektrometrie



**Obrázek 1.10:** Princip longitudinálního magnetického spektrometru (nakresleno podle vzoru v [17, s. 214])

### 1.4.2 Scintilační detektory

Nejen k spektrometrickému měření beta radionuklidů jsou využívány i scintilátory, tedy materiály transformující ionizující záření na viditelné, případně ultrafialové světlo [36, s. 356]. Charakter jejich odezvové funkce je ovlivněn druhem použitého materiálu a jeho rozměry. Podobně jako u křemíkových detektorů je možné pro monoenergetický svazek elektronů pozorovat rozšíření peaku úplné absorpce směrem k nižším energiím v důsledku zpětného rozptylu a úniku brzděného záření. Jelikož vliv obou nežádoucích jevů narůstá spolu protonovým číslem materiálu, jsou pro spektrometrii elektronů preferovány zejména organické scintilátory. Používány jsou ve formě pevné i kapalné<sup>54</sup>, která má tu výhodu, že odstraňuje problém absorpce záření v okénku detektoru a vzorku.

Své místo však ve výzkumu beta přeměny měly a mají i anorganické krystaly [53]. Jedná se o techniku využívající přítomnosti některých radionuklidů v samotném scintilátoru, do kterého mohou být inkorporovány při růstu krystalu, nebo jsou v něm přirozeně přítomné (př.  $^{138}\text{La}$  v  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$ ). Scintilující materiál tak slouží jako zdroj záření i detektor zároveň.

### 1.4.3 Magnetické mikrokalorimetry

Magnetické mikrokalorimetry jsou typem kryogenních detektorů, u nichž je částic v materiálu deponovaná energie  $E$  měřena prostřednictvím změny teploty  $\Delta T$  [54, s. 302 a 303]. Tyto dvě veličiny jsou spolu provázány vztahem

$$\Delta T = \frac{E}{C}, \quad (1.57)$$

v němž  $C$  označuje tepelnou kapacitu absorbátoru. Je výhodné, aby měření probíhalo při nízkých teplotách (typicky 10 až 50 mK), neboť díky tomu je maximalizován žádoucí signál (tepelná kapacita materiálu klesá s teplotou) a naopak minimalizován vliv tepelného šumu. Za účelem obnovení definovaných podmínek měření po každé interakci je absorbátor tepelně spojen s rezervoárem udržovaným na konstantní teplotě.

Paramagnetická slitina, jejíž magnetizace se v přítomnosti magnetického pole (řádu mT) výrazně s teplotou mění, jsou v dobrém tepelném kontaktu s absorbátorem, slouží jako teplotní senzor. Odečet hodnot je prováděn nízkošumovým magnetometrem SQUID (angl. *superconducting quantum interference device* – supravodivé kvantové interferenční zařízení založené na principu Josephsonova jevu).

Při užití magnetických mikrokalorimetrů pro beta spektrometrii je zdroj záření zcela obklopen absorbujičím materiálem [54, s. 303] Toho je dosaženo zasazením tenké

<sup>54</sup>Kapalné scintilátory jsou vyráběny rozpuštěním organického scintilátoru ve vhodném organickém rozpouštědle [36, s. 227].



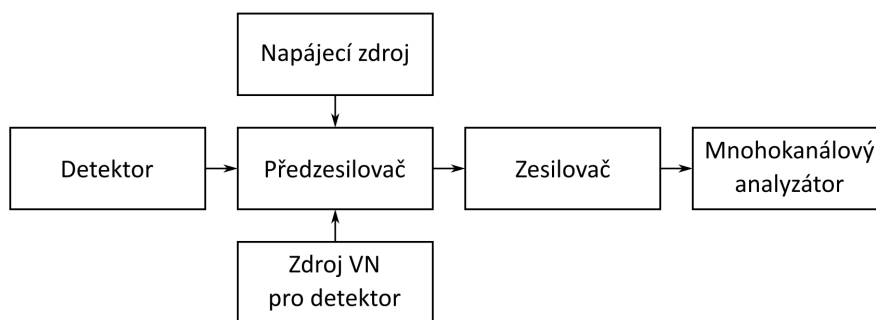
folie, na níž je nanesena aktivní vrstvička, mezi dva díly absorbátoru, nebo přímým deponováním aktivity na jednu z jeho částí. Jsou-li rozměry absorbující vrstvy dostatečné k zastavení emitovaných částic všech energií (lze ověřit Monte Carlo simulací), je s ohledem na měřicí geometrii  $4\pi$  sr detekční účinnost zařízení takřka 100 %.

## 1.5 Zpracování signálu z detektoru

Výstupem detektoru provozovaného v pulzním režimu je určité množství náboje, jenž je v jeho citlivém objemu uvolňován působením ionizujícího záření. To dává vzniknout elektrickému impulsu<sup>55</sup>, jehož dalším zpracováním lze extrahovat informace o proběhlé interakci. Amplituda nese informaci o deponované energii, což je hodnota důležitá pro spektrometrické aplikace. Druhý údaj, vztahující se k času interakce, je potřebný v koincidenčních měřeních nebo při vyhodnocení měření dráhových detektorů v experimentech částicové fyziky.

Obecně existují dva fundamentální přístupy při zpracování signálu – jeho úprava a vyhodnocení pomocí řady analogových obvodů, nebo konverze originálního signálu z detektoru analogově-digitálním převodníkem na číslicový údaj a následné zpracování s využitím prvků digitální techniky. Ani digitální zpracování signálu však zcela neeliminuje potřebu analogových obvodů, neboť i v tomto případě je napřed nutné pulzy z detektoru přinejmenším zesílit a někdy i tvarovat.

Základní komponenty spektrometrické trasy jsou znázorněny na blokovém schématu na obrázku 1.11. Princip jejich funkce a vlastnosti jsou podrobněji rozvedeny v následujících částech podkapitoly. Jednotlivé obvody analogového řetězce jsou obvykle vyráběny v provedení standardizovaných modulů<sup>56</sup>, které lze vzájemně propojovat bez problému s kompatibilitou mezi zařízeními od různých výrobců. Komerční systémy digitálního zpracování signálu mají obvykle podobu kompaktního elektronického zařízení, které v jednom boxu integruje všechny potřebné elektronické obvody. Je ovládáno softwarem z počítače, k němuž je připojeno přes univerzální sériovou sběrnici (USB), nebo prostřednictvím síťového rozhraní (například Ethernet).



**Obrázek 1.11:** Základní elektronické moduly spektrometrického řetězce

### 1.5.1 Předzesilovač

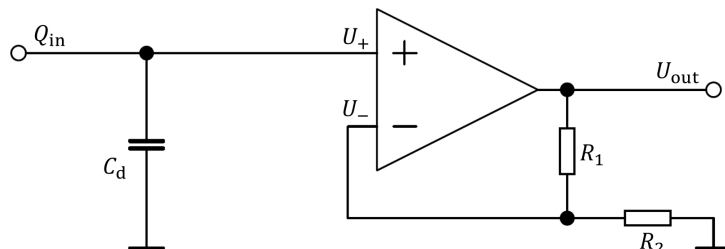
Elektrické pulzy produkované většinou detektorů ionizujícího záření jsou příliš malé na to, aby mohly být přímo počítány a případně měřena jejich amplituda [36, s. 614–615]. Slabý signál je proto nejprve zesílen předzesilovačem, který též plní roli impedančního

<sup>55</sup>Nestabilní změna ustáleného stavu proudu nebo napětí.

<sup>56</sup>Nejpoužívanější modulární systémy v aplikacích jaderné elektroniky jsou NIM (Nuclear Instrumentation Methods), CAMAC (Computer Automated Measurement and Control) a VME (Versa Module Europe) [36, s. 801].

## 1. Základy beta spektrometrie

přizpůsobení mezi detektorem s vysokou výstupní impedancí a přenosovým vedením s charakteristickou impedancí malou. Předzesilovač obvykle tvoří s detektorem jeden celek, neboť co nejkratší spojovací vodiče minimalizují kapacitní zátěž detektoru, která ovlivňuje poměr signál-šum. Na rozdíl od dalších zesilovacích stupňů, předzesilovač impulzy většinou nijak netvaruje. Předzesilovač taktéž zpravidla zajišťuje přivedení vysokého napětí z napájecího zdroje na detektor.



**Obrázek 1.12:** Schéma napětově citlivého předzesilovače

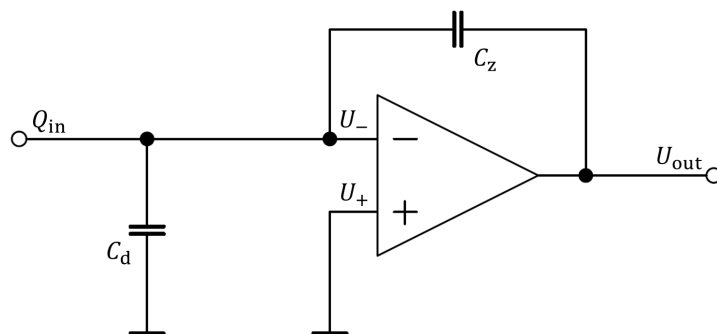
Podle konstrukce rozlišujeme dva druhy předzesilovačů – *napětově citlivý* a *nábojově citlivý* [36, 615]. Schéma prvního typu z uvedených je znázorněno na obrázku 1.12. V tomto zapojení platí, že amplituda výstupního napětí  $U_{out}$  je úměrná vstupnímu napětí  $U_+$ , přičemž konstanta úměrnosti (zesílení) je dána velikostí odporů  $R_1$  a  $R_2$  zapojených do zpětné vazby zesilovače<sup>57</sup>. Hodnotu napětí  $U_+$  lze vyjádřit vztahem

$$U_+ = \frac{Q_{in}}{C_d} \quad (1.58)$$

kde  $Q_{in}$  je velikost sebraného náboje z detektoru a  $C_d$  značí vstupní kapacitu obvodu, v níž je zahrnut vliv předzesilovače i detektoru. Celkově se výstupní napětí rovná

$$U_{out} \cong \frac{R_1 + R_2}{R_2} \cdot \frac{Q_{in}}{C_d}. \quad (1.59)$$

Z (1.59) je patrné, že odezva tohoto typu předzesilovače závisí na kapacitě detektoru. To není problémem v případech, kde je její hodnota konstantní, neboť pak není proporcionalita mezi nábojem a výstupním napětím narušena. Pro polovodičové detektory však tento předpoklad není splněn.



**Obrázek 1.13:** Schéma nábojově citlivého předzesilovače

Výše uvedenou nepříznivou závislost výstupu na kapacitě detektoru řeší konstrukce nábojově citlivého předzesilovače (viz schéma na obrázku 1.13) [47, s. 468]. Do zpětné

<sup>57</sup>Za předpokladu, že zesílení zesilovače bez zpětné vazby je velké (v ideální aproximaci nekonečné).

vazby zesilovače je vložen kondenzátor o kapacitě  $C_Z$ , na němž dochází k integraci zářným vytvořeného náboje  $Q_{in}$ . Lze ukázat, že kondenzátor ve zpětné vazbě se v obvodu projevuje jako dynamická kapacita velikosti  $(A + 1) \cdot C_Z$  připojená paralelně k  $C_d$  na vstup. Pro výstupní napětí tudíž platí

$$U_{out} = A \cdot (U_+ - U_-) = -\frac{AQ_{in}}{C_d + (A + 1) \cdot C_Z} \cong -\frac{Q_{in}}{C_Z}, \quad (1.60)$$

kde  $A$  je vlastní zesílení zesilovače. Opět předpokládáme, že jeho hodnota je natolik velká, že je možné poslední úpravu v (1.60) provést. Je zřejmé, že podmínky v obvodu jsou určeny zpětnou vazbou, čímž je vliv proměnné kapacity detektoru eliminován.

Aby nábojově citlivý předzesilovač mohl kontinuálně zpracovávat přicházející signály z detektoru, musí být nějakým způsobem zabezpečeno vybíjení zpětnovazebního kondenzátoru [47, s. 471–474]. První možností je *odporová zpětná vazba*. V tomto případě je paralelně s kondenzátorem zapojen odpor, díky kterému dochází k postupnému vybíjení integrovaného náboje. Průběh poklesu napětí je exponenciální s časovou konstantou danou parametry součástek tvořících zpětnou vazbu. Nevýhodou uvedeného řešení je skutečnost, že zpětnovazební odpor je zdrojem Johnsonova šumu a zhoršuje tak rozlišovací schopnost měřidla [36, s. 616]. Alternativou je systém nazvaný *aktivní reset*, který je založen na využití elektronicky ovládaného spínacího prvku<sup>58</sup>. U aktivně resetovaného nábojově citlivého předzesilovače tudíž dochází k postupné integraci náboje bez průběžného vybíjení. Až v okamžiku, kdy se napětí na výstupu blíží k satureované hodnotě, je vytvořeno elektrické propojení sloužící k rychlému vybití kondenzátoru. Při resetování předzesilovač nemůže zpracovávat přicházející vstupní signály a jemu příslušící čas tudíž přispívá k mrtvé době celého elektronického řetězce. Obvod své inhibování indikuje pomocí hradlovacího signálu, který je využíván pro řízení dalších modulů v systému [49, s. 69].

### 1.5.2 Zesilovač

Zesilovač plní v měřicím řetězci dvě základní úlohy [35, s. 280]. Kromě lineárního<sup>59</sup> zesílení jde především o *tvárování*, protože průběh signálu přicházejícího z předzesilovače není vhodný pro další analýzu. Důvodem je jeho strmý náběh a dále skutečnost, že jednotlivé impulzy se mohou časově překrývat, a být tak superponovány na jim předcházející<sup>60</sup>. Pro účely spektrometrických měření jsou proto tvarováním získávány signály se zaobleným průběhem maxima, díky čemuž je stanovení výšky (amplitudy) pulzu usnadněno [47, s. 480]. Volba tvaru a šířky pulzu umožňuje též ovlivnit šumové charakteristiky.

Tvarování lze realizovat různými způsoby, vedle využití zpožďovací linky [36, s. 637] se jedná zejména o rozličné aplikace filtračních obvodů [36, s. 625]. Příkladem takového zapojení budiž pásmová propust, která je tvořena kombinací derivačního (CR) a integračního (RC) článku. CR článek má vlastnosti horní propusti zeslabující nízké frekvence, naopak RC článek je propust dolnofrekvenční. Oproti obvodu z pasivních součástek dává lepší výsledky s ohledem na poměr signálu k šumu kombinace dvou aktivních filtrů – derivátoru a integrátoru [47, s. 488], v nichž jsou navíc zapojeny aktivní

<sup>58</sup>Může se jednat o tranzistor, případně o fotocitlivou součástku, u níž je otevření vybíjecího kanálu realizováno pomocí optického signálu. Výhodou druhého případu je elektrické oddělení řídicí logiky od vstupu předzesilovače, čímž je i minimalizován vliv na šumové vlastnosti [47, s. 474].

<sup>59</sup>Zachování proporcionality mezi výškou vstupního a zesíleného pulzu (a tedy i mezi deponovanou energií a výstupem zesilovače).

<sup>60</sup>Nakupení impulzů (pile-up). U předzesilovače s odporovou zpětnou vazbou každý pulz exponenciálně odpadá k základní referenční úrovni (baseline), při vyšší četnosti tak může nový impulz z detektoru přijít v okamžiku, kdy předchází ještě zcela neodezněl. U aktivně resetovaného předzesilovače dochází k nasčítání impulzů z podstaty fungování zařízení v každém případě.

## 1. Základy beta spektrometrie

prvky, jako jsou operační zesilovače nebo tranzistory. Tvar časového průběhu výstupního signálu je podobný Gausiánu, pročež je tento typ tvarování označován jakožto semigausssovský.

Samotný proces tvarování může mít i několik nepříznivých dopadů na zpracováváný signál, jež by vedly ke zhoršení rozlišení [49, s. 71]. Proto je součástí zesilovače několik dalších pomocných obvodů, které tyto efekty korigují. *Kompenzace pólu nulou*<sup>61</sup> (pole-zero cancellation – PZC) zajišťuje odstranění nežádoucího podkmitu, který vzniká při derivaci impulzu přicházejícího z předzesilovače s odporovou zpětnou vazbou CR obvodem<sup>62</sup>. K podkmitu signálu však může dojít i v další části trasy, tedy po provedení PZC. Pokud řada unipolárních pulzů prochází sériově zapojeným kondenzátorem, posouvá se základní hladina, na níž jsou pulzy superponovány, pod skutečnou hladinu nulového napětí [49, s. 76]. Děje se tak proto, že stejnosměrný proud nemůže kondenzátorem procházet, a tedy jeho průměrná hodnota v části obvodu za kondenzátorem musí být nulová. Uvedenému posunu lze zamezit použitím bipolárního tvarování<sup>63</sup>, stejnosměrné vazby<sup>64</sup> nebo speciálního obvodu *obnovovače základní hladiny* (baseline restorer – BLR), který mezi jednotlivými pulzy průběžně zajišťuje návrat výstupu k nulové hladině [36, s. 636–637]. Kromě toho též redukuje další nechtěné efekty, jako je nízkofrekvenční brum a mikrofonní šum. BLR je obvykle umístěn jako poslední stupeň zesilovače a jeho výstup je přiveden do mnohokanálového analyzátoru.

Součástí lineárních zesilovačů je také pomocný obvod PUR (pile-up rejector), který potlačuje vliv nakupení pulzů (náhodné sumace) [49, s. 77]. K tomuto jevu dochází, když nastane více interakcí v detektoru v rychlém sledu za sebou tak, že je vyhodnocovací elektronika nedokáže zpracovat jako samostatné události. Účelem PUR je takové případy identifikovat a vyloučit je z dalšího zpracování. Funkce příslušného obvodu může být postavena na tvarové analýze vycházející z odlišnosti mezi normálním a sumovaným impulzem [36, s. 657]. Druhou možností je rozdělení signálu do dvou větví – v pomalé je prováděna obvyklá spektrometrická analýza, zatímco podle údajů z rychlé je rozhodováno o zpracování nebo zamítnutí (indikace příchodu více než jednoho impulzu během doby potřebné na řádné zpracování jednoho v pomalé větvi).

### 1.5.3 Mnohokanálový analyzátor

Účelem mnohokanálového analyzátoru je změřit výšku přicházejících impulzů a na jejím základě tyto roztrždit a určit jejich počet. Výstupem tohoto modulu elektronického řetězce je spektrum – histogram znázorňující počet zaznamenaných událostí vůči pořadovému číslu kanálu. U ideálního mnohokanálového analyzátoru je předpokládáno, že konverze výšky impulzu na číslo kanálu je dokonale lineární. Ve skutečnosti tomu tak nemusí přesně být, což je charakterizováno dvěma parametry vyjadřujícími nelinearitu systému [36, s. 709]. *Integrální nelinearita* udává maximální odchylku naměřené závislosti výšky impulzu na čísle kanálu od předpokládaného přímkového průběhu. *Diferenciální nelinearita* je mírou konstantnosti šířky jednotlivých kanálů<sup>65</sup>. V neposlední

<sup>61</sup>Pojmenování vychází z terminologie analýzy elektrických obvodů pomocí Laplaceovy transformace.

<sup>62</sup>V případě aktivního resetu není kompenzace pólu nulou nezbytná, neboť průběh signálů nevykazuje exponenciální pokles, kvůli němuž při derivaci k podkmitu dochází [35, s. 281].

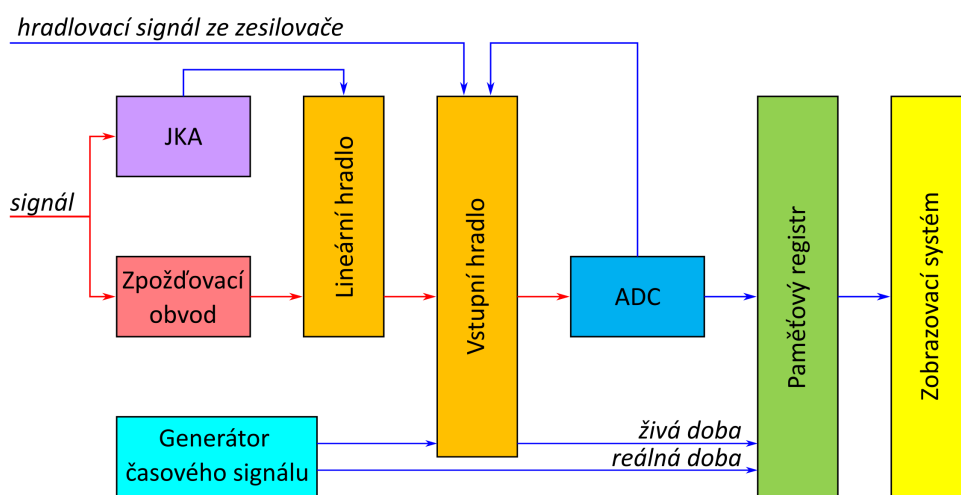
<sup>63</sup>Nevýhodou bipolárního tvarování ve srovnání s unipolárním je obecně horší poměr signálu k šumu (pro stejnou šířku pulzů v obou případech) [36, s. 636].

<sup>64</sup>Stejnoseměrná vazba není vždy vhodná, například malý ofset na vstupu stejnosměrně připojeného lineárního zesilovače by byl výrazně zesílen a dále propagován na výstup [36, s. 636].

<sup>65</sup>Tento parametr může být určen pomocí měření, při kterém je na vstup mnohokanálového analyzátoru připojen generátor pulzů, jejichž výška podléhá rovnoměrnému rozdělení. Uvedené distribuci by mělo odpovídat i spektrum získané po určité době měření (dostatečně dlouhé, aby vliv statistických fluktuací byl malý).

řadě je též důležitou charakteristikou mnohokanálového analyzátoru stabilita, tedy skutečnost, že se jednotlivé vlastnosti přístroje v čase výrazně nemění [47, s. 499].

Blokové schéma takového zařízení založeného na analogovém zpracování signálů je znázorněno na obrázku 1.14. Signál ze zesilovače prochází přes zpožďovací obvod na vstup lineárního hradla, které je ovládáno řídicím signálem z jedнокanálového analyzátoru. Hradlo propustí k dalšímu zpracování jen takové pulzy, jejichž výška leží mezi definovanou dolní a horní diskriminační hladinou. Tímto krokem je zabráněno zbytečnému zahlcení ostatních obvodů analyzátoru signály, které leží mimo oblast zájmu. Impulzy akceptované ke zpracování dále prochází vstupním hradlem do analogově-digitálního převodníku (ADC), který je klíčovou součástí mnohokanálového analyzátoru, neboť provádí samotné stanovení výšky impulsu. Účelem vstupního hradla je blokovat signály přicházející v čase, kdy je již ADC zaneprázdněn převodem dříve přišedšího impulsu, protože ADC může najednou zpracovávat impuls jen jeden. Do vstupního hradla též mohou být zapojeny další řídicí signály z ostatních modulů řetězce.



**Obrázek 1.14:** Blokové schéma mnohokanálového analyzátoru analogového typu. Na obrázku jsou pro názornost barvou linek rozlišeny analogové (červená) a digitální (modrá) signály [49, s. 83].

ADC mnohokanálového analyzátoru v analogové trase pracuje v odlišném režimu než rychlé převodníky užívané k digitalizaci signálu pro účely následného číslicového zpracování [36, s. 711]. Tyto, někdy též nazývané *spektroskopické ADC*<sup>66</sup>, jsou navrženy tak, aby ke každému zpracovanému impulsu produkovaly na výstupu právě jeden (číslíkový) údaj odpovídající jeho velikosti. Důležitou součástí převodníků v analogových analyzátoch je vzorkovací obvod typu *sample and hold*. Pomocí něho je dočasně na krátkou dobu zapamatována maximální hodnota napětí právě analyzovaného pulzu, která je následně převedena na číslo. Podle jeho velikosti je dále inkrementována zaznamenaná četnost na příslušné adrese paměťového registru.

<sup>66</sup>Existuje několik typů spektroskopických ADC, které se vzájemně odlišují konstrukcí i svými parametry jako je rychlost převodu, linearita nebo rozlišení [36, s. 716]. *Wilkinsonův typ* je založen na měření doby lineárního vybíjení kondenzátoru nabitého příchozím analogovým impulzem [49, s. 85]. Vyznačuje se malou integrální i diferenciální nelinearitou, ale určitou nevýhodou může být závislost doby převodu na amplitudě. Druhým často užívaným typem je *ADC s postupnou aproximací*, který číslicovou hodnotu určuje postupným porovnáním měřené amplitudy se sadou referenčních napětí. Doba převodu v tomto případě je na výšce signálu nezávislá.

## 1. Základy beta spektrometrie

Spektroskopický analogově-digitální převodník výrazně přispívá k *mrtvé době*<sup>67</sup> celého spektrometrického řetězce. Pro její kvantifikaci je mnohokanálový analyzátor obvykle vybaven generátorem časového signálu (pravidelné pulzy synchronizované s krystalovým oscilátorem). Je předpokládáno, že podíl hodinových pulzů blokovaných vstupním hradlem je stejný jako podíl spektrometrického signálu blokovaného stejnou součástí [36, s. 711]. Hodnoty reálné a živé doby měření bývají tradičně ukládány do prvních dvou kanálů spektra, přestože jsou dnes pro tento účel využívány i samostatné paměťové registry.

---

<sup>67</sup>Časový interval, během něhož systém nemůže zaregistrovat další událost (angl. *dead time*).

# 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

Jak již bylo detailněji popsáno v částech 1.3 a 1.4 předchozí kapitoly, měření spekter záření beta lze provádět více způsoby za použití různé instrumentace. Některé z nich, příkladem budiž magnetické spektrometry, umožňují realizovat velmi precizní spektrometrii nezbytnou při výzkumu, avšak s ohledem na cenu zařízení a dlouhou dobu měření se nehodí pro rutinní použití.

Pro uvedené účely je v laboratoři Českého metrologického institutu používán spektrometr s polovodičovým detektorem typu Si(Li)<sup>1</sup> instalovaným v olověném stínění tloušťky 5 cm. Impulzy z detektoru jsou zpracovávány v mnohokanálovém analyzátoru Lynx<sup>2</sup>. Demonstrace možnosti využití tohoto zařízení pro beta spektrometrii již byla prezentována v publikaci [56], na kterou tato práce navazuje. Motivací k provedení nové charakterizace detektoru byla snaha o zpřesnění jeho popisu a tím i dosažení lepší shody mezi simulovanými a skutečně naměřenými spektry.

## 2.1 Charakterizace Si(Li) detektoru

Otázka charakterizace polovodičového detektoru je v dostupné literatuře dobře popsána a dokumentována na řadě měřicích zařízení. Stanovení vnitřní účinnosti detekce spektrometrického systému se Si(Li) detektorem je věnována studie [57]. Verifikaci modelu její autoři provedli srovnáním simulovaných odezev získaných pomocí dvou různých transportních kódů (MCNP a GEANT4) s hodnotami naměřenými. Jako kalibrační zdroje posloužily radionuklidy emitující záření  $\gamma$  a X a dále též charakteristické záření indukované proudem těžkých nabitých částic<sup>3</sup> z urychlovače. Pozorované rozpory mezi simulací a experimentem si vyžádaly zpřesnění modelu. Toho bylo dosaženo pomocí radiografie, při které vyšlo najevo, že citlivá část je mírně vyosená a její rozměry jsou odlišné od deklarovaných.

Obdobná úloha popisu křemíkového detektoru sloužícího pro měření záření X je řešena i v práci [58]. Opět bylo využito srovnání výsledků ze simulace s experimentem, které si vynutilo provést optimalizaci některých rozměrů oproti nominálním hodnotám poskytnutých výrobcem.

### 2.1.1 Vlastnosti a parametry měřicího zařízení

Ke zvolenému detektoru byly z dokumentace výrobce [59] k dispozici následující údaje. Citlivá část křemíku má tvar válce o průměru 6 mm a výšce 5 mm. Vstupní okénko tloušťky 0,0127 mm je beryliové a citlivý objem je od něj vzdálen 7 mm. Dalšími absorbujícími vrstvami jsou zlatý kontakt (20 nm) a tenká necitlivá část křemíku (0,1  $\mu\text{m}$ ). Rozlišení (FWHM) pro energii 5,9 keV (<sup>55</sup>Fe) je 165 keV.

<sup>1</sup>SLP Series Lithium-Drifted Silicon Low-Energy Photon Spectrometer, model č. SLP-06165P-OPT-0.5, výrobce Ortec.

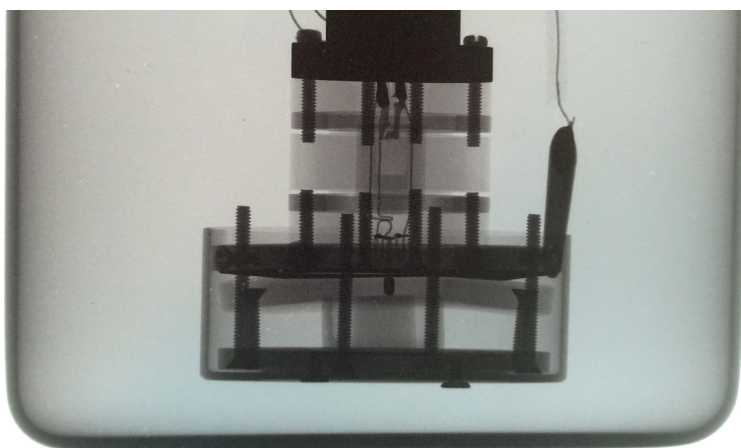
<sup>2</sup>Zařízení Lynx výrobce Mirion Technologies je určené pro spektrometrické vyhodnocení signálů z různých druhů detektorů ionizujícího záření [55]. Jedná se o kompaktní modul postavený na technice digitálního zpracování signálu. V jednom kovovém krytu se nacházejí všechny potřebné obvody spektrometrického řetězce (zdroj vysokého napětí pro detektor, obvody pro úpravu analogového signálu, rychlý analogově-digitální převodník, programovatelné digitální filtry, automatická kompenzace pólu nulou, digitální stabilizátor, baseline restorer a osciloskop).

<sup>3</sup>V literatuře taktéž označováno zkratkou PIXE vycházející z anglického názvu *particle-induced X-ray emission*.

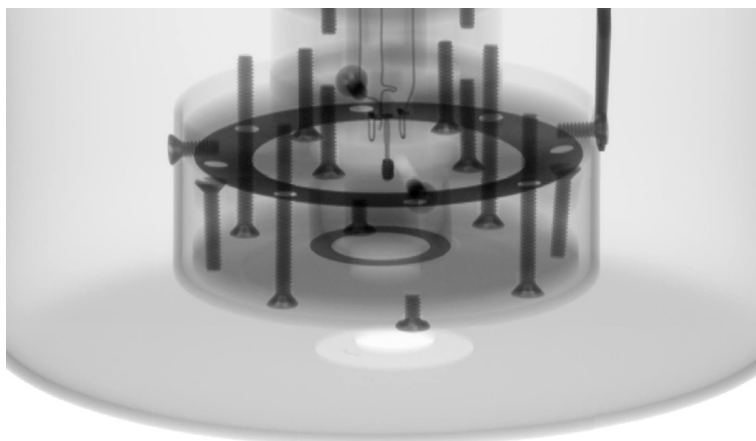
## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

Jelikož údaje o rozměrech poskytnuté ve specifikaci nemusí přesně odpovídat skutečnosti [58, s. 135], [60, s. 230], a navíc nemusí být ani úplné, byla konstrukce detektoru podrobněji popsána s pomocí radiografického zobrazení. Jako detekční medium byl použit defektoskopický film<sup>4</sup> a Timepix<sup>5</sup> s 300 $\mu\text{m}$  křemíkovým senzorem.

Při zobrazování pomocí filmu bylo využito rentgenové záření standardní kvality RQR 4. Zobrazovaný předmět byl umístěn cca 1,5 m od zdroje a expozice trvala po dobu 280 s. Získaný radiogram (v inverzních barvách) je zobrazen na obrázku 2.1. Druhý snímek detektoru v jiném pohledu (viz obrázek 2.2) byl získán Timepixem při ozáření 150kV nefiltrovaným svazkem záření X. Vzhledem k rozměrům citlivé plochy byl tento obrázek sestaven z 15 dílčích stosekundových akvizic. Kvalita snímku byla zlepšena aplikací metody přímé kalibrace signálu v každém pixelu vůči tloušťce absorbátoru (hliníkové filtry tloušťky až 52 mm) [62, s. 115].



**Obrázek 2.1:** Radiogram Si(Li) detektoru získaný pomocí defektoskopického filmu



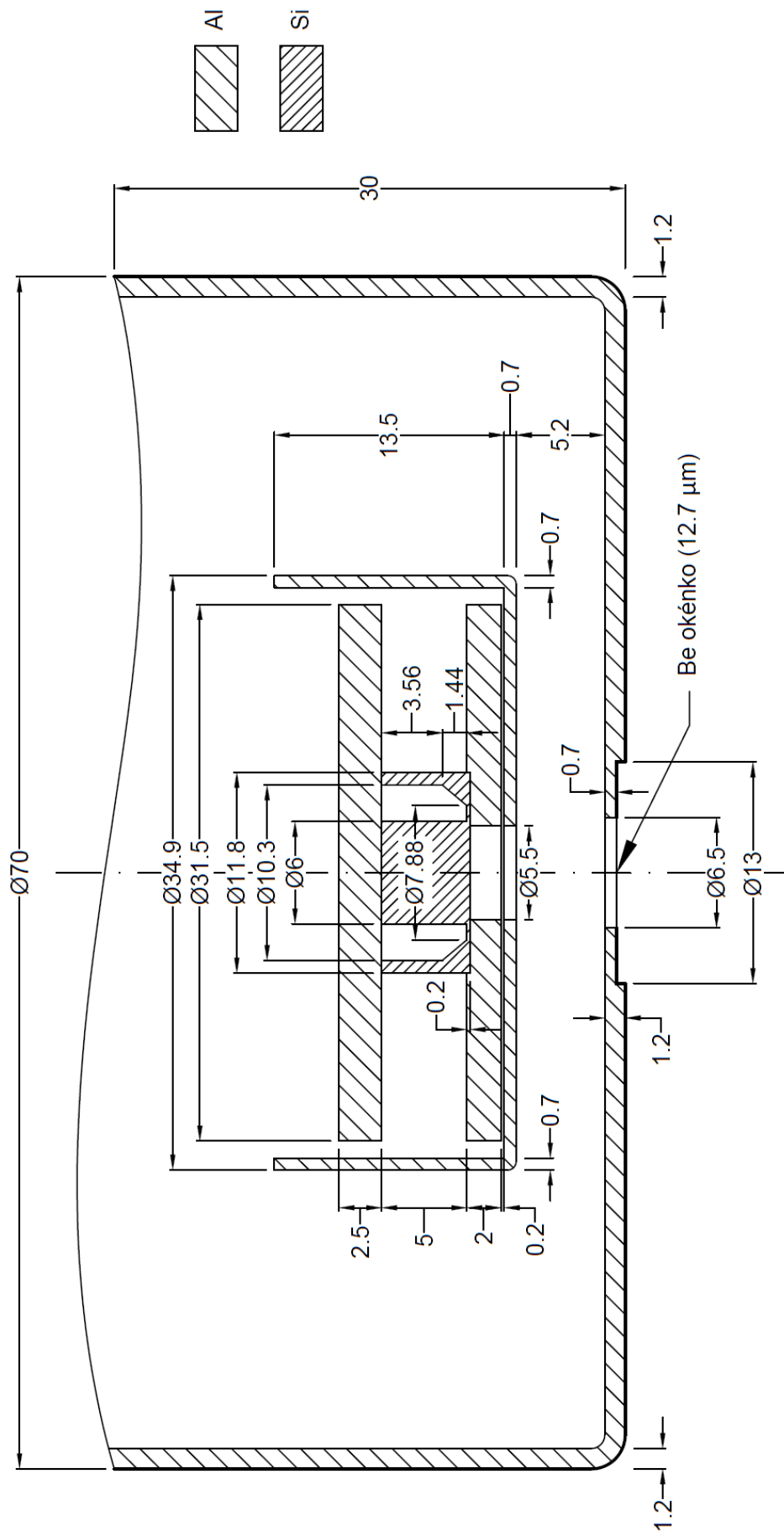
**Obrázek 2.2:** Radiogram Si(Li) detektoru získaný pomocí detektoru Timepix

Zjednodušený náčrt vnitřního uspořádání Si(Li) detektoru ukazuje obrázek 2.3. Tvary a poměr velikostí jednotlivých součástí byly určeny podle radiogramů 2.1 a 2.2. S využitím znalosti skutečné hodnoty vnějšího průměru kryostatu (70 mm) byly následně rozměry přepočítány do příslušných délkových jednotek.

<sup>4</sup>Agfa Structurix D5 Pb Vacupac

<sup>5</sup>Timepix je univerzální čip pro čtení polohově citlivých detektorů. Je rozdělen do matice 256  $\times$  256 pixelů o rozměrech 55  $\times$  55  $\mu\text{m}^2$ . Citlivá plocha má tedy celkově velikost 1,98  $\text{cm}^2$  [61, s. 488].



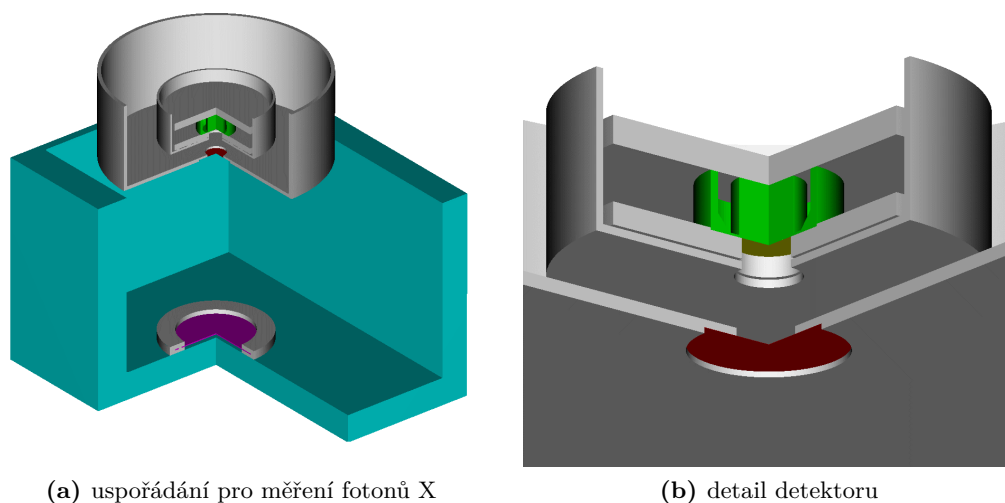


**Obrázek 2.3:** Náčres části Si(Li) detektoru v řezu. Rozměry jsou uvedeny v milimetrech.

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

### 2.1.2 Monte Carlo model a jeho validace

Na základě stanovených parametrů byl připraven model detektoru pro výpočty metodou Monte Carlo<sup>6</sup> pomocí víceúčelového transportního kódu MCNPX ve verzi 2.7 [65] s využitím standardních knihoven MCPLIB84 a e103 pro popis interakcí fotonů a elektronů. Geometrii vytvořeného modelu, zahrnujícího kromě samotného detektoru též kalibrační zdroj a plexisklový držák, znázorňuje obrázek 2.4. Barevně jsou odlišeny jednotlivé materiály (zelená: křemík, šedá: hliník, červená: berylium, fialová: polyethylen a tyrkysová: plexisklo). Hodnota spodního limitu energie (cutoff) byla v simulacích nastavena na 1 keV pro fotony a 10 keV pro elektrony<sup>7</sup>.



**Obrázek 2.4:** Znárodnění geometrie Monte Carlo modelu Si(Li) detektoru

Validace MC modelu byla provedena srovnáním experimentálních a simulovaných vypočtených hodnot peakové detekční účinnosti pro fotony v energetickém intervalu od 5 do 136 keV. Pro měření byly využity zdroje ionizujícího záření  $\gamma$  a X typu EFS<sup>8</sup> vyrobené v Českém metrologickém institutu a navázané na český státní etalon jednotky aktivity radionuklidů<sup>9</sup>. Konkrétní radionuklidy, přesněji řečeno příslušné energetické linky, jsou shrnuty v prvních třech sloupcích tabulky 2.1. Kalibrační standardy byly položeny na plexisklovém držáku v ose detektoru ve vzdálenosti 63,5 mm od konce kryostatu.

<sup>6</sup>Slovy autorů článku z roku 1949, v němž byl tento postup řešení matematických problémů poprvé zmíněn, „metoda [Monte Carlo] je, v podstatě, statistický přístup ke studiu diferenciálních rovnic nebo obecněji integro-diferenciálních rovnic, které se vyskytují v různých odvětvích přírodních věd“ [63]. Metoda nachází uplatnění pro řešení úloh, kdy analytické vyjádření celého procesu je obtížné až nemožné, ale dělí částí, z nichž je složen, již popsatelné jsou [64, s. 1 a 2]. Statistickým zpracováním velkého množství jednotlivých událostí lze získat výsledek v podobě odhadu střední hodnoty hledané veličiny a jejího rozptylu. Nutným předpokladem správného řešení problému je dostatečné navzorkování příslušného prostoru všech možných stavů.

<sup>7</sup>Pohybu elektronu o energii 10 keV odpovídá v křemíku dráha 1,5  $\mu\text{m}$ . Lze tedy předpokládat, že elektron mající energii nižší již citlivý objem neopustí, a tedy je možné ho považovat za lokálně absorbovaný.

<sup>8</sup>Standardy typu EFS jsou bodové zdroje určené pro kalibraci spektrometrických sestav. Aktivita je nanášena mezi dvě polyethylenové folie tloušťky menší než 0,2 mm. Folie jsou upevněny do kovového kroužku, jehož vnější průměr je roven 35 mm [66, s. 11].

<sup>9</sup>Podrobnosti o státním etalonu aktivity jsou uvedeny v [67, s. 115–117].

Experimentální peaková účinnost  $\eta_E$  byla stanovena podle vzorce

$$\eta_E = \frac{S}{AYt}, \quad (2.1)$$

kde  $A$  je certifikovaná aktivita<sup>10</sup>,  $t$  živá doba měření a  $Y$  radiační výtěžek, jehož hodnoty byly čerpány z tabulek<sup>11</sup>. Čistá plocha příslušného peaku  $S$  byla z naměřeného spektra určena v programu Genie 2000 [69]. Pro jednoduché peaky (singlety) byla počítána jako rozdíl celkového počtu impulzů v oblasti zájmu a pozadí popsaného skokovou funkcí. Složitější peaky (multiplety) byly vyhodnocovány pomocí prokladu nelineární metodou nejmenších čtverců. Korekce na pravé sumace byly v daném případě považovány za zanedbatelné. Standardní nejistota veličiny (2.1) je dána složením jednotlivých nejistot vstupních veličin. Relativní standardní nejistota aktivity použitých standardů nabývá hodnot od 1,0 % do 1,9 % [66]. Nejistoty radiačního výtěžku byly převzaty spolu s tabelovanou hodnotou, přičemž linky známé s menší přesností (relativní nejistota  $Y$  cca 10 %) byly z kalibrace vyloučeny.

**Tabulka 2.1:** Srovnání experimentálních a simulovaných peakových účinností

Nuklid	Linka	$E$ (keV)	$\eta_E \cdot 10^4$	$\eta_S \cdot 10^4$	$D$ (%)
<sup>54</sup> Mn [70]	Cr $K\alpha$	5,41	2,1(1)	2,291(5)	$4,3 \pm 5,6$
<sup>57</sup> Co [70]	Fe $K\alpha$	6,40	2,73(5)	2,673(5)	$-2,1 \pm 1,9$
	Fe $K'\beta$	7,058	2,94(7)	2,888(5)	$-1,9 \pm 2,2$
<sup>210</sup> Pb [71]	Bi $L\alpha_1$	10,839	3,6(2)	3,407(6)	$-5,4 \pm 5,7$
<sup>241</sup> Am [71]	Np $L\alpha_1$	13,946	3,59(8)	3,529(6)	$-1,7 \pm 2,2$
<sup>57</sup> Co [70]	$\gamma$	14,413	3,67(7)	3,541(6)	$-3,5 \pm 2,0$
<sup>109</sup> Cd [72]	Ag $K\alpha_2$	21,99	3,49(14)	3,536(6)	$1,3 \pm 4,1$
	Ag $K\alpha_1$	22,163	3,59(14)	3,525(6)	$-1,8 \pm 3,8$
<sup>133</sup> Ba [73]	Cs $K\alpha_2$	30,625	2,47(7)	2,484(5)	$0,6 \pm 2,8$
	Cs $K\alpha_1$	30,973	2,37(4)	2,482(5)	$4,7 \pm 1,6$
<sup>152</sup> Eu [70]	Sm $K\alpha_2$	39,522	1,49(4)	1,495(3)	$0,3 \pm 2,6$
	Sm $K\alpha_1$	40,118	1,36(4)	1,441(3)	$5,8 \pm 3,0$
<sup>133</sup> Ba [73]	$\gamma$	53,161	0,71(2)	0,6904(14)	$-2,8 \pm 2,2$
<sup>241</sup> Am [71]	$\gamma$	59,54	0,46(1)	0,483(1)	$5,0 \pm 2,4$
<sup>133</sup> Ba [73]	$\gamma$	80,9971	0,200(3)	0,1880(4)	$-6,0 \pm 1,3$
<sup>152</sup> Eu [70]	$\gamma$	121,7817	0,052(2)	0,0522(1)	$0,4 \pm 3,3$
<sup>57</sup> Co [70]	$\gamma$	136,4743	0,0380(10)	0,03647(7)	$-4,0 \pm 2,3$

$E$  – energie příslušného přechodu (tabulková hodnota, viz uvedené odkazy u jednotlivých nuklidů)

$\eta_E$  – peaková účinnost stanovená experimentálně

$\eta_S$  – peaková účinnost stanovená MC simulací

$D$  – relativně vyjádřený rozdíl mezi peakovou účinností z experimentu a simulace

Všechny nejistoty v tabulce jsou uvedeny pro koeficient rozšíření  $k = 1$ .

Vypočítaná hodnota účinnosti v peaku úplné absorpce  $\eta_S$  byla nalezena pomocí tally typu F8 sloužící pro simulaci energetické distribuce impulzů v detektoru [65, s. 5-113].

<sup>10</sup>Aktivity použitých zdrojů záření byly řádově desítky až stovky kBq.

<sup>11</sup>Doporučené hodnoty jaderných dat, které jsou výsledkem mezinárodního vyhodnocování v rámci projektu DDEP (Decay Data Evaluation Project), jsou průběžně publikovány v jednotlivých svazcích monografie BIPM-5 *Table of radionuclides*. Všechny zveřejněné údaje jsou též dostupné online v aplikaci na webu francouzského národního metrologického institutu (Laboratoire National Henri Becquerel) [68].

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

Ve všech výpočtech byl zdroj definován jako monoenergetický a emitující fotony o energii odpovídající příslušné linii měřených vzorků. Simulace byla provedena pro takový počet historií, aby relativní standardní nejistota typu A hledané veličiny byla menší nebo rovna 0,2 %.

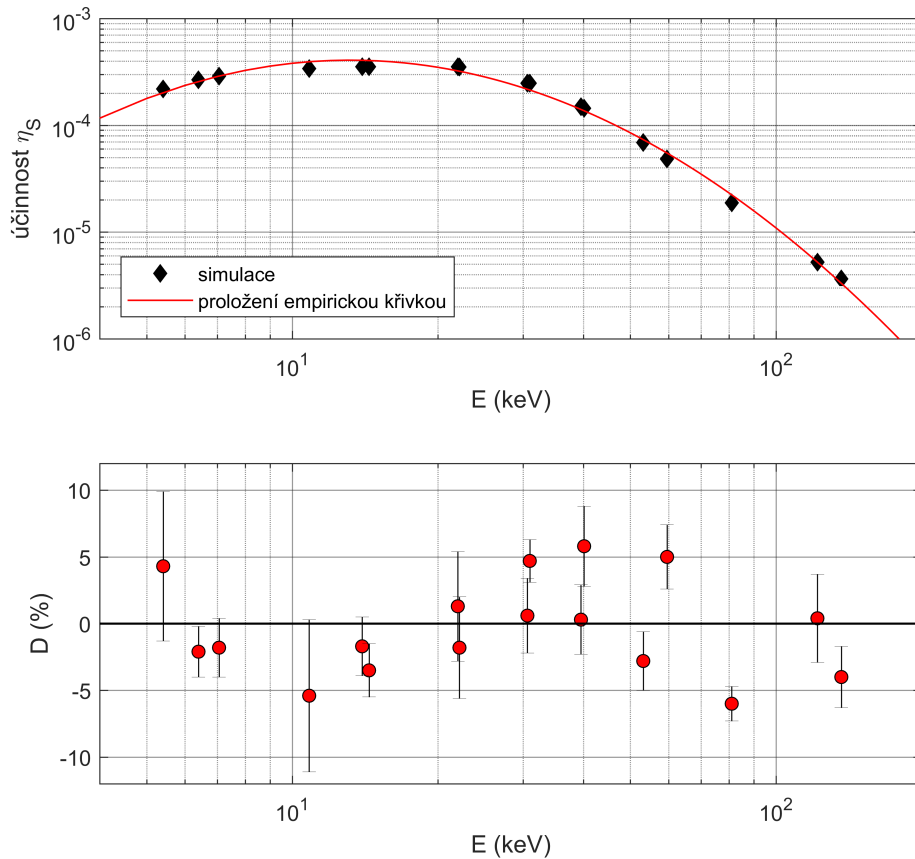
Relativní rozdíl mezi simulací a experimentem byl pro každou studovanou energetickou linku vyčíslen prostřednictvím veličiny  $D$  definované předpisem

$$D = \frac{\eta_S}{\eta_E} - 1. \quad (2.2)$$

Její standardní nejistota  $u_D$  byla vypočítána podle vzorce odvozeného z obvyklého vztahu pro výpočet nejistoty nepřímě měřené veličiny [74, s. 18–19]

$$u_D = \frac{\eta_S}{\eta_E} \cdot \sqrt{\left(\frac{u_{\eta_S}}{\eta_S}\right)^2 + \left(\frac{u_{\eta_E}}{\eta_E}\right)^2}, \quad (2.3)$$

ve kterém symboly  $u_{\eta_S}$  a  $u_{\eta_E}$  označují standardní nejistotu  $\eta_S$  a  $\eta_E$ .



**Obrázek 2.5:** Účinnostní křivka detektoru stanovená Monte Carlo výpočtem a její srovnání s experimentálními hodnotami

Na základě vypočtených hodnot  $D$  byl vytvořený model detektoru postupně upravován takovým způsobem, aby odchylky byly co nejmenší, a tedy bylo dosaženo co nejlepší shody naměřených a vypočítaných hodnot. Modifikace se týkala výhradně citlivé části detektoru s ohledem na skutečnost, že její efektivní velikost je obvykle menší, než by odpovídalo geometrickým rozměrům krystalu [60, s. 230]. Původně použitý a

výrobce deklarovaný rozměr detekujícího válce křemíku byl upraven následujícím způsobem. Průměr oblasti byl zmenšen o 0,1 mm a dále byla uvažována existence necitlivé vrstvy křemíku v podobě zadního kontaktu, jejíž tloušťka byla odhadnuta na 1 mm.

Finální hodnoty účinnosti získané oběma postupy včetně vyjádření odchylky mezi nimi shrnuje tabulka 2.1. Uvedená data jsou též vizualizována na obrázku 2.5. V jeho vrchní části je vykreslena účinnostní křivka použitého detektoru Si(Li) v daném geometrickém uspořádání. Simulací získané hodnoty detekční účinnosti  $\eta_S$  pro vybrané energie fotonů  $E$  z intervalu 5 až 136 keV byly proloženy empirickou křivkou tvaru

$$\ln \eta_S = \sum_{i=1}^3 a_i \cdot (\ln E)^{i-1}, \quad (2.4)$$

kde  $a_i$  označuje fitované parametry<sup>12</sup> [36, s. 458]. Spodní část obrázku 2.5 ukazuje relativní rozdíl  $D$  mezi experimentem a simulací, který ve všech studovaných bodech spadá do pásma  $\pm 6\%$ . Chybové úsečky v grafu odpovídají standardní nejistotě hodnoty (koeficient rozšíření  $k = 1$ ).

### 2.1.3 Diskuse výsledků

Míra souladu mezi výstupem Monte Carlo modelu a měřením, které bylo pro detektor Si(Li) v laboratoři ČMI dosaženo, je plně srovnatelná s již publikovanými výsledky, jež udávají pro obdobný typ detektoru shodu na úrovni do 10 % [57]. Dá se tedy konstatovat, že s ohledem na experimentální nejistoty se podařilo detektor charakterizovat s přijatelnou přesností a vytvořený model je možné využít pro simulování jeho odezvy při různých aplikacích včetně spektrometrie beta.

Kvalita vytvořeného modelu, pod níž můžeme rozumět právě soulad simulace a experimentu, je zásadním způsobem ovlivněna dostatečnou znalostí geometrie měření a konstrukce modelovaného detektoru. Jak již bylo uvedeno v předchozím textu této podkapitoly, relevantní technické údaje poskytnuté výrobcem pro uvedené účely nedostačují. Se zpřesněním geometrických rozměrů jednotlivých komponent značně pomohlo radiografické zobrazení předmětné části měřidla. Větší nejistotou naopak zůstaly zatíženy parametry citlivého objemu detektoru, které byly pouze odhadnuty a dále modifikovány tak, aby bylo dosaženo co nejlepší shody s experimentem. Proto by další potenciální zpřesnění modelu mohlo přinést určení necitlivé vrstvy křemíku měřením. Pro daný záměr by byl vhodný systém obdobný skenovací stanici HEROICA [75], která je využívána pro charakterizaci HPGe detektorů [76]. Zařízení umožňuje určit prostorovou závislost odezvy detektoru na bodový radionuklidový zdroj, z čehož lze odvodit rozměry citlivé části polovodičového materiálu.

## 2.2 Polovodičová beta spektrometrie

Při měření beta spekter pomocí křemíkového detektoru popsáno v předchozí části kapitoly se geometrické uspořádání odlišuje od varianty užívané pro fotony  $\gamma$  a X. Ke spodní části kryostatu je z důvodu omezení vlivu rozptýleného záření připevněn speciální kolimátor vyrobený ze slitiny hliníku (viz fotografie 2.6a a 2.6b). Sestává z držáku zdroje, který je v definované vzdálenosti od detektoru (35 mm) fixován pomocí spojovacího dílu. V jeho horní části přimykající se ke kryostatu je otvor o průměru 4 mm.

<sup>12</sup>Hodnoty vypočítané pro danou geometrii:  $a_1 = -13,7(3)$ ,  $a_2 = 4,5(2)$ ,  $a_3 = -0,88(3)$ .

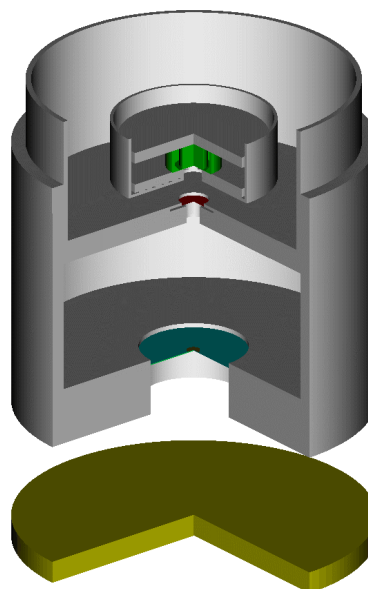
## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru



(a) držák zdroje záření

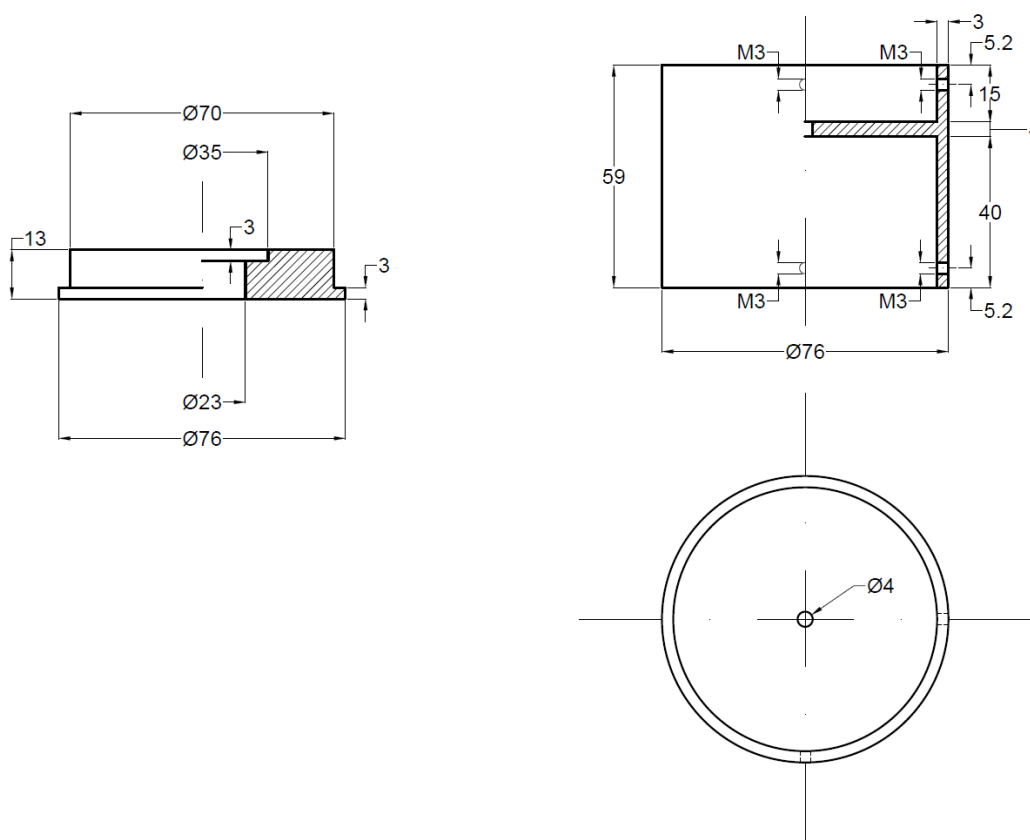


(b) spojovací díl



(c) kolimátor doplněný do Monte Carlo modelu detektoru

**Obrázek 2.6:** Přídavný kolimátor k Si(Li) detektoru pro měření beta spekter

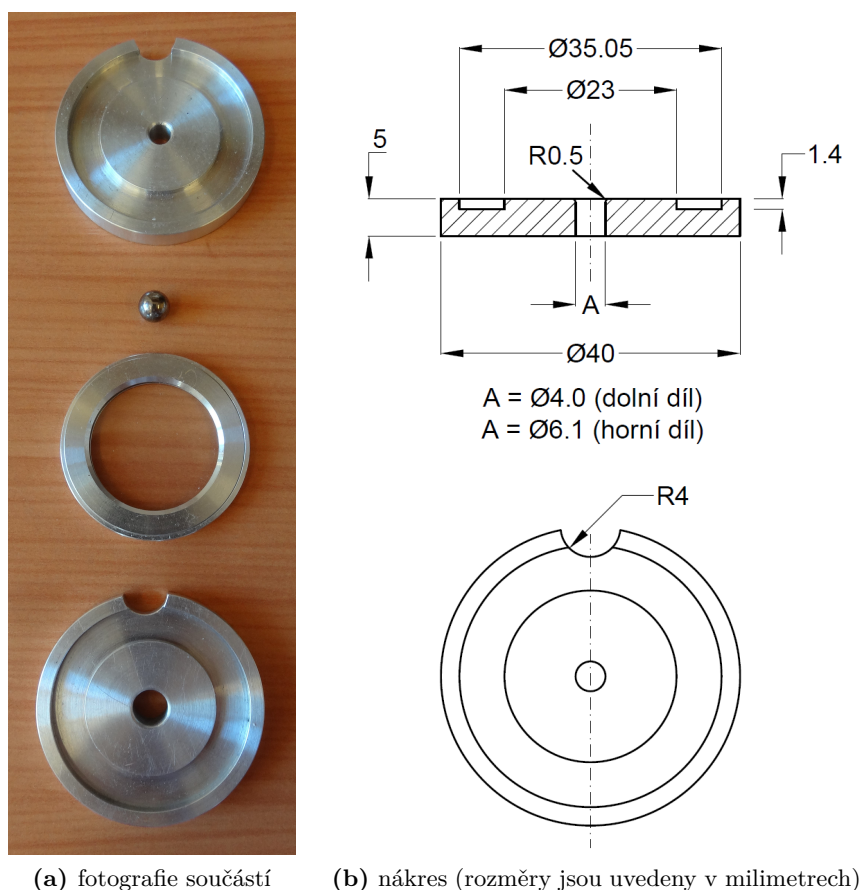


**Obrázek 2.7:** Nákres přídavného kolimátoru pro měření beta spekter (vlevo držák zdroje záření, vpravo spojovací díl). Rozměry jsou uvedeny v milimetrech.

Zakomponování přídavného kolimátoru do geometrie Monte Carlo modelu je znázorněno na obrázku 2.6c. Barvami jsou opětovně odlišeny jednotlivé materiály (zelená: křemík, šedá: hliník, červená: berylium, tyrkysová: polyetylen a žlutá: olovo).

Detailní náčrt přídavného kolimátoru udávající přesné hodnoty všech jeho rozměrů poskytuje obrázek 2.7 vytvořený metodou pravouhlého promítání v 1. kvadrantu (ISO-E). Nalevo je v polovičním řezu zobrazen držák zdroje záření, vpravo stejným způsobem spojovací část.

Vzorky pro měření touto aparaturou jsou připravovány univerzální metodou odpařování alikvotního množství na podložku (polyetylen o tloušťce 0,1 mm), která je upevněna do kovového kroužku o průměru 35 mm. Do středu umělohmotné folie je pomocí speciálního přípravku „lisovátka“ (viz obrázek 2.8) vytvořena malá prohlubeň, do níž je posléze nanášena kapka roztoku (podrobnější popis postupu je uveden v příloze A). Díky této úpravě je přesněji vymezen prostor vzniklého odparu, což usnadňuje definici zdrojového členu v Monte Carlo modelu. Typické aktivity použitých zdrojů jsou řádu desítek kBq.



**Obrázek 2.8:** Lisovátka – přípravek na úpravu podložek pro výrobu vzorků. Na fotografii vlevo se mezi horním a dolním dílem soupravy nachází kovová kulička sloužící k vytvoření prohlubně v podložce a prstenek, do něhož je polyetylenová folie upínána.

### 2.2.1 Úprava Monte Carlo modelu pro výpočet beta spekter

Vyjma úprav geometrických, uvedených v odstavcích výše, byly v modelu provedeny ještě následující změny. Lepšího vzorkování energetického a úhlového rozptylu elektronů v oblasti mezi zdrojem a detektorem bylo dosaženo zvýšením hodnoty ESTEP na kartách

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

definujících příslušné materiály<sup>13</sup>. Tento parametr umožňuje ovládat počet dílčích kroků připadajících na jeden krok simulace transportu elektronů [65, s. 5-27]. Jejich zvýšení je vhodné provést zejména v případě existence struktur malých rozměrů v modelu.

Doba výpočtu byla optimalizována nastavením parametru ELPT (cell-by-cell energy cutoff [65, s. 5-56]) pro vybrané buňky na 100 keV (držák zdroje a olovené dno) a 200 keV (plášť spojovacího dílu). Touto volbou je potlačena simulace drah částic, u kterých již vzhledem ke geometrii a jejich nízké energii lze předpokládat, že nepřispějí do spektra. Účinnost výpočtu byla též zvýšena aplikací metody redukce variance. Definice zdroje byla upravena kartou sb (biasing zdroje [65, s. 5-89]) tak, aby byla preferována emise částic do poloprostoru ve směru k detektoru.

### 2.2.2 Beta spektra vybraných radionuklidů

Spektra šesti radionuklidů, jejichž vlastnosti shrnuje tabulka 2.2, byla naměřena spektrometrickou aparaturou s výše popsáním Si(Li) detektorem. Geometrie měření byla definována přidavným kolimátorem (viz obrázek 2.7).

**Tabulka 2.2:** Vlastnosti užitých radionuklidů

Nuklid	Typ přechodu	$E_0$ (keV)	Chemická forma	$\rho$ (g · cm <sup>-3</sup> )
<sup>32</sup> P [70]	dovolený	1710,66(21)	(NH <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> · 3 H <sub>2</sub> O	1,61
<sup>33</sup> P [70]	dovolený	248,5(11)		
<sup>89</sup> Sr [70]	1 × zakázaný (unikátní)	1495,1(22)	SrCl <sub>2</sub> · 6 H <sub>2</sub> O	1,96
<sup>90</sup> Y [73]	1 × zakázaný (unikátní)	2278,7(16)	YCl <sub>3</sub> · 6 H <sub>2</sub> O	2,18
<sup>147</sup> Pm [77]	1 × zakázaný	224,1(3)	PrCl <sub>3</sub> · 7 H <sub>2</sub> O	2,250
			NdCl <sub>3</sub> · 6 H <sub>2</sub> O	2,282
<sup>204</sup> Tl [71]	1 × zakázaný (unikátní)	763,72(18)	Tl <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	6,77

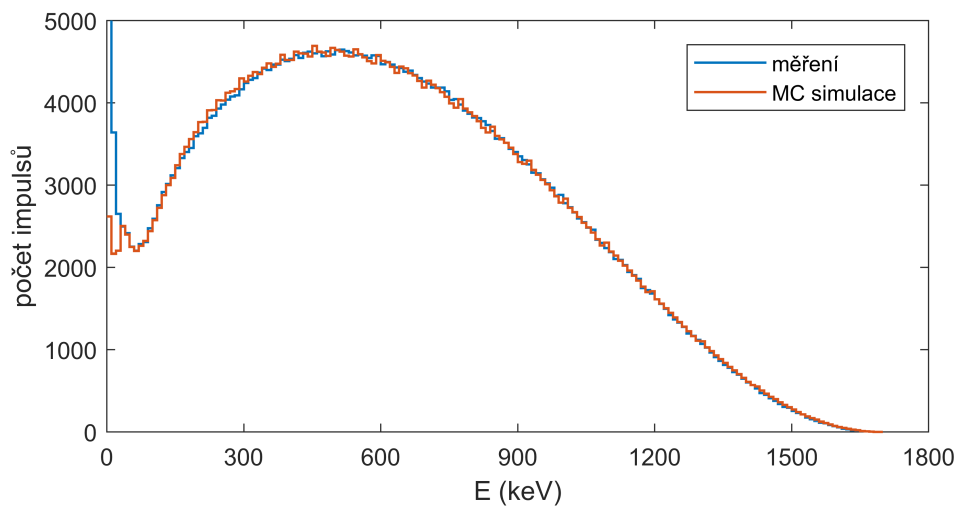
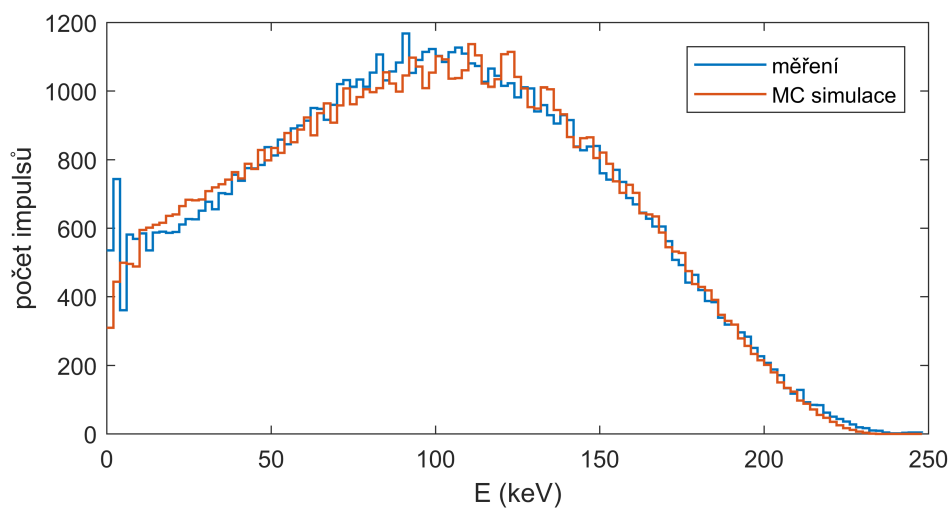
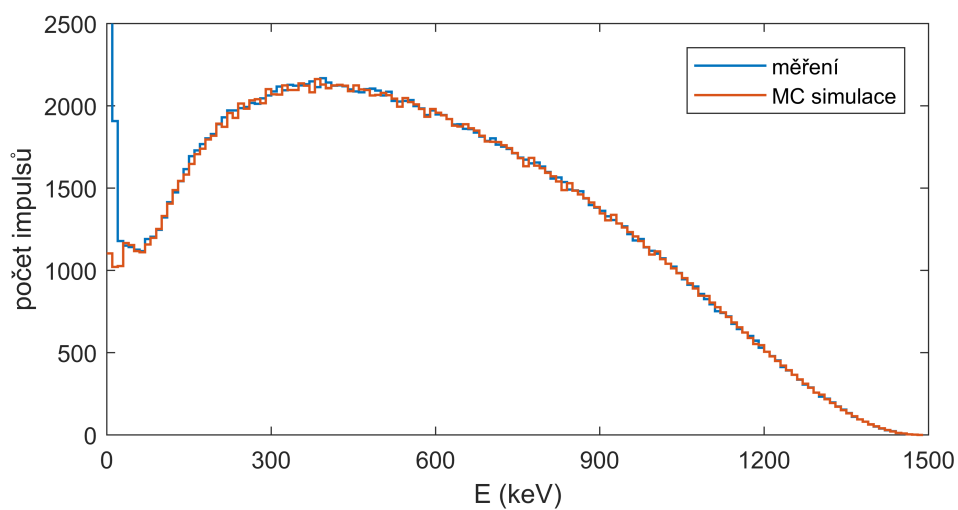
Údaje o energii koncového bodu  $E_0$  a typu přechodu byly převzaty z tabulek (viz uvedené odkazy u jednotlivých nuklidů).

$\rho$  – hustota materiálu tvořícího měřený vzorek, čerpáno z [78] a [79] (v případě fosforu je uvedena hustota bezvodého fosforečnanu amonného, jelikož údaj nebyl pro hydrát k dispozici)

Příslušné přístrojové odezvy byly též simulovány pomocí Monte Carlo modelu detektoru (v úpravě dle části 2.2.1). Zdroj záření byl modelován jako válec tvořený materiálem o hustotě a složení podle údajů uvedených v tabulce 2.2. Zatímco poloměr podstavy byl odhadnut s ohledem na rozměry odparku na 1,5 mm, výška válce (řádově jednotky až desítky  $\mu\text{m}$ ) byla volena pro každý radionuklid individuálně tak, aby byly co nejlépe vystiženy absorpční vlastnosti konkrétního vzorku, a tedy bylo dosaženo co nejlepší shody vůči spektru naměřenému. Emisní spektrum elektronů bylo stanoveno podle Fermiho teorie s využitím vzorce (1.27), přičemž pro jednu zakázané (unikátní) přechody byl tvarový faktor počítán dle (1.25), v ostatních případech byl roven jedné. Pro výpočet potřebné tabulkové hodnoty funkcí  $F(E, Z)$  a  $L_1$  byly čerpány z [27].

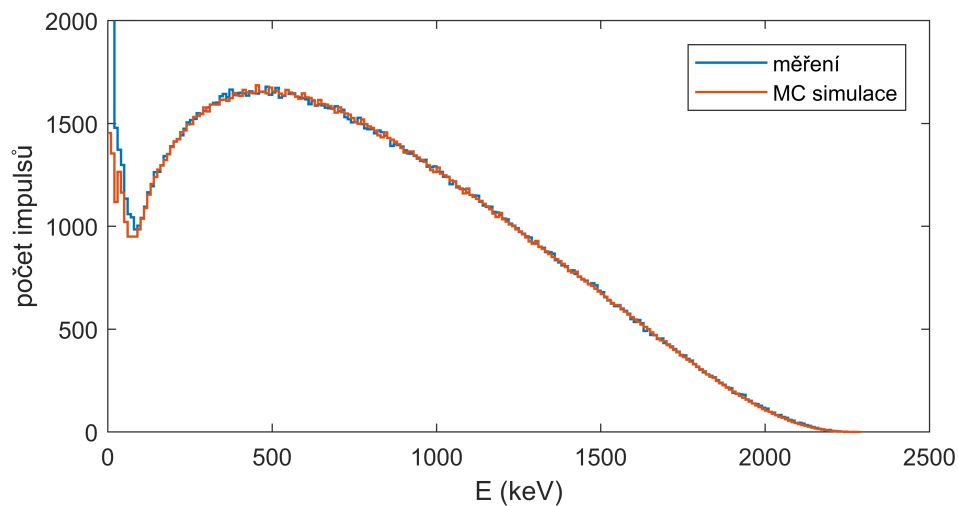
<sup>13</sup>Hodnoty ESTEP pro jednotlivé materiály v Monte Carlo modelu upraveném pro výpočty beta spekter: beryllium 10, citlivá část křemíku 30, tenká necitlivá křemíková vrstva 200, zlato 100, materiál zdroje 50, vzduch 50.



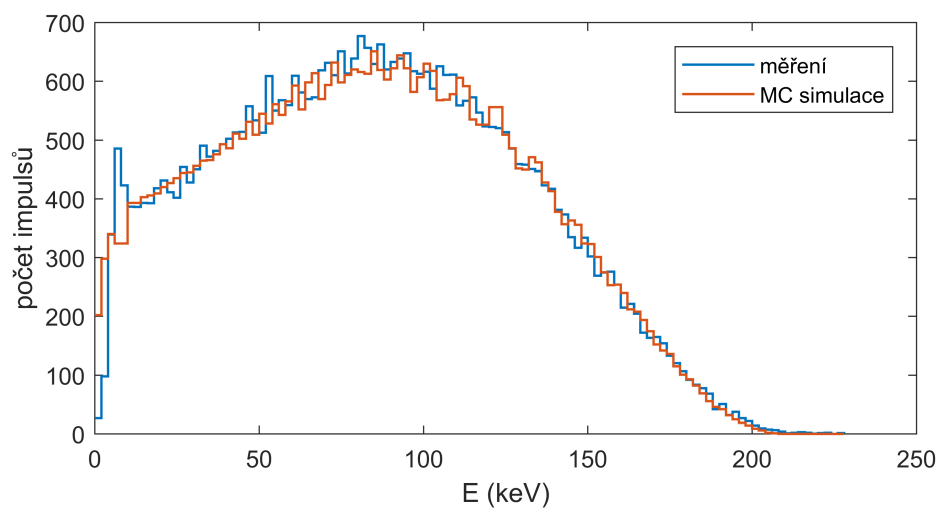
(a) nuklid  $^{32}\text{P}$ (b) nuklid  $^{33}\text{P}$ (c) nuklid  $^{89}\text{Sr}$ 

**Obrázek 2.9:** Srovnání naměřených a simulovaných spekter vybraných čistých beta radionuklidů (1. část)

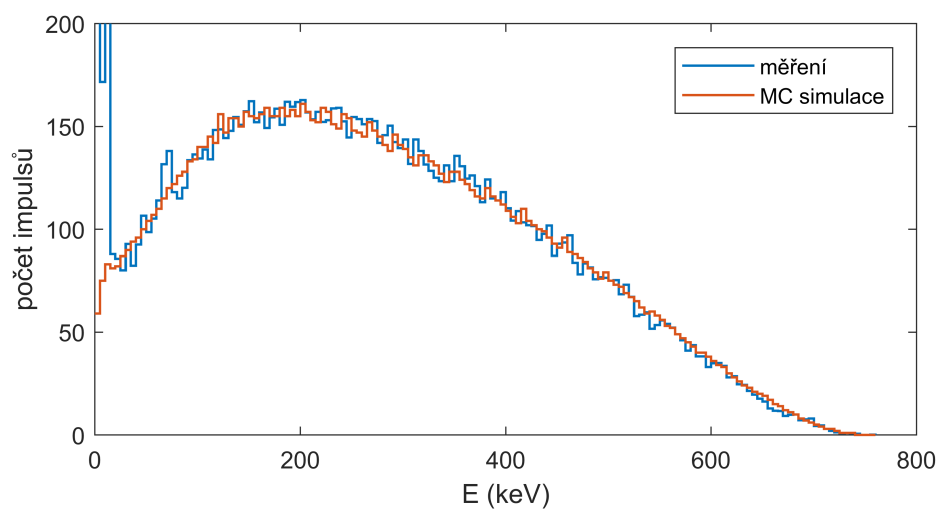
## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru



(d) nuklid  $^{90}\text{Y}$



(e) nuklid  $^{147}\text{Pm}$



(f) nuklid  $^{204}\text{Tl}$

**Obrázek 2.9:** Srovnání naměřených a simulovaných spekter vybraných čistých beta radionuklidů (2. část)

Spektra naměřená spolu se spektry simulovanými znázorňují grafy na obrázku 2.9. Výsledky simulace byly normalizovány podle naměřených dat tak, aby integrál počtu impulzů od určité hodnoty energie<sup>14</sup> byl v obou případech totožný.

Jelikož prosté vizuální srovnání spekter na obrázku 2.9 umožňuje jen omezené a neobjektivní posouzení vzájemné shody nebo neshody, bylo též provedeno kvantitativně podložené šetření s využitím *Kolmogorovova–Smirnovova* testu (K–S testu) pro dva výběry. Tento statistický test dovoluje posoudit, zda oba výběry pochází z jednoho základního souboru dat [80, s. 99–103].

### Kolmogorovův–Smirnovův test – princip použití

Při aplikaci K–S testu jsou rozlišovány dva případy v závislosti na velikosti studovaného souboru. Pro malé výběry<sup>15</sup> je testovací kritérium tvaru

$$D_2 = \max_j |N_{1,j} - N_{2,j}|, \quad (2.5)$$

ve kterém symboly  $N_{1,j}$  a  $N_{2,j}$  označují kumulativní absolutní četnosti prvního a druhého výběru v  $j$ -té třídě. Kritické hodnoty jsou pro tyto výběry tabelovány (viz například [80, s. 232]).

U velkých výběrů<sup>16</sup> je testovací kritérium vyjádřeno obdobným způsobem, tentokrát však pomocí kumulativních relativních četností  $F_{1,j}$  a  $F_{2,j}$  jako

$$D_2 = \max_j |F_{1,j} - F_{2,j}|. \quad (2.6)$$

V tomto případě jsou kritické hodnoty  $D_{2;p}$  počítány z rozsahů obou výběrů  $n_1$  a  $n_2$  podle následujících vztahů

$$D_{2;0.05} = 1,36 \cdot \sqrt{\frac{n_1 + n_2}{n_1 \cdot n_2}}, \quad (2.7)$$

$$D_{2;0.01} = 1,63 \cdot \sqrt{\frac{n_1 + n_2}{n_1 \cdot n_2}}, \quad (2.8)$$

které udávají výpočet  $D_{2;p}$  pro nejčastěji volené hladiny významnosti  $p = 0,05$  nebo  $p = 0,01$ .

Postup testování shody dvou malých/velkých výběrů pomocí K–S testu sestává z následujících kroků:

1. formulace nulové hypotézy: oba výběry pochází z téhož základního souboru;
2. volba hladiny významnosti  $p$  testu;
3. roztřídění výsledků z obou výběrů do zvolených skupin;
4. výpočet kumulativních absolutních/relativních četností pro oba výběry;
5. výpočet absolutní hodnoty rozdílů kumulativních absolutních/relativních četností v každé skupině;
6. určení testovacího kritéria  $D_2$  – maxima z hodnot získaných v předchozím kroku;
7. srovnání  $D_2$  s kritickou hodnotou  $D_{2;p}$ , pro  $D_2 \geq D_{2;p}$  zamítnutí nulové hypotézy.

<sup>14</sup>Zvolená hranice: 500 keV pro <sup>32</sup>P, <sup>89</sup>Sr a <sup>90</sup>Y; 200 keV pro <sup>204</sup>Tl; 100 keV pro <sup>33</sup>P a <sup>147</sup>Pm.

<sup>15</sup>Oba výběry jsou stejného rozsahu, jenž je menší nebo roven 40.

<sup>16</sup>Rozsahy obou výběrů jsou větší než 40 a vzájemně se mohou lišit.

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

### Porovnání tvaru experimentálních a simulovaných beta spekter

U všech šesti studovaných nuklidů bylo dle vztahu (2.6) vypočítáno testovací kritérium, které bylo porovnáno s příslušnou kritickou hodnotou (2.8). Testování shody bylo provedeno v celém energetickém intervalu jednotlivých spekter s výjimkou oblasti nízkých energií (cca do 50 keV), ve kterých dochází k jejich deformaci v důsledku šumu a dalších přístrojových efektů. Na základě údajů uvedených v tabulce 2.3 je možné konstatovat, že na hladině významnosti  $p = 0,01$  nulovou hypotézu (oba výběry pochází z jednoho základního souboru) pro žádný radionuklid nezamítáme.

**Tabulka 2.3:** Výsledky K–S testu

Nuklid	$D_2$	$D_{2:0.01}$	Nuklid	$D_2$	$D_{2:0.01}$
$^{32}\text{P}$	0,0022	0,0033	$^{90}\text{Y}$	0,001	0,0051
$^{33}\text{P}$	0,0079	0,0083	$^{147}\text{Pm}$	0,0065	0,0115
$^{89}\text{Sr}$	0,0013	0,0054	$^{204}\text{Tl}$	0,0061	0,02

$D_2$  – testovací kritérium počítané podle vztahu (2.6)

$D_{2:0.01}$  – kritická hodnota vypočítaná podle vzorce (2.8)

### Určení koncového bodu

Vedle tvaru, jenž byl diskutován v předchozí části podkapitoly, je každé beta spektrum charakterizováno též hodnotou koncového bodu, tedy maximální možné energie emitovaného elektronu. S ohledem na spojitý charakter spektra se jedná o klíčový údaj, neboť umožňuje do jisté míry identifikovat, o který radionuklid se jedná.

Pro všechny studované radionuklidy byl s pomocí Fermiho–Kurieho diagramu (viz kapitolu 1.1.3) stanoven koncový bod  $E_0^{\text{exp}}$ . Jelikož spektrum je v důsledku absorpce ve vzduchu mezi zdrojem a detektorem pozměněno, dochází k posunu koncového bodu směrem k nižším energiím. Absorpce se též projevuje odchýlením závislosti (1.32) od přímky. Z toho důvodu byla pro odečtení hodnoty maxima energie ve spektru volena pouze jeho část v oblasti blízké koncovému bodu, kterou bylo možné považovat za lineární.

S využitím existujícího Monte Carlo modelu byla vypočítána energie odpovídající absorpci v materiálech tvořících prostředí mezi zdrojem a citlivým objemem detektoru. Průběh simulované odezvy detektoru na monoenergetický svazek elektronů o energii odpovídající tabelované hodnotě koncového bodu  $E_0^{\text{tab}}$  byl proložen exponenciálně modifikovanou Gaussovou distribucí<sup>17</sup> se skokovým pozadím ve tvaru chybové funkce<sup>18</sup>. Tento proklad je ilustrován pro nuklid  $^{204}\text{Tl}$  na obrázku 2.10. Z nafitovaných parametrů byla poté stanovena střední hodnota deponované energie a jejím odečtením od  $E_0^{\text{tab}}$  vypočítána energie absorbovaná prostředím  $\Delta E$ .

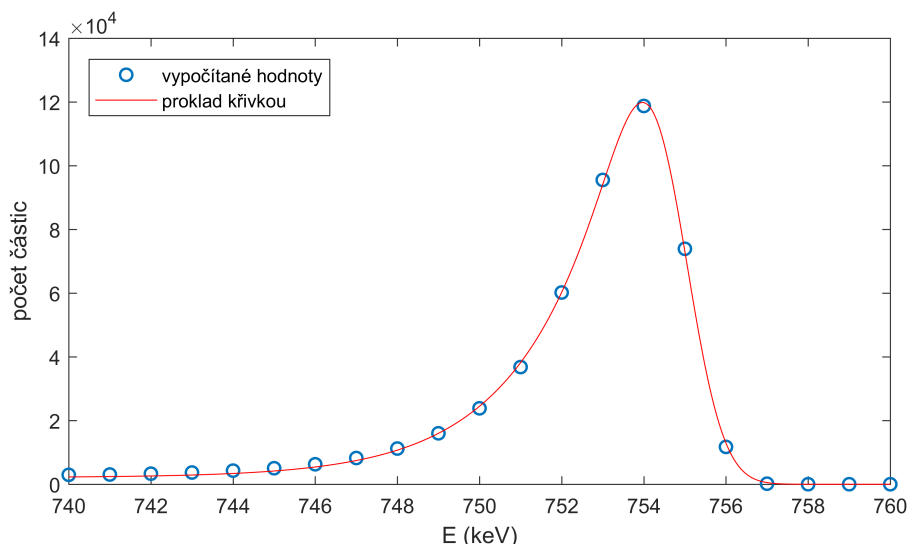
<sup>17</sup>Exponenciálně modifikovaná Gaussova distribuce je definována jako konvoluce exponenciální distribuce a normálního rozdělení [81, s. 345]. V případě levostranné modifikace je odpovídající hustota pravděpodobnosti rovna

$$f(x) = \frac{\lambda}{2} \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2}(2x - 2\mu + \lambda\sigma^2)\right) \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{x - \mu + \lambda\sigma^2}{\sqrt{2}\sigma}\right). \quad (2.9)$$

Střední hodnotu lze vypočítat jako  $\mu - \frac{1}{\lambda}$ , pro rozptyl platí  $\sigma^2 + \frac{1}{\lambda^2}$ .

<sup>18</sup>Funkce použitá pro popis pozadí:

$$B(x) = \frac{A}{2} \cdot \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{x - \mu}{\sigma}\right)\right]. \quad (2.10)$$



**Obrázek 2.10:** Simulovaná odezva Si(Li) na monoenergetické elektrony (763,7 keV)

Srovnání korigovaných hodnot koncového bodu  $E_0^{\text{kor}} = E_0^{\text{exp}} + \Delta E$  spolu s referenčními  $E_0^{\text{tab}}$  poskytuje tabulka 2.4. Je patrné, že v rámci uvedené standardní nejistoty naměřené hodnoty odpovídají tabulkovým. Tudíž, údaje o koncovém bodu získané pomocí této aparatury lze spolehlivě využít pro účely identifikace radionuklidů.

**Tabulka 2.4:** Určení koncového bodu beta spekter

Nuklid	$E_0^{\text{exp}}$ (keV)	$\Delta E$ (keV)	$E_0^{\text{kor}}$ (keV)	$E_0^{\text{tab}}$ (keV)
<sup>32</sup> P	1685(17)	10(2)	1695(17)	1710,66(21)
<sup>33</sup> P	240(2)	13(3)	253(4)	248,5(11)
<sup>89</sup> Sr	1478(13)	11(2)	1489(13)	1495,1(22)
<sup>90</sup> Y	2249(16)	14(4)	2263(16)	2278,7(16)
<sup>147</sup> Pm	213(4)	16(4)	229(6)	224,1(3)
<sup>204</sup> Tl	745(11)	11(2)	756(11)	763,72(18)

$E_0^{\text{exp}}$  – hodnota koncového bodu stanovená z naměřeného spektra

$\Delta E$  – absorpce v materiálu mezi zdrojem a detektorem (MC výpočet)

$E_0^{\text{kor}}$  – hodnota koncového bodu korigovaná na absorpci  $\Delta E$

$E_0^{\text{tab}}$  – tabulková hodnota koncového bodu [68]

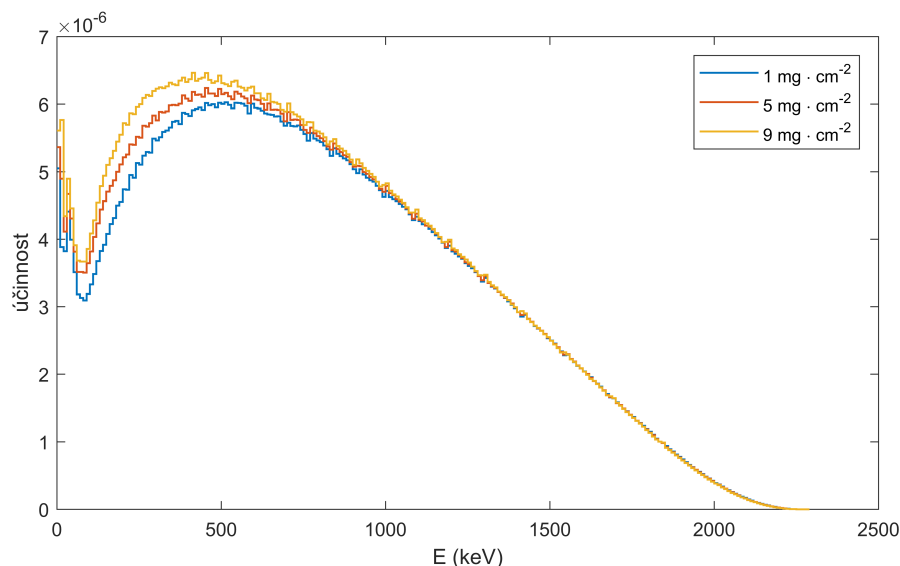
### 2.2.3 Diskuse výsledků

Vytvořený Monte Carlo model křemíkového detektoru umožňuje výpočet beta spekter zvolených radionuklidů. Získané odezvy jsou v dobré shodě s měřením, což bylo kromě vizuálního srovnání posouzeno i statistickým testem. Problematickou částí modelu však zůstává popis zdroje, neboť není přesně známa hustota odparku ani jeho tloušťka. Pro hustotu byly v modelu využity tabulkové hodnoty příslušných chemikálií, které však nereflktují, že vzniklá struktura je nehomogenní a v důsledku přítomnosti vzduchu mezi krystalky budou reálné vlastnosti vzorků jiné. Tloušťka aktivní vrstvy<sup>19</sup> byla odhadnuta a následně upřesněna podle srovnání odezev vypočítaných a naměřených.

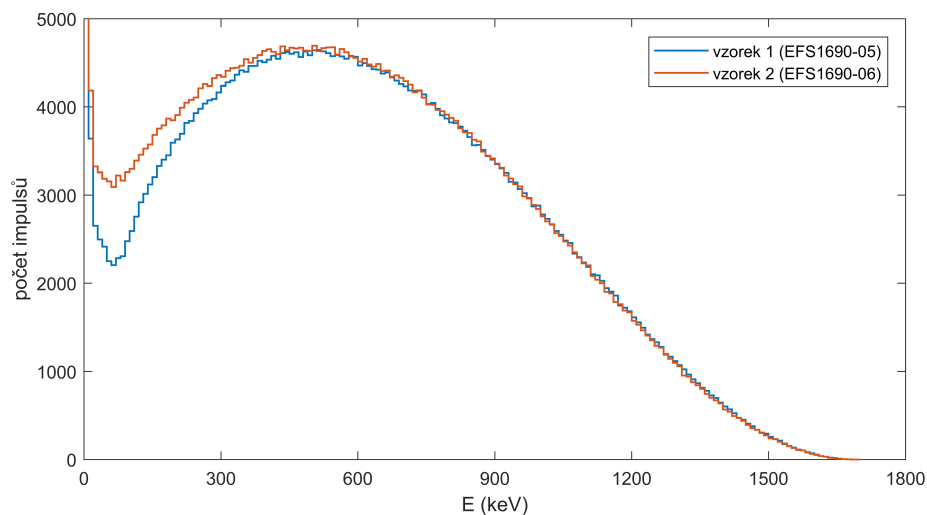
<sup>19</sup>Jde spíše o efektivní tloušťku náhradního geometrického modelu (homogenní válec malé výšky) než o reálný rozměr.

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

Jak nastiňuje obrázek 2.11 se simulovanými odezvami na záření  $^{90}\text{Y}$ , tloušťka zdroje je v této úloze velmi důležitý parametr. I jeho malé změny vedou k výraznému posměnění spektra v oblasti nižších energií (do 500 keV). Menší rozdíly však lze pozorovat až do energie 1 MeV. Využití modelu je tedy do jisté míry limitováno, neboť v uvedené podobě není možné výpočtem získat reprezentativní spektrum libovolného radionuklidu, aniž by bylo provedeno srovnání s měřením.



**Obrázek 2.11:** Simulovaná spektra  $^{90}\text{Y}$  odpovídající zdrojům třech různých tlouštěk

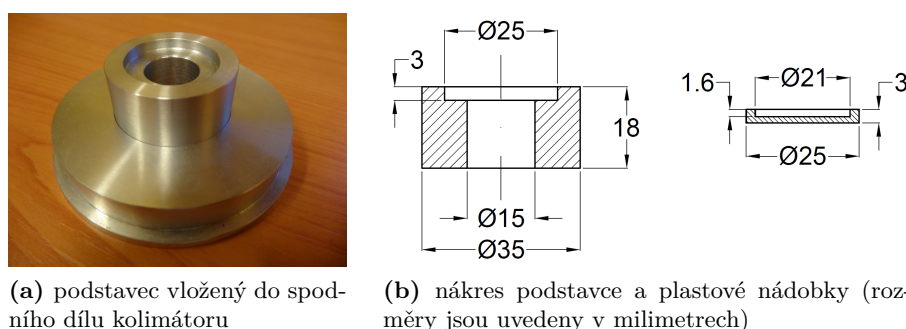


**Obrázek 2.12:** Naměřená spektra dvou vzorků  $^{32}\text{P}$  stejného provedení

Větším problémem než samotná neznalost přesných rozměrů je fakt, že použitý způsob přípravy vzorků nezajišťuje dostatečnou opakovatelnost. Zvolený postup je sice jednoduchý na provedení, avšak vlastnosti zdrojů jsou nedostatečné s ohledem na zamýšlené měření. Jedná se zejména o nehomogenitu nanesené aktivní vrstvy a lokální rozdíly tloušťky v důsledku procesu krystalizace [34, s. 1367]. Tyto skutečnosti způsobují nezanedbatelné rozdíly mezi spektry, což je naznačeno obrázkem 2.12. Na něm jsou vykresleny naměřené odezvy od dvou vzorků radionuklidu  $^{32}\text{P}$ , které byly vyrobeny ze stejného výchozího materiálu, stejným postupem a za totožných podmínek. Přesto se

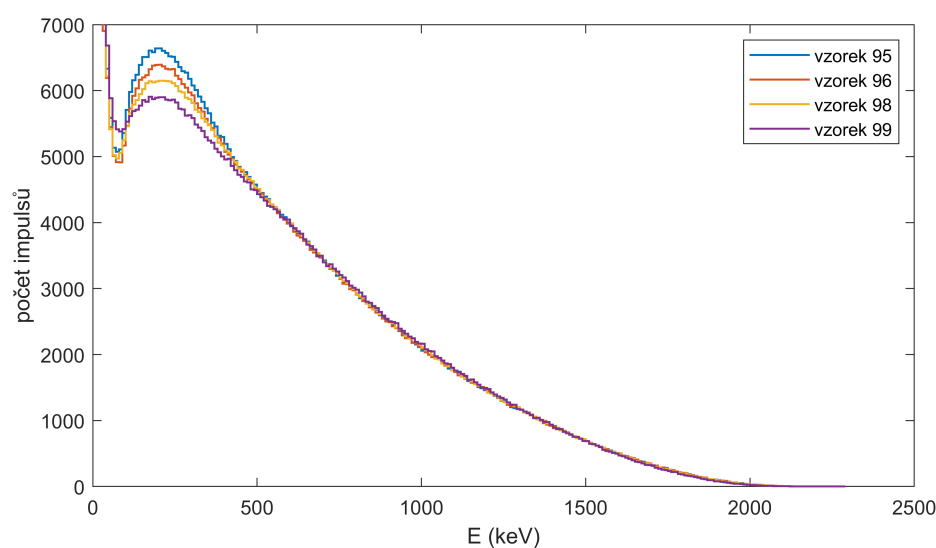
spektra (vzájemně normalizována v intervalu energií od 600 keV) viditelně odlišují, což znesnadňuje případné provádění jejich analýzy v oblasti nízkých energií.

Při hledání způsobu zajištění lepší opakovatelnosti prováděného měření byl též učiněn experiment s hmotnými vzorky větších, leč přesněji definovaných rozměrů. Zdroje byly připraveny dispergováním radioaktivního roztoku obsahujícího směs nuklidů  $^{90}\text{Sr}$  a  $^{90}\text{Y}$  v radioaktivní rovnováze do silikonového kaučuku<sup>20</sup>. Tento materiál byl nalit do malé plexisklové nádoby o objemu 0,5 ml, v níž následně ztuhl. Měření spekter bylo provedeno v konfiguraci s kolimátorem popsáním na začátku podkapitoly 2.2. S ohledem na odlišné rozměry zdroje záření byl do jeho spodního dílu doplněn pomocný duralový podstavec (viz obrázek 2.13a). Jeho nákres v řezu je znázorněn v levé části obrázku 2.13b, vpravo jsou uvedeny též rozměry použité plastové nádoby.



**Obrázek 2.13:** Pomocný duralový podstavec

Naměřená spektra čtyř výše uvedeným způsobem připravených vzorků jsou vykreslena v grafu na obrázku 2.14. Jednotlivé odezvy jsou vzájemně normalizovány v intervalu energií od 1000 keV. Z prezentovaných výsledků je patrné, že pro energie elektronů do 500 keV vykazují spektra stále výrazné rozdíly. Počáteční hypotéza, že spektrum hmotných zdrojů sice bude značně deformováno, avšak větší kontrola nad fyzickými rozměry povede ke zlepšení opakovatelnosti měření, se tak nepotvrdila.



**Obrázek 2.14:** Naměřená spektra čtyř vzorků  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  stejného provedení

<sup>20</sup>Složení materiálu (hmotnostní zlomky): uhlík 0,324; vodík 0,0816; kyslík 0,216; křemík 0,379.

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

Lze uvažovat, že určitého zlepšení stavu by šlo dosáhnout zásadnější změnou postupu výroby měřených vzorků. Vyhotovení kvalitních spektrometrických zdrojů je možno provést více metodami, například *katodovým rozprašováním*<sup>21</sup>, *vakuovým napařováním*<sup>22</sup> nebo *vymrazováním*<sup>23</sup> [29, s. 245–248]. Ve studii [54] věnující se měření beta spekter pomocí mikrokalorimetrů bylo též dosaženo dobrých výsledků při využití zdrojů vyrobených *elektrolyticky*<sup>24</sup>. Nevýhodou všech těchto postupů je skutečnost, že nejsou univerzálně vhodné pro libovolný radionuklid. Dále též oproti odpařování jsou dražší a náročnější co do přístrojového vybavení. Jejich použití by znamenalo zcela opustit původně definovaný cíl, že vyvíjená metodika identifikace čistých beta radionuklidů ve směsích bude rutinně proveditelná v běžně vybavených laboratořích.

### 2.3 Možnosti zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu

Závěry předchozí podkapitoly uvedené v její části 2.2.3 poukazují, že zajištění dostatečné opakovatelnosti výroby zdrojů záření (s ohledem na beta spektrometrii) je při použití odpařovací metody obtížně realizovatelné. Zároveň je z prezentovaných výsledků patrné, že i drobné rozdíly mezi jednotlivými vzorky se projeví odlišnostmi ve spektrech, zejména pak v jejich nízkoenergetické části. Tuto skutečnost je nutné zohlednit při provádění kterékoliv analýzy založené na vzájemném porovnání spekter (naměřených i vypočtených). Pokud není z libovolného důvodu možné změnit výrobní postup a minimalizovat tak rozptyl vlastností individuálních vzorků, nabízí se jako částečné řešení podrobnější charakterizace prostorové distribuce odparku, která umožní zpřesnit popis zdrojového členu pro danou konkrétní Monte Carlo simulaci.

#### 2.3.1 XRF analýza vzorků pro beta spektrometrii

Pro detailní studium prostorového rozložení materiálu odparku byla zvolena rentgenová fluorescenční analýza (XRF). Jedná se o nedestruktivní analytickou metodu, která umožňuje získat kvalitativní i kvantitativní informaci o prvkovém složení zkoumaného vzorku [83, s. 1–3]. Jednotlivé prvky jsou identifikovány na základě spektrometrického měření charakteristického záření X, které je v materiálu vybuzeno externím zdrojem záření<sup>25</sup>. Princip metody je založen na skutečnosti, že v důsledku ionizace atomu (vyražení některého z orbitálních elektronů) se jeho elektronový obal dostane do nestabilní konfigurace. K přechodu do energeticky výhodnějšího stavu dochází během krátkého času (řádově  $10^{-15}$  s) zaplněním vzniklé vakance elektronem přeskočivším z vnější slupky do vnitřní. Každý z takových přechodů elektronu je v souladu se zákony kvantové me-

<sup>21</sup>Metoda využívá jevu odpařování katody, ke kterému dochází při doutnavém výboji [29, s. 261]. Povrch katody je nárazem iontu plynu lokálně zahřát, v důsledku čehož dojde k odpaření atomů kovu. Ty v okolí elektrody vytvoří oblak kovového plynu. Pokud do něj vložíme destičku z libovolného materiálu, dosáhneme jejího rovnoměrného pokrytí kovovou vrstvou.

<sup>22</sup>Při tomto způsobu výroby zdroje je odpařovaný materiál umístěn do vakua a následně ohříván na teplotu, při níž tlak jeho vlastních par nabývá asi 1 Pa [29, s. 264]. Odpařované atomy ve vzduchoprázdnu putují ze zdrojového materiálu přímočaře. Je tedy možné jim do cesty umístit podložku připravovaného zdroje, na kterou se usadí.

<sup>23</sup>Vymrazování je vylepšením klasické odpařovací metody, díky kterému se zvyšuje homogenita aktivní vrstvy [82, s. 1392]. Roztok nanesený na podložku je vložen do vakuového exikátoru. Snížením tlaku dojde k jeho zamrznutí, následná dehydratace se tedy děje sublimací.

<sup>24</sup>Radionuklidy přítomné ve vhodném roztoku se v průběhu elektrolýzy deponují na jednu z elektrod [29, s. 279].

<sup>25</sup>K vybuzení charakteristického záření se využívají rentgenové nebo gama fotony, případně též nabitě částice.

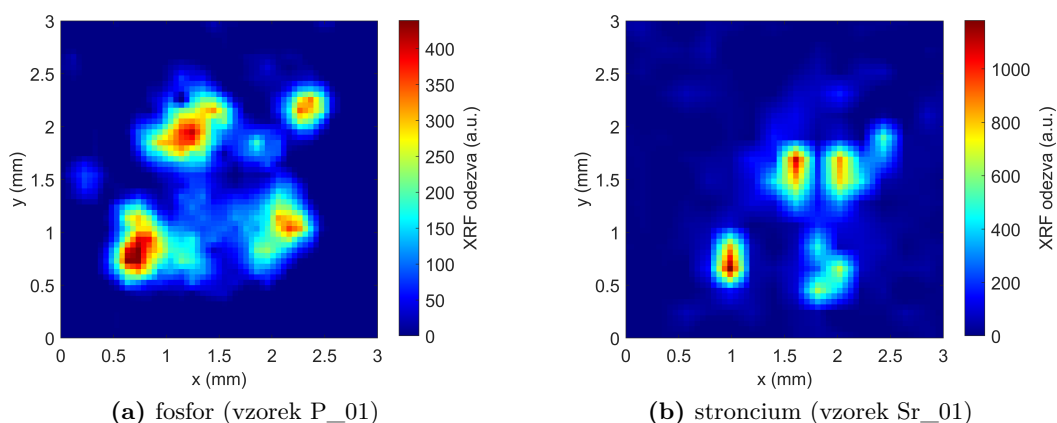


### 2.3. Možnosti zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu

chaniky doprovázen uvolněním energie, jejíž velikost odpovídá energetickému rozdílu jednotlivých hladin, například ve formě fotonů rentgenového záření<sup>26</sup>.

XRF analýza vzorků byla provedena pomocí mikro-XRF zařízení instalovaného na Katedře dozimetrie a aplikace ionizujícího záření FJFI ČVUT v Praze [84]. Zdrojem budícího záření v této aparatuře je rentgenka s molybdenovou anodou, jež je vybavena fokusační polykapilární optikou, díky které je průměr ohniska menší než  $15\ \mu\text{m}$  ve vzdálenosti 4 mm od jejího konce. Rentgenka může být provozována při napětí do 50 kV a anodovém proudu do 1 mA. Zkoumané předměty jsou upínány do XY polohovacího systému, jenž zajišťuje postupné skenování zvolené oblasti. Emitované charakteristické záření je registrováno spektrometrem s křemíkovou PIN diodou<sup>27</sup>.

Zdroje záření analyzované v ČMI prostřednictvím beta spektrometrie jsou připravovány jako téměř bezhmotné tenké vrstvy malých rozměrů (průměr aktivní plochy menší než 3 mm). Jelikož nebylo zřejmé, zda odparky těchto vlastností bude možné výše popsaným mikro-XRF systémem úspěšně analyzovat, bylo nejprve měření prostorové distribuce prvkového složení ověřeno na neaktivních vzorcích. Ty byly zhotoveny stejným způsobem a za použití totožných chemických látek jako aktivní, pouze do roztoku nosiče nebyl přimíchán žádný radionuklid. Výsledky skenování<sup>28</sup> dvou neaktivních odparků (obsahujících různé prvky – fosfor a stroncium) jsou znázorněny na obrázku 2.15. Vykreslená XRF odezva byla v každém bodě analyzované oblasti získána stanovením čisté plochy peaku v energetickém okně spektra odpovídajícím linkám charakteristického záření daného prvku<sup>29</sup>.



**Obrázek 2.15:** Prostorová distribuce prvků v neaktivních odparcích

Výsledky měření neaktivních vzorků potvrdily, že mikro-XRF analýza na aparatuře KDAIZ je využitelná i pro charakterizaci odparků obsahujících minimum hmoty. V dalším experimentu bylo proto realizováno obdobné skenovací měření, přičemž studován již byl skutečný vzorek pro beta spektrometrii, ve kterém byl přítomen radionuklid  $^{89}\text{Sr}$ . Nastavení měřicí sestavy bylo totožné s předchozími případy, pouze byla prodloužena doba akvizice jednoho spektra z 5 s na 30 s. Získaná prostorová distribuce stroncia v jednom z aktivních odparků je graficky znázorněna na obrázku 2.16.

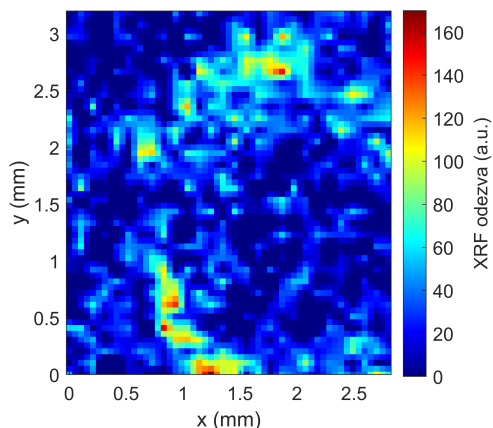
<sup>26</sup>Konkurenčním procesem je emise Augerových elektronů.

<sup>27</sup>Amptek X-123, rozměry citlivého objemu  $6\ \text{mm}^2 \times 0,5\ \text{mm}$ , beryliové okénko tloušťky  $25\ \mu\text{m}$ .

<sup>28</sup>Měření proběhlo při nastavení parametrů rentgenky na 50 kV a  $1\ \mu\text{A}$ . Doba záznamu spektra v jednom bodě byla 5 s. Skenování oblasti bylo provedeno s krokem  $100\ \mu\text{m}$ , pro vizualizaci prostorové distribuce XRF odezvy (a tedy i přítomnosti daných prvků) byla data interpolována (pixely na obrázcích 2.15 a 2.16 mají rozměry  $50\ \mu\text{m}$ ).

<sup>29</sup>Stroncium:  $K\alpha_1$  14,165 keV a  $K\alpha_2$  14,0979 keV; fosfor:  $K\alpha_1$  2,0137 keV a  $K\alpha_2$  2,0127 keV [85].

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

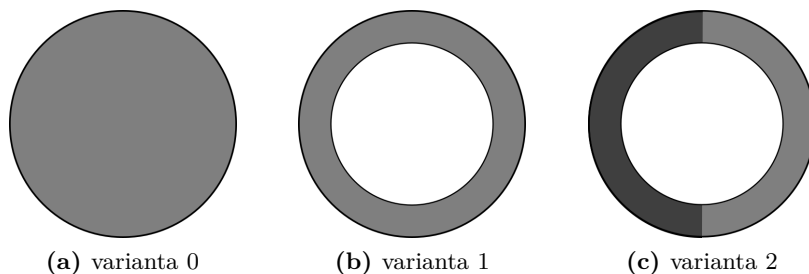


**Obrázek 2.16:** Prostorová distribuce stroncia v aktivním odparku (vzorek Sr89\_07, radionuklid  $^{89}\text{Sr}$ )

### 2.3.2 Úprava definice zdrojového členu v simulaci

Zatímco při prvotních výpočtech beta spekter pomocí vytvořeného Monte Carlo modelu byl zdroj záření modelován jako válec homogenně vyplněný materiálem (viz část 2.2.2), použití XRF analýzy pro bližší charakterizaci měřeného vzorku umožnilo geometrii zdrojového členu v simulaci přiblížit jeho reálné podobě.

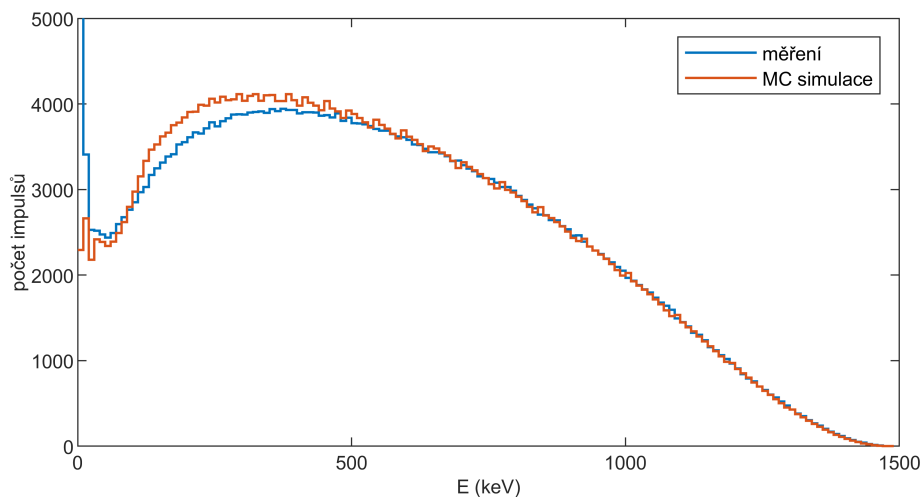
Na obrázku 2.16 je patrné, že v případě vzorku Sr89\_07 je materiál tvořící odparek dominantně situován po obvodu prohlubně v podložce, do níž je při výrobě zdroje nanesen radioaktivní roztok (viz podkapitulu 2.2 a přílohu A). Základní (nultá) varianta zdrojového členu připomenutá v předchozím odstavci byla proto doplněna o další dvě; schematicky všechny tři uvažované možnosti v půdorysném pohledu znázorňuje obrázek 2.17. V první modifikaci má zdroj tvar prstence, který je vytvořen pomyslným odstraněním vnitřního válcového objemu (se stejnou osou) vymezeného poloměrem 1,25 mm (odhad založený na měření prostorového rozložení materiálu odparku). Druhá varianta je pak další úpravou prstence, jenž je rozdělen do dvou oblastí o různé výšce. Tato změna byla motivována skutečností, že na obrázku 2.16 lze sledovat dvě hlavní oblasti výskytu stroncia, přičemž průměry hodnot XRF odezvy v nich jsou vzájemně odlišné. Příčinou tohoto rozdílu je pravděpodobně nestejná mocnost jednotlivých částí odparku.



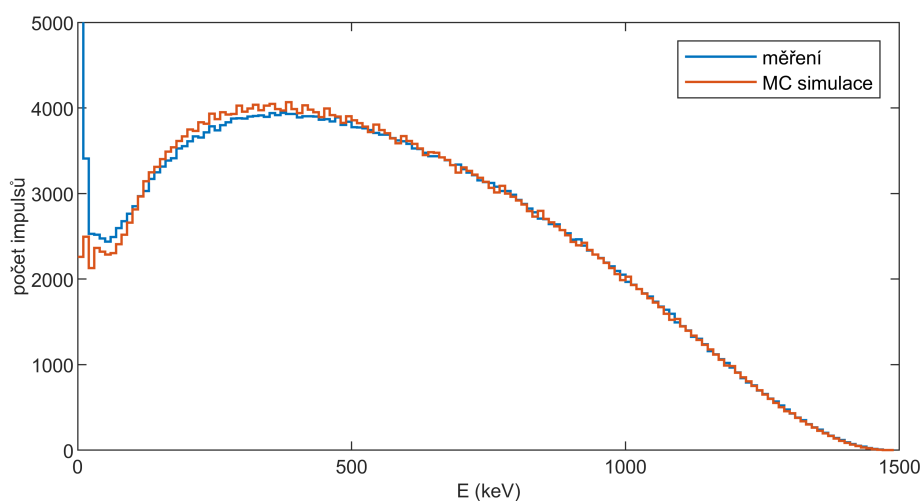
**Obrázek 2.17:** Schématické znázornění (v půdorysném pohledu) třech variant tvaru zdrojového členu použitého v Monte Carlo výpočtu beta spektra radionuklidu  $^{89}\text{Sr}$

Srovnání experimentálně naměřeného spektra se všemi provedenými variantami Monte Carlo simulace je graficky vyobrazeno spektry na obrázku 2.18. Výsledky simulace byly normalizovány podle naměřených dat tak, aby integrál počtu impulzů v části spektra od 500 keV výše byl v obou případech totožný. Ke kvantitativnímu

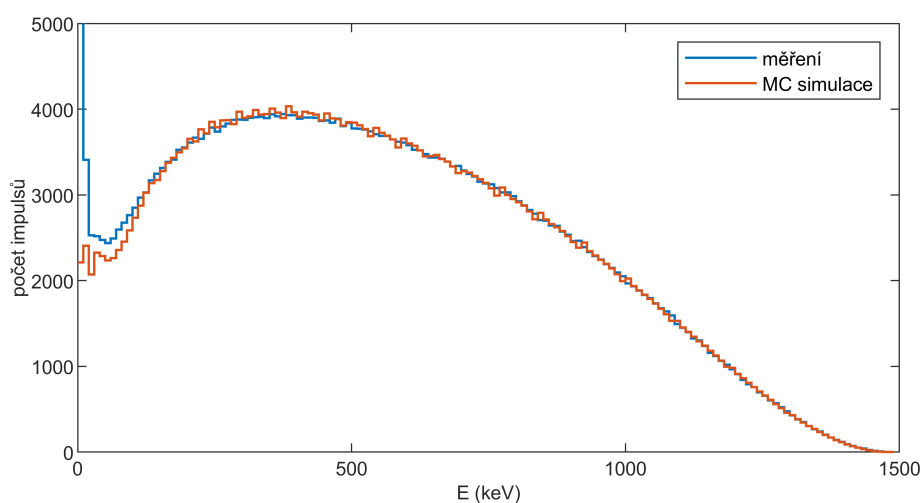
### 2.3. Možnosti zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu



(a) varianta 0 – kruh



(b) varianta 1 – prstenec



(c) varianta 2 – modifikovaný prstenec

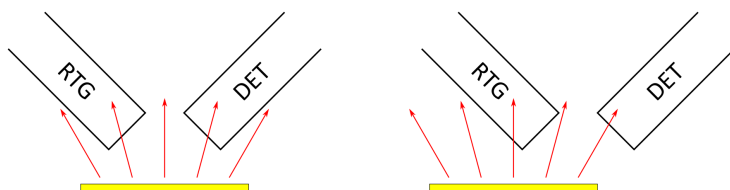
**Obrázek 2.18:** Srovnání simulace provedené pro několik variant popisu zdrojového členu v MC modelu s naměřeným beta spektrem radionuklidu  $^{89}\text{Sr}$

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

posouzení shody byl opět využit Kolmogorovův–Smirnovův test pro dva výběry<sup>30</sup>. Dle vztahu (2.6) bylo spočítáno testovací kritérium  $D_2$ , které bylo pro všechny tři případy srovnáno s kritickou hodnotou  $D_{2;0.01} = 0,0039$  stanovenou vzorcem (2.8). Pouze v jednom případě (varianta 2) nebyla na základě provedeného testu na hladině významnosti  $p = 0,01$  zamítnuta hypotéza, že oba výběry pochází z jednoho základního souboru, pro zbývající dva byl parametr  $D_2$  vyšší než kritická hodnota<sup>31</sup>.

### 2.3.3 Diskuse výsledků

Provedenými experimenty bylo potvrzeno, že mikro-XRF skenování je analytická metoda uplatnitelná pro získání přesnější představy o skutečné distribuci hmoty v odparcích využívaných při spektrometrii beta v ČMI. Měření radioaktivních vzorků sice není obvyklou úlohou, ke které aparatura na KDAIZ slouží, ale přesto bylo možné v zaznamenaných datech identifikovat hledaný signál charakteristického záření daného prvku. Odlišností od případu vzorků neaktivních je především zvýšené pozadí způsobené přítomností zdroje ionizujícího záření, přičemž jeho velikost není v celé skenované ploše konstantní – při měření se mění poloha detektoru, a proto i míra jeho ovlivnění zářením emitovaným vzorkem se odlišuje (viz obrázek 2.19). Při zpracování spekter za účelem vytvoření prostorové distribuce zvoleného prvku je proto nutné od celkového počtu zaznamenaných impulzů v určitém energetickém intervalu odečíst hodnotu odpovídající pozadí<sup>32</sup>. Ta byla získána určením plochy lichoběžníku daného hranicemi oblasti zájmu a přímkou spojující levé a pravé okolí peaku.



**Obrázek 2.19:** Znázornění ovlivnění detektoru při XRF skenování různých částí radioaktivního vzorku

Obrázek 2.20 ukazuje spektrum naměřené v jednom bodě při XRF analýze vzorku Sr89\_07. Podle tabulek [85] je v něm možné identifikovat peaky charakteristického záření, které přísluší prvkům tvořícím materiál odparku (stroncium a chlor)<sup>33</sup>. Dále jsou patrné K linky argonu (složka vzduchu) a molybden (materiál anody rentgenky, koherentní rozptyl). Výrazný je peak nekoherentně zpětně rozptýleného charakteristického záření z anody a též kontinuum odpovídající dalším různým rozptylům záření.

XRF analýzou získaná informace o konkrétním vzorku je využitelná pro zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu. Díky přiblížení se k reálné geometrii vede taková úprava k lepšímu souladu mezi měřením a simulací, na což poukazují i závěry provedeného statistického testu. Lze konstatovat, že tento postup alespoň částečně kompenzuje jevy, které jsou spojeny s limitovanou opakovatelností vlastností vzorků

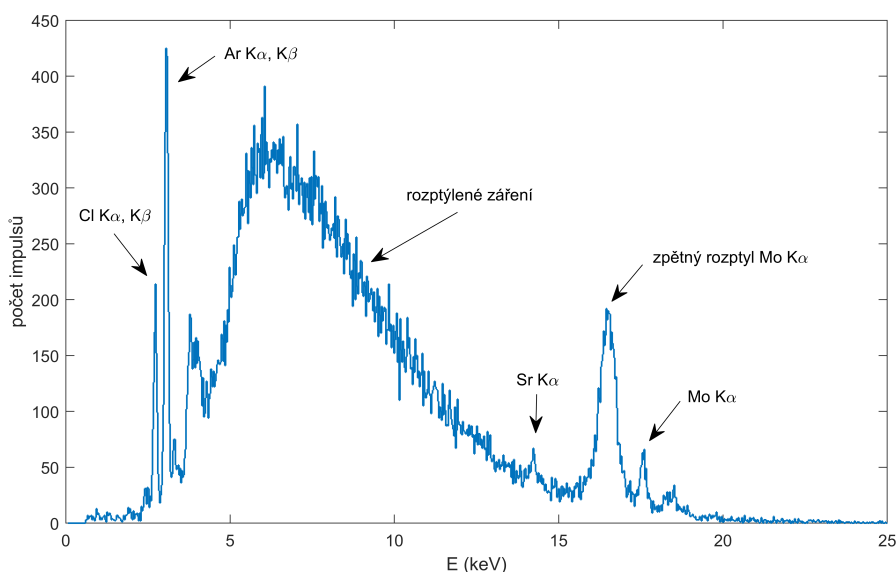
<sup>30</sup>Podrobnější vysvětlení použití uvedeného statistického testu je součástí sekce 2.2.2.

<sup>31</sup>Hodnoty testovacího kritéria  $D_2$  pro jednotlivé varianty simulovaných spekter jsou rovny 0,0129 (varianta 0), 0,0057 (varianta 1) a 0,0019 (varianta 2). Výpočet byl proveden pro část spektra zdola omezenou hranicí 100 keV.

<sup>32</sup>Vyhodnocení spekter neaktivních i aktivních vzorků bylo provedeno stejným způsobem, tedy jako XRF odezva byla brána čistá plocha příslušného peaku charakteristického záření. U neaktivních vzorků by byl v principu možný i postup, kdy by pozadí nebylo odečítáno, neboť jeho hodnota byla v celé skenované oblasti obdobná (a tudíž by byly pouze odezvy ve všech bodech v průměru o tuto konstantu vyšší).

<sup>33</sup>Chemická forma odparku je chlorid strontnatý ( $\text{SrCl}_2$ ).

připravených odpařováním (viz diskusi v části 2.2.3 předchozí podkapitoly). Znamená však zároveň časové prodloužení celého procesu, neboť charakterizace každého odparku XRF skenováním bude na použité aparatuře probíhat řádově jednotky hodin<sup>34</sup>.



**Obrázek 2.20:** Spektrum charakteristického záření v jednom bodě skenované oblasti vzorku Sr89\_07

## 2.4 Stanovení příměsí na základě beta spekter

Možným využitím beta spektrometrie je stanovení jednotlivých nuklidů ve směsích tvořených čistými zdroji beta. Tato úloha má největší význam zejména vzhledem k již v úvodu zmíněnému požadavku na radionuklidovou čistotu radiofarmak, může však též najít další uplatnění i při kontrole výroby radioaktivních materiálů pro jiné účely.

Identifikace složek směsi radionuklidů podléhajících beta přeměně z naměřeného beta spektra je řešena studií [86], ve které její autoři na datech z magnetického spektrometru demonstrovali využití metody odečítání spekter. Spektra příslušející individuálním nuklidům byla popsána funkcí definovanou předpisem

$$\sum_{i=1}^8 a_i \sin(b_i E + c_i), \quad (2.11)$$

jež matematicky dobře vystihuje tvar spekter, avšak nevykazuje v daném případě žádnou fyzikální souvislost. Parametry  $a_i$ ,  $b_i$  a  $c_i$  byly určeny fitováním experimentálních dat. Prezentovaná metoda byla vyzkoušena při analýze směsi radionuklidů  $^{32}\text{P}$ ,  $^{90}\text{Y}$  a  $^{106}\text{Rh}$  o různém vzájemném zastoupení. Správnost stanovení poměru aktivit byla lepší než 2 %.

Odlíšný přístup k řešení výše diskutovaného problému nabízí postup, ve kterém je naměřené směšné beta spektrum rozděleno do několika oblastí (například pěti) [87]. Uvažujeme-li směs tří radionuklidů A, B a C, je možné v každé dílčí části spektra pro

<sup>34</sup>Při volbě hodnot parametrů měření (rozměr skenované oblasti, krok skenování, doba měření jednoho spektra) obdobných těm, jež byly použity při experimentech popsaných v této práci.

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

počet zaznamenaných impulzů  $N_i$  psát

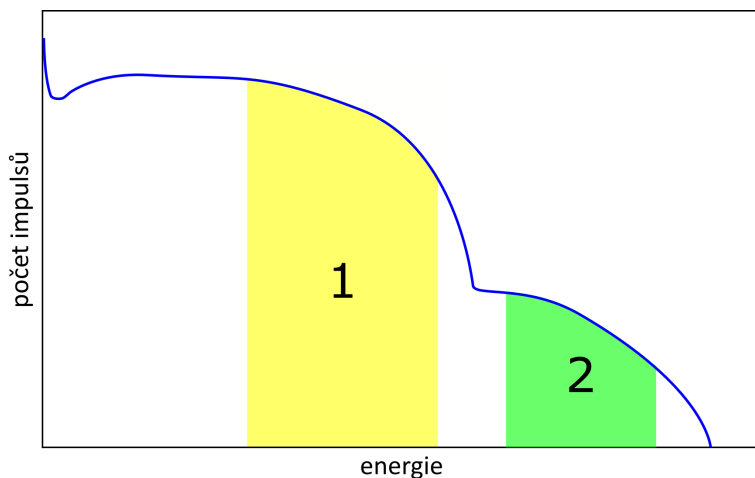
$$N_i = \eta_i^A X_A + \eta_i^B X_B + \eta_i^C X_C, \quad (2.12)$$

kde symbol  $\eta$  značí účinnost detekce. Hledané hodnoty aktivity  $X$  jsou vypočítány minimalizací odpovídajícího výrazu vyjadřujícího varianci metodou nejmenších čtverců.

Techniky analýzy studované v rámci této práce využívají rozložení směsného spektra na dílčí pomocí známé odezvy na jednotlivé radionuklidy. Ta ovšem, na rozdíl od [86], není popsána empirickou funkcí, ale používá hodnoty získané z Monte Carlo simulace. Konkrétní kroky navrhovaných postupů jsou rozvinuty v následujících odstavcích.

### 2.4.1 Metoda dvou oken

Příklad spektra směsi čistých zdrojů beta je ve zjednodušené formě znázorněn obrázkem 2.21. Ten odpovídá situaci, kdy základní nuklid obsahuje příměs o vyšším koncovém bodu, než má sám. Při logaritmickém zobrazení svislé osy je přítomnost případné nečistoty snadno zjištělná. Jak bylo ukázáno v kapitole 2.2.2, kvalitativní informaci o ní je do jisté míry možno získat na základě odečtené hodnoty koncového bodu (korigované na absorpci v prostředí). Příklad, kdy příměs má nižší koncový bod než základní nuklid směsi, se může jevit méně přehledně, neboť její vliv na spektrum nemusí být na první pohled patrný. Postup výpočtu při kvantitativní analýze je však pro obě varianty totožný.



**Obrázek 2.21:** Princip stanovení radionuklidových příměsí z beta spektra

Prvním krokem této metody je vymezení dvou oken – oblastí zájmu – ve spektru tak, jak je naznačeno na obrázku 2.21. Zóny jsou vytyčeny takovým způsobem, aby v první byly registrovány impulzy od obou složek směsi, zatímco v druhé jen ty způsobené radionuklidem s vyšším koncovým bodem. Pro počet impulzů  $N_1$  v oblasti 1, respektive  $N_2$  v oblasti 2, platí vztahy

$$\begin{aligned} N_1 &= A\eta_1^A t + B\eta_1^B t, \\ N_2 &= B\eta_2^B t, \end{aligned} \quad (2.13)$$

v nichž  $\eta_i$  označuje účinnost detekce v  $i$ -tém okně pro horním indexem specifikovaný nuklid,  $A$  a  $B$  jsou v uvedeném pořadí aktivity radionuklidů s vyšší a nižší hodnotou koncového bodu a  $t$  je živá doba měření. Úpravou soustavy (2.13) obdržíme vztah

udávající vzájemný poměr aktivit

$$\frac{A}{B} = \frac{\eta_2^B}{\eta_1^A} \cdot \left( \frac{N_1}{N_2} - \frac{\eta_1^B}{\eta_2^B} \right). \quad (2.14)$$

Výše vysvětlený postup byl vyzkoušen na směsi tvořené základním nuklidem  $^{89}\text{Sr}$  s nečistotou v podobě  $^{90}\text{Sr}$ . K jejímu vzniku běžně dochází při výrobě nuklidu  $^{89}\text{Sr}$  v důsledku parazitních reakcí, a to jak v případě využití tepelných –  $^{88}\text{Sr}(n, \gamma)^{89}\text{Sr}$ , tak rychlých neutronů –  $^{89}\text{Y}(n, p)^{89}\text{Sr}$  [88]. Hodnota energie koncového bodu příměsí je sice nižší než u základního nuklidu, ale  $^{90}\text{Sr}$  je též radioaktivní a přeměňuje se na  $^{90}\text{Y}$ . S ohledem na velikost poločasů přeměny dochází k ustavení sekulární (dlouhodobé) rovnováhy a množství  $^{90}\text{Sr}$  je možné stanovit prostřednictvím  $^{90}\text{Y}$ , jehož koncový bod je proti  $^{89}\text{Sr}$  naopak vyšší.

Detektorem Si(Li) byla zaznamenána spektra odpovídající šesti různým koncentracím příměsí v základním nuklidu (viz obrázek 2.22). Hledaný poměr aktivity nuklidů  $^{90}\text{Sr}$  (respektive  $^{90}\text{Y}$ ) a  $^{89}\text{Sr}$  byl vypočítán na základě vzorce (2.14), do kterého byly dosazeny účinnosti získané z příslušného Monte Carlo modelu (viz podkapitolu 2.1). Oblasti zájmu byly určeny energetickými intervaly (700–1400) keV a (1500–1700) keV<sup>35</sup>. Výsledky analýzy jsou shrnuty v tabulce 2.5, jejich standardní nejistota byla stanovena podle pravidel pro výpočet nejistoty nepřímě měřené veličiny (viz [74, s. 18–19]).

**Tabulka 2.5:** Poměr aktivity příměsí  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  a základního nuklidu  $^{89}\text{Sr}$

Deklarováno (%)	Změřeno (%)	Deklarováno (%)	Změřeno (%)
0,1	0,15(1)	1	1,04(3)
0,3	0,35(2)	2	2,07(4)
0,5	0,52(2)	3	3,08(5)

Hodnoty byly stanoveny metodou dvou oken.

Všechny nejistoty v tabulce jsou uvedeny pro koeficient rozšíření  $k = 1$ .

Metoda dvou oken byla stejným způsobem otestována i pro analýzu druhé sady spekter pocházejících od směsi totožných radionuklidů, jejichž poměr aktivit však byl opačný. Jednalo se tedy o příměs  $^{89}\text{Sr}$  v  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . Vypočtené poměry aktivit jsou shrnuty v tabulce 2.6.

**Tabulka 2.6:** Poměr aktivity příměsí  $^{89}\text{Sr}$  a základního nuklidu  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

Deklarováno (%)	Změřeno (%)	Deklarováno (%)	Změřeno (%)
1	1,1(5)	5	5,4(5)
2	2,1(5)	8	8,7(5)

Hodnoty byly stanoveny metodou dvou oken.

Všechny nejistoty v tabulce jsou uvedeny pro koeficient rozšíření  $k = 1$ .

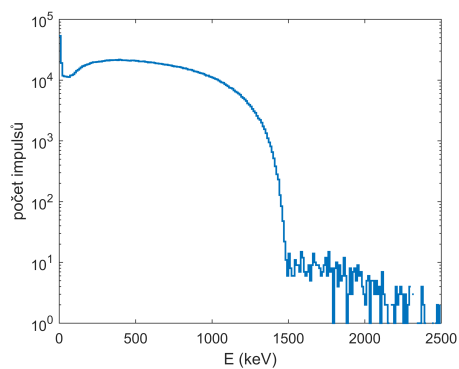
## 2.4.2 Metoda odečítání spekter

Alternativním řešením problému analýzy směsi čistých beta radionuklidů je aplikace metody odečítání spekter. Ta obecně funguje na principu postupného odečítání knihovních spekter odpovídajících jednotlivým nuklidům ve směsi od naměřené odezvy<sup>36</sup>. Při

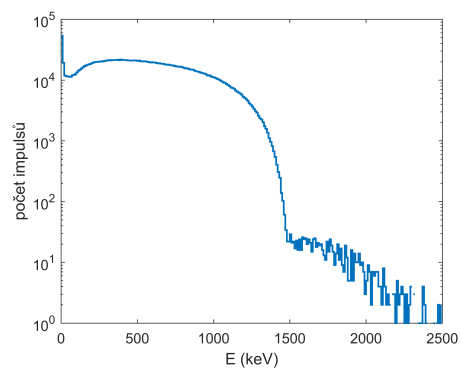
<sup>35</sup>Energie koncového bodu  $^{90}\text{Sr}$  je 549,5(14) keV [73], z čehož plyne, že tento nuklid přímo nepřispívá k odezvě ve zvolených oknech.

<sup>36</sup>Předpokládáno, že spektra naměřená a knihovní jsou vzájemně normalizována.

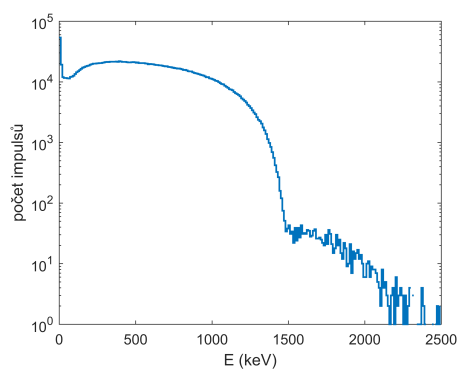
## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru



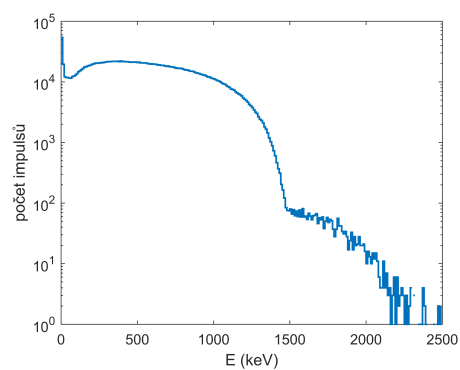
(a) podíl aktivity příměsi 0,1 %



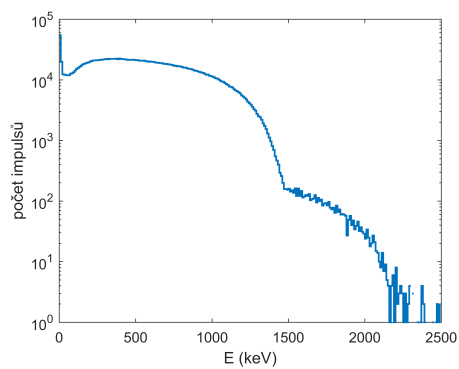
(b) podíl aktivity příměsi 0,3 %



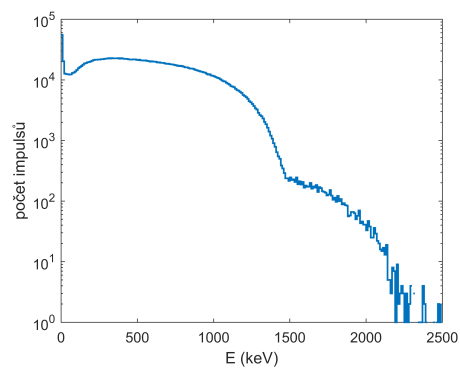
(c) podíl aktivity příměsi 0,5 %



(d) podíl aktivity příměsi 1 %



(e) podíl aktivity příměsi 2 %



(f) podíl aktivity příměsi 3 %

Obrázek 2.22: Spektra radionuklidu  $^{89}\text{Sr}$  s různým podílem příměsi  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$



## 2.4. Stanovení příměsí na základě beta spekter

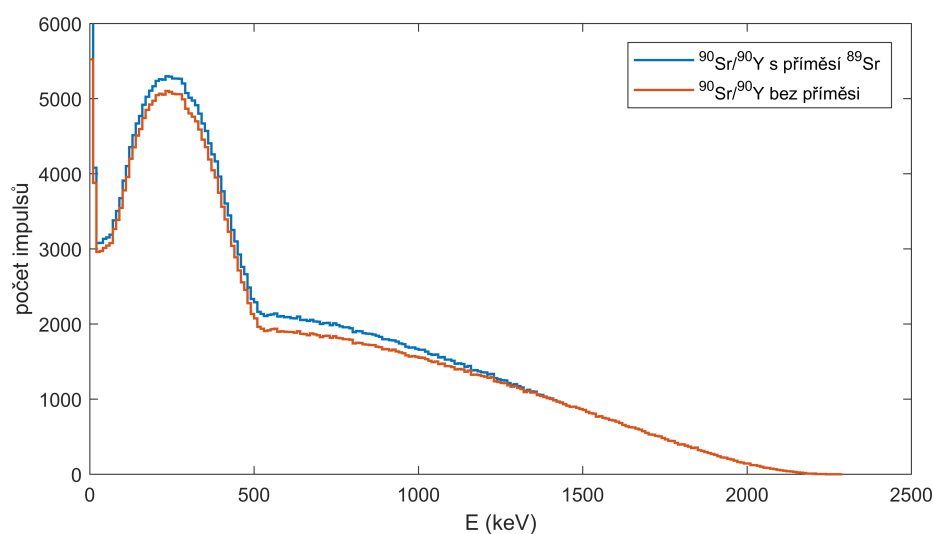
tomto procesu se postupuje od vyšších energií (tj. v našem případě od nuklidů majících vyšší hodnotu koncového bodu) směrem k nižším.

Spektra odpovídající samostatným nuklidům lze obecně stanovit Monte Carlo výpočtem. Existují však případy, ve kterých je možné získat potřebné spektrum bez příměsí i měřením. Příkladem budiž studovaný vzorek  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  obsahující stopy  $^{89}\text{Sr}$ . Jelikož se  $^{89}\text{Sr}$  přeměňuje rychleji než  $^{90}\text{Sr}$ , po určitém čase vzniká materiál bez uvedené nečistoty a jeho spektrum může posloužit jako referenční při porovnání s ostatními<sup>37</sup>.

Při analýze smíšeného beta spektra touto metodou nejprve definujeme oblast zájmu. S ohledem na obtíže při modelování odezvy pro elektrony nižších energií je vhodné její spodní mez volit cca od 500 keV výše (podrobněji rozebráno v části 2.2.3 této kapitoly), nastavení horní je shora limitováno nejnižší hodnotou energie koncového bodu ve směsi. V příslušném energetickém intervalu následně stanovíme integrál počtu impulzů v naměřeném a referenčním bezpříměsovém spektru. Pro nejjednodušší případ binární směsi rozdíl obou hodnot udává počet impulzů způsobených příměsí  $N_A$ , počet impulzů odpovídající druhému nuklidu  $N_B$  je roven integrálu v knihovním spektru. Hledaný poměr aktivit je dán následujícím vztahem

$$\frac{A}{B} = \frac{N_A \eta^B}{N_B \eta^A}, \quad (2.15)$$

v němž  $\eta^A$  a  $\eta^B$  jsou příslušné detekční účinnosti pro jednotlivé nuklidy vypočítané Monte Carlo modelem.



**Obrázek 2.23:** Spektrum  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  s příměsí  $^{89}\text{Sr}$

**Tabulka 2.7:** Poměr aktivity příměsí  $^{89}\text{Sr}$  a základního nuklidu  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

Deklarováno (%)	Změřeno (%)	Deklarováno (%)	Změřeno (%)
1	1,0(4)	5	5,2(4)
2	2,1(4)	8	8,3(4)

Hodnoty byly stanoveny metodou odečítání spekter.

Všechny nejistoty v tabulce jsou uvedeny pro koeficient rozšíření  $k = 1$ .

Metoda odečítání spekter byla otestována na čtyřech spektrech odpovídajících různým koncentracím příměsí  $^{89}\text{Sr}$  v  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . Ukázka naměřeného spektra ve srovnání

<sup>37</sup>Poločas přeměny  $^{89}\text{Sr}$  je 50,57(3) d [70], zatímco pro  $^{90}\text{Sr}$  je roven 28,80(7) y [73].

## 2. Studium beta spekter pomocí křemíkového detektoru

s odezvou na zdroj  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  staršího data výroby (tedy prakticky bez příměsí) je na obrázku 2.23. Poměr aktivity  $^{89}\text{Sr}$  a  $^{90}\text{Sr}$  byl vypočítán podle vzorce (2.15), přičemž  $^{90}\text{Sr}$  bylo opět stanovováno prostřednictvím  $^{90}\text{Y}$  (předpokládána radioaktivní rovnováha). Vyhodnocení bylo provedeno v energetickém intervalu (1000–1490) keV. Srovnání vypočítaných hodnot s deklarovanými je uvedeno v tabulce 2.7. Standardní nejistota výsledků byla určena v souladu s pravidly pro výpočet nejistoty nepřímě měřené veličiny (viz [74, s. 18–19]).

### 2.4.3 Diskuse výsledků

Stanovení poměru aktivit radionuklidů ve směsích čistých zdrojů beta na základě simulovaných odezvy bylo vyzkoušeno pro radionuklidy, jejichž spektra zasahují do oblasti nad 1 MeV. Provedení analýzy v intervalu vyšších energií umožnilo vyhnout se již diskutovanému problému s opakovatelností výroby vzorků projevujícím se v nízkoenergetické části měřených spekter.

Konkrétně uvedeno, studována byla spektra odpovídající směsi tvořené nuklidy  $^{89}\text{Sr}$  a  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  v různých poměrech. Variantu, kdy příměs má vyšší koncový bod než základní nuklid, je snazší analyzovat. Přítomnost nečistoty je ve spektru dobře patrná i pro nízké koncentrace. Naměřené poměry aktivit složek směsi (viz tabulku 2.5) v rámci nejistoty měření odpovídají deklarovaným pro hodnoty od 0,5 %. Pro nižší koncentrace 0,3 % a 0,1 % jsou výsledky mírně nadhodnocené.

Opačná situace, tedy příměs s koncovým bodem menším proti základnímu nuklidu je komplikovanější, již jen z důvodu, že vliv příměsí není ve spektru na první pohled viditelný. I zde je ale možné využít stejného postupu jako v předchozím případě (viz tabulku 2.6), leč nejistota stanovení poměru aktivit je větší z důvodu odečítání blízkých hodnot ve vztahu (2.14). O něco přesnější (správnější i preciznější) výsledky byly získány alternativní metodou odečítání spekter (viz tabulku 2.7). Oba způsoby vyhodnocení však umožňují určit poměr aktivity příměsí a základního nuklidu pouze na úrovni jednotek procent. Citlivost je tedy v porovnání s prvním případem cca desetkrát nižší.

Rozšíření možnosti využití uvedené metody i pro nuklidy mající nižší hodnotu koncového bodu (řádově nižší stovky keV) brání zejména již diskutovaný problém opakovatelnosti při výrobě vzorků odpařovací technikou (viz diskusi v sekci 2.2.3). Pro ilustraci, jak zásadní tento problém při vyhodnocení je, může posloužit případ dvou spekter nuklidu  $^{32}\text{P}$ , které již byly uvedeny na obrázku 2.12. Pokud spektrum příslušející vzorku 2 vyhodnotíme na přítomnost radionuklidové příměsí  $^{33}\text{P}$  výše popsanou metodou dvou oken a budeme uvažovat, že odezva na čistý  $^{32}\text{P}$  odpovídá spektru vzorku 1, obdržíme výsledný poměr aktivity příměsí vůči základnímu nuklidu 13,4(5) %. Ve skutečnosti však žádný  $^{33}\text{P}$  v materiálu přítomen nebyl. Tento výpočet dobře ilustruje, že systematická odchylka (nejistota typu B) při analýze v nízkoenergetické oblasti spekter může řádově převyšovat očekávané koncentrace příměsí řádu desetin, eventuálně jednotek procent, což činí takový výsledek prakticky neupotřebitelným. Výhodou odpařovací metody je na druhou stranu její jednoduchost a univerzální použitelnost pro přípravu vzorků radionuklidů, které by mohly být předmětem zájmu použití diskutované analýzy. Na cestu, která možná zůstane u jejích předností a zároveň omezí vliv uvedených nevýhod u nuklidů s nižším koncovým bodem, poukazují závěry předchozí podkapitoly 2.3. Jedná se o zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo simulaci tak, aby co nejvíce odpovídal reálné geometrii měřeného vzorku. Tento krok se však neobejde bez podrobné charakterizace každého studovaného vzorku, což zvyšuje nároky jak na celkovou dobu analýzy, tak na potřebné přístrojové vybavení.

# Závěr

S využitím radiografického zobrazení byl vytvořen Monte Carlo model křemíkového detektoru typu Si(Li) užívaného v Českém metrologickém institutu pro měření beta spekter. Model byl připraven v podobě vstupního souboru pro kód MCNPX, jenž je všeobecně využíván pro řešení úloh transportu ionizujícího záření. Jeho validace byla provedena srovnáním naměřených a simulovaných účinností v peaku úplné absorpce pro fotony o vybraných energiích z intervalu 5 až 136 keV. Relativní odchylka mezi experimentem a simulací se nachází v pásmu  $\pm 6\%$ , což lze s ohledem na nejistoty měření považovat za přijatelný výsledek. Validovaný model detektoru může na pracovišti Českého metrologického institutu najít uplatnění v různých aplikacích, které zahrnují kromě spektrometrie beta, řešené v této práci, i měření fotonového záření nízkých energií (X a gama).

MCNP model byl následně úspěšně vyzkoušen v úloze simulace odezev křemíkového detektoru na beta záření od šesti radionuklidů ( $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  a  $^{204}\text{Tl}$ ). Shoda mezi výpočtem metodou Monte Carlo a měřením byla posouzena statistickým testem. Nulová hypotéza, tedy tvrzení, že oba výběry (naměřené a vypočítané spektrum) pochází z jednoho základního souboru, nebyla ani pro jeden z výše uvedených nuklidů zamítnuta.

Hlavním přínosem práce je návrh metodiky pro stanovení radionuklidové čistoty zdrojů záření beta postavené na analýze tvaru beta spekter, konkrétně na srovnání naměřených spekter s odezvami určenými výpočtem metodou Monte Carlo odpovídajícími jednotlivým radionuklidům přítomným ve vzorku. Předložené postupy (ve dvou variantách) byly zdárně vyzkoušeny pro určení poměru aktivit jednotlivých složek směsi tvořené nuklidy  $^{89}\text{Sr}$  a  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . Možnost identifikace příměsí na základě emitovaného záření beta se jeví perspektivně zvláště v případě, kdy je zkoumaná směs tvořena izotopy jednoho prvku, a tedy není možné využít citlivějších chemických analýz (příkladem těchto směsí, běžně vznikajících při produkci radionuklidů, budiž již zmíněná kombinace  $^{89}\text{Sr}$  a  $^{90}\text{Sr}$ , případně též  $^{32}\text{P}$  a  $^{33}\text{P}$ ).

Provedená měření beta spekter poukázala na problém nedostatečné opakovatelnosti použité metody přípravy vzorků založené na odpařování alikvotního množství roztoku obsahujícího radionuklid na podložku. Z důvodu nehomogenit vzniklých při krystalizaci se jednotlivé vzorky mohou vzájemně odlišovat, což se projevuje i rozdílnostmi v tvaru spekter, zejména v oblastech nižších energií do 500 keV. Uvedené aspekty představují určitá omezení využitelnosti navrženého a výše uvedeného postupu pro analýzu směsí radionuklidů majících koncový bod pod uvedenou hranicí. Eliminaci tohoto problému, nebo alespoň jeho potlačení, by mohlo skýtat použití jiného (vhodnějšího) výrobního postupu pro přípravu měřených vzorků. Pro případy, kdy z různých důvodů není jiná technologie k dispozici, nabízí se jako řešení zpřesnění popisu zdrojového členu v Monte Carlo modelu individuálně pro každý vzorek. K získání informací o prostorové distribuci hmoty odparku se osvědčilo rentgenová fluorescenční analýza v režimu skenování s vysokým prostorovým rozlišením.



# Seznam použité literatury

- [1] JOHANSES, G. A. a JACKSON, P. *Radioisotope Gauges for Industrial Process Measurements* [online]. 1st ed. Hoboken: John Wiley & Sons, 2004 [cit. 2018-02-24]. 335 s. ISBN 9780470021088. Dostupné na: <<https://ebookcentral.proquest.com/lib/techlib-ebooks/detail.action?docID=219774>>.
- [2] PRAKASH, D. *Nuclear Medicine: A Guide for Healthcare Professionals and Patients*. 1st ed. New Delhi: Springer, 2014. 154 s. ISBN 978-81-322-1825-8.
- [3] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Quality Assurance for Radioactivity Measurement in Nuclear Medicine*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2006. 81 s. Technical Reports Series, No. 454. ISBN 92-0-105306-1.
- [4] WORLD HEALTH ORGANIZATION. *The International Pharmacopoeia* [online]. 7th ed. 2017 [cit. 2018-02-24]. Dostupné na: <<http://apps.who.int/phint/en/p/docf/>>.
- [5] PORTA, A. et al. Total Absorption Spectroscopy of Fission Fragments Relevant for Reactor Antineutrino Spectra and Decay Heat Calculations. *EPJ Web of Conferences*. 2016, vol. 111, no. 08006. ISSN 2101-6275. Dostupné na: doi:10.1051/epjconf/201611108006.
- [6] BATTAGLIERI, M. et al. An anti-neutrino detector to monitor nuclear reactor's power and fuel composition. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A*. 2010, vol. 617, no. 1, s. 209–213. ISSN 0168-9002. Dostupné na: doi:10.1016/j.nima.2009.09.031.
- [7] OTTEN, E. W. a WEINHEIMER, C. Neutrino mass limit from tritium  $\beta$  decay. *Reports on Progress in Physics*. 2008, vol. 71, no. 8, s. 086201. ISSN 0034-4885. Dostupné na: doi:10.1088/0034-4885/71/8/086201.
- [8] KOSSERT, K. a MOUGEOT, X. The importance of the beta spectrum calculation for accurate activity determination of  $^{63}\text{Ni}$  by means of liquid scintillation counting. *Applied Radiation and Isotopes*. 2015, vol. 101, s. 40–43. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2015.03.017.
- [9] KOSSERT, K. et al. Activity determination of  $^{60}\text{Co}$  and the importance of its beta spectrum. *Applied Radiation and Isotopes*. 2018, vol. 134, s. 212–218. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2017.06.015.
- [10] *MetroBeta – Radionuclide beta spectra metrology* [online]. [2016–2019] [cit. 2018-02-20]. Dostupné na: <<http://metrobeta-empir.eu/>>.
- [11] MOUGEOT, X. BetaShape: A new code for improved analytical calculations of beta spectra. *EPJ Web of Conferences*. 2017, vol. 146, no. 12015. ISSN 2101-6275. Dostupné na: doi:10.1051/epjconf/201714612015.
- [12] MECHLOVÁ, E. *Výkladový slovník fyziky pro základní vysokoškolský kurz*. 1. vyd. Praha: Prometheus, 1999. 588 s. ISBN 80-7196-151-5.
- [13] PAULI, W. *Otevřený dopis ze 4. prosince 1930 pracovníkům Fyzikálního institutu Spolkové vysoké technické školy v Curychu*. 1930.
- [14] BROWN, L. M. The idea of the neutrino. *Physics Today*. 1978, vol. 31, no. 9, s. 23–28. ISSN 0031-9228. Dostupné na: doi:10.1063/1.2995181.

## Seznam použité literatury

- [15] COWAN, C. L. et al. Detection of the Free Neutrino: a Confirmation. *Science*. 1956, vol. 124, no. 3212, s. 103–104. ISSN 0036-8075. Dostupné na: doi:10.1126/science.124.3212.103.
- [16] AGRAWAL, H. M. *Nuclear Physics: Problem-based Approach Including MATLAB*. 1st ed. Delhi: PHI Learning Private Limited, 2016. 470 s. ISBN 978-81-203-5252-0.
- [17] TAYAL, D. C. *Nuclear Physics* [online]. 2nd ed. Mumbai: Himalaya Publishing House, 2009 [cit. 2017-12-30]. 790 s. ISBN 978-81-83189-91-0. Dostupné na: <<https://ebookcentral.proquest.com/lib/cvut/detail.action?docID=3011304>>.
- [18] LAPP, R. E. a ANDREWS, H. L. *Nuclear Radiation Physics*. 4th ed. Englewood Cliffs: Prentice-Hall, 1972. 447 s. ISBN 0-13-625988-X.
- [19] KRANE, K. S. *Introductory Nuclear Physics*. 1st ed. New York: Wiley, 1987. 845 s. ISBN 047180553X.
- [20] SARGENT, B. W. The Maximum Energy of the  $\beta$ -Rays from Uranium X and other Bodies. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*. 1933, vol. 139, no. 839, s. 659–673. Dostupné na: doi:10.1098/rspa.1933.0045.
- [21] BYRNE, J. *Neutrons, Nuclei and Matter: An Exploration of the Physics of Slow Neutrons*. 2nd ed. Mineola: Dover Publications, 2011. 760 s. ISBN 978-0-486-48238-5.
- [22] FERMI, E. Versuch einer Theorie der  $\beta$ -Strahlen. *Zeitschrift für Physik*. 1934, vol. 88, no. 3-4, s. 161–177. ISSN 1434-6001. Dostupné na: doi:10.1007/BF01351864.
- [23] WILSON, F. L. Fermi's theory of beta decay. *American Journal of Physics*. 1968, vol. 36, no. 12, s. 1150–1160. ISSN 0002-9505. Dostupné na: doi:10.1119/1.1974382.
- [24] HALLIDAY, D. *Introductory Nuclear Physics*. 2nd ed. New York: Wiley, 1955. 493 s.
- [25] MAYER-KUCKUK, T. *Fyzika atomového jádra*. Přeložil Jiří Fiala. 1. vyd. Praha: SNTL - Nakladatelství technické literatury, 1979. 343 s.
- [26] SKÁLA, L. *Úvod do kvantové mechaniky*. 2. vyd. Praha: Karolinum, 2011. 297 s. ISBN 978-80-246-2022-0.
- [27] DŽELEPOV, B. S. – ZYRJANOVA, L. N. a SUSLOV, J. P. *Beta-processy: funkciu dlja analiza beta-spektrov i elektronogo zachvata*. Leningrad: Nauka, 1972. 373 s.
- [28] UNITED STATES. NATIONAL BUREAU OF STANDARDS. *Tables for the Analysis of Beta Spectra*. Washington: United States Government Printing Office, 1952. 61 s.
- [29] ŠÁRO, Š. *Detekcia a spektrometria žiarenia alfa a beta*. 1. vyd. Bratislava: Alfa, 1984. 300 s.
- [30] LANGER, L. M. a SMITH, D. R. Shape of beta spectra of once forbidden transitions in the decays of  $\text{Ga}^{72}$ ,  $\text{La}^{140}$ ,  $\text{Eu}^{152}$ ,  $\text{Eu}^{154}$ , and  $\text{Sb}^{124}$ . *Physical Review*. 1960, vol. 119, no. 4, s. 1308–1314. ISSN 0031-899X. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRev.119.1308.

- [31] LANGER, L. M. a PRICE, H. C. Beta-spectra of forbidden transitions. *Physical Review*. 1949, vol. 76, no. 5, s. 641–646. ISSN 0031-899X. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRev.76.641.
- [32] KURIE, F. N. D. – RICHARDSON, J. R. a LANGER, H. C. P. The Radiations Emitted from Artificially Produced Radioactive Substances. I. The Upper Limits and Shapes of the  $\beta$ -Ray Spectra from Several Elements. *Physical Review*. 1936, vol. 49, no. 5, s. 368–381. ISSN 0031-899X. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRev.49.368.
- [33] PORTER, F. T. – WAGNER, F. a FREEDMAN, M. S. Evidence for Small Deviations from the Allowed Shape in the Comparison of the Beta Spectra of  $\text{Na}^{24}$  and  $\text{P}^{32}$ . *Physical Review*. 1957, vol. 107, no. 1, s. 135–138. ISSN 0031-899X. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRev.107.135.
- [34] SIEGBAHN, K. *Alpha-, Beta- and Gamma-ray Spectroscopy*. Amsterdam: North-Holland Publishing Co., 1965. 1742 s.
- [35] LEO, W. R. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A how-to approach*. 2nd rev. ed. Berlin: Springer-Verlag, 1994. 378 s. ISBN 3-540-57280-5.
- [36] KNOLL, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. 4th ed. Hoboken: John Wiley, 2010. 830 s. ISBN 978-0-470-13148-0.
- [37] TANABASHI, M. et al. Review of Particle Physics. *Physical Review D*. 2018, vol. 98, no. 3, s. 030001. ISSN 2470-0010. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRevD.98.030001.
- [38] ŠEDA, J. et al. *Dozimetrie ionizujícího záření*. 1. vyd. Praha: SNTL – Nakladatelství technické literatury, 1983. 418 s.
- [39] BALTAKMENS, T. A simple method for determining the maximum energy of beta emitters by absorption measurements. *Nuclear Instruments and Methods*. 1970, vol. 82, s. 264–268. ISSN 0029-554X. Dostupné na: doi:10.1016/0029-554X(70)90359-9.
- [40] BALTAKMENS, T. Accuracy of absorption methods in the identification of beta emitters. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, vol. 142, no. 3, s. 535–538. ISSN 0029-554X. Dostupné na: doi:10.1016/0029-554X(77)90696-6.
- [41] KRAUS, I. a FIALA, J. *Elementární fyzika pevných látek*. 2. vyd. Praha: České vysoké učení technické v Praze, 2016. 320 s. ISBN 978-80-01-05942-5.
- [42] LUTZ, G. *Semiconductor Radiation Detectors: Device Physics*. 1st ed. Berlin: Springer, 2009. 353 s. ISBN 978-3-540-71678-5.
- [43] VOBECKÝ, J. a ZÁHLAVA, V. *Elektronika: součástky a obvody, principy a příklady*. 3. rozš. vyd. Praha: Grada, 2005. 220 s. ISBN 80-247-1241-5.
- [44] DASGUPTA, N. a DASGUPTA, A. *Semiconductor Devices: Modelling and Technology*. New Delhi: Prentice-Hall of India, 2004. 330 s. ISBN 81-203-2398-X.
- [45] SZE, S. M. *Semiconductor Devices: Physics and Technology*. 2nd ed. New York: Wiley, 2002. 564 s. ISBN 0-471-33372-7.
- [46] KITTEL, C. *Úvod do fyziky pevných látek*. 1. vyd. Praha: Academia, 1985. 600 s.
- [47] AHMED, S. N. *Physics and engineering of radiation detection*. 1st ed. Amsterdam: Academic Press, 2007. 764 s. ISBN 978-0-12-045581-2.

## Seznam použité literatury

- [48] ALIG, R. C. a BLOOM, S. Electron-Hole-Pair Creation Energies in Semiconductors. *Physical Review Letters*. 1975, vol. 35, no. 22, s. 1522–1525. ISSN 0031-9007. Dostupné na: doi:10.1103/PhysRevLett.35.1522.
- [49] GILMORE, G. *Practical gamma-ray spectrometry*. 2nd ed. Chichester: Wiley, 2008. 387 s. ISBN 978-0-470-86198-1.
- [50] HOLM, E. et al. Beta spectrometry with surface barrier detectors. *Science of the Total Environment*. 1988, vol. 69, s. 61–77. ISSN 0048-9697. Dostupné na: doi:10.1016/0048-9697(88)90336-1.
- [51] AHMAD, I. a WAGNER, F. A simple cooled Si(Li) electron spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods*. 1974, vol. 116, no. 3, s. 465–469. ISSN 0029-554X. Dostupné na: doi:10.1016/0029-554X(74)90828-3.
- [52] HEDGRAN, A. – SIEGBAHN, K. a SVARTHOLM, N. A Large  $\beta$ -Spectrometer with Two-Directional Focusing for Precise Measurements of Nuclear Radiation. *Proceedings of the Physical Society. Section A*. 1950, vol. 63, no. 9, s. 960–986. ISSN 0370-1298. Dostupné na: doi:10.1088/0370-1298/63/9/305.
- [53] QUARATI, F. *Solid scintillator crystal technique for beta decay spectroscopy* [přednáška]. Praha: MetroBeta workshop, 6. prosince 2017.
- [54] LOIDL, M. et al. Beta spectrometry with metallic magnetic calorimeters. *Applied Radiation and Isotopes*. 2014, vol. 87, s. 302–305. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2013.11.024.
- [55] MIRION TECHNOLOGIES. *Lynx Digital Signal Analyzer* [online]. 2020 [cit. 2020-01-22]. Dostupné na: <www.mirion.com/products/lynx-digital-signal-analyzer>.
- [56] DRYÁK, P. a KOVÁŘ, P. Use of a Si(Li) detector as  $\beta$  spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes*. 2014, vol. 87, s. 325–327. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2013.11.021.
- [57] MESRADI, M. et al. Experimental characterization and Monte Carlo simulation of Si(Li) detector efficiency by radioactive sources and PIXE. *Applied Radiation and Isotopes*. 2008, vol. 66, no. 6, s. 780–785. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2008.02.074.
- [58] LÓPEZ PINO, N. et al. Monte Carlo semi-empirical model for Si(Li) X-ray detector: Differences between nominal and fitted parameters. *AIP Conference Proceedings*. 2013, vol. 1529, s. 134–136. ISSN 0094-243X. Dostupné na: doi:10.1063/1.4804104.
- [59] ORTEC. *Model SLP-06165P-OPT-0.5 Quality Assurance Data Sheet*. 2013.
- [60] DEBERTIN, K. a HELMER, R. G. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. Amsterdam: Elsevier, 1988. 399 s. ISBN 0-444-871071.
- [61] LLOPART, X. et al. Timepix, a 65k programmable pixel readout chip for arrival time, energy and/or photon counting measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A*. 2007, vol. 581, no. 1, s. 485–494. ISSN 0168-9002. Dostupné na: doi:10.1016/j.nima.2007.08.079.



- [62] JAKŮBEK, J. et al. Quality of X-ray transmission radiography based on single photon counting pixel device. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A*. 2005, vol. 546, no. 1, s. 113–117. ISSN 0168-9002. Dostupné na: doi:10.1016/j.nima.2005.03.045.
- [63] METROPOLIS, N. a ULAM, S. The Monte Carlo Method. *Journal of the American Statistical Association*. 1949, vol. 44, no. 247, s. 335–341. ISSN 1537-274X. Dostupné na: doi:10.1080/01621459.1949.10483310.
- [64] VASSILIEV, O. N. *Monte Carlo Methods for Radiation Transport: Fundamentals and Advanced Topics*. 1st ed. New York: Springer International Publishing, 2017. 281 s. ISBN 978-3-319-44140-5.
- [65] PELOWITZ, D. B. et al. *MCNPX Users Manual Version 2.7.0* [software]. LA-CP-11-00438. 2011.
- [66] ČESKÝ METROLOGICKÝ INSTITUT. *Radionuclide Calibration Standards* [online]. 2017 [cit. 2018-03-06]. Dostupné na: <[www.eurostandard.cz/Eurostandard-catalog-2011.pdf](http://www.eurostandard.cz/Eurostandard-catalog-2011.pdf)>.
- [67] TESAŘ, J. *Státní etalony České republiky*. 1. vyd. Praha: Český metrologický institut, 2013. 198 s. ISBN 978-80-905619-1-5.
- [68] LABORATOIRE NATIONAL HENRI BECQUEREL. *Nuclear Data – Table* [online]. [cit. 2018-02-23]. Dostupné na: <<http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>>.
- [69] CANBERRA. *Genie 2000 Gamma Acquisition and Analysis V3.3* [software]. 2013.
- [70] BÉ, M.-M. – CHISTÉ, V. – DULIEU, C. et al. *Table of Radionuclides*. Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2004. Monographie BIPM-5, vol. 1. ISBN 92-822-2206-3.
- [71] BÉ, M.-M. – CHISTÉ, V. – DULIEU, C. et al. *Table of Radionuclides*. Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2004. Monographie BIPM-5, vol. 2. ISBN 92-822-2207-1.
- [72] BÉ, M.-M. – CHISTÉ, V. – DULIEU, C. et al. *Table of Radionuclides*. Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2008. Monographie BIPM-5, vol. 4. ISBN 92-822-2230-6.
- [73] BÉ, M.-M. – CHISTÉ, V. – DULIEU, C. et al. *Table of Radionuclides*. Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2006. Monographie BIPM-5, vol. 3. ISBN 92-822-2218-7.
- [74] JOINT COMMITTEE FOR GUIDES IN METROLOGY. *Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement* [online]. 1st ed. 2008 [cit. 2018-03-05]. Dostupné na: <[https://www.bipm.org/utis/common/documents/jcgm/JCGM\\_100\\_2008\\_E.pdf](https://www.bipm.org/utis/common/documents/jcgm/JCGM_100_2008_E.pdf)>.
- [75] ANDREOTTI, E. et al. HEROICA: an underground facility for the fast screening of germanium detectors. *Journal of Instrumentation*. 2013, vol. 8, no. 6, s. P06012. ISSN 1748-0221. Dostupné na: doi:10.1088/1748-0221/8/06/P06012.
- [76] ANDREOTTI, E. et al. Determination of dead-layer variation in HPGe detectors. *Applied Radiation and Isotopes*. 2014, vol. 87, s. 331–335. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2013.11.046.

## Seznam použité literatury

- [77] BÉ, M.-M. – CHISTÉ, V. – DULIEU, C. et al. *Table of Radionuclides*. Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2013. Monographie BIPM-5, vol. 7. ISBN 978-92-822-2248-5.
- [78] PERRY, D. L. *Handbook of Inorganic Compounds*. 2nd ed. Boca Raton: Taylor & Francis, 2011. 553 s. ISBN 978-1-4398-1461-1.
- [79] HAYNES, W. M. – LIDE, D. R. a BRUNO, T. J. *CRC Handbook of Chemistry and Physics: A Ready-reference Book of Chemical and Physical Data*. 95th ed. Boca Raton: CRC Press, 2014. ISBN 978-1-4822-0867-2.
- [80] REISENAUER, R. *Metody matematické statistiky a jejich aplikace*. 1. vyd. Praha: SNTL - Nakladatelství technické literatury, 1970. 240 s.
- [81] KING, M. *Statistics for Process Control Engineers: A Practical Approach* [online]. 1st ed. Newark: John Wiley & Sons, 2017 [cit. 2018-02-23]. 625 s. ISBN 9781119383536. Dostupné na: <<http://onlinelibrary.wiley.com/book/10.1002/9781119383536>>.
- [82] DE SANOIT, J. et al. Freeze-drying applied to radioactive source preparation. *Applied Radiation and Isotopes*. 2004, vol. 61, no. 6, s. 1391–1395. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/j.apradiso.2004.04.006.
- [83] VERMA, H. R. *Atomic and Nuclear Analytical Methods: XRF, Mössbauer, XPS, NAA and Ion-Beam Spectroscopic Techniques* [online]. 1st ed. Berlin / Heidelberg: Springer, 2007 [cit. 2020-10-06]. 386 s. ISBN 978-3-540-30279-7. Dostupné na: <<https://ebookcentral.proquest.com/lib/techlib-ebooks/detail.action?docID=301781>>.
- [84] TROJEK, T. Reduction of surface effects and relief reconstruction in X-ray fluorescence microanalysis of metallic objects. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*. 2011, vol. 26, no. 6, s. 1253. ISSN 0267-9477. Dostupné na: doi:10.1039/c0ja00187b.
- [85] THOMPSON, A. et al. *X-ray data booklet* [online]. 2009 [cit. 2020-10-12]. Dostupné na: <<http://xdb.lbl.gov>>.
- [86] LEE, U. – BAE, J. W. a KIM, H. R. Multiple beta spectrum analysis based on spectrum fitting. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2017, vol. 314, no. 2, s. 617–622. ISSN 0236-5731. Dostupné na: doi:10.1007/s10967-017-5409-5.
- [87] KAMEO, Y. et al. Rapid determination of  $^{89}\text{Sr}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in radioactive waste using Sr extraction disk and beta-ray spectrometer. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2007, vol. 274, no. 1, s. 71–78. ISSN 0236-5731. Dostupné na: doi:10.1007/s10967-006-6905-1.
- [88] KARELIN, Y. A. et al. Radionuclide production using a fast flux reactor. *Applied Radiation and Isotopes*. 2000, vol. 53, no. 4, s. 825–827. ISSN 0969-8043. Dostupné na: doi:10.1016/S0969-8043(00)00236-0.

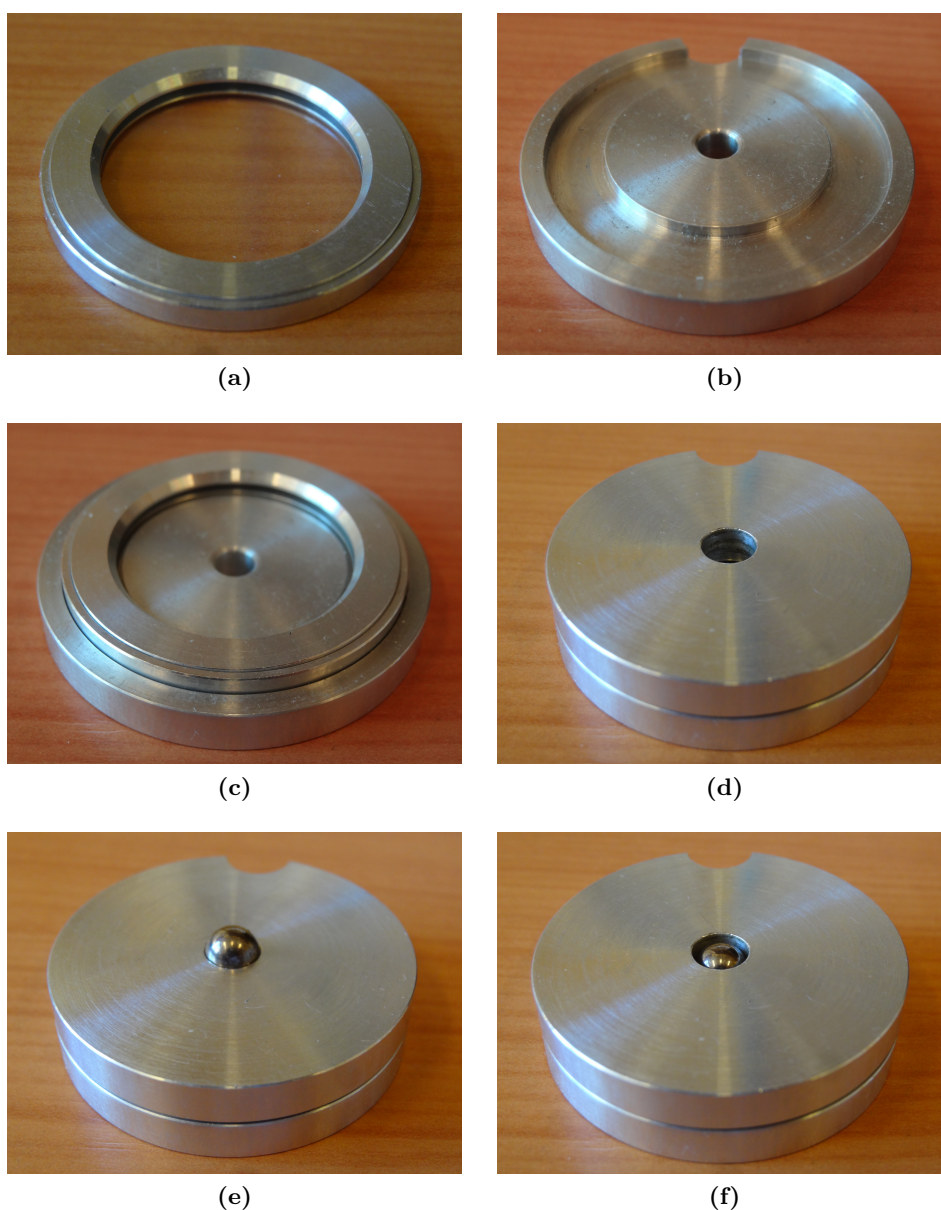
# Seznam obrázků

1.1	Sargentův diagram . . . . .	18
1.2	Vliv coulombického působení na tvar spektra . . . . .	22
1.3	Ukázka Kurieho diagramu . . . . .	24
1.4	Průchod svazku nabitých částic hmotou . . . . .	26
1.5	Pásová struktura pevných látek . . . . .	27
1.6	Pásová struktura přímých a nepřímých polovodičů . . . . .	28
1.7	Nevlastní polovodiče – uspořádání atomů a pásová struktura . . . . .	32
1.8	Využití PN přechodu jako detektoru . . . . .	36
1.9	Transverzální magnetický spektrometr . . . . .	38
1.10	Princip longitudinálního magnetického spektrometru . . . . .	40
1.11	Základní elektronické moduly spektrometrického řetězce . . . . .	41
1.12	Schéma napěťově citlivého předzesilovače . . . . .	42
1.13	Schéma nábojově citlivého předzesilovače . . . . .	42
1.14	Blokové schéma mnohokanálového analyzátoru . . . . .	45
2.1	Radiogram Si(Li) detektoru získaný pomocí defektoskopického filmu . . . . .	48
2.2	Radiogram Si(Li) detektoru získaný pomocí detektoru Timepix . . . . .	48
2.3	Nákres části Si(Li) detektoru v řezu . . . . .	49
2.4	Znázornění geometrie Monte Carlo modelu Si(Li) detektoru . . . . .	50
2.5	Účinnostní křivka Si(Li) detektoru . . . . .	52
2.6	Přídavný kolimátor k Si(Li) detektoru pro měření beta spekter . . . . .	54
2.7	Nákres přídavného kolimátoru pro měření beta spekter . . . . .	54
2.8	Lisovátka – přípravek na úpravu podložek pro výrobu vzorků . . . . .	55
2.9	Srovnání naměřených a simulovaných beta spekter (1. část) . . . . .	57
2.9	Srovnání naměřených a simulovaných beta spekter (2. část) . . . . .	58
2.10	Simulovaná odezva Si(Li) na monoenergetické elektrony . . . . .	61
2.11	Simulovaná spektra $^{90}\text{Y}$ odpovídající zdrojům třech různých tloušťek . . . . .	62
2.12	Naměřená spektra dvou vzorků $^{32}\text{P}$ stejného provedení . . . . .	62
2.13	Pomocný duralový podstavec . . . . .	63
2.14	Naměřená spektra čtyř vzorků $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ stejného provedení . . . . .	63
2.15	Prostorová distribuce prvků v neaktivních odparcích . . . . .	65
2.16	Prostorová distribuce stroncia v aktivním odparku . . . . .	66
2.17	Varianty zdrojového členu v Monte Carlo simulaci . . . . .	66
2.18	Simulovaná spektra $^{89}\text{Sr}$ pro několik variant zdrojového členu . . . . .	67
2.19	Olivnění detektoru při XRF skenování radioaktivního vzorku . . . . .	68
2.20	Spektrum charakteristického záření vzorku obsahujícího stroncium . . . . .	69
2.21	Princip stanovení radionuklidových příměsí z beta spektra . . . . .	70
2.22	Spektra radionuklidu $^{89}\text{Sr}$ s různým podílem příměsí $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . . . . .	72
2.23	Spektrum $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ s příměsí $^{89}\text{Sr}$ . . . . .	73
A.1	Postup úpravy podložky pomocí přípravku lisovátka . . . . .	85



# A. Úprava podložek při výrobě vzorků pro beta spektrometrii

Vzorky pro polovodičovou beta spektrometrii v ČMI (viz kapitolu 2.2) jsou připravovány metodou odpaření na podložku. Pro přesnější vymezení prostoru odparku je polyethylenová folie (podložka) upravena následujícím způsobem. Nejprve je uchycena do kovového mezikruží (obrázek A.1a). Následně je (spolu s mezikružím) vložena mezi dolní a horní díl přípravku lisovátka (obrázky A.1b–A.1d). Stisknutím obou částí k sobě je zajištěna fixace folie do mezikruží. Nakonec je do kruhového otvoru v horním dílu vložena kulička (obrázek A.1e), která je zatlačena ve směru dolů (obrázek A.1f). Tím je ve středu folie vytvořena prohlubeň, do níž je následně nanesen radioaktivní roztok.



Obrázek A.1: Postup úpravy podložky pomocí přípravku lisovátka



## B. Publikační činnost vztahující se k tématu disertační práce

- NOVOTNÝ, P. et al. Characterization of the Si(Li) detector for Monte Carlo calculations of beta spectra. *Journal of Instrumentation*. 2018, vol. 13, no. 1, s. P01021. ISSN 1748-0221. Dostupné na: doi:10.1088/1748-0221/13/01/P01021.





## Characterization of the Si(Li) detector for Monte Carlo calculations of beta spectra

---

P. Novotny,<sup>a,b</sup> P. Dryak,<sup>a</sup> J. Solc,<sup>a,1</sup> P. Kovar<sup>a</sup> and Z. Vykydal<sup>a</sup>

<sup>a</sup>*Czech Metrology Institute,  
Okružní 31, Brno, 638 00 Czech Republic*

<sup>b</sup>*Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Czech Technical University in Prague,  
Břehova 78/7, Prague 1, 115 19 Czech Republic*

E-mail: [jsolc@cmi.cz](mailto:jsolc@cmi.cz)

**ABSTRACT:** A precise model of a Si(Li) detector ORTEC<sup>®</sup> model SLP-06165P-OPT-0.5 was created for beta spectra calculations using the Monte Carlo (MC) code MCNPX<sup>™</sup>. Detector parameters were determined from X-ray radiograms obtained with a film and a Timepix detector. The MC model of the detector was validated by comparison of calculated and experimental full-energy peak efficiencies in the energy range from 5 to 136 keV using a range of point-like photon emitting radionuclide standards. A comparison of measured and calculated beta spectrum of a radionuclide Pm-147 is presented.

**KEYWORDS:** Models and simulations; Detector modelling and simulations I (interaction of radiation with matter, interaction of photons with matter, interaction of hadrons with matter, etc); Gamma detectors (scintillators, CZT, HPG, HgI etc)

---

<sup>1</sup>Corresponding author.

---

## Contents

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Materials and methods</b>	<b>2</b>
2.1	Si(Li) spectrometer	2
2.2	Confirmation of the spectrometer parameters	2
2.3	Monte Carlo model	2
2.4	MC model validation	3
2.5	Beta spectrum comparison	4
<b>3</b>	<b>Results</b>	<b>4</b>
3.1	Parameters of Si(Li) spectrometer	4
3.2	MC model validation	4
3.3	Beta spectrum comparison	5
<b>4</b>	<b>Conclusions</b>	<b>7</b>

---

## 1 Introduction

Motivation for the presented work is to adapt a routine method that enables identification and quantification of pure beta impurities in pure beta radionuclides resulting in the reduction of minimum detectable activities, e.g., mixtures of Sr-89 and Sr-90, or Y-90 and Sr-90. This is very important especially for absolute activity measurement by liquid scintillation counting, or using radiopharmaceutical Y-90 for PET diagnosis, where Sr-90 impurity would be very dangerous for human body. Namely in nuclear medicine, determination of radiochemical purity is required by TRS 454 [1].

There are various methods for measurement of beta spectra but the majority of them, e.g. magnetic spectrometry, cannot be used for routine laboratory measurements, as they are suited for research purposes and the measurement is expensive and time consuming. For routine measurements we continued the work published in [2] and selected a Lithium-Drifted Silicon Low-Energy Photon Spectrometer (Si(Li) spectrometer). With a sufficient accuracy it allows determination of the end point that is, together with the spectrum shape, the main parameter of a continuous beta spectrum.

Comparison of beta spectrum obtained experimentally with the one determined by a Monte Carlo (MC) simulation aims to find the ratio of activity of different pure beta radionuclides in mixtures. To achieve this, a MC model of a Si(Li) detector used in a spectrometric laboratory of the Czech Metrology Institute (CMI) was created for beta spectra calculation. The correctness of the detector model was verified using point-like standard sources with X-ray and  $\gamma$ -ray emitting radionuclides produced by CMI. The verified MC model was then used for preliminary comparison of simulated and measured beta spectrum.

Characterization of a Si(Li) spectrometer has been reported by several authors, e.g. [3] and [4], exploiting different techniques. In the presented paper, description of the detector was performed by using X-ray radiography with a film and with a Timepix detector. Compared to the work [2], this work describes a new piece of the detector after the replacement of the former one. Structure of the new detector was analysed by additional methods and the developed Monte Carlo model is more precise resulting in significantly better agreement between measured and simulated photon detection efficiencies and beta spectra.

## 2 Materials and methods

### 2.1 Si(Li) spectrometer

The CMI's spectrometric laboratory uses an SLP Series Lithium-Drifted Silicon Low-Energy Photon Spectrometer model SLP-06165P-OPT-0.5 (Ortec<sup>®</sup>; [5]) for both X-ray spectrometry and beta spectrometry. Nominal detector parameters are as follows: active diameter 6 mm, sensitive depth 5 mm, absorbing layers: Be 0.0127 mm, Au 20 nm, and Si 0.1 mm. Resolution at 5.9 keV is 160 eV (full-width at half maximum). The detector is installed inside a 5 cm thick lead shielding. For measurement of X-ray and  $\gamma$ -ray sources, a stand made of acrylic glass is inserted into the shielding fixing the measurement position of the sources. For measurement of beta sources, the acrylic glass stand is replaced with a special collimator and source holder made of aluminium alloy. Its presence significantly reduces scattered radiation and allows a better description of the beta particle beam. Diameter of the collimator aperture is 4 mm.

Typical beta sources measured with this detector are produced by dropping a radionuclide solution onto a 0.1 mm thick polyethylene terephthalate (PET) foil. Source activity ranges from 50 to 100 kBq. Distance between the source and the detector end cap is 35 mm.

### 2.2 Confirmation of the spectrometer parameters

Description of the crystal and the construction elements provided by the detector manufacturer was confirmed using X-ray radiography with a defectoscopic film sheet (Structurix D5 Pb Vacupac, AGFA) and a Timepix detector equipped by 300  $\mu\text{m}$  thick Si sensor. Timepix is a single photon counting semiconductor pixel detector with 256 $\times$ 256 square pixels 55  $\mu\text{m}$  in size [6]. The sensitive area is about 2 cm<sup>2</sup>, so the Si(Li) detector had to be imaged in several steps. The radiography also allowed to determine other parameters not provided by the manufacturer, and to obtain an accurate picture of the detection system inner construction, especially the shape of the crystal and its position within the cap, and the cryostat structure. The film was exposed to 60 kV RQR4 X-ray radiation quality for 280 s delivering the total air kerma of 4 mGy at a distance of 1.5 m from the X-ray source. The Timepix detector was exposed to unfiltered 150 kV X-ray beam. Each imaging sequence took 100 s. The response of each individual pixel was calibrated by direct thickness calibration method using Al filters up to 52 mm thick [7].

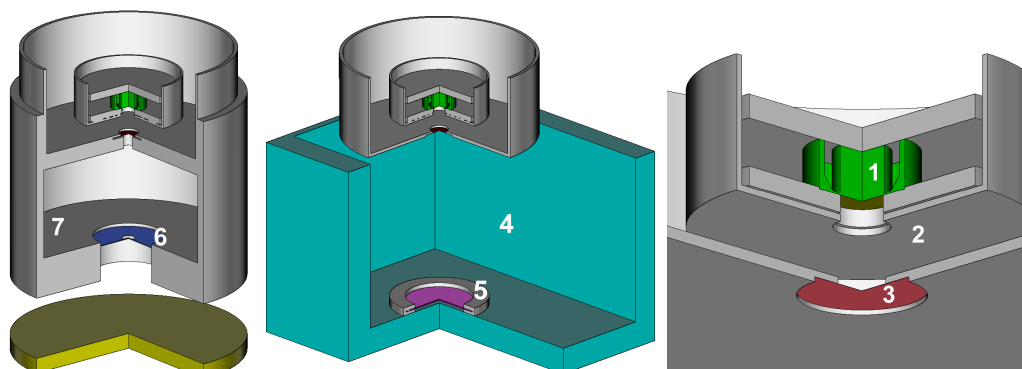
### 2.3 Monte Carlo model

The MC model consisted of the Si(Li) detector and its cryostat, collimator, shielding, and an appropriate source on a stand (figure 1). MC simulations were performed using the general-purpose MC code MCNPX<sup>™</sup> in version 2.7.E [8]. Continuous-energy photoatomic data library

MCPLIB84 [9] and electron condensed-history library el03 with 1 keV and 10 keV energy cut-off were used for photon and electron transport, respectively. The el03 tables are based on the Integrated TIGER Series 3.0 and their description is provided in [10].

For beta spectra calculation only, to sufficiently sample electron energy and angular straggling in materials between the source and the detector in condensed-history electron transport, values of two parameters influencing the straggling were modified — *efac* in PHYS:E card and ESTEP on material card. The *efac* controls stopping power energy spacing and it was changed from the default value of 0.917 to 0.96 [8]. The parameter ESTEP defines the number of electron sub-steps per energy step [8] and it was increased to 30, 200, and 100 in sensitive silicone, insensitive silicone, and gold, respectively. Also, ESTEP value was increased in the air and in the material of the source. Their value depended on the end point of a calculated beta spectrum.

In addition, the efficiency of beta spectrum calculation was increased by implementation of two variance reduction methods: cell-by-cell electron energy cut-off and source bias. Cell-by-cell energy cut-off for electrons was used for aluminium alloy outer collimator, except for its small part close to an aperture, by setting an ELPT card [8] to 300 keV. This method suppressed tracking of low energy electrons in parts of the geometry from which they cannot contribute to the detector spectrum. The exponential source bias with the parameter  $a = 1$  [8] allowed to emit the electrons from the source preferentially towards the detector increasing the probability to contribute to the detector spectrum.



**Figure 1.** Visualizations of the MC model of the Si(Li) detector. Left — set-up for beta spectra measurement; centre — set-up for MC model validation; right — detail of the detector. Colours distinguish different materials. Main parts of the set-up are numbered as follows: 1 — Si crystal, 2 — crystal cover and inner collimator, 3 — Be entrance window in the cryostat cover, 4 — acrylic glass stand, 5 — photon source, 6 — beta source, 7 — aluminium alloy holder of beta sources and outer collimator.

## 2.4 MC model validation

The MC model of the Si(Li) detector was validated by comparison of experimental and calculated full-energy peak (FEP) detection efficiencies. Experimental FEP efficiencies were determined in the energy range from 5 to 136 keV using point-like sources with a range of X-ray and  $\gamma$ -ray emitting radionuclides (see table 1) prepared in CMI and traceable to the Czech national standard for activity of radionuclides. The calculated FEP efficiencies were obtained using the detector pulse-height tally

of type F8 [8] for monoenergetic source photons of the energy matching the measured sources. The particles were emitted from the source into a cone oriented towards the detector crystal to increase computational efficiency. The outer aluminium collimator was removed for these measurements. The sources were placed on an acrylic glass stand and positioned on the detector axis at a distance of 63.5 mm from the end cap. The part of the MC model outside the cryostat was modified appropriately to match the geometry of the measurement. The MC simulation was stopped when the statistical standard uncertainty of the FEP efficiency reached 0.2%.

## 2.5 Beta spectrum comparison

The preliminary comparison of a measured and calculated beta spectrum was performed for the pure beta emitter Pm-147. The beta spectrum of Pm-147 has the end point of 224.1 keV and the yield of 1.00 electrons per decay [11]. The source was prepared at CMI by dropping an aqueous solution of Pm-147 onto a PET foil creating a very thin source with a radius of 1.5 mm. The source activity was 18.77 kBq ( $\pm 1.5\%$  [12]) at the reference date of 11 October 2017. The beta spectrum acquisition time was 18.34 h.

In the simulation, the Pm-147 emission spectrum was taken from the beta spectra compilation available at [13]. The source was modelled as a cylinder with 50  $\mu\text{m}$  height, 1.5 mm radius, the density of 0.1  $\text{g}/\text{cm}^3$ , and the elemental composition  $\text{PrCl}_3 + \text{NdCl}_3$  [12]. The ESTEP value was set to 10 and 15 in air and in the source, respectively, resulting in average 52 energy sub-steps in air between the source and the detector window.

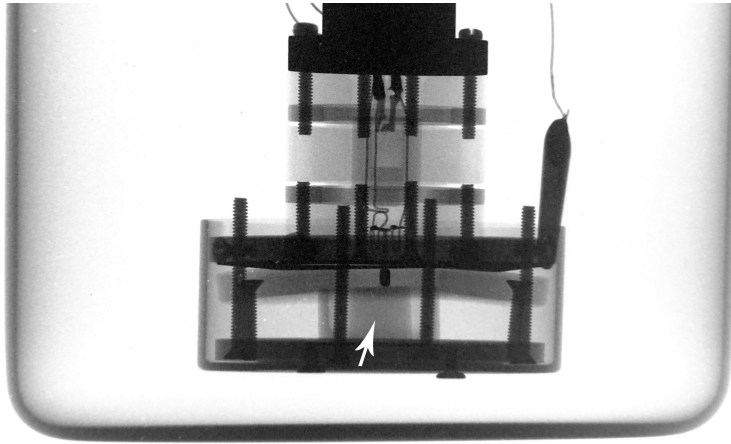
## 3 Results

### 3.1 Parameters of Si(Li) spectrometer

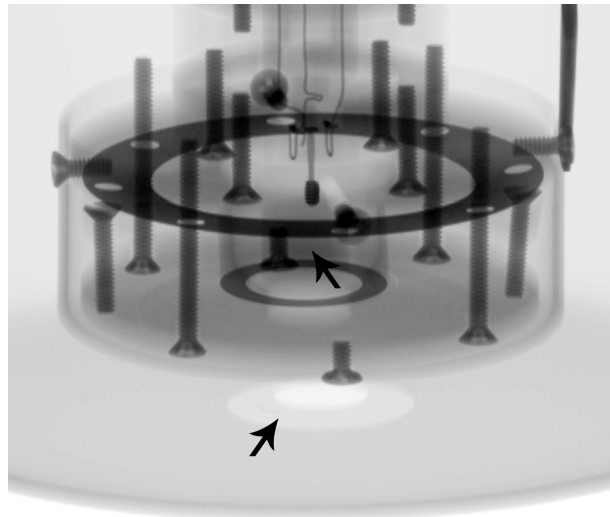
Figures 2 and 3 show a radiogram of the Si(Li) detector obtained with the film and the Timepix detector, respectively. The radiogram from the Timepix is composed of 15 individual exposures. Both radiograms clearly show shapes of individual parts of the detector that is necessary for the development of a precise MC model. A schematic drawing of the Si(Li) detector with parameters obtained from the radiograms and then used in the MC model is presented in figure 4. The following thicknesses of insensitive volumes of the Si crystal were defined in the MC model: 500  $\mu\text{m}$  at the rear, 175  $\mu\text{m}$  on the side, and 0.1  $\mu\text{m}$  at the front. In addition, there is an additional attenuation layer at the Si front made of 0.02  $\mu\text{m}$  of gold foil.

### 3.2 MC model validation

The net peak areas were calculated by the total peak area method with a step function for continuum subtraction [14]. True coincidence summing corrections were negligible. The combined standard uncertainty of the experiment consists of the uncertainty of the net peak area, the source activity, and the photon yield. All these components are presented in table 1. The uncertainty of the photon yield was taken from [11]. The standard uncertainties for dead-time measurement and for random summations were negligible. The standard uncertainty of the relative difference between experiment and simulation was obtained according to [15], section 5.1.2, assuming no correlation between uncertainty components.



**Figure 2.** Si(Li) detector radiogram obtained with a film. Image is in inverse colours. The arrow points to the Si crystal.

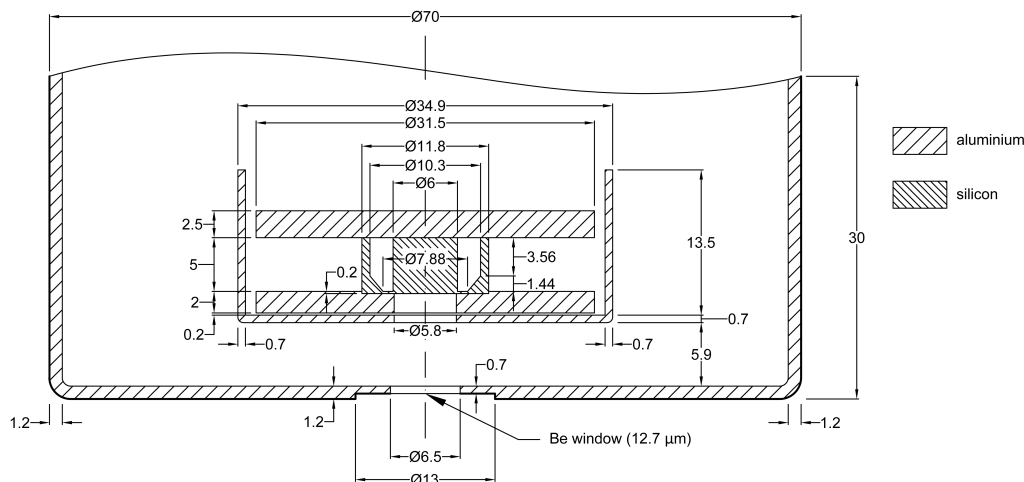


**Figure 3.** Si(Li) detector radiogram obtained with a Timepix detector. Image is in inverse colours. The arrows point to the entrance window in the end cap (the bottom one) and to the Si crystal.

Results of the comparison of the calculated and the experimental values of the FEP efficiencies are summarized in table 1 and visualized in figure 5. For all measured photon energies, relative differences vary within  $\pm 5\%$  which the authors consider to be an acceptable result with respect to uncertainties of the experimental efficiency values. Therefore, the MC model of the Si(Li) detector is validated and can be used for beta spectra simulations.

### 3.3 Beta spectrum comparison

The preliminary comparison of the measured beta spectrum of Pm-147 with the one calculated with the validated MC model is presented on figure 6. The spectra are compared absolutely in the number of counts per decay per energy interval of 2 keV width.

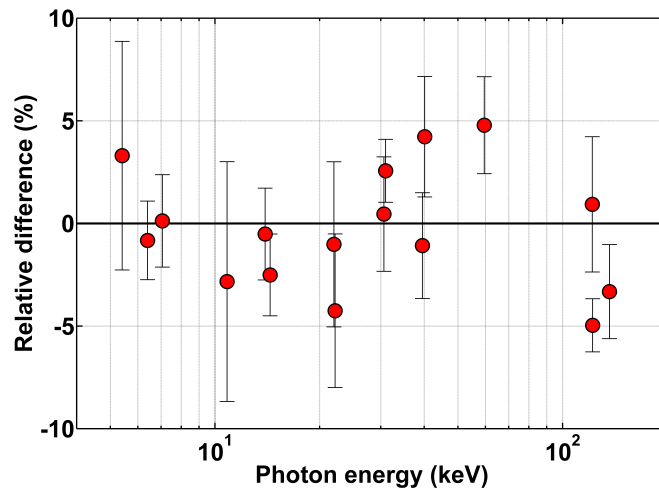


**Figure 4.** A schematic drawing of the Si(Li) detector and dimension obtained from radiograms and used in the MC model. Dimensions are given in millimetres.

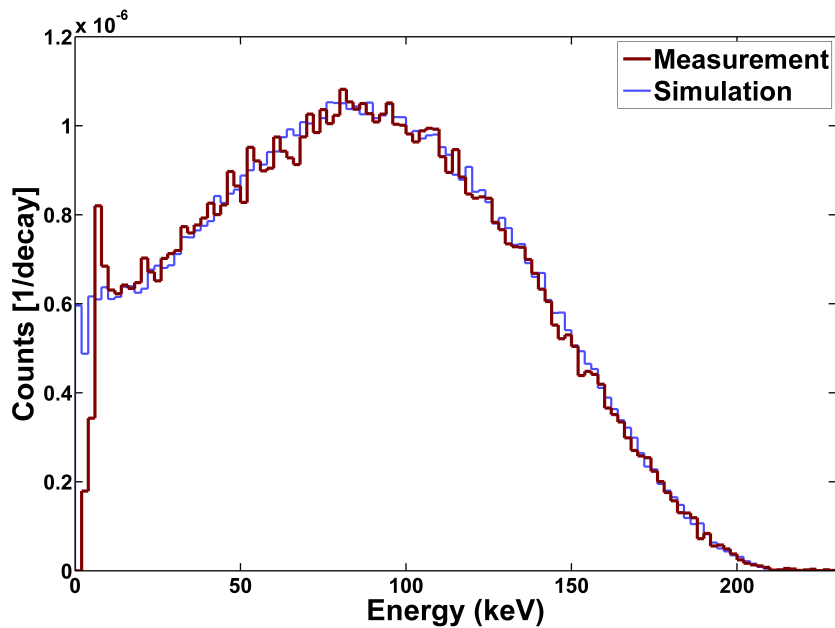
**Table 1.** Comparison of experimental ( $\eta_E$ ) and calculated ( $\eta_C$ ) values of full-energy peak efficiency.  $E$  is photon energy,  $u(A)$ ,  $u(Y)$ , and  $u(S)$  are experimental relative standard uncertainty of source activity, photon yield, and peak area, respectively,  $u(\eta_E)$  is experimental relative combined uncertainty, and  $RD$  is a relative difference obtained as  $RD = \eta_C/\eta_E - 1$ . Calculated relative standard uncertainty is always 0.2% and it consists of the statistical uncertainty of the calculation only.

Nuclide	Line	$E$ (keV)	$\eta_E$	$u(A)$	$u(Y)$	$u(S)$	$u(\eta_E)$	$\eta_C$	$RD$
Mn-54	Cr K $\alpha$	5.41	2.122E-04	1.0%	5.3%	0.3%	5.4%	2.192E-04	(3.3 $\pm$ 5.6)%
Co-57	Fe K $\alpha$	6.40	2.732E-04	1.2%	1.5%	0.1%	1.9%	2.710E-04	(-0.8 $\pm$ 1.9)%
Co-57	Fe K' $\beta$ 1	7.06	2.935E-04	1.2%	1.9%	0.3%	2.2%	2.939E-04	(0.1 $\pm$ 2.3)%
Pb-210	Bi L $\alpha$ 1	10.84	3.581E-04	1.5%	5.8%	0.2%	6.0%	3.479E-04	(-2.8 $\pm$ 5.8)%
Am-241	Np La1	13.95	3.593E-04	1.9%	1.0%	0.6%	2.2%	3.575E-04	(-0.5 $\pm$ 2.2)%
Co-57	$\gamma$	14.41	3.671E-04	1.2%	1.6%	0.2%	2.0%	3.579E-04	(-2.5 $\pm$ 2.0)%
Cd-109	Ag K $\alpha$ 2	21.99	3.488E-04	1.5%	3.7%	0.6%	4.1%	3.452E-04	(-1.0 $\pm$ 4.0)%
Cd-109	Ag K $\alpha$ 1	22.16	3.593E-04	1.5%	3.6%	0.3%	3.9%	3.440E-04	(-4.3 $\pm$ 3.7)%
Ba-133	Cs K $\alpha$ 2	30.63	2.467E-04	1.0%	2.6%	0.1%	2.8%	2.478E-04	(0.5 $\pm$ 2.8)%
Ba-133	Cs K $\alpha$ 1	30.97	2.372E-04	1.0%	1.1%	0.1%	1.5%	2.432E-04	(2.6 $\pm$ 1.5)%
Eu-152	Sm K $\alpha$ 2	39.52	1.487E-04	1.0%	2.4%	0.4%	2.6%	1.471E-04	(-1.1 $\pm$ 2.6)%
Eu-152	Sm K $\alpha$ 1	40.12	1.362E-04	1.0%	2.6%	0.3%	2.8%	1.420E-04	(4.2 $\pm$ 2.9)%
Am-241	$\gamma$	59.54	4.603E-05	1.9%	1.1%	0.4%	2.2%	4.823E-05	(4.8 $\pm$ 2.4)%
Eu-152	$\gamma$	121.78	5.185E-06	1.0%	0.2%	3.1%	3.3%	5.233E-06	(0.9 $\pm$ 3.3)%
Co-57	$\gamma$	122.06	5.468E-06	1.2%	0.2%	0.6%	1.3%	5.197E-06	(-5.0 $\pm$ 1.3)%
Co-57	$\gamma$	136.47	3.777E-06	1.2%	0.7%	1.9%	2.4%	3.651E-06	(-3.3 $\pm$ 2.3)%

The excellent agreement of the measured and simulated detector spectrum of Pm-147 confirms significant improvement of the beta spectra measurement and calculation originally published in [2] and prove the accuracy of the developed MC model of the Si(Li) detector and the whole geometry for the measurement of beta spectra.



**Figure 5.** Relative difference (RD) between measured ( $\eta_E$ ) and calculated ( $\eta_C$ ) full-energy peak efficiencies for photons from 5 to 136 keV, determined as  $RD = \eta_C/\eta_E - 1$ .



**Figure 6.** Comparison of measured (dark red) and calculated (light blue) beta spectrum of Pm-147 obtained with the Si(Li) detector.

#### 4 Conclusions

A Si(Li) spectrometer was characterized by X-ray radiography and the obtained detector parameters were used for preparation of an MCNPX<sup>TM</sup> input file usable for Monte Carlo calculations of beta



spectra. The MC model was validated using a set of point-like standard sources with X-ray and  $\gamma$ -ray emitting radionuclides. Measured and calculated full-energy peak efficiencies agreed within  $\pm 5\%$ . The accuracy of the MC model was demonstrated on the comparison of the calculated beta spectrum of a radionuclide Pm-147 with the one measured by the Si(Li) detector.

The MC model will be used for calculation of beta spectra mixtures and minimum detectable activities determination, especially for radionuclides Sr-89, Sr-90, Y-90, P-32 and P-33. The results will permit to decrease the uncertainty of absolute activity measurement of pure beta radionuclides and radionuclide impurities determination in radiopharmaceuticals.

## Acknowledgments

This work was supported by the European Metrology Programme for Innovation and Research (EMPIR) joint research project 15SIB10 “Radionuclide beta spectra metrology” (MetroBeta; <http://metrobeta-empir.eu/>) which has received funding from the European Union. The EMPIR initiative is co-funded by the European Union’s Horizon 2020 research and innovation programme and the EMPIR Participating States.

## References

- [1] International Atomic Energy Agency, *Quality Assurance for Radioactivity Measurement in Nuclear Medicine*, Technical Report Series No. 454, IAEA, Vienna Austria (2006).
- [2] P. Dryák and P. Kovář, *Use of a Si(Li) detector as  $\beta$  spectrometer*, *Appl. Radiat. Isot.* **87** (2014) 325.
- [3] M. Mesradi, A. Elanique, A. Nourredine, A. Pape, D. Raiser and A. Sellam, *Experimental characterization and Monte Carlo simulation of Si(Li) detector efficiency by radioactive sources and PIXE*, *Appl. Radiat. Isot.* **66** (2008) 780.
- [4] N. López-Pino et al., *Monte Carlo semi-empirical model for Si(Li) x-ray detector: Differences between nominal and fitted parameters*, *AIP Conf. Proc.* **1529** (2013) 134.
- [5] ORTEC AMETEK-AMT, (2017) <http://www.ortec-online.com/>.
- [6] X. Llopart, R. Ballabriga, M. Campbell, L. Tlustos and W. Wong, *Timepix, a 65 k programmable pixel readout chip for arrival time, energy and/or photon counting measurements*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **581** (2007) 485 [Erratum *ibid.* **A 585** (2008) 106].
- [7] J. Jakubek, D. Vavrik, S. Pospisil and J. Uher, *Quality of X-ray transmission radiography based on single photon counting pixel device*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **546** (2005) 113.
- [8] D.B. Pelowitz et al., *MCNPX<sup>TM</sup> 2.7.E Extensions — A General Monte Carlo N Particle Transport Code*, LA-UR-11-01502 (2011).
- [9] M.C. White, *Further Notes on MCPLIB03/04 and New MCPLIB63/84 Compton Broadening Data For All Versions of MCNP5*, LA-UR-12-00018 (2012).
- [10] X-5 Monte Carlo Team, *MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. Volume I: Overview and Theory*, LA-UR-03-1987 (2003).
- [11] Laboratoire National Henri Becquerel, *DDEP Decay Data Evaluation Project*, (2017) [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm).

- [12] Czech Metrology Institute, *Radionuclide Calibration Standards*, (2017)  
<http://www.eurostandard.cz/Eurostandard-catalog-2011.pdf>.
- [13] Radiation Dose Assessment Resource, *Compilation of beta spectra, Decay Data*, (2017)  
<http://www.doseinfo-radar.com/BetaSpec.zip>.
- [14] Canberra, *Genie 2000 Gamma Acquisition & Analysis software V3.2.1*, (2009).
- [15] JCGM, *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement*, JCGM 100:2008 (2008).

2018 JINST 13 P01021